



HAL
open science

Echanges de charge et perte d'énergie d'ions lourds ralentis, canalisés dans des cristaux de silicium

Etienne Testa

► **To cite this version:**

Etienne Testa. Echanges de charge et perte d'énergie d'ions lourds ralentis, canalisés dans des cristaux de silicium. Physique des Hautes Energies - Expérience [hep-ex]. Université Claude Bernard - Lyon I, 2005. Français. NNT : 2005LYO10166 . tel-00011662

HAL Id: tel-00011662

<https://theses.hal.science/tel-00011662>

Submitted on 22 Feb 2006

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.



Distributed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License



N° d'ordre 166-2005
LYCEN – T 2005-34

Thèse

présentée devant

l'Université Claude Bernard Lyon-I

pour l'obtention du

DIPLOME de DOCTORAT
Spécialité **PHYSIQUE des PARTICULES**

(arrêté du 25 avril 2002)

par

Etienne TESTA

Echanges de charge et perte d'énergie d'ions lourds ralentis, canalisés dans des cristaux de silicium.

Soutenue le 20 octobre 2005
devant la Commission d'Examen

Jury :	M.	L.	Adoui	Rapporteur
	M.	A.	L'Hoir	Rapporteur
	M.	B.	Ille	Président du Jury
	M.	M.	Boutemeur	
	M.	D.	Dauvergne	
	Mme	A.	Demian-Bräuning	
	M.	R.	Rivarola	
	M.	M.	Chevallier	Directeur de thèse



N° d'ordre 166-2005

LYCEN – T 2005-34

Thèse

présentée devant

l'Université Claude Bernard Lyon-1
pour l'obtention du
DIPLOME de DOCTORAT
(arrêté du 25 avril 2002)

par

Etienne TESTA

Echanges de charge et perte d'énergie d'ions lourds ralentis, canalisés dans des cristaux de silicium

soutenue le 20 octobre 2005
devant la Commission d'Examen

Jury

Rapporteurs :	M.	L.	Adoui
	M.	A.	L'Hoir
Examineurs :	M.	M.	Boutemeur
	M.	D.	Dauvergne
	Mme	A.	Demian-Braüning
	M.	B.	Ille
	M.	R.	Rivarola
Directeur de thèse :	M.	M.	Chevallier

Remerciements

Ce travail a été réalisé au sein du groupe des *Collisions Atomiques dans les Solides* de l'institut de Physique Nucléaire de Lyon.

Tout d'abord, je tiens à exprimer ma plus profonde reconnaissance envers Michel Chevallier et Denis Dauvergne qui m'ont accueilli dans leur équipe. J'ai pu tout au long de ces trois années bénéficier de leur expérience et de leur rigueur scientifique dans une atmosphère de travail particulièrement agréable. Ce travail doit notamment beaucoup aux nombreuses conversations « édifiantes » que j'ai eues avec Denis.

Je souhaite également remercier chaleureusement Jean-Claude Poizat qui m'a toujours fait profiter de son savoir avec enthousiasme et pédagogie et Cédric Ray qui a su apporter une brillante solution à chacun de mes soucis techniques ou à mes coups de blues métaphysiques. Je n'oublie pas Robert Kirsch à l'ingéniosité et à la bonne humeur légendaires qui est malheureusement parti en retraite trop tôt ...

Je remercie également les membres de la collaboration sur le programme de canalisation des ions très lourds et très chargés extraits de l'anneau de stockage de GSI. Je tiens en particulier à exprimer ma reconnaissance envers Angela Braüning-Demian qui s'est beaucoup investie pour que ces expériences de canalisation dans la cave A se déroulent le mieux possible malgré les difficultés techniques que présente l'extraction du faisceau d'ions de l'ESR. J'ai pu également profiter de l'expertise de Camille Cohen et d'Alain L'Hoir aussi bien sur l'histoire du sport et de la chanson française que sur la physique de la canalisation des ions dans les cristaux. Le plaisir que j'ai eu à participer aux expériences à GSI mais aussi au GANIL pour les expériences de blocking ou sur le NEEC leur doit beaucoup.

Je remercie très chaleureusement Roberto Rivarola (ainsi que Paula Abufager et Neniña) de m'avoir accueilli à Rosario pour que nous puissions compléter par une approche

théorique l'étude expérimentale de ce travail sur la dépendance de la capture électronique en fonction du paramètre d'impact.

J'exprime également ma reconnaissance envers les membres du jury et particulièrement envers Lamri Adoui et Alain L'Hoir qui ont accepté d'être les rapporteurs de cette thèse et envers Bernard Ille qui a présidé le jury.

Enfin, merci à Julie de m'avoir accompagné au cours de cette dernière année de thèse et de m'avoir kidnappé pour quelques week-ends salvateurs.

Que mes parents trouvent ici le témoignage de ma profonde reconnaissance pour le soutien qu'ils m'ont apporté tout au long de mes études ...

Sommaire

SOMMAIRE	1
INTRODUCTION	5
CHAPITRE I CAPTURE ET PERTE D'ENERGIE D'IONS LOURDS EN CONDITION DE CANALISATION	9
A. LA CANALISATION D'IONS DANS UN CRISTAL	9
I. <i>Le cône d'ombre derrière un atome</i>	9
II. <i>Le potentiel continu</i>	10
1) Définition de l'espace transverse accessible	10
2) Cartes de l'énergie potentielle transverse et de la densité électronique moyenne de l'axe <110> du silicium	12
3) Influence des vibrations thermiques sur le potentiel continu	13
4) L'équilibre du flux	14
III. <i>Validité du modèle</i>	16
1) Validité de l'approximation du potentiel continu	16
2) Conservation de l'énergie transverse et décanalisation	16
3) Validité de la description classique des trajectoires d'ions canalisés	19
IV. <i>Extinction des interactions à faibles paramètres d'impact</i>	20
V. <i>La perte d'énergie</i>	20
1) Perte d'énergie dans une cible solide	20
2) Perte d'énergie en condition de canalisation	23
B. LES PROCESSUS D'ECHANGES DE CHARGE	24
I. <i>Les processus de capture d'électrons</i>	24
1) La capture mécanique (MEC)	24
2) La capture radiative (REC)	29
3) Processus résonnants	33
II. <i>Les processus de perte d'électrons</i>	35
1) L'excitation et l'ionisation par impact nucléaire (EII et NII)	35
2) L'excitation et l'ionisation par impact électronique (EIE et EII)	35
III. <i>Distribution de charge dans une cible solide</i>	37
C. ILLUSTRATION DE L'APPORT ORIGINAL DE LA CANALISATION	37
I. <i>Etudes du MEC en fonction du paramètre d'impact</i>	38

Sommaire

1)	La technique de spectroscopie par ion de recul (RIMS).....	38
2)	Etude en condition de canalisation.....	39
II.	<i>Etude de l'effet de sillage sur le REC</i>	41
1)	Le champ de sillage.....	41
2)	Conséquences pour le REC.....	44
III.	<i>Le profil Compton des électrons cible</i>	47
IV.	<i>La perte d'énergie</i>	48
1)	Contribution des différentes couches atomiques à la perte d'énergie.....	49
2)	Traitement théorique de la dépendance en paramètre d'impact de la perte d'énergie.....	50
3)	Non-localité de la perte d'énergie d'ions lourds.....	51
4)	Ralentissement d'ions lourds hydrogénoïdes en condition de canalisation.....	53
CHAPITRE II PROGRAMMES DE SIMULATIONS.....		55
A.	SIMULATIONS DE TRAJECTOIRES D'IONS CANALISES.....	55
I.	<i>Exemples de simulations</i>	55
II.	<i>Le programme utilisé dans notre étude</i>	57
1)	Vue d'ensemble et hypothèses.....	57
2)	Le principe du calcul de trajectoires.....	59
III.	<i>Distributions de paramètres d'impact et densités électroniques rencontrées</i>	61
B.	SIMULATIONS D'ECHANGES DE CHARGE D'IONS CANALISES.....	64
I.	<i>Exemples d'études nécessitant des calculs de trajectoires</i>	64
II.	<i>Etudes fondées sur l'équilibre du flux</i>	65
1)	Distributions d'énergies transverses et probabilité moyenne d'occurrence $P(\epsilon_{\perp})$ d'un processus d'interaction ion-électron.....	65
2)	Etude des échanges de charge.....	67
3)	Les potentiels continus utilisés.....	69
4)	Simulation de la forme des raies de REC.....	73
CHAPITRE III DISPOSITIF EXPERIMENTAL.....		77
A.	LE FAISCEAU.....	77
I.	<i>Production</i>	77
II.	<i>Caractéristiques du faisceau extrait</i>	79
B.	LE CRISTAL ET LE DISPOSITIF DE DETECTION.....	80
I.	<i>Le cristal</i>	82
1)	Elaboration.....	82
2)	Caractérisation et pré-orientation de la cible.....	83
3)	Orientation du cristal : le goniomètre.....	84
II.	<i>Les détecteurs</i>	85
1)	Détection des photons.....	85
2)	Détection des électrons émis en surface du cristal-cible.....	87
3)	Analyse en charge et en énergie des ions transmis.....	89

C.	LE SYSTEME D'ACQUISITION.....	91
I.	<i>Elaboration des signaux électroniques</i>	91
II.	<i>Sélection et enregistrement des événements</i>	91
	1) Les discriminateurs.....	91
	2) La trigger box et le CAMAC.....	92
CHAPITRE IV COMPETITION ENTRE MEC ET REC POUR DES IONS U⁹¹⁺ DE 20 MEV/U		
DANS UN CRISTAL MINCE DE SILICIUM.....		95
A.	MESURES.....	95
I.	<i>Choix du cristal</i>	95
II.	<i>Mesures d'états de charge à la sortie de la cible</i>	96
	1) L'identification des états de charge par analyse magnétique.....	96
	2) Evolution de la qualité du faisceau au cours de l'extraction des ions de l'anneau de stockage 98	
	3) Les distributions d'états de charge.....	99
III.	<i>Perte d'énergie des ions canalisés</i>	104
	1) La perte d'énergie des ions gelés.....	104
	2) Multiplicités d'électrons collectés par les détecteurs Si-in et Si-out.....	106
	3) Les deux populations de faibles états de charge obtenues en canalisation planaire.....	112
IV.	<i>Spectres de raies X</i>	115
	1) Spectres en orientation aléatoire et en canalisation axiale	115
	2) Etalonnage en énergie et efficacité des détecteurs.....	121
	3) Identification des raies L	124
	4) Probabilité de capture mécanique des ions n'ayant fait qu'une capture : P(MEC Qout=90)	126
	5) Evolution des taux de capture en fonction de Qout	129
V.	<i>Les balayages angulaires</i>	132
B.	SIMULATIONS	135
I.	<i>Les simulations des échanges de charge</i>	135
	1) Le programme d'échange de charge.....	135
	2) Les grandeurs déterminées par calcul de trajectoires.....	159
	3) Probabilité de MEC effectif par atome	165
II.	<i>Simulation de la forme de raie de REC-K</i>	173
CHAPITRE V RALENTISSEMENT D'IONS PB⁸¹⁺ DE 13 MEV/U DANS UN CRISTAL DE		
SILICIUM DE 37 μM.....		177
A.	MESURES.....	177
I.	<i>Cristal de silicium de 1,1 μm d'épaisseur</i>	177
	1) Distributions de charge.....	177
	2) Spectres de raies X	183
II.	<i>Cristal de silicium de 37 μm d'épaisseur</i>	188
	1) Distributions de position X sur le détecteur de particules	188

Sommaire

2)	Spectres de raies X.....	189
3)	Perte d'énergie des ions les mieux canalisés.....	193
B.	SIMULATIONS.....	194
I.	<i>Le cristal de 1,1 μm : détermination de σ_{REC}</i>	194
II.	<i>Le cristal de 37 μm</i>	196
1)	Spectres X.....	196
2)	Les échanges de charge.....	199
CONCLUSION		205
BIBLIOGRAPHIE		209

Introduction

La technique de canalisation de particules chargées positivement dans un cristal permet de diminuer fortement la probabilité des événements associés aux collisions proches de ces particules avec les atomes cible. En effet, lorsque le faisceau de particules est aligné avec une direction cristalline, les collisions particule-atome cible sont fortement corrélées et elles tendent à concentrer le flux loin des rangées ou des plans atomiques. Cette redistribution du flux permet d'étudier les interactions ions-noyaux, ions-atomes et ions-électrons localement ainsi que les effets cohérents de l'interaction des ions avec le champ périodique des rangées atomiques.

Jusqu'au début des années 80, l'interaction particule-matière a été étudiée avec des projectiles relativement légers, d'énergies allant du keV aux énergies relativistes. Le développement des grands accélérateurs a ensuite permis des expériences de canalisation d'ions lourds très épluchés et rapides (de plusieurs dizaines de MeV/u), notamment au Grand Accélérateur National d'Ions Lourds (GANIL). Ces expériences ont essentiellement porté sur l'étude des échanges de charge et la perte d'énergie des projectiles. En utilisant des ions incidents très loin de leur équilibre de charge dans la matière, il est possible d'effectuer une étude détaillée des processus d'interaction particule-matière en effectuant des sélections sur l'état de charge en sortie d'un cristal mince. Par exemple, les ions qui conservent leur état de charge incident lors de la traversée du cristal sont des ions bien canalisés, qui restent loin des atomes cible et qui ne rencontrent pratiquement qu'un gaz non uniforme d'électrons.

Depuis un peu plus d'une dizaine d'années, l'accélérateur GSI à Darmstadt (Allemagne) peut fournir des ions très lourds, très chargés (hydrogénoïdes) à des vitesses intermédiaires (de quelques MeV/u) pour lesquelles le paramètre d'adiabaticité $\eta = (E_C / E_K) (m_e / M_p)$ (où E_C , E_K et M_p sont respectivement l'énergie cinétique, l'énergie de liaison de la couche K

Introduction

et la masse du projectile, m_e est la masse de l'électron) est très petit devant l'unité. Ces ions sont donc très loin de leur équilibre de charge dans la matière et la canalisation dans un cristal est un moyen unique d'étudier en fonction du paramètre d'impact les processus de capture : la capture dite mécanique (en anglais « Mechanical Electron Capture », MEC) qui est, hors canalisation, le processus dominant pour ces ions et la capture radiative (« Radiative Electron Capture », REC). Par ailleurs, les projectiles très chargés et relativement lents perturbent fortement le gaz dense d'électrons dans lequel ils se propagent, en modifiant la densité électronique rencontrée au voisinage de leur trajectoire, et ici encore, la canalisation est un moyen privilégié pour étudier cette perturbation, grâce à la forte réduction de la probabilité de capture mécanique des ions bien canalisés.

Dans ce contexte, la première expérience, réalisée dans ce travail avec des ions U^{91+} de 20 MeV/u, visait tout d'abord à étudier la compétition entre les deux processus de capture MEC et REC, en fonction de la distance minimale d'approche des ions vis-à-vis des rangées ou des plans cristallins et déterminer en particulier la probabilité $P(b)$ de capture mécanique par atome en fonction du paramètre d'impact b . La connaissance des probabilités d'échange de charge en fonction du paramètre d'impact est relativement faible car le paramètre d'impact n'est pas directement mesurable. La technique de spectroscopie par ion de recul (RIMS) qui a connu un développement rapide ces dernières années a permis cependant d'étudier ces processus en détails et de relancer l'intérêt d'une meilleure compréhension des mécanismes fondamentaux qui ont lieu lors des collisions ion-atome. Alors que cette technique est plutôt destinée aux études de systèmes relativement légers en condition de collision unique à faible vitesse (cible gazeuse), la canalisation est plus appropriée dans le cas de projectiles lourds très chargés et elle permet de plus d'utiliser une cible solide mince (le projectile interagit avec un grand nombre d'atomes). La RIMS et la canalisation apparaissent donc comme des techniques complémentaires pour la mesure des probabilités d'échanges de charge dans les collisions atomiques.

Nous avons également cherché lors de cette expérience de canalisation d'ions très lourds hydrogénoïdes à étudier la polarisation locale du gaz d'électrons cible par l'intermédiaire de la capture radiative. Ce genre de mesures a été effectué jusqu'à présent avec des ions beaucoup plus légers pour lesquels l'effet de la polarisation du gaz d'électrons sur la capture

radiative était plus faible et ne permettait pas réellement de conclure sur l'augmentation de la densité électronique au voisinage proche du projectile.

La seconde expérience, réalisée avec des ions Pb^{81+} de 13 MeV/u, cherchait à montrer expérimentalement la possibilité pour les ions les mieux canalisés d'être transmis à travers un cristal relativement épais sans avoir capturé d'électron et en subissant une forte perte d'énergie grâce à leur état de charge élevé. Outre son intérêt dans l'étude fondamentale de la perte d'énergie des ions qui induisent une forte perturbation du milieu cible, le ralentissement d'ions lourds très chargés à des énergies de quelques MeV/u pourrait avoir un intérêt pratique. Le piégeage de ces ions pour des études spectroscopiques nécessite en effet un ralentissement des ions, qui est difficile à ces énergies.

Dans la première partie de ce travail, nous présentons la canalisation d'ions lourds dans le cadre de l'approximation du potentiel continu et l'apport original de cette technique dans l'étude de l'interaction particule-matière. Les deuxième et troisième parties décrivent respectivement les programmes de simulation qui ont été utilisés dans l'analyse de nos mesures et l'appareillage de nos expériences. Le quatrième chapitre est consacré à l'étude de la compétition entre les processus de capture avec l'expérience de canalisation des ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ d'un cristal de silicium de 11,7 μm d'épaisseur. L'expérience sur le ralentissement des ions Pb^{81+} de 13 MeV/u canalisés le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ de cristaux de 1,1 et de 37 μm d'épaisseur est décrite dans le dernier chapitre.

Chapitre I

Capture et perte d'énergie d'ions lourds en condition de canalisation

A. La canalisation d'ions dans un cristal

Lorsqu'un faisceau d'ions rapides positifs pénètre dans un monocristal le long d'un axe ou d'un plan cristallins, la probabilité des événements associés aux collisions proches avec les noyaux est fortement réduite (réactions nucléaires, diffusions à grands angles ...). Ceci est caractéristique du phénomène de canalisation. Il est dû au fait que les collisions binaires subies par les ions sont fortement corrélées quand le faisceau est pratiquement aligné avec une direction cristalline et qu'elles tendent à repousser les ions loin des axes ou des plans cristallins. Un flux uniforme d'ions qui entrent dans un cristal en condition de canalisation est donc progressivement concentré au centre du canal délimité par les rangées ou les plans atomiques.

I. Le cône d'ombre derrière un atome

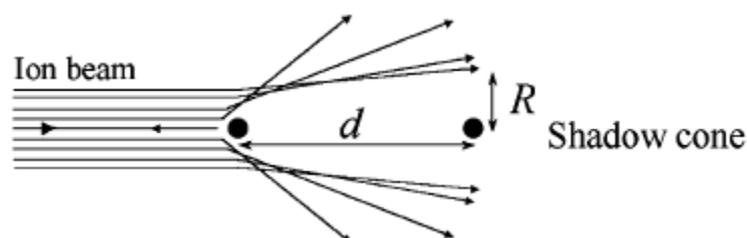


figure 1 : formation d'un cône d'ombre [Cohen *et al.* 2004].

Considérons un faisceau uniforme d'ions qui entrent en collision avec une rangée d'atomes. La direction du faisceau et l'axe de la rangée sont alignés (figure 1). Les ions sont repoussés par le potentiel coulombien écranté du premier atome et la déflexion est d'autant plus grande que le paramètre d'impact de la collision est faible. Il se forme donc un cône d'ombre de rayon R au niveau du second atome. A un facteur d'écrantage près, R est proportionnel à $(Z_p Z_c d/E)^{1/2}$ où Z_p , Z_c sont respectivement les numéros atomiques du projectile et de l'atome cible, d est la distance interatomique et E est l'énergie des ions. Si R est supérieur à l'amplitude des vibrations thermiques du cristal, les collisions proches, susceptibles de conduire à des réactions nucléaires par exemple, sont impossibles sur le second atome ainsi que sur les suivants.

II. Le potentiel continu

1) Définition de l'espace transverse accessible

La trajectoire des ions peut être calculée par des simulations Monte Carlo qui déterminent l'angle de diffusion lors de chaque collision binaire. On peut cependant, sous certaines conditions (voir le paragraphe III.1)), considérer que la série discrète de collisions binaires est assimilable à l'interaction continue du projectile avec une droite ou un plan uniformément chargés. Dans le cas d'une rangée, le potentiel continu $U_r(r)$, pour un projectile de charge unité, est défini de la manière suivante :

$$U_r(r) = \frac{2}{d} \int_0^{\infty} V[(r^2 + z^2)^{1/2}] dz \quad \text{équation 1}$$

où V est le potentiel coulombien écranté d'un seul atome cible et z la profondeur de pénétration. Le potentiel continu d'un plan d'atomes est défini de manière similaire. En sommant les potentiels continus de rangées ou de plans atomiques, on obtient le potentiel transverse dans une direction particulière du cristal.

On peut définir l'énergie transverse E_{\perp} comme la somme des énergies cinétique et potentielle transverse : $E_{\perp} = \frac{1}{2} p_z v_p \psi^2 + QU(\vec{r})$, où v_p , p_z et Q sont respectivement la vitesse, l'impulsion et la charge de l'ion et ψ l'angle que fait la trajectoire de l'ion avec la rangée ou le plan atomique. Dans cette définition, les ions sont implicitement assimilés à des

charges ponctuelles, ce qui est raisonnable dans le cas des ions lourds comme l'uranium car les orbitales atomiques K, L et M sont localisées autour du noyau à des distances inférieures à 0,1 Å. Aux énergies non relativistes, E_{\perp} s'écrit :

$$E_{\perp} = E\psi^2 + QU(\vec{r}) \quad \text{équation 2}$$

où E est l'énergie cinétique des ions.

Dans le cadre du potentiel continu, la conservation de l'impulsion longitudinale implique celle de l'énergie transverse, qui ne dépend donc que des conditions initiales (r_i, ψ_i). Les mouvements transverse et longitudinal sont découplés.

On peut définir statistiquement une limite en énergie transverse E_{\perp}^{\max} au-delà de laquelle un ion ne peut pas être canalisé. Dans le cas de la canalisation axiale, elle peut par exemple être définie comme l'énergie transverse pour laquelle les ions approchent les rangées atomiques à des distances inférieures à l'amplitude moyenne u_2 des vibrations thermiques (voir paragraphe A.II.3)). Dans ce cas, on a $E_{\perp}^{\max} = QU(u_2)$, ce qui correspond à un angle critique de canalisation $\psi_c = E_{\perp}^{\max}/E$ qui dépend du choix de potentiel écrané. Dans le cas de la canalisation axiale, l'expression de l'angle critique généralement utilisée est la suivante [Lindhard 1965] :

$$\psi_c^{\text{axial}} = \left(\frac{2QZ_c e^2}{Ed} \right)^{1/2} \quad \text{équation 3}$$

La figure 2 présente trois trajectoires caractéristiques au voisinage d'une rangée d'atomes à l'entrée d'un cristal. Les deux premières sont des trajectoires d'ions qui entrent loin des rangées atomiques, avec une énergie potentielle $U(\vec{r}_i)$ pratiquement nulle. L'ion (1) a un angle d'incidence ψ_i inférieur à ψ_c ; son énergie transverse est donc inférieure à E_{\perp}^{\max} et l'ion atteint la rangée d'atomes en incidence rasante avec une distance minimale d'approche r_{\min} . L'ion (2), en revanche, ne peut pas être canalisé puisque son angle d'incidence ψ_i est supérieur à ψ_c . Il subit donc rapidement une diffusion à grand angle sur un noyau cible tout comme l'ion (3) qui entre dans le cristal à une distance $|\vec{r}_i|$ de la rangée atomique inférieure à l'amplitude moyenne des vibrations thermiques.

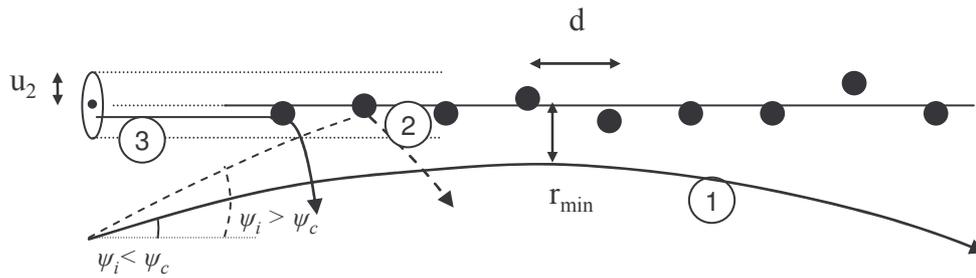


figure 2 : représentation schématique de trajectoires le long d'une rangée atomique : (1) trajectoire d'un ion (canalisé) qui entre loin de la rangée avec $\psi_i < \psi_c$. (2) trajectoire d'un ion qui entre loin de la rangée avec $\psi_i > \psi_c$. (3) trajectoire d'un ion qui entre à l'intérieur des vibrations thermiques des atomes cible. Les échelles longitudinale et transverse ne sont pas respectées.

A chaque énergie transverse sont associés un espace transverse accessible $A(E_{\perp})$, délimité par une ligne d'équipotentiel $\varepsilon_{\perp} = E_{\perp} / Q$ (où ε_{\perp} est l'énergie transverse réduite), et une distance minimale d'approche aux rangées r_{min} .

2) Cartes de l'énergie potentielle transverse et de la densité électronique moyenne de l'axe <110> du silicium

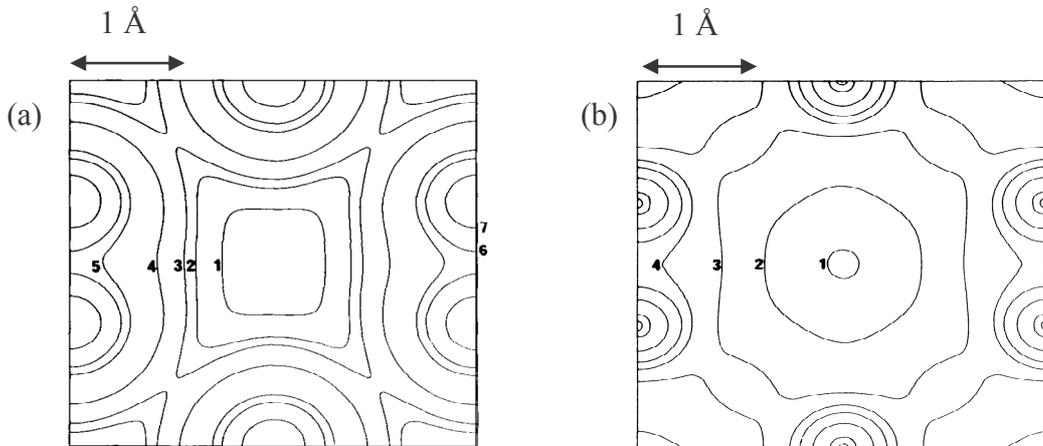


figure 3 : (a) Carte de l'énergie potentielle transverse de l'axe <110> du silicium. Les lignes d'équipotentiel représentées correspondent respectivement aux énergies de 0,5 ; 1,5 ; 2,25 ; 5 ; 15 ; 21 et 50 eV pour une charge unitaire. (b) Carte de la densité électronique moyenne sur le même axe. Les contours 1 à 8 correspondent respectivement aux densités 0,032 ; 0,1 ; 0,24 ; 0,5 ; 1,0 ; 3,0 ; 10,0 et 30 $e^{-\text{\AA}^{-3}}$. D'après [L'Hoir *et al.* 1990].

L'Hoir *et al.* [L'Hoir *et al.* 1990] ont calculé le potentiel continu et la densité électronique moyenne le long de l'axe <110> du silicium (cartes indicées respectivement (a) et (b) dans la figure 3). Les densités d'électrons de cœur ont été déterminées en utilisant les fonctions d'onde électroniques des atomes de silicium isolés. Celles des 4 électrons de

valence ont été déduites des calculs de pseudo-potentiel non local de Chelikovsky et Cohen [Chelikovsky *et al.* 1976].

Les lignes d'équipotentiel sont relativement concentriques près des rangées où l'influence des rangées voisines est négligeable. Ce n'est plus le cas lorsqu'on sort des orbitales de cœur. Les ions dont l'énergie transverse réduite ε_{\perp} est supérieure à 2,5 eV environ peuvent passer d'un canal à l'autre (puisque les lignes d'équipotentiel délimitant leur espace transverse accessible sont ouvertes). En revanche, les particules de plus faible énergie transverse restent à l'intérieur de lignes d'équipotentiel fermées (notées 1, 2 et 3 sur la figure 3(a)) ; elles sont dites hypercanalisées. On remarque que les lignes de densité d'électron constante ont à peu près la même forme que les lignes d'équipotentiel ; les électrons de cœur sont notamment localisés à des distances, vis-à-vis des rangées atomiques, typiquement inférieures à 0,5 Å.

3) Influence des vibrations thermiques sur le potentiel continu

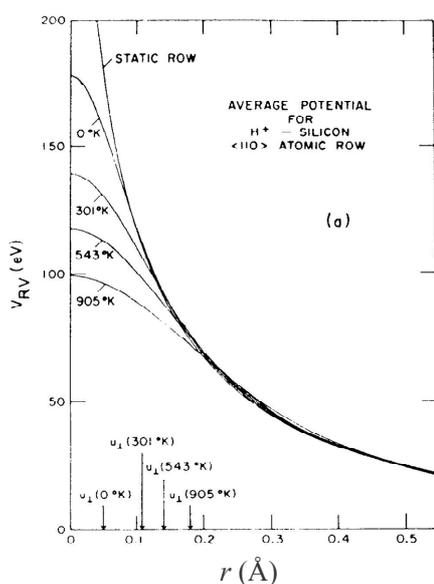


figure 4 : potentiels continus axiaux de protons calculés à partir du potentiel ion-atome de Moliere en fonction de la distance r à une rangée $\langle 110 \rangle$ d'un cristal de silicium à différentes températures. $u_{\perp} = u_2 = \sqrt{2}u_1$ [Appleton *et al.* 1967].

Les atomes des rangées ont été considérés comme fixes dans les calculs de L'Hoir *et al.* Cette approximation surestime nettement le potentiel continu au voisinage des rangées. Pour prendre en compte le déplacement thermique des atomes, Appleton *et al.* [Appleton *et al.* 1967] ainsi que Barrett [Barrett 1971] ont supposé que les atomes vibrent indépendamment les uns des autres et que leur distribution spatiale autour d'un site cristallin est gaussienne dans chaque dimension de l'espace :

$$P(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi u_1^2}} e^{-\frac{x^2}{2u_1^2}} \quad \text{équation 4}$$

où u_1 est la valeur moyenne quadratique du déplacement thermique dans une direction. A deux dimensions, cette valeur, notée u_2 est égale à $\sqrt{2}u_1$.

Le potentiel continu d'une rangée de l'axe $\langle 110 \rangle$ d'un cristal de silicium est représenté sur la figure 4 en fonction de la distance r à la rangée et pour différentes températures ; plus la température est élevée, plus les atomes vibrent et moins le potentiel continu ressemble à celui d'un fil infiniment mince, qui diverge pour $r=0$.

4) L'équilibre du flux

La manière dont les ions occupent l'espace transverse a été étudiée à la fois expérimentalement et par des simulations Monte Carlo. A titre d'exemple, la figure 5 présente une simulation de la variation d'un flux d'ions en fonction de la profondeur de pénétration. Ce flux correspond au nombre de protons de 10 MeV (par unité de temps et de surface) canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ à des distances aux rangées plus grandes que $r_{min}=1,2 \text{ \AA}$. Il est normalisé à sa valeur à l'entrée du cristal. A $z=0$, le flux est donc, par définition, égal à 1. Il augmente ensuite rapidement jusqu'au premier maximum qui correspond à la focalisation, derrière la surface d'entrée du cristal, des ions vers le centre du canal. Après quelques oscillations, le flux se stabilise autour d'une valeur normalisée, égale à 2, qui dépend de la distance r_{min} considérée. La stabilisation du flux s'effectue quelque soit l'espace transverse considéré. Elle correspond à l'établissement d'un équilibre statistique du flux : après les premières oscillations au cours desquelles la trajectoire des ions dépend encore beaucoup de leurs conditions d'incidence, la probabilité $P(\vec{r}|\varepsilon_{\perp})$ de présence au point \vec{r} d'un ion d'énergie transverse réduite ε_{\perp} est parfaitement définie et indépendante de z . Dans l'axe, on peut montrer que l'ion occupe chaque point de l'espace transverse accessible de manière équiprobable à partir d'une certaine profondeur [Lindhard 1965]. La probabilité $P(\vec{r}|\varepsilon_{\perp})$ peut donc s'écrire de la manière suivante :

$$P_{axe}(\vec{r}|\varepsilon_{\perp}) = \begin{cases} \frac{1}{A(\varepsilon_{\perp})} & \text{pour } U_{axe}(\vec{r}) < \varepsilon_{\perp} \\ 0 & \text{pour } U_{axe}(\vec{r}) > \varepsilon_{\perp} \end{cases} \quad \text{équation 5}$$

En canalisation planaire, les ions oscillent entre deux plans d'atomes avec une longueur d'onde qui dépend de leur énergie transverse. Par définition, l'équilibre du flux ne peut pas avoir lieu. Cependant, on peut définir, en moyenne sur l'ensemble du cristal, une distribution du flux $P_{plan}(y|\varepsilon_{\perp})$, fonction de la position y sur l'axe orthogonal aux plans d'atomes :

$$P_{plan}(y|\varepsilon_{\perp}) = \begin{cases} \frac{C}{d_p} \left(\frac{\varepsilon_{\perp}}{\varepsilon_{\perp} - U_{plan}(y)} \right)^{1/2} & \text{pour } U_{plan}(y) < \varepsilon_{\perp} \\ 0 & \text{pour } U_{plan}(y) > \varepsilon_{\perp} \end{cases} \quad \text{équation 6}$$

où d_p est la distance interplanaire et C est une constante de normalisation.

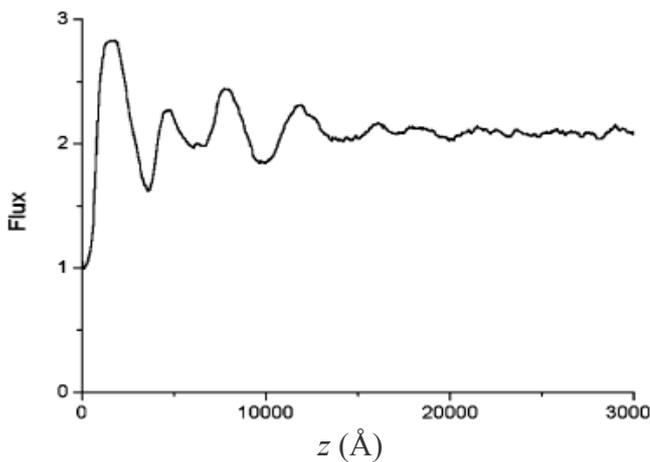


figure 5 : variation d'un flux d'ions en fonction de la profondeur de pénétration z dans le cristal. Le flux est le nombre (par unité de temps et de surface) de protons de 10 MeV canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ du silicium, à des distances aux rangées atomiques supérieures à 1,2 Å. Cette courbe est obtenue par des simulations Monte Carlo de collisions binaires [Cohen *et al.* 2004].

En convoluant ces probabilités $P(\vec{r}|\varepsilon_{\perp})$ avec la distribution $G(\varepsilon_{\perp})$ d'énergie transverse réduite associée à un faisceau aligné, de divergence angulaire donnée, on obtient la probabilité de présence d'un ion, à l'équilibre du flux, au point \vec{r} de l'espace transverse. Cette probabilité est beaucoup plus forte loin des rangées ou des plans cristallins ; autrement

dit, la canalisation a pour effet de focaliser le flux de particules et de supprimer presque totalement les collisions à faible paramètre d'impact des projectiles avec les atomes cible.

III. Validité du modèle

1) Validité de l'approximation du potentiel continu

Lors d'une série de collisions binaires, en canalisation axiale par exemple, l'énergie transverse change en réalité de valeur à chaque collision puisque l'angle ψ varie à une distance fixe d'une rangée. Ce changement est ensuite plus ou moins compensé, avant la collision suivante, par la variation continue, et à angle ψ constant, de la composante potentielle de l'énergie transverse. Une bonne manière d'évaluer l'approximation du potentiel continu est de vérifier dans quelle mesure cette compensation conserve l'énergie transverse [Lindhard 1965]. On calcule pour cela l'énergie transverse de l'ion lorsqu'il se trouve dans le plan médian de deux atomes consécutifs. Le résultat est, qu'au premier ordre, l'énergie transverse est conservée à condition que la distance minimale d'approche r_{min} à une rangée reste supérieure à une distance r_{lim} telle que :

$$r_{lim} = \frac{\sqrt{b_0 d}}{2} \quad \text{équation 7}$$

où $b_0 = 2Z_p Z_c e^2 / \mu v_p^2$ est le diamètre de collision, μ est la masse réduite de l'ion et de l'atome cible et v_p est la vitesse de l'ion.

L'approximation du potentiel continu est d'autant plus légitime que la distance r_{min} est grande.

2) Conservation de l'énergie transverse et décanalisation

Même lorsque le potentiel continu est une bonne approximation, on ne peut pas toujours considérer que l'énergie transverse se conserve. Pour des profondeurs relativement grandes de pénétration, l'augmentation progressive de l'énergie transverse des ions n'est pas négligeable et elle peut conduire à la décanalisation des ions, même dans des cristaux sans défauts. Pour un cristal parfait, le taux de variation de l'énergie transverse sur une aire $A(E_\perp)$ est donné par l'équation suivante, en supposant que le parcours infinitésimal δz dans la cible soit suffisamment petit pour que la position transverse \vec{r} et l'angle $\vec{\psi}$ (entre la

direction de propagation du projectile et la direction cristalline) puissent être considérés comme constants :

$$\frac{d\epsilon_{\perp}}{dz} = \frac{1}{Q} \frac{dE_{\perp}^{diff}}{dz} + \frac{\psi^2}{Q} \frac{dE}{dz} - \frac{E\psi^2}{Q} \frac{dQ}{dz} \quad \text{équation 8}$$

où $\frac{dE_{\perp}^{diff}}{dz}$ est la variation d'énergie transverse due à ce qu'on appelle les diffusions angulaires multiples sur les noyaux échantés et les électrons de la cible.

Le 3^{ème} terme de cette équation correspond au refroidissement ou au réchauffement transverse par échanges de charge. Le facteur ψ^2 qu'il contient rend ce terme très faible quand les échanges de charge s'effectuent au bord de l'espace transverse accessible, où l'angle ψ est pratiquement nul. Mais lorsque les probabilités d'échange de charge sont très grandes (pour des énergies de l'ordre de quelques MeV/u), il semble responsable du phénomène de réchauffement ou de refroidissement transverse observé dans les expériences d'Assman *et al.* [Assman *et al.* 1999]. Dans ces expériences, les ions sont envoyés sur un cristal avec une distribution angulaire isotrope et large devant l'angle critique de canalisation. En sortie, les auteurs observent une forte redistribution du flux des ions transmis, dans certains cas une augmentation du flux le long des directions cristallines, et dans d'autres cas, une diminution. Ces phénomènes ne peuvent pas s'expliquer par des effets de perte d'énergie, et ils sont très variables suivant l'énergie et le numéro atomique des ions. Leur compréhension précise dépend de programmes Monte Carlo de calculs de trajectoires et d'échanges de charge développés par Grüner *et al.* [Grüner *et al.* 2003].

Le second terme de l'équation 8 fait apparaître la perte d'énergie du projectile. Il suggère que l'énergie transverse diminue à mesure que le projectile ralentit. Ce terme est en fait toujours négligeable devant le premier terme dû à la diffusion multiple. Cependant une diminution de l'énergie du projectile implique l'augmentation de l'angle critique qui a tendance à limiter la décanalisation. Une grandeur plus appropriée pour décrire le réchauffement transverse est donc la variation relative d'énergie transverse $u = \frac{d\epsilon_{\perp}}{\epsilon_{\perp}^{\max} dz}$.

Chapitre I

L'augmentation de l'énergie transverse des ions est donc essentiellement due aux diffusions angulaires multiples sur les noyaux écrantés et les électrons de la cible. Une bonne estimation de la contribution des électrons à ces diffusions peut être obtenue à partir de la perte d'énergie électronique moyenne des ions dans le cristal. Si l'on note $\delta\psi_e$ la déflexion aléatoire occasionnée par ces diffusions sur un parcours infinitésimal δz donné, l'écart type $\overline{\delta\psi_e^2}$ à deux dimensions de la distribution de $\delta\psi_e^2$ est donné, selon *Bonderup et al.* [**Bonderup et al. 1972**], par l'expression suivante :

$$\overline{\delta\psi_e^2} = \frac{m_e}{2M_p E} (-\delta E)_e \quad \text{équation 9}$$

où M_p et m_e sont respectivement les masses du projectile et de l'électron, et $(\delta E)_e$ est la perte d'énergie électronique sur la longueur δz . Le facteur $\frac{1}{2}$ vient du fait que la diffusion multiple sur les électrons est supposée provenir essentiellement des collisions proches et que ce type de collision contribue environ à la moitié de la perte d'énergie électronique totale (voir le paragraphe A.V.). En supposant toujours que la longueur δz soit suffisamment petite pour que la position transverse \vec{r} et l'angle $\vec{\psi}$ puissent être considérés comme constants, l'augmentation moyenne d'énergie transverse δE_{\perp}^{diff} s'écrit :

$$\delta E_{\perp}^{diff} = E(\vec{\psi} + \delta\vec{\psi}_e)^2 - E\psi^2 = 2E\vec{\psi} \cdot \delta\vec{\psi}_e + E\delta\vec{\psi}_e^2 \quad \text{équation 10}$$

L'écart type $\overline{\delta\psi_n^2}$ des déflexions aléatoires occasionnées par les diffusions sur les noyaux cible écrantés peut être évalué avec l'expression suivante :

$$\overline{\delta\psi_n^2} = \frac{M_c}{M_p E} (-\delta E)_n \quad \text{équation 11}$$

où $(\delta E)_n$ est la perte d'énergie par collision avec les noyaux cible sur la longueur δz .

Lindhard a montré que la contribution des noyaux cible à la décanalisation suit à peu près une loi d'échelle en Z_p/E [**Lindhard 1965**]. Dans leur étude sur la décanalisation d'ions légers dans l'axe $\langle 110 \rangle$ du silicium, *Schmaus et al.* [**Schmaus et al. 1979**] ont donc défini un parcours réduit $Z_p z^{déca}/E$ où $z^{déca}$ est la profondeur nécessaire pour atteindre un taux de

collisions proches avec les noyaux cible égal à 10% du taux mesuré en orientation aléatoire. Ils obtiennent expérimentalement un parcours réduit de $2,7 \mu\text{m MeV}^{-1}$. Dans le cas des ions U^{91+} de 20 MeV/u, l'ordre de grandeur de $z^{\text{déca}}$ est de 100 μm . Pour un cristal de 10 μm d'épaisseur, la décanalisation par les noyaux cible est donc faible. En revanche, elle est loin d'être négligeable pour des cibles de plusieurs dizaines de microns d'épaisseur.

Au cours de la traversée du cristal, l'énergie transverse des ions augmente progressivement jusqu'aux alentours de l'énergie transverse critique, où la contribution des collisions avec les atomes cible devient importante et le réchauffement transverse s'accélère fortement. L'augmentation d'énergie transverse conduit à la décanalisation si l'ion subit une ou plusieurs diffusions à grand angle sur les atomes de la cible.

3) Validité de la description classique des trajectoires d'ions canalisés

Le critère de validité de la description classique d'une collision binaire de particules dépend du potentiel d'interaction. Le problème a été étudié en détail par Bohr [Bohr 1948]. Pour un potentiel coulombien, il faut que la plus petite distance mise en jeu lors de la collision (le diamètre de la collision b_0) soit grande devant la longueur d'onde du projectile $\tilde{\lambda}$:

$$\frac{b_0}{\tilde{\lambda}} = \frac{2Z_c Z_p v_0}{v_p} \gg 1 \quad \text{équation 12}$$

où v_p est la vitesse du projectile et v_0 est la vitesse de Bohr.

En canalisation, on s'intéresse au mouvement des ions dans le plan transverse. Ce mouvement peut être considéré comme classique si le nombre d'états quantiques de la particule dans le puits de potentiel transverse est très grand. La résolution de l'équation de Schrödinger montre que cette condition est toujours vérifiée dans le cas d'ions lourds. Des effets quantiques peuvent être observés pour des particules légères comme des électrons de quelques dizaines de MeV.

IV. Extinction des interactions à faibles paramètres d'impact

La canalisation permet la suppression quasi-totale des collisions à faible paramètre d'impact avec les cœurs atomiques du cristal (voir le paragraphe A.II.4)). Le fait que cette suppression ne soit pas totale est dû aux particules d'énergie transverse supérieure à l'énergie transverse critique E_{\perp}^{max} qui ne sont pas canalisées et qui peuvent rencontrer les noyaux de la cible. Le rapport χ_{min} des taux de collisions à faible paramètre d'impact en condition d'alignement avec une direction cristalline, et hors canalisation, est l'une des grandeurs caractéristiques des conditions de canalisation. Dans le cas d'un faisceau parfaitement parallèle, Lindhard a montré que ce rapport s'écrit, dans le cas d'un axe cristallin :

$$\chi_{min} = Nd\pi(\sqrt{2}u_1 + a_{TF})^2 \quad \text{équation 13}$$

où N est la densité d'atomes cible, d la distance interatomique dans la rangée et a_{TF} le rayon d'écrantage de Thomas-Fermi. χ_{min} est simplement dans ce cas le rapport de la surface de la rangée, $\pi(\sqrt{2}u_1 + a_{TF})^2$, sur la surface occupée par un atome. Dans la pratique, χ_{min} est déterminé par le taux d'extinction de processus associés aux collisions proches ; si ces processus ont lieu à des paramètres d'impact petits devant u_2 , χ_{min} est indépendant du processus considéré. En revanche, il varie en fonction de la qualité du cristal, de la divergence du faisceau et, dans un cristal épais, du taux de décanalisation.

V. La perte d'énergie

1) Perte d'énergie dans une cible solide

La perte d'énergie d'ions rapides dans la matière est due principalement aux transferts d'énergie aux électrons de la cible. Le taux de perte d'énergie d'un ion (considéré comme ponctuel) dans un solide de numéro atomique Z_c peut s'écrire sous la forme :

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi Z_p^2 e^4}{m_e v_p^2} NZ_c L_e \quad \text{équation 14}$$

où Z_p et v_p sont respectivement le numéro atomique et la vitesse du projectile, N est la densité d'atomes de la cible et m_e est la masse de l'électron.

D'un point de vue classique, L_e résulte de l'intégration des transferts d'énergie aux électrons sur l'ensemble des paramètres d'impact b_e :

$$L_e = \ln \frac{b_{\max}}{b_{\min}} \quad \text{équation 15}$$

où b_{\min} et b_{\max} sont les bornes d'intégration effectives.

Si l'on assimile un électron lié à un oscillateur harmonique de pulsation caractéristique ω , la borne supérieure d'intégration est donnée par la coupure adiabatique $b_{\max} = 1,123 v_p / \omega$. Elle correspond, à un facteur correctif près, au paramètre d'impact pour lequel la durée b_e / v_p de la collision est égale à la période d'oscillation de l'électron cible. Cette coupure adiabatique est valable à la fois dans un traitement classique et quantique car ces deux types de calculs donnent, à grands paramètres d'impact, les mêmes valeurs moyennes de transfert d'énergie. Dans des collisions distantes, un atome se comporte comme un ensemble d'oscillateurs de pulsation ω_i et de force (d'oscillateur) f_i qui vérifient la relation $\sum f_i = Z_c$. Dans l'expression du pouvoir **d'arrêt**, la somme pondérée des différents oscillateurs est équivalente à l'introduction d'une fréquence effective ω telle que $\ln(\omega) = Z_c^{-1} \sum f_i \ln(\omega_i)$. L'énergie correspondante $I = \hbar \omega$ est souvent appelée potentiel moyen d'ionisation. Cependant, cette énergie moyenne prend en compte toutes les transitions possibles pour les électrons cible, en particulier les transitions entre les états liés. La relation de Bloch $I = Z_c I_0$ ($I_0 = 10$ eV) donne des valeurs approchées de I pour $Z_c > 10$. La coupure adiabatique b_{\max} est donnée finalement par la formule suivante :

$$b_{\max} = \frac{1,123 \hbar v_p}{I} \quad \text{équation 16}$$

Les coupures à faible paramètre d'impact b_{\min}^c et b_{\min}^q obtenues respectivement par des calculs classiques et quantiques sont données par les expressions suivantes :

$$b_{\min}^c = \frac{b_0}{2} = \frac{Z_p e^2}{m_e v_p^2} \quad \text{équation 17}$$

$$b_{\min}^q = 1,123 \frac{\hbar}{2} = 1,123 \frac{\hbar}{2m_e v_p} \quad \text{équation 18}$$

Les expressions du taux de perte d'énergie obtenues avec les coupures b_{\min} classique et quantique sont respectivement les formules de Bohr et de Bethe. Le domaine de validité de

ces formules est donné par le paramètre $\chi = \frac{2Z_p e^2}{\hbar v_p} = \frac{2Z_p v_0}{v_p}$. La formule de Bethe

s'applique pour $\chi \ll 1$ alors que la formule de Bohr est valable si $\chi \gg 1$. Le terme correctif de Bloch, déterminé par un calcul non perturbatif, permet de faire le lien entre les deux domaines d'application.

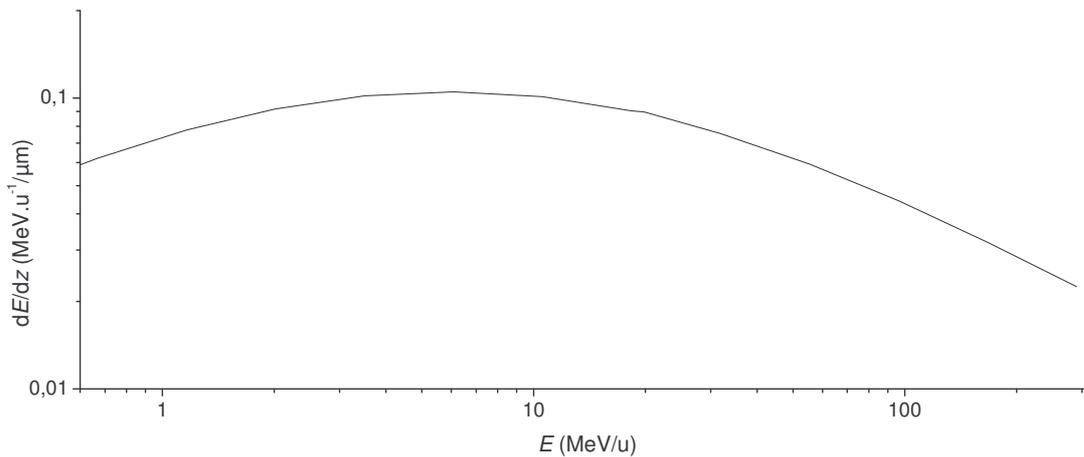


figure 6 : variation de la perte d'énergie linéique d'ions uranium d'énergie E , dans du silicium, en fonction de E (calcul du code TRIM).

A haute énergie, l'état de charge à l'équilibre correspond à des projectiles nus et la charge Q du projectile est égale au numéro atomique Z_p . A plus basse énergie, les ions capturent des électrons et l'augmentation de dépôt d'énergie en $1/v_p^2$ est limitée par la diminution de la charge Q . La figure 6 présente la variation, donnée par le code TRIM, du taux de perte d'énergie d'ions uranium d'énergie E dans du silicium. La courbe passe par un maximum aux alentours de 6 MeV/u. A basse énergie, la perte d'énergie diminue fortement car les ions sont pratiquement rhabillés et le nombre d'électrons auxquels ces ions peuvent transférer de l'énergie est réduit.

2) Perte d'énergie en condition de canalisation

Les pertes d'énergie en- et hors canalisation sont très différentes. En effet, en canalisation, la distribution de paramètres d'impact vis-à-vis des atomes cible n'est pas uniforme et les densités électroniques rencontrées par les ions varient fortement en fonction de l'espace transverse accessible. La figure 7 présente une distribution typique de perte d'énergie d'ions canalisés obtenue avec un faisceau d'ions Pb^{56+} de 29 MeV/u, aligné avec l'axe $\langle 110 \rangle$ d'un cristal de silicium de 1,1 μm [Barrué *et al.* 2004]. L'unité de perte d'énergie est la perte d'énergie moyenne hors canalisation ΔE_{rand} . Les ions hypercanalisés qui restent dans un contour fermé d'équipotentiel rencontrent une densité électronique très faible, de l'ordre de $0,1 \text{ e}^-/\text{\AA}^3$, ce qui correspond à deux électrons par atome sur les quatorze électrons que compte le silicium. La perte d'énergie s'effectue principalement par collisions binaires distantes et par excitation collective des électrons de valence sous la forme de plasmons de pulsation caractéristique ω_p . Si l'on assimile le gaz d'électrons de valence à un gaz de Fermi de densité ρ_v , ω_p est donnée par la relation suivante :

$$\omega_p = \left(\frac{4\pi\rho_v e^2}{m_e} \right)^{1/2} \quad \text{équation 19}$$

et la perte d'énergie associée s'écrit, en remplaçant I par $\hbar\omega_p$ dans l'équation 16 :

$$-\left(\frac{dE}{dx} \right)_v = \frac{4\pi Z_p^2 e^4}{m_e v^2} \rho_v \ln \frac{2m_e v^2}{\hbar\omega_p} \quad \text{équation 20}$$

L'absence de collisions proches sur les électrons de cœur réduit la perte d'énergie des ions bien canalisés d'un facteur deux environ par rapport à la perte d'énergie des ions hors canalisation. C'est ce que l'on observe sur la figure 7 qui présente les pertes d'énergie d'ions Pb^{56+} de 29 MeV/u hors canalisation et le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ d'un cristal de silicium de 1,1 μm . On constate également qu'avec cette épaisseur de cible très mince, les ions mal canalisés perdent plus d'énergie qu'en orientation aléatoire. Ils rencontrent en effet les électrons de cœur dont les densités sont nettement supérieures à la densité électronique moyenne de la cible et leur perte d'énergie s'étend au-delà de deux fois la perte d'énergie moyenne mesurée hors canalisation. Cet effet est l'équivalent du pic de surface de collisions proches avec les noyaux cible. Si le cristal était beaucoup plus épais, la différence entre la

perte d'énergie des ions mal canalisés et la perte d'énergie en orientation aléatoire serait beaucoup moins forte. Par ailleurs, lorsqu'ils rasent une rangée d'atomes, les ions lourds très chargés, tels que les ions Pb^{56+} , déposent localement une grande quantité d'énergie, de l'ordre de la dizaine de keV par Å, et peuvent ioniser presque complètement les atomes cible.

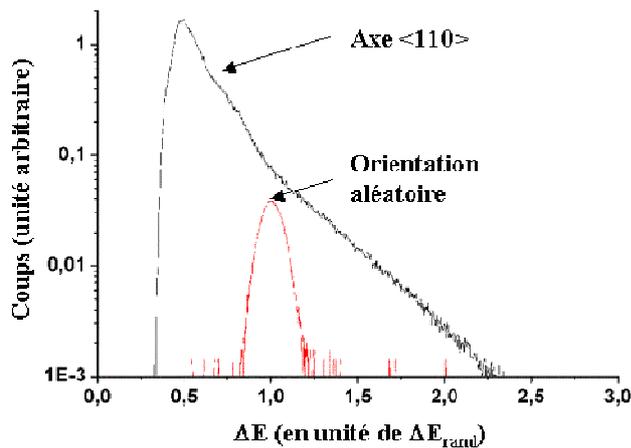


figure 7 : distribution de perte d'énergie d'ions Pb^{56+} de 29 MeV/u lors de la traversée d'un cristal de silicium de 1,1 μm hors canalisation et le long de l'axe $\langle 110 \rangle$. L'unité de perte d'énergie est la perte d'énergie moyenne ΔE_{rand} hors canalisation [Barrué *et al.* 2004].

B. Les processus d'échanges de charge

I. Les processus de capture d'électrons

1) La capture mécanique (MEC)

(a) Présentation

La capture mécanique est le phénomène de transfert d'un électron de la cible vers le projectile. Ce transfert s'effectue préférentiellement lorsque les orbitales initiale (de la cible) et finale (du projectile) se recouvrent en espace et en impulsion. Il a lieu à faible paramètre d'impact car la conservation de l'impulsion nécessite le recul de l'atome cible. La théorie de Born au premier ordre (B1) voit la capture mécanique comme un processus à une étape et reproduit qualitativement le recouvrement des orbitales. Dans le cadre de cette théorie, l'approximation de Brinkman-Kramers (BK) néglige l'interaction entre les noyaux (modèle du paramètre d'impact). Elle donne à haute énergie la section efficace de capture suivante [Bransden *et al.* 1992] :

$$\sigma^{BK}(1s \rightarrow n_f)_{v_p \rightarrow \infty} \approx \frac{2^{18} (Z_p Z_c)^5}{5 n_f^3 v_p^{12}} \quad \text{équation 21}$$

où n_f est le nombre quantique principal de la couche du projectile sur laquelle s'effectue la capture et v_p est la vitesse du projectile.

En fait, la contribution du second terme de la série de Born conduit à un comportement de la section efficace en v_p^{-11} . Ce terme s'interprète classiquement comme la double diffusion du modèle classique de Thomas : l'électron est diffusé par le projectile puis dans un second temps par la cible de telle manière que sa vitesse et sa direction soient les mêmes que celles du projectile. Il est alors capturé. La section efficace de capture au deuxième ordre de l'approximation de Brinkman-Kramers est donnée par l'expression suivante [Shakeshaft 1974] :

$$\sigma(v\lambda, nl) = (2l+1) \frac{(4Z_p Z_c)^2}{v_p^{11}} I_{v\lambda, nl} \quad \text{équation 22}$$

où $I_{v\lambda, nl} = \int_0^\infty [R_{v\lambda}(r)R_{nl}(r)]^2 dr$ et $R_{v\lambda}(r)$, $R_{nl}(r)$ sont les fonctions d'ondes radiales normalisées des états initial (v, λ) et final (n, l) . $I_{v\lambda, nl}$ traduit le recouvrement spatial des fonctions d'ondes. Pour v petit, $R_{v\lambda}(r)$ décroît rapidement en fonction de r . Par conséquent, seules les valeurs de l'intégrande correspondant à de faibles valeurs de r contribuent de manière significative à l'intégrale $I_{v\lambda, nl}$. Pour ces faibles valeurs de r et pour des nombres n élevés, on peut assimiler $R_{nl}(r)$ à une fonction proportionnelle à $n^{-3/2}$. La section efficace de capture est donc proportionnelle à n^{-3} , sur les couches périphériques du projectile.

Ces expressions de la section efficace de capture mécanique présentent l'avantage de donner le comportement général de ce processus à relativement haute énergie. Mais elles donnent des valeurs qui sont inférieures aux valeurs expérimentales, surtout lorsque le rapport Qv_0/v_p (où Q est l'état de charge du projectile) qui détermine le caractère perturbatif de la collision, n'est plus petit devant l'unité. Actuellement, les calculs les plus

précis sont du type CDW (Continuum Distorted Waves), basés sur l'utilisation de fonctions d'ondes distordues pour décrire les états initial et final de l'électron capturé.

(b) *Les calculs CDW-EIS*

(i) *Principe de l'approximation CDW*

La théorie Continuum Distorted Wave (CDW) [Belkić *et al.* 1979] est utilisée pour ramener à un traitement perturbatif une collision qui n'en relève pas directement. La perturbation de la fonction d'onde de l'électron capturé est prise en compte dans son état initial (perturbation par le projectile) et final (perturbation par l'atome cible) par un facteur de distorsion appliqué aux fonctions d'ondes non perturbées. Si l'on note $\psi_{i,f}$ les fonctions d'onde initiale et finale exactes de l'électron actif (capturé) et $\chi_{i,f}$ les fonctions d'onde distordues associées, l'amplitude de transition de ψ_i à χ_f en fonction du paramètre d'impact b de la collision peut s'écrire sous la forme :

$$A_{if}(\rho) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} \langle \chi_f^*(t) | (H - i\partial_t) | \chi_i(t) \rangle dt - i \int_{-\infty}^{+\infty} \langle (\psi_f - \chi_f)(t) | (H - i\partial_t) | (\psi_i - \chi_i)(t) \rangle dt$$

équation 23

où H est l'hamiltonien du système.

Si les fonctions d'onde distordues χ_i initiale et finale sont réalistes, le second terme est petit devant le premier et l'amplitude de transition calculée à partir des fonctions d'onde distordues (le premier terme) est relativement précise.

(ii) *Les fonctions d'onde distordues*

On note $L_{i,f}$ les facteurs de distorsion et $\phi_{i,f}$ les fonctions d'onde non perturbées initiale et finale de l'électron capturé. Elles correspondent respectivement à l'état de l'électron lié à l'atome cible et au projectile. Les fonctions distordues $\chi_{i,f}$ s'écrivent donc :

$$\chi_{i,f}^{CDW} = \phi_i L_{i,f}$$

équation 24

✧ Importance des électrons passifs

Nous nous intéressons à la collision d'un projectile nu avec un atome cible ayant plusieurs électrons. Pour réduire la description de la collision à un processus à électron unique, l'approximation des électrons indépendants (IEA) néglige la dynamique des électrons passifs en les supposant gelés dans leur état initial [Sant'Anna *et al.* 1998]. Les implications de ce modèle sur les probabilités de transitions peuvent être résumées de la manière suivante [Fainstein *et al.* 1988] :

- La fonction d'onde initiale ϕ_i de l'électron actif est calculée dans le potentiel Roothaan-Hartree-Fock de l'atome cible dans son état fondamental.
- L'Hamiltonien H du système est moyenné sur les fonctions d'onde des électrons passifs.
- Le potentiel écranté résiduel entre l'électron actif et l'atome cible est modélisé par un potentiel coulombien $(-Z_T^*/x)$, où x est la distance noyau cible-électron actif et $Z_T^* = (-2n_i^2 E_i)^{1/2}$ est une charge effective (E_i est l'énergie de liaison initiale, en unité atomique, de l'électron capturé) [Belkić *et al.* 1979].

Le gel des électrons passifs intervient donc directement dans le calcul des probabilités de transition et cela pose un problème d'interprétation des probabilités calculées : sont-elles inclusives (l'électron actif est capturé ou perdu sans présager du devenir des électrons passifs) ou exclusives (les électrons passifs restent effectivement dans leur état initial) ? Des études sur l'ionisation d'atomes de néon et d'argon par des ions Au^{53+} de 3,6 MeV/u (dans un régime de forte perturbation comparable à celui des ions U^{91+} de 20 MeV/u : $Q_{v0}/v_p(\text{Au}^{53+}) \sim 4,4$ et $Q_{v0}/v_p(\text{U}^{91+}) \sim 3,3$) semblent indiquer qu'il faille considérer ces probabilités comme inclusives [Kirchner *et al.* 2002]. Ces études comparent les sections efficaces théoriques CDW-EIS (voir le paragraphe suivant sur l'approximation EIS « Eikonal Initial-State ») et expérimentales d'ionisation, doublement différentielles en vitesses transverse et longitudinale des électrons de basse énergie, éjectés lors des collisions des ions Au^{53+} avec les atomes cible. L'accord entre théorie et expérience, pour des vitesses élevées d'électrons éjectés, est meilleur lorsque l'on somme les sections efficaces

expérimentales d'ionisation simple et multiple, pondérées par le degré d'ionisation, c'est-à-dire lorsque l'on considère ne rien savoir de l'état final des électrons dits « passifs » dans le calcul théorique (probabilités théoriques inclusives) [Moshhammer *et al.* 1999]. La validité de l'approximation IEA d'électrons indépendants a également été vérifiée de manière plus précise sur ces mêmes sections efficaces expérimentales d'ionisation doublement différentielles, conditionnées par l'état de charge de l'ion de recul (la cible) [Kirchner *et al.* 2002].

✧ L'approximation eikonale (CDW-EIS)

Les sections efficaces obtenues par l'approximation CDW tendent vers celle de l'approximation de Born au premier ordre lorsque v_p tend vers l'infini. Elles sont donc supposées reproduire correctement les mesures expérimentales à haute énergie. Ceci a été vérifié par de nombreux tests expérimentaux, comme par exemple l'étude des sections efficaces de capture en fonction de l'état final (n, l) de l'électron capturé, lors de collisions d'ions Ar^{18+} de 6,3 MeV/u ($Qv_0/v_p = 1,1$) et $\text{Fe}^{26+/25+}$ de 7,3 MeV/u ($Qv_0/v_p = 1,6$) avec du dioxyde d'azote [Legagneux-Piquemal 1984]. Cependant, à des énergies intermédiaires pour lesquelles v_p est proche de la vitesse initiale des électrons cible, les sections efficaces CDW surestiment les valeurs mesurées. Cette surestimation qui apparaît à la fois dans les processus d'ionisation et de capture est attribuée à l'influence de la non-normalisation des fonctions d'onde distordues introduites par les facteurs de distorsion $L_{i,f}$ [Crothers *et al.* 1983]. Pour résoudre le problème et éviter des difficultés techniques de normalisation, les facteurs de distorsion coulombienne, qui décrivent le mouvement de l'électron dans le continuum du projectile ou dans celui de la cible, peuvent être remplacés par leur approximation eikonale, c'est-à-dire leur limite à $t \rightarrow \pm\infty$ [Fainstein *et al.* 1988], [Busnengo *et al.* 1997], [Rivarola *et al.* 1989]. Les facteurs de distorsion se réduisent alors à un facteur de phase. Cette normalisation peut être appliquée soit sur l'état initial (Eikonal Initial State : CDW-EIS), soit sur l'état final (Eikonal Final State : CDW-EFS). Ces calculs ne traitent donc pas les perturbations du projectile et de la cible sur un pied d'égalité comme le fait l'approximation CDW. Dans le cas de projectiles et de cibles légers (Z_p et Z_c inférieurs à deux) Busnengo *et al.* ont montré que l'approximation CDW-EIS (CDW-EFS) semble plus appropriée pour décrire les réactions asymétriques pour lesquelles l'interaction résiduelle avec la cible (le projectile) est plus forte que l'interaction résiduelle avec le projectile (la

cible) pendant la collision [Busnengo *et al.* 1993]. Le paramètre α a été défini pour comparer les intensités des interactions électron-projectile et électron-cible dans les canaux d'entrée et de sortie :

$$\alpha = \frac{Z_p}{Z_c} \frac{E_i}{E_f} \quad \text{équation 25}$$

où E_i et E_f sont les énergies de liaison initiale et finale de l'électron capturé.

Si $\alpha < 1$ ($\alpha > 1$) l'approximation CDW-EIS (CDW-EFS) est la plus appropriée alors qu'avec $\alpha \sim 1$, c'est plutôt l'approximation symétrique CDW qui devra être utilisée.

2) La capture radiative (REC)

(a) Présentation

La recombinaison radiative est le processus inverse de l'effet photoélectrique : l'émission d'un photon accompagne la capture d'un électron libre dans une couche profonde du projectile. L'énergie de ce photon s'écrit, dans le référentiel de l'ion :

$$h\nu = E_f^n + E_c \quad \text{équation 26}$$

où E_f^n et $E_c = (\gamma - 1)m_e c^2$ sont respectivement la valeur absolue de l'énergie de liaison finale et l'énergie cinétique initiale de l'électron capturé sur la couche n . Pour une couche finale donnée, cette énergie ne dépend donc que de la vitesse du projectile.

Dans le cas de la capture d'un électron lié à un atome ou à un solide, on parle de capture radiative (REC). L'énergie du photon dépend alors de l'énergie de liaison initiale E_i de l'électron capturé et de son impulsion longitudinale initiale $m_e v_{ez}$. La distribution des photons est donc :

- décalée vers les basses énergies par l'énergie de liaison E_i ,
- élargie par la distribution initiale en impulsion des électrons capturés (profil Compton).

Chapitre I

L'énergie d'un photon émis lors d'une capture radiative est donc donnée par l'expression suivante (toujours dans le référentiel de l'ion) :

$$h\nu = E_f^n + (\gamma - 1)m_e c^2 - \gamma E_i - \beta \gamma m_e v_{ez} c \quad \text{équation 27}$$

où β et γ sont les facteurs de Lorentz.

(b) Section efficace

Les sections efficaces de REC sont déterminées à partir de celles de l'effet photoélectrique. Les probabilités de processus inverses sont en effet reliées entre elles par le principe du bilan détaillé. Dans le cadre de l'approximation dipolaire, les équations de Stobbe donnent les sections efficaces, par électron, de REC-K et -L d'un ion nu sous forme analytique [Bethe *et al.* 1977] :

$$\sigma_{REC-K} = C \left(\frac{\xi_K^3}{1 + \xi_K^2} \right)^2 \frac{\exp(-4\xi_K \arctan \xi_K^{-1})}{1 - \exp(-2\pi\xi_K)} \quad \text{équation 28}$$

$$\sigma_{REC-L}^{2s} = 2^3 C \left(\frac{\xi_{2s}^3}{1 + \xi_{2s}^2} \right)^2 \left(1 + 3 \frac{\xi_{2s}^2}{1 + \xi_{2s}^2} \right) \frac{\exp(-8\xi_{2s} \arctan \xi_{2s}^{-1})}{1 - \exp(-4\pi\xi_{2s})} \quad \text{équation 29}$$

$$\sigma_{REC-L}^{2p} = 2^3 C \left(\frac{\xi_{2p}^3}{1 + \xi_{2p}^2} \right)^2 \left(3 \frac{\xi_{2p}^2}{1 + \xi_{2p}^2} + 8 \frac{\xi_{2p}^4}{(1 + \xi_{2p}^2)^2} \right) \frac{\exp(-8\xi_{2p} \arctan \xi_{2p}^{-1})}{1 - \exp(-4\pi\xi_{2p})} \quad \text{équation 30}$$

où $\xi_i = \sqrt{\frac{E_i}{E}}$ (E_i est l'énergie de liaison de la couche i) et $C = \frac{2^7 \pi}{3} \frac{e^2}{m_e c^2} \frac{h}{m_e c} \sim 9,1 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$.

Plus le projectile est rapide, plus la capture radiative s'effectue en couches internes, à condition qu'il s'y trouve des lacunes.

La figure 8 présente les sections efficaces théoriques et mesurées de MEC et de REC pour des ions U^{92+} sur une cible d'azote en fonction de l'énergie du projectile [Stöhlker *et al.* 1998]. On constate que le REC est le processus dominant de capture à des énergies supérieures à 100 MeV/u. A plus basse énergie, la section efficace de MEC augmente rapidement ($\sigma_{MEC} \propto v_p^{-11}$). Elle est supérieure à celle du REC de plus d'un ordre

de grandeur à 30 MeV/u. Par ailleurs, lorsque la probabilité de capture est importante, le rhabillage du projectile se fait au détriment de la probabilité de REC qui dépend fortement du nombre de lacunes sur les couches K et L du projectile. En revanche, comme nous le verrons plus loin, la capture mécanique s'effectue essentiellement sur les couches périphériques des ions uranium, pour des énergies inférieures à quelques dizaines de MeV/u.

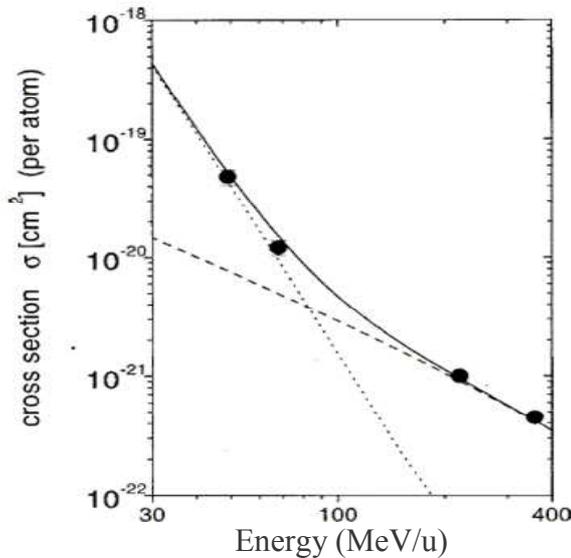


figure 8 : sections efficaces de capture électronique par des ions U^{92+} sur une cible d'azote en fonction de l'énergie du projectile. Valeurs théoriques en lignes pointillées pour le MEC (approche eikonale), en tirets pour le REC (approximation dipolaire : formules de Stobbe) et continue pour la capture totale. Les points correspondent aux valeurs expérimentales de Stöhlker *et al.* [Stöhlker *et al.* 1998].

(c) *Distribution angulaire des photons de REC*

Si l'on néglige l'impulsion du photon devant celle de l'électron, la distribution des photons émis lors d'une capture radiative est proportionnelle à $\sin^2 \theta_{proj}$ dans le référentiel du projectile. Pour un ion lourd relativiste, l'impulsion du photon n'est pas petite devant celle de l'électron. L'approximation de Born au premier ordre (non relativiste) introduit une correction qui compense exactement la transformation de Lorentz du référentiel du projectile à celui du laboratoire [Bethe *et al.* 1977], de sorte que :

$$\frac{d\sigma_{REC-K}}{d\Omega_{lab}} = \frac{3}{8} \sin^2 \theta_{lab} \sigma_{REC-K} \quad \text{équation 31}$$

La symétrie de cette distribution a été mise en évidence pour la première fois par E. Spindler *et al.* avec des ions oxygène et soufre de quelques MeV/u [Spindler *et al.* 1979].

Plus tard, Anholt *et al.* ont vérifié cet effet avec des ions lourds Xe^{54+} de 197 MeV/u [Anholt *et al.* 1985].

La distribution angulaire de photons de REC-L est sensiblement différente de celle du REC-K. Cette différence est due essentiellement au REC-2p, les distributions angulaires de photons de REC-K et de REC-2s étant très proches. La distribution angulaire de photons de REC-2p est donnée par l'expression suivante :

$$\frac{d\sigma_{REC-2p}}{d\Omega_{lab}} = \frac{1}{4\pi} (1 - 2\beta \cos\theta_{lab} \sin^2\theta_{lab}) \sigma_{REC-2p} \quad \text{équation 32}$$

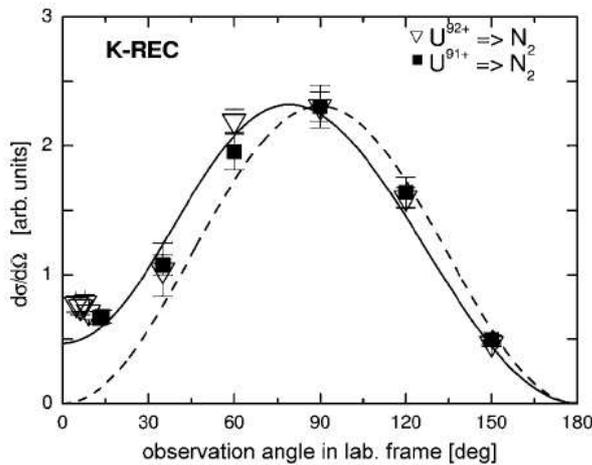


figure 9 : sections efficaces différentielles de REC-K pour : des ions U^{91+} de 216 MeV/u (carrés) $\rightarrow \text{N}_2$ et des ions U^{92+} de 310 MeV/u $\rightarrow \text{N}_2$ (triangles)
ligne en pointillés : description non relativiste
ligne continu : calcul relativiste pour des ions nus [Bednarz *et al.* 2003].

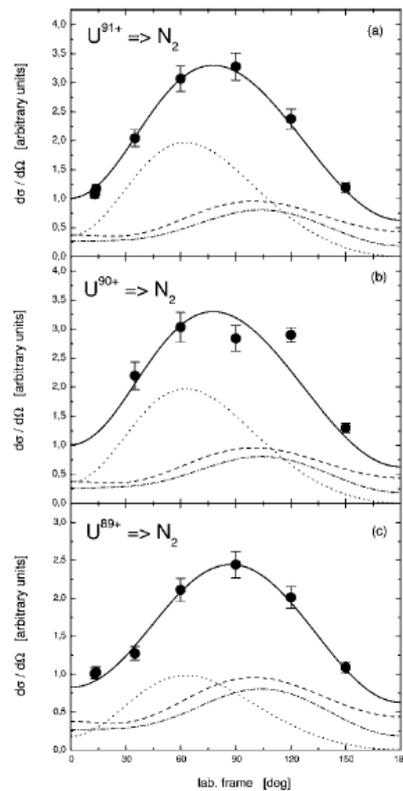


figure 10 : sections efficaces différentielles de REC-L pour : des ions U^{Q+} de 216 MeV/u (carrés) $\rightarrow \text{N}_2$
(a) $Q=91$; (b) $Q=90$; (c) $Q=89$
lignes en pointillés : capture sur la couche $2s_{1/2}$
lignes en tirets : capture sur la couche $2p_{1/2}$
lignes en tirets-pointillés : capture sur la couche $2p_{3/2}$
lignes continues : somme des contributions des sous-couches [Bednarz *et al.* 2003].

D'après des calculs relativistes d'Ichihara *et al.*, ces distributions angulaires sont sensiblement différentes pour des ions de Z très élevé [Ichihara *et al.* 1994] car la contribution aux faibles angles des transitions magnétiques (« spin-flip ») devient importante. Cette contribution a été mise en évidence par Bednarz *et al.* avec des ions U^{92+} ,

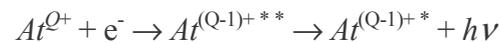
U^{91+} , U^{90+} , de 216 MeV/u et 310 MeV/u sur des cibles gazeuses de diazote [Bednarz *et al.* 2003]. Les figures 9 et 10 présentent les distributions angulaires expérimentales et théoriques de photons de REC-K et -L obtenues suivant l'état de charge du projectile. La distribution du REC-1s est décalée d'une quinzaine de degrés par rapport à la distribution obtenue avec une description non relativiste du système ; la distribution angulaire du REC-2s est décalée d'une trentaine de degrés. Les sections efficaces non-nulles à 0° et 180° du REC-2p sont dues au couplage du spin de l'électron avec le moment angulaire et non au spin-flip comme c'est le cas en $s_{1/2}$. Par ailleurs, la figure 10 illustre l'importance relative des sections efficaces de REC-2s et -2p présentées au paragraphe précédent : le REC-L s'effectue préférentiellement sur la couche 2s et son blocage partiel dans le cas d'ions lithiomoïdes rend la distribution de photons émis pratiquement symétrique par rapport à 90° .

3) Processus résonnants

(a) La capture résonnante diélectronique (RTE)

La recombinaison diélectronique d'un électron libre par un ion non nu s'effectue en deux étapes : dans un premier temps, la capture de l'électron s'accompagne de l'excitation d'un électron de l'ion qui assure la conservation de l'énergie. Cette phase, schématisée par la figure 11, correspond à l'effet inverse de l'émission Auger.

On observe la capture électronique si dans un deuxième temps, l'état intermédiaire doublement excité se désexcite radiativement vers un état non auto-ionisant :

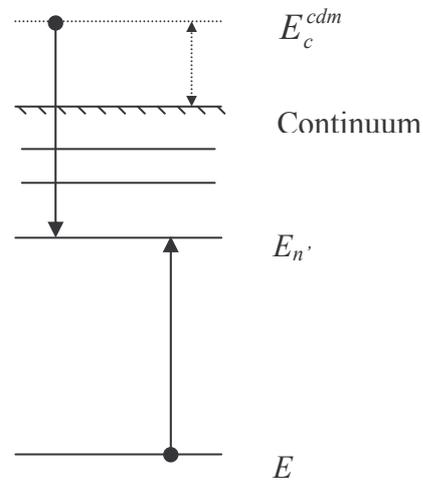


où Q est la charge de l'atome At qui effectue une capture RTE et ν la fréquence du photon émis lors de la désexcitation radiative. Le caractère résonnant de cette capture réside dans l'équation de conservation de l'énergie (**équation 33**) que doit vérifier l'énergie cinétique E_c^{cdm} de l'électron dans le centre de masse du projectile :

$$E_c^{cdm} + E_n = 2E_n \quad \text{équation 33}$$

où E_n est l'énergie de l'état initial de l'électron excité et $E_{n'}$ l'énergie des états finaux des électrons capturé et excité.

figure 11 : représentation énergétique de la capture résonnante diélectronique (RTE) dans le référentiel de l'ion.
 E_c^{cdm} est l'énergie cinétique dans le centre de masse du projectile de l'électron capturé au repos, E_n est l'énergie de liaison de l'état initial de l'électron excité et $E_{n'}$ est l'énergie de liaison des états finaux des électrons capturé et excité.



La capture diélectronique est le même processus que la recombinaison radiative mais il correspond à la capture d'un électron lié à un atome cible. La résonance est donc élargie par le profil Compton des électrons capturés et décalée si l'énergie de liaison initiale de ces électrons n'est pas négligeable.

La recombinaison diélectronique a été étudiée notamment en physique des plasmas chauds, dans les pièges EBIT (« Electron Beam Ion Trap ») et dans des anneaux de stockage d'ions. La capture diélectronique a fait l'objet d'études en cible gazeuse et en condition de canalisation. [Datz *et al.* 1989], [Dauvergne 1993], [Andersen *et al.* 1996].

(b) La capture résonnante par excitation nucléaire (NEEC)

La capture résonnante nucléaire est le processus de capture pour lequel le noyau du projectile est excité. C'est le processus inverse de la conversion interne (CI) [Cue *et al.* 1989]. Sa section efficace, de l'ordre du mbarn, est beaucoup plus faible que celles relevant de l'interaction électron-électron, comme le RTE, ou de l'interaction électron-photon, comme la capture radiative. Cependant, une expérience a récemment tenté de mettre en évidence ce processus au GANIL, avec des ions nus ^{57}Fe pour lesquels la résonance de capture NEEC correspond à un faisceau de 9,5 MeV/u. La comparaison du taux de captures effectuées par ces ions avec celui d'ions nus ^{56}Fe de même énergie (et sans résonance) permet, en principe, de déterminer la section efficace de NEEC.

II. Les processus de perte d'électrons

1) L'excitation et l'ionisation par impact nucléaire (EII et NII)

L'excitation ou l'ionisation par impact nucléaire résultent de l'interaction d'un électron du projectile avec le champ écranté d'un atome cible. Elles ne sont possibles que si lors de la collision, le transfert d'énergie est au moins égal à l'énergie d'excitation (ou d'ionisation) de l'électron. Lorsque la vitesse du projectile est nettement supérieure à celle de l'électron cible, le traitement perturbatif de la collision par la théorie de Born au premier ordre en ondes planes (PW-B1) est approprié [Anholt *et al.* 1985]. Dans le cas contraire, notamment celui des électrons K d'un ion lourd aux énergies du GANIL et du GSI, la polarisation de la fonction d'onde de l'électron par le potentiel attractif du noyau perturbateur favorise l'excitation et l'ionisation [Basbas *et al.* 1971]. Les effets relativistes ne sont sensibles que pour $\gamma > 2$. La présence d'électrons autour du noyau cible influe sur la probabilité d'ioniser le projectile de deux façons différentes [McGuire *et al.* 1980] : les électrons cible écrantent la charge du noyau cible, surtout lorsque le paramètre d'impact de la collision est important ; mais ils peuvent eux-mêmes ioniser le projectile (ionisation par impact d'électrons EII) : on parle d'anti-écrantage.

2) L'excitation et l'ionisation par impact électronique (EIE et EII)

La formule empirique non relativiste de Lotz [Lotz 1968] donne l'ordre de grandeur des sections efficaces en fonction du nombre quantique principal n de la couche ionisée et de son degré d'ionisation :

$$\sigma_n = a(n, q) q \frac{\ln(\eta(n))}{\eta(n) E_c^2} [1 - b(n, q) \exp(-c(n, q)(\eta(n) - 1))] \quad \text{équation 34}$$

q est le nombre d'électrons sur la couche, $\eta = E_c/E_n$ est le paramètre d'adiabaticité, E_c l'énergie cinétique de l'électron incident et E_n l'énergie d'ionisation de la couche. a , b , c sont des paramètres dépendant du degré d'ionisation et de la configuration initiale. Pour $q > 4$, $b=c=0$ et $a=4,5 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2 (\text{eV})^2$.

$$\sigma_{EII} \approx a q \frac{\eta - 1}{E_n^2} (1 - b) \quad \text{pour } \eta \approx 1 \quad \text{équation 35}$$

$$\sigma_{EII} \propto \frac{q}{E_n^2} \frac{\ln(\eta)}{\eta} \quad \text{pour } \eta \gg 1 \quad \text{équation 36}$$

Pour s'affranchir de la variation de la section efficace σ_{EII} en fonction du numéro atomique de l'atome étudié, on définit, pour les ions hydrogénoïde ou héliumoïde, une section efficace réduite $\sigma_{EII}^R = \left(\frac{E_n}{E_{At}}\right)^2 \sigma_{EII}$, où E_{At} est l'énergie d'ionisation de l'atome d'hydrogène ou d'hélium. La figure 12 présente, par exemple, les sections efficaces réduites d'ions héliumoïdes dans leur état fondamental en fonction du paramètre d'adiabaticité [Kuo *et al.* 2001]. Elles augmentent très vite, de l'énergie seuil d'ionisation ($\eta=1$) jusqu'à $\eta \sim 2,5$ où la valeur maximale des sections efficaces réduites est pratiquement indépendante de E_n , comme la formule de Lotz le prévoit (équation 35). Ensuite, la probabilité d'ionisation décroît selon le comportement asymptotique de l'équation 36. Les effets relativistes augmentent notablement les sections efficaces d'ionisation des ions lourds, ce qui explique l'écart entre les différentes courbes à haute énergie.

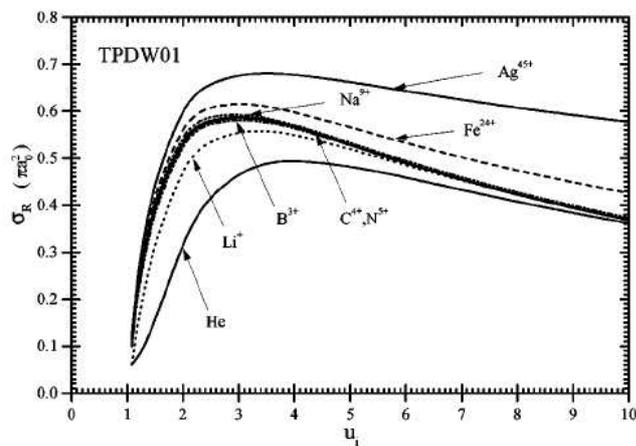


figure 12 : sections efficaces réduites d'ionisation par impact d'électron (en unité de πa_0^2 où a_0 est le rayon de Bohr) d'ions héliumoïdes He, Li⁺, B³⁺, C⁴⁺, N⁵⁺, Na⁹⁺, Fe²⁴⁺, Ag⁴⁵⁺ en fonction du paramètre d'adiabaticité $u_i = \eta$: calculs relativistes d'ondes distordues par un potentiel double (TPDW) [Kuo *et al.* 2001]

Les calculs relativistes d'ondes distordues par un potentiel double (TPDW) utilisés notamment par Kuo *et al.* reproduisent bien les sections efficaces expérimentales d'ionisation. Ils ont récemment été appliqués aux cas des ions lourds notamment grâce au développement des « Electron Beam Ion Trap » (EBIT) : des mesures d'ionisation d'ions lourds hydrogénoïdes ont été effectuées par Marrs *et al.* à des énergies comprises entre 1,3 et 3,9 fois l'énergie seuil [Marrs *et al.* 1997] et Stöhlker *et al.* ont mesuré la section efficace d'ionisation de la couche L d'ions uranium très chargés U⁸³⁺ et U⁸⁹⁺ de 45, 60 et 75 keV

[Stöhlker *et al.* 1997]. Mentionons également qu'en dessous du seuil d'ionisation, il existe des processus indirects d'ionisation au cours d'une collision unique avec un électron : un électron de la couche K peut, par exemple, être amené sur une couche $n \geq 2$ par excitation, dans un état autoionisant qui peut conduire ensuite à l'émission d'un électron Auger.

III. Distribution de charge dans une cible solide

L'évolution de l'état de charge d'un ion en fonction de la profondeur de cible traversée peut être déterminée si l'on connaît :

- les sections efficaces de capture et de perte pour chaque niveau électronique,
- les probabilités de désexcitation radiative et non radiative des états excités. Les désexcitations les plus probables par transitions dipolaires électriques, sont proportionnelles à Z_p^4/n_f , alors que la désexcitation Auger varie peu avec Z_p . Cette dernière est donc négligeable pour les ions lourds très épluchés, sauf dans le cas d'états multi-excités.

Des programmes de simulation ont été développés pour prévoir l'état de charge d'ions dans les solides, notamment des codes de type Monte Carlo. Dans le code ETACHA [Rozet *et al.* 1987; Rozet *et al.* 1989], l'état de charge du projectile est déterminé par la résolution d'un système d'équations différentielles, en considérant les collisions avec les atomes cible comme binaires.

C. Illustration de l'apport original de la canalisation

Cette dernière partie du premier chapitre donne un bref aperçu de l'apport original de la canalisation dans l'étude des processus de captures électroniques et de perte d'énergie des ions dans les solides. Elle introduit, par la même occasion, les principaux sujets de notre étude sur la canalisation d'ions lourds hydrogénoïdes ralentis dans l'anneau de stockage de GSI à des énergies inférieures à 20 MeV/u.

I. Etudes du MEC en fonction du paramètre d'impact

Avant de présenter l'intérêt de la canalisation dans l'étude du MEC en fonction du paramètre d'impact, nous décrivons brièvement la technique de RIMS (Recoil Ion Momentum Spectroscopy) qui permet, depuis une dizaine d'années, d'étudier la dynamique des processus intervenant dans les collisions atomiques pour des énergies de projectile allant de 5 keV à 1,4 GeV.

1) La technique de spectroscopie par ion de recul (RIMS)

La technique de spectroscopie par ion de recul permet de déterminer l'état de charge et le vecteur impulsion des ions de recul issus de collisions entre un faisceau quelconque et des atomes cible. L'association de cette technique avec des détecteurs d'électrons de basse énergie rend possible la reconstruction complète de la cinématique de réactions atomiques. Une revue des différents résultats obtenus avec ce type de techniques a été effectuée par J. Ullrich *et al.* [Ullrich *et al.* 1997].

Seule, la spectroscopie par ions de recul ne permet pas de remonter directement à la dépendance en paramètre d'impact b des processus atomiques lors de collisions inélastiques. En effet, lorsque plusieurs électrons sont émis dans le continuum, la répartition de l'impulsion initiale du système est complexe et il n'existe pas de relation simple entre b et l'impulsion transverse p_{\perp} de l'ion de recul. Des calculs nCTMC ont été utilisés par Cassimi *et al.* pour obtenir la correspondance entre ces deux grandeurs dans le cas de collisions entre des ions nus Ne^{10+} de 6,82 keV/u et Ar^{18+} de 6,75 keV/u sur de l'hélium [Cassimi *et al.* 1996]. A plus haute énergie en revanche, on peut considérer que l'impulsion transverse de recul p_{\perp} est principalement due à l'interaction de grande portée projectile-atome cible [Gensmantel *et al.* 1992] et que la relation $p_{\perp}=F(b)$ est biunivoque. Avec certaines hypothèses, notamment sur le potentiel coulombien écrané utilisé pour déterminer la fonction F , Wong *et al.* ont obtenu les probabilités des processus d'ionisation et de capture d'ions F^{9+} de 2 MeV/u sur de l'hélium en fonction du paramètre d'impact [Wong *et al.* 1996].

2) Etude en condition de canalisation

La canalisation donne, dans le cadre du modèle continu, une information sur la dépendance des échanges de charge et de la perte d'énergie en fonction de l'énergie transverse des projectiles. Dans le cas d'ions effectuant principalement de la capture électronique, on peut notamment étudier la forte dépendance du MEC en fonction de la distance minimale r_{min} d'approche aux rangées ou aux plans d'atomes. Sous certaines hypothèses et avec des programmes de simulation de trajectoires et d'échanges de charge décrits au chapitre II, nous verrons, dans la deuxième partie du chapitre IV, comment il est possible de remonter à la dépendance de la capture mécanique en fonction du paramètre d'impact b aux atomes cible.

Pour illustrer la forte dépendance du MEC en fonction du paramètre d'impact b , nous présentons, sur la figure 13, les probabilités de capture MEC et REC d'un ion O^{8+} de 28,4 MeV (soit 1,8 MeV/u) sur un atome d'argent, en fonction de b [Miraglia *et al.* 1988]. Les probabilités de MEC ont été calculées dans le cadre de l'approximation CDW-EIS. On constate qu'elles décroissent très vite à partir de 0,6 u.a ($\sim 0,3 \text{ \AA}$) alors que la probabilité de REC, qui est proportionnelle à la densité électronique locale rencontrée par l'ion, présente une dépendance en paramètre d'impact beaucoup moins prononcée.

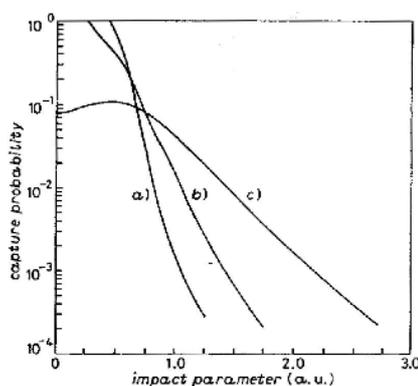


figure 13 : probabilités de captures mécaniques et radiatives en fonction du paramètre d'impact lors de collisions entre des ions O^{8+} de 27,8 MeV avec des cibles d'Ag. a) MEC sur la couche 1s de l'ion O^{7+} . b) MEC sur la couche 2p de l'ion O^{7+} . c) Probabilité de REC ($\times 10^4$) [Miraglia *et al.* 1988].

Dans le cas des ions U^{91+} de 20 MeV/u, la charge très élevée des projectiles augmente considérablement la section efficace de MEC, proportionnelle à Z_p^5 d'après l'équation 21. La vitesse du projectile $v_p \sim 27v_0$ est grande devant la vitesse moyenne initiale des électrons de la cible. La capture s'effectue donc pratiquement exclusivement à partir des électrons K

du silicium ($\langle v_K \rangle_{Si} \sim 11v_0$) et les électrons capturés se retrouvent surtout sur les couches externes du projectile.

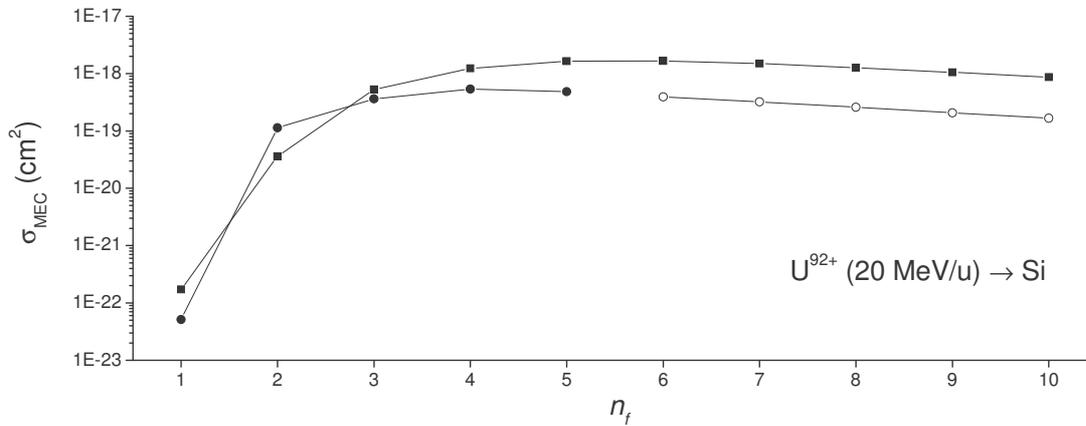


figure 14 : Sections efficaces de MEC pour des ions U^{92+} de 20 MeV/u sur une cible de silicium en fonction du nombre quantique principale n_f de la couche du projectile sur laquelle s'effectue la capture. Calculs CDW (carrés pleins) [Rozet communication privée] calculs CDW-EIS (cercles pleins) [Rivarola, communication privée] extrapolés par la loi d'échelle en n_f^{-3} (équation 21) pour la capture sur les états très excités (cercles ouverts).

Ceci est confirmé par les calculs de sections efficaces CDW (carrés pleins) de Rozet et CDW-EIS (cercles pleins) de Rivarola *et al.* présentés sur la figure 14 en fonction du nombre quantique principal n_f de la couche du projectile sur laquelle la capture a lieu [Rozet, Rivarola - communications privées]. Le facteur trois de différence entre les deux calculs à $n_f=5$ est dû au problème de normalisation des fonctions d'onde distordues dans l'approximation CDW, mentionné au paragraphe B.I.1). Les sections efficaces CDW-EIS calculées jusqu'à $n_f=5$ ont été extrapolées suivant la loi d'échelle en n_f^{-3} (cf. équation 21).

Les probabilités de capture $P_{MEC}^{n_f}(b)$ sur les couches $n_f \leq 5$ issues des calculs CDW-EIS de Rivarola *et al.* [communication privée] sont présentées sur la figure 15, avec leur extrapolation aux couches $n_f=10$ (les probabilités extrapolées sont notées $P_{MEC}^{*n_f}(b)$).

La méthode que nous avons utilisée pour effectuer cette extrapolation est fondée sur l'étude des fonctions d'onde hydrogénoïdes de l'uranium et développée au chapitre IV (paragraphe B.I.3)). La somme des probabilités de capture jusqu'au continuum montre qu'un ion U^{91+} de 20 MeV/u capture des électrons par MEC relativement loin des atomes

cible. Cependant, les électrons capturés sur les couches périphériques du projectile ont de grandes chances d'être perdus par excitation et ionisation par impact d'électrons (EII et EIE), lors de collisions ultérieures dans un solide. C'est pourquoi, nous avons choisi de représenter également sur la figure 15 la somme des probabilités de capture jusqu'à $n_f=10$. Comme le rayon du canal $\langle 110 \rangle$ et les distances interplanaires des plans (110) et (111) du silicium sont typiquement de 2 \AA , la technique de canalisation permet *a priori* d'étudier la dépendance de la capture mécanique d'ions uranium très chargés de 20 MeV/u , en fonction du paramètre d'impact de collision vis-à-vis d'atomes cible de silicium.

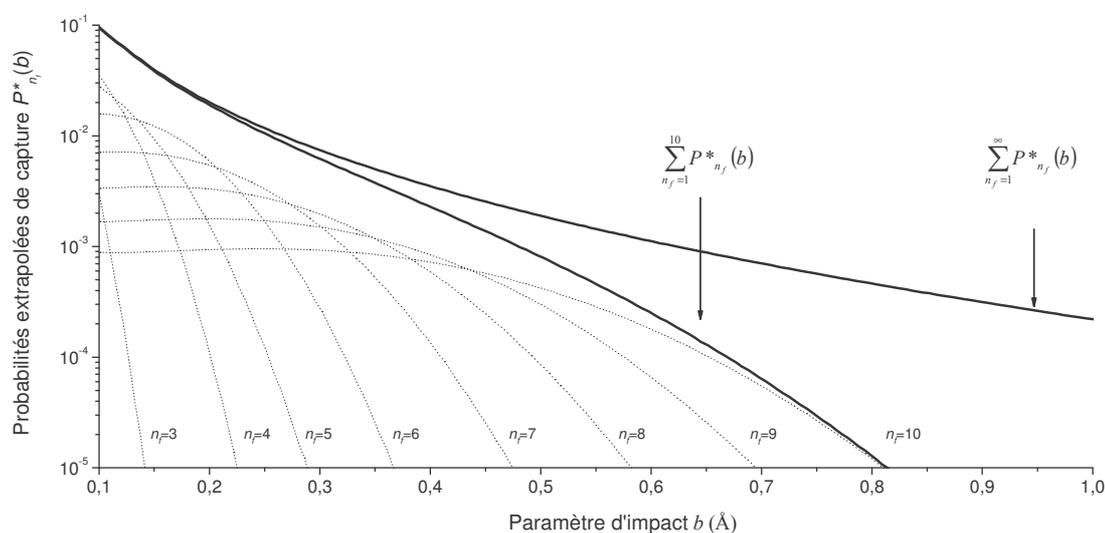


figure 15 : probabilités de MEC extrapolées d'ions U^{91+} de 20 MeV/u sur un atome de silicium en fonction de la couche n_f où s'effectue la capture et du paramètre d'impact b . $n_f=1$ à 5 : probabilités calculées par Rivarola *et al.* [Rivarola - communication privée]. $n_f \geq 5$: probabilités extrapolées $P_{MEC}^{*n_f}(b)$.

II. Etude de l'effet de sillage sur le REC

1) Le champ de sillage

Le champ de sillage est le potentiel électrique qui résulte de la polarisation du gaz dense d'électrons d'une cible solide par le mouvement d'une particule chargée rapide. Le potentiel Φ correspondant est décomposé par Echenique *et al.* [Echenique *et al.* 1979] de la manière suivante :

$$\Phi(\rho, z) = \frac{Z_p e}{R} + \Phi_w(\rho, z) \quad \text{équation 37}$$

où l'axe z est suivant la direction du projectile, $\rho = \sqrt{x^2 + y^2}$, $R = \sqrt{\rho^2 + z^2}$ et $\Phi_w(\rho, z)$ est le potentiel de sillage. Ce dernier peut s'écrire sous la forme d'une somme de trois termes :

$$\Phi_w = \Phi_0 + \Phi_c + \Phi_i \quad \text{équation 38}$$

- Φ_0 correspond à l'écrantage dynamique de l'ion par les électrons du milieu. Il se traduit par une chute du potentiel électrique au voisinage direct du projectile. A des distances grandes devant $d_0 = v_p / \omega_p$ (où v_p est la vitesse du projectile et ω_p est la pulsation de plasmon du gaz d'électrons qui dépend de la densité) le projectile est complètement écranté.
- Φ_i est la contribution des électrons qui subissent des collisions binaires avec le projectile et qui forment une onde de proue. Son extension spatiale est de l'ordre de $d_i = 2\pi\hbar / m_e v_p$.
- Φ_c correspond à la réponse collective du milieu qui crée une onde de potentiel derrière le projectile.

La chute de potentiel électrique au voisinage du projectile et l'onde de potentiel sont illustrées par la figure 16 qui présente la surface de potentiel de sillage $\Phi_w(\rho, z) / Z_p e$ calculée pour un projectile se déplaçant à la vitesse $v_p = 2 v_0$, suivant la direction z et dans un milieu caractérisé par $\hbar\omega_p = 25$ eV [Echenique *et al.* 1979]. L'onde de proue due aux collisions binaires est visible sur la figure de fluctuation de densité électronique présentée au paragraphe suivant. Dans le cas des ions U^{91+} de 20 MeV/u canalisés dans un cristal de silicium, et pour une valeur $\hbar\omega_p$ de 16 eV qui correspond à la densité des électrons de valence, $d_0 \sim 16$ Å et $d_i \sim 0,1$ Å. L'écrantage dynamique de ces ions n'est donc pas local.

Le potentiel de sillage Φ_w peut tout d'abord être vu comme responsable de la perte d'énergie. En effet, son gradient selon la direction de \vec{v} multiplié par $Z_p e$ donne une expression de la force de ralentissement (de l'ordre de 10^8 à 10^9 eV/cm) qu'exerce le milieu

sur le projectile. Echenique *et al.* [Echenique *et al.* 1979] ont montré que cette force est dominée par la contribution du potentiel Φ_c , associée à l'excitation collective du gaz d'électrons, et qu'elle conduit, à haute énergie, à une formule du pouvoir d'arrêt identique à celle de Bethe.

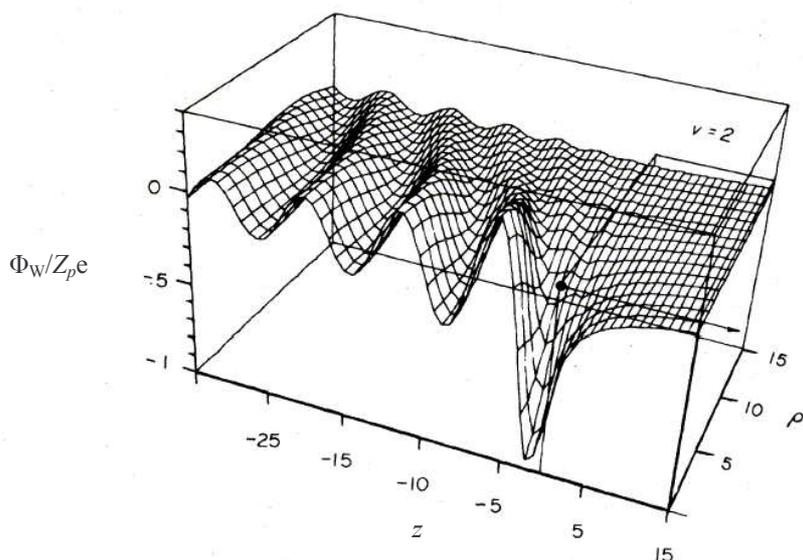


figure 16 : surface de potentiel de sillage $\Phi_w(\rho,z)/Z_p e$ (en unité atomique) calculée pour un projectile se déplaçant à la vitesse $v_p=2 v_0$ suivant la direction z dans un milieu caractérisé par $\hbar\omega_p=25$ eV et $\omega_g=\gamma=0$. Le point correspond à la position du projectile et à l'origine du système de coordonnées (z,ρ,Φ) et la flèche donne le sens de propagation [Echenique *et al.* 1979].

L'effet de sillage a été mis en évidence pour la première fois de manière directe par Gemmell *et al.* [Gemmell *et al.* 1975] avec l'étude de la dissociation de molécules rapides diatomiques canalisées à travers des cristaux minces. A partir de la distribution angulaire des fragments transmis, les auteurs ont montré que ces fragments ont tendance à s'aligner dans le solide, le fragment situé à l'arrière étant aspiré par le sillage de l'ion de tête.

Un autre effet du potentiel de sillage est la perturbation des niveaux d'énergie du projectile. Il est en grande partie dû à l'écrantage dynamique Φ_0 . A la position du projectile, la valeur du potentiel est donnée par l'expression suivante, dans le cadre de la théorie de réponse linéaire du milieu [Echenique *et al.* 1979] :

$$\Phi_w(0,0) = -\frac{\pi Z_p \hbar \omega_p}{2 v_p / v_0} \quad \text{équation 39}$$

Le potentiel de sillage a à la fois pour conséquence de décaler les niveaux d'énergie et d'induire un effet Stark qui lève la dégénérescence des états du projectile [Burgdörfer 1992]. Cet effet Stark est mis en évidence par des études de spectroscopie X de haute résolution : le mélange des niveaux modifie les populations des différents états atomiques, la durée de vie des états excités et donc l'intensité relative des transitions de désexcitation. Celle des composantes de structure fine de la transition Balmer $n=3 \rightarrow n=2$ des ions Kr^{35+} a par exemple été déterminée par l'équipe PIIM du GPS ([Despiney 1994], [Vernhet *et al.* 1997]). Un modèle basé sur le mélange Stark donne des résultats en accord avec l'expérience, ce qui n'est pas le cas d'un modèle collisionnel du même type qu'ETACHA.

Enfin, mentionnons l'effet de l'écrantage dynamique d'un ion sur sa perte d'énergie : l'effet Barkas [Barkas *et al.* 1963]. Sa prise en compte introduit une petite correction à la formule de Bethe (inférieure à 5% pour des ions lourds autour de 20 MeV/u). Le calcul de cet effet par Lindhard [Lindhard 1976] conduit à une expression du potentiel d'écrantage $\Phi_w(0,0)$ identique à celle de Echenique *et al.* (équation 39).

2) Conséquences pour le REC

(a) Décalage du pic REC

L'énergie des niveaux atomiques du projectile intervient directement dans l'expression de l'énergie des photons de REC (voir l'équation 27). L'effet de sillage induit donc également un décalage ΔE_{REC} vers les basses énergies des raies de REC observées qui s'exprime, dans le référentiel du projectile, par la relation suivante :

$$\Delta E_{REC} \left(\frac{Z_p}{v_p} \right) = -\frac{\pi Z_p \hbar \omega_p}{2 v_p / v_0} \quad \text{équation 40}$$

L'effet attendu est donc un décalage vers les basses énergies, proportionnel à Z_p/v_p (la nature de la cible intervient par l'intermédiaire de ω_p). La canalisation d'ions lourds dans un cristal peut permettre l'observation de cet effet, car celui-ci est important à relativement

basse énergie, dans un domaine où le REC est généralement très minoritaire hors canalisation.

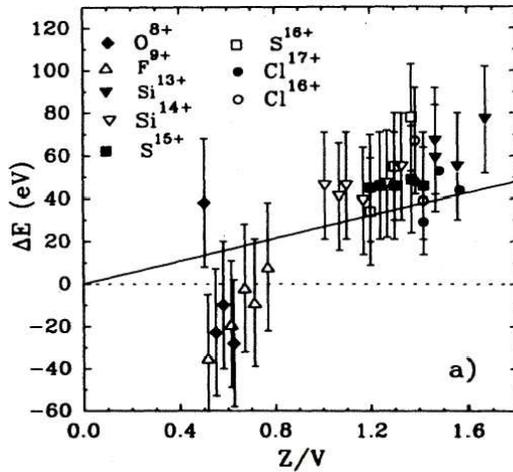


figure 17 : décalage $-\Delta E_{REC}$ de l'énergie moyenne de la raie de REC-K en fonction du rapport Z_p/v_p du projectile pour des ions silicium chlore, carbone, oxygène, fluor et soufre [Tribedi *et al.* 1995]. Le décalage théorique (équation 39) est représenté par la ligne continue.

Tribedi *et al.* ont mesuré des décalages ΔE_{REC} de l'ordre d'une quarantaine d'électron-volts pour des ions nus et hydrogénoïdes canalisés dans des cristaux de silicium, dans un domaine d'énergie allant de 2 à 5 MeV/u. Ces mesures sont présentées sur la figure 17 en fonction du rapport Z_p/v_p [Tribedi *et al.* 1995], [Tribedi *et al.* 1994].

(b) *Augmentation de la densité électronique locale*

La figure 18 présente diverses sections efficaces de REC-K mesurées en cibles solides et gazeuses en fonction du paramètre $\eta_K = \xi_K^{-2}$ qui correspond à l'énergie du projectile, exprimée en unité d'énergie de liaison de la couche K. La ligne continue représente la courbe calculée à partir de l'équation de Stobbe (équation 28). La plupart des points correspondant à des cibles gazeuses se trouvent systématiquement sur la courbe en pointillées tracée à 35% de la ligne continue. En revanche, les données obtenues avec des cibles solides, en utilisant des ions lourds ($Z_p > 16$) canalisés, correspondent plus ou moins à la valeur théorique. Cette différence systématique semble mettre en évidence un effet de l'état solide. Tribedi *et al.* [Tribedi *et al.* 1995] attribuent cet effet à l'augmentation de la densité électronique au voisinage du projectile comme le prévoit les calculs d'Echenique *et al.* [Echenique *et al.* 1979]. En négligeant les processus d'amortissement du milieu, l'augmentation relative de la densité d'électrons s'élève à :

$$\frac{\delta\rho_e(0,0)}{\rho_e} \approx \frac{\pi Z_p}{v_p/v_0} \quad \text{équation 41}$$

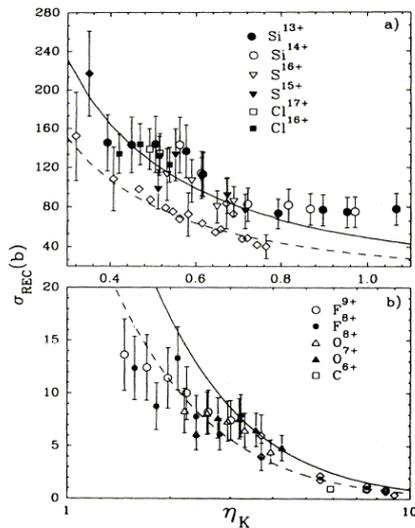


figure 18 : $\sigma_{\text{REC-K}}$ pour des ions de $Z_p \geq 14$ (a) et $Z_p \leq 9$ (b) en fonction du paramètre d'adiabaticité $\eta_K = E/E_K$. Points légendés : mesures de Tribedi *et al.* en condition de canalisation dans un cristal de silicium [Tribedi *et al.* 1995]. La courbe continue représente la section efficace de Stobbe (équation 28) et la ligne en pointillés est 35% inférieure. Les losanges sont des mesures en cibles gazeuses qui correspondent aux collisions $\text{Ge}^{31+} \rightarrow \text{H}_2$ dans (a) et $\text{O}^{8+} \rightarrow \text{H}_2/\text{He}$ dans (b). Le losange plein est une mesure avec des ions Xe^{53+} à 25 MeV/u canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ du silicium [Andriamonje *et al.* 1987].

La figure 19 présente par exemple la fluctuation de densité électronique $\delta n(\rho, z)$ induites par un ion se déplaçant avec une vitesse $v_p = 2 v_0$, dans un milieu caractérisé par une valeur $\hbar\omega_p$ de 25 eV [Echenique *et al.* 1979].

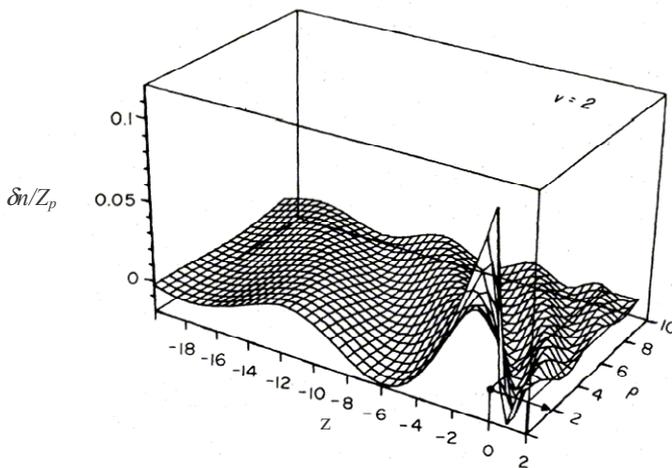


figure 19 : surface de fluctuations de densité électronique $\delta n(\rho, z)$ (en électron/ a_0^3) induites par un ion se déplaçant dans les mêmes conditions que figure 16 [Echenique *et al.* 1979].

La capture radiative étant un processus local, on pourrait imaginer que cette surdensité conduise à une augmentation de la probabilité de ce processus. Cependant l'augmentation de la section efficace de REC mesurée par Tribedi *et al.* n'est que de 55%

dans le cas du S^{16+} à 4 MeV/u alors que l'augmentation relative de densité électronique $\delta n(0,0)$ serait de 4 d'après l'équation 41. Les auteurs ont par ailleurs essayé de mettre en évidence une dépendance en Z_p/v_p de l'effet solide sur les sections efficaces sans réel succès. Il est à noter que les théoriciens qui ont évalué la surdensité électronique $\delta n(0,0)$ ne la prennent pas en compte dans leur calcul de la section efficace de REC en condition de canalisation [Pitarke *et al.* 1991].

III. Le profil Compton des électrons cible

Nous avons vu au paragraphe B.I.2) que la distribution en énergie des photons de REC observés dépend du profil Compton des électrons capturés. L'étude des raies associées au REC donne donc une information sur la structure électronique de la cible. De plus, le profil Compton est d'autant plus large que l'énergie de liaison initiale des électrons à l'atome cible est grande. On peut donc déduire de la forme d'une raie REC la contribution des différentes couches atomiques de la cible à la capture radiative.

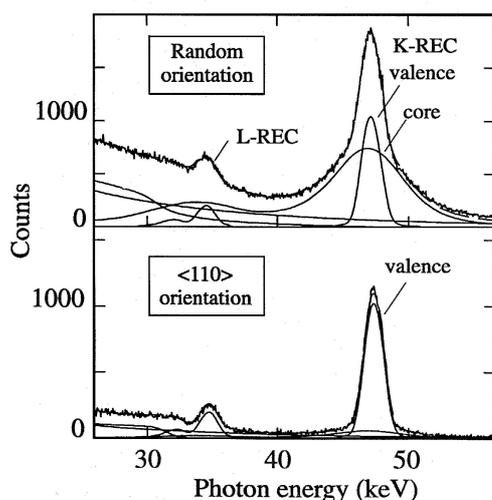


figure 20 : spectres de photons émis à 90° pour des ions nus Kr^{36+} de 60,1 MeV/u lors de la traversée d'un cristal de silicium de $37 \mu m$ [Andriamonje *et al.* 1996].

Andriamonje *et al.* ont, par exemple, effectué une étude précise du REC-K avec des ions nus de Kr^{36+} de 60 MeV/u canalisés dans un cristal de silicium de $37 \mu m$ [Andriamonje *et al.* 1996]. Les spectres de photons mesurés en orientation aléatoire et en condition de canalisation dans l'axe $\langle 110 \rangle$ sont présentés sur la figure 20. On remarque tout d'abord que le REC-K est tout à fait observable hors canalisation. En effet, à cette énergie relativement élevée, 80 % des ions sont complètement épluchés à l'équilibre de charge et les couches internes du projectile restent disponibles pour la capture radiative. La

Chapitre I

forme du pic met également en évidence le profil Compton très large des électrons de cœur des atomes cible. En orientation axiale, les ions bien canalisés ne voient pratiquement plus les électrons de cœur, et le profil Compton du pic REC se limite essentiellement à celui des électrons de valence.

Des programmes de simulation Monte Carlo de raies REC ont été développés pour séparer les contributions des différentes couches atomiques de la cible à la capture et fournir des informations quantitatives sur le profil Compton des électrons et la section efficace de REC. Les principaux résultats de l'étude sont les suivants :

- La contribution des électrons de cœur au REC est significative en canalisation axiale (lorsque, comme ici, les lacunes des projectiles ont une faible probabilité d'être comblées par le MEC).
- La mise en évidence d'une dépendance du profil Compton en fonction du paramètre d'impact : la sélection des ions les mieux canalisés (environ 45 % du faisceau), qui supprime pratiquement le REC sur les électrons de cœur, présente un profil Compton sensiblement plus étroit que celui obtenu avec des simulations considérant l'ensemble des électrons de valence du cristal.
- Le modèle du gaz d'électron libre semble une bonne approximation pour la description du profil Compton des électrons de valence.
- La section efficace de REC-K, mesurée avec une incertitude inférieure à 20 %, est proche de la section efficace de Stobbe (**équation 28**).

Dans notre étude sur l' U^{91+} de 20 MeV/u, l'étude de la forme des raies REC permet surtout d'étudier la compétition entre les deux processus de capture MEC et REC en fonction du paramètre d'impact.

IV. La perte d'énergie

Dans le paragraphe de présentation de la canalisation dans un cristal, nous avons vu que la perte d'énergie des ions subie lors de la traversée était plus faible en canalisation qu'en orientation aléatoire à cause d'une densité d'électrons rencontrés réduite. En fait, pour évaluer la perte d'énergie d'un ion en canalisation, il faut à la fois prendre en compte la

distribution de densités électroniques rencontrées par les ions et celles des pulsations caractéristiques des oscillateurs dipolaires f_i des différentes couches atomiques.

1) Contribution des différentes couches atomiques à la perte d'énergie

Andersen *et al.* [Andersen *et al.* 1996] ont séparé les contributions des différentes couches atomiques du silicium à la perte d'énergie d'ions Br^{33+} de 15 MeV/u, le long de l'axe $\langle 110 \rangle$. La première difficulté réside dans l'évaluation réaliste des pulsations caractéristiques ω_i des différentes couches, c'est-à-dire de leur énergie d'ionisation moyenne $I = \hbar\omega_i$. Deux effets sont à prendre en compte :

- Le principe d'exclusion de Pauli qui bloque les transitions vers les états déjà occupés et qui diminue l'intensité f_i des forces d'oscillateurs des couches internes au profit de celle des couches externes. Sans cet effet, il y aurait égalité entre les intensités f_i et le nombre d'électron N_i de chaque couche i (voir le paragraphe A.V.). Le tableau 1 présente les forces d'oscillateurs et les énergies d'ionisation du silicium [Forster *et al.* 1993], [Andersen *et al.* 1996]. On voit que, dans le cas du silicium, le blocage des transitions vers les états déjà occupés se manifeste simplement par un transfert d'intensité f de la couche K à la couche L d'environ 0,5.
- Les effets collectifs qui se limitent essentiellement à l'interaction des électrons d'une même couche. Ils sont négligeables sur la couche K mais ils augmentent l'énergie moyenne d'ionisation I_L et I_M d'un facteur $\sqrt{2}$ comme le prévoit l'estimation théorique de Lindhard et Scharff [Lindhard *et al.* 1953].

Shell	Dipole oscillator strength	I value ^a (eV)	I value ^b (eV)
K	1.5	3200	3200
L	8.5	240	310
M	4.0	11	17

tableau 1 : forces d'oscillateurs et énergies d'ionisations du silicium.^a valeurs estimées à partir de la figure 8 de l'article de Forster *et al.* [Forster *et al.* 1993]. ^b effets collectifs inclus [Andersen *et al.* 1996].

Chapitre I

Il faut ensuite intégrer les transferts d'énergie $T(b_e)$ sur l'ensemble des paramètres d'impact vis-à-vis des électrons avec comme paramètre d'impact de coupure adiabatique

$$b_{ad} = \frac{v}{\omega_i} = \frac{v\hbar}{I_i} \text{ (où } i \text{ est le numéro de la couche). Les auteurs ont étudié la perte d'énergie de}$$

la fraction la mieux canalisée des ions gelés $^{79}\text{Br}^{33+}$ de 15 MeV/u qui correspond à un espace transverse accessible A tel que $A/A_0=0,19$ (A_0 est la surface du canal $\langle 110 \rangle$ du silicium). Ils montrent que la contribution de la couche K à la perte d'énergie est négligeable mais que celle de la couche L représente environ 15% de la perte d'énergie expérimentale.

2) Traitement théorique de la dépendance en paramètre d'impact de la perte d'énergie

L'étude de la perte d'énergie présentée ci-dessus a été effectuée de manière analytique et la dépendance du transfert d'énergie $T(b_e)$ en fonction du paramètre d'impact b_e vis-à-vis d'un électron cible est assez approximative. Schiwietz et Grande ont développé des calculs UCA (Unitary Convolution Approximation) qui donnent une expression analytique de $T(b_e)$ en bon accord avec des calculs quantiques complets [Schiwietz *et al.* 1999] :

$$T(b_e) = t(b_e, Z_p, v_p) \times h(2m_e v_p b_e / \hbar) \times \sum_i f_i g\left(\frac{\omega_i b_e}{v_p}\right) \quad \text{équation 42}$$

avec $t(b_e, Z_p, v_p)$ le transfert d'énergie obtenu en supposant l'électron immobile lors de la collision :

$$t(b_e, Z_p, v_p) = \frac{2Z_p^2 e^4}{m_e v_p^2 b_e^2 (4\pi\epsilon_0)^2} \quad \text{équation 43}$$

Le produit $t \times h$ décrit les collisions binaires, alors que $t \times g$ rend compte des transitions dipolaires à grandes distances. La fonction $h \times \sum_i f_i g(\omega_i)$ est représentée sur la figure 21 en fonction de b_e pour des projectiles non échantés de 3 MeV/u : les contributions respectives aux transferts d'énergie des collisions à petits et grands paramètres d'impact sont mises en évidence par le maximum à 0,3 u.a. dû à la fonction h et l'épaulement à 3 u.a.

qui provient de la fonction g . Le passage du transfert d'énergie $T(b_e)$ au pouvoir d'arrêt s'effectue par la convolution de $T(b_e)$ avec la densité électronique $\rho_e(\vec{r})$. A haute énergie, le pouvoir d'arrêt obtenu tend vers la formule de Bethe (voir le paragraphe A.V.). Ces calculs UCA ont notamment été appliqués à la perte d'énergie en canalisation dans du silicium, d'ions ^4He et ^7Li de haute énergie [Azevedo *et al.* 2001]. Les auteurs ont également étudié la validité de leur approche avec des ions relativement lourds pour lesquels la perte d'énergie se rapproche du régime de Bohr ($Z_p/v_p \gg 1$) [Grande *et al.* 2002].

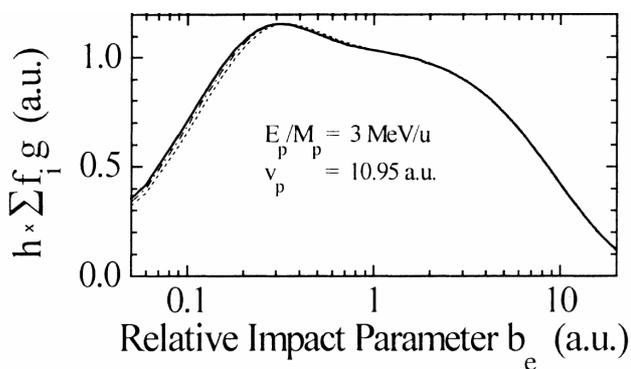


figure 22 : dépendance, en fonction du paramètre d'impact b_e (vis-à-vis des électrons cible) de la fonction « efficacité du transfert d'énergie » ($h \times \sum f_i g$) pour des projectiles nus de 3 MeV/u, et des atomes cible d'hélium [Schiwietz *et al.* 1999].

3) Non-localité de la perte d'énergie d'ions lourds

Pour s'affranchir de la dépendance en Q^2 de la perte d'énergie d'un ion dans un solide, on peut définir une perte d'énergie réduite $\bar{\epsilon}_C(Q_{out})$ en fonction de l'état de charge Q_{out} des ions émergeant de la cible :

$$\bar{\epsilon}_C(Q_{out}) = \langle \Delta E \rangle (Q_{out}) \frac{Q_{in}^2}{\langle Q^2 \rangle (Q_{out})} \quad \text{équation 44}$$

où Q_{in} est l'état de charge des ions incidents et $\langle \Delta E \rangle (Q_{out})$, $\langle Q^2 \rangle (Q_{out})$ sont respectivement la perte d'énergie moyenne et la moyenne du carré de l'état de charge dans la cible des ions dont l'état de charge en sortie est Q_{out} .

L'Hoir *et al.* ont déterminé par exemple la perte d'énergie réduite $\bar{\epsilon}_C(\epsilon_{\perp})$ des ions Xe^{35+} de 27 MeV/u canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ du silicium en fonction de l'énergie transverse réduite ϵ_{\perp} [L'Hoir *et al.* 1990]. La figure 23 présente cette perte d'énergie réduite $\bar{\epsilon}_C(\epsilon_{\perp})$ ainsi que la densité électronique locale moyenne rencontrée $\bar{\rho}_e(\epsilon_{\perp})$ par les

projectiles en fonction de ε_L . Le fait que la perte d'énergie réduite des ions les mieux canalisés soit pratiquement indépendante de la densité moyenne locale d'électrons rencontrés met en évidence le caractère non local de la perte d'énergie des ions lourds (alors que les transferts d'énergie des ions légers aux électrons cible sont en grande partie localisés au voisinage du projectile [Desalvo *et al.* 1977]) ; les auteurs interprètent ce résultat en considérant séparément la contribution des collisions binaires avec des transferts d'énergie supérieures à l'énergie de plasmon $\hbar\omega_p=16,6$ eV, et celle des excitations collectives du gaz d'électrons. Le paramètre d'impact maximum b_{max} pour lequel le transfert d'énergie lors des collisions binaires est supérieur à l'énergie de plasmon $\hbar\omega_p$ est de $1,3 \text{ \AA}$.

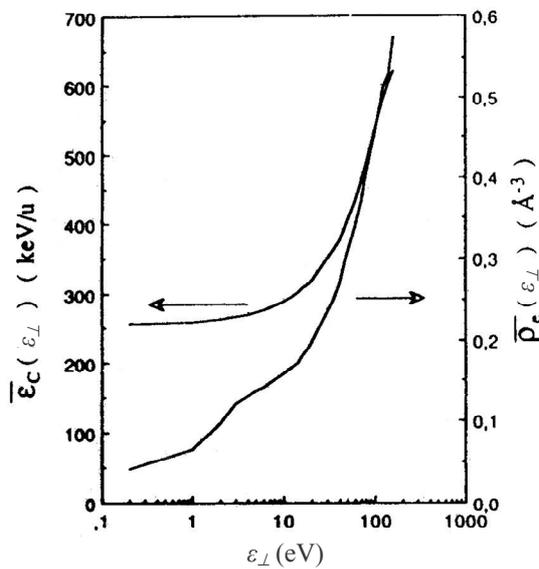


figure 23 : perte d'énergie réduite d'ions Xe^{35+} de 27 MeV/u (voir texte) en fonction de l'énergie transverse réduite dans l'axe $\langle 110 \rangle$ d'un cristal de silicium de $21 \mu\text{m}$ (échelle de gauche). Densité électronique moyenne rencontrée par un projectile en fonction de l'énergie transverse réduite (échelle de droite) [L'Hoir *et al.* 1990].

Rappelons que dans le cas d'une interaction coulombienne, le paramètre d'impact $b(\Delta E)$ associé à un transfert d'énergie ΔE donné est à peu près proportionnel à Q^2 . De façon classique, b est en effet relié au transfert d'énergie ΔE par la relation suivante [Jackson 1975] :

$$\Delta E(b) = \frac{2Q^2 e^4}{m_e v^2} \frac{1}{b_{\min}^2 + b^2} \quad \text{équation 45}$$

où

$$b_{\min} = \frac{Qe^2}{m_e v_p^2} \quad \text{équation 46}$$

Les collisions dites binaires font donc intervenir des électrons éloignés de la trajectoire d'un ion lourd d'état de charge élevé.

4) Ralentissement d'ions lourds hydrogénéoïdes en condition de canalisation

Nous avons vu que la perte d'énergie d'un ion rapide dans un solide, proportionnelle au carré de la charge, est limitée par la capture électronique. En canalisation, les ions les mieux canalisés peuvent rester gelés dans leur état de charge initial. En particulier, ce type d'ion, dans notre expérience de canalisation d'ions U^{91+} de 20 MeV/u dans un cristal de silicium de 11,7 μm , conserve une charge très élevée lors de la traversée du cristal. On peut alors imaginer qu'ils puissent perdre une énergie supérieure à celle des ions hors canalisation, bien qu'ils rencontrent des densités d'électrons plus faibles.

Si l'on considère que, pour une même charge, le rapport des pertes d'énergie subies en condition de canalisation et hors canalisation est d'environ 0,5, on peut évaluer le

taux de perte d'énergie des ions gelés $\left(\frac{dE}{dz}\right)_{\langle 110 \rangle}^{(91+)}$ avec la relation suivante :

$$\left(\frac{dE}{dz}\right)_{\langle 110 \rangle}^{(91+)} \approx \frac{1}{2} \left(\frac{dE}{dz}\right)_{rand} \left(\frac{91}{\bar{Q}}\right)^2 \quad \text{équation 47}$$

où $\left(\frac{dE}{dz}\right)_{rand}$ est le taux de perte d'énergie en orientation aléatoire et \bar{Q} est l'état de charge

moyen à l'équilibre de charge pour l'énergie considérée. \bar{Q} est proche de 74 pour les ions

incidents U^{91+} de 20 MeV/u et l'on a donc $\left(\frac{dE}{dz}\right)_{\langle 110 \rangle}^{(91+)} \approx 0,8 \left(\frac{dE}{dz}\right)_{rand}$. Les ions gelés U^{91+} de

20 MeV/u perdent donc *a priori* moins d'énergie que les ions qui traversent le cristal hors canalisation. Ceci est confirmé par le taux de perte d'énergie mesuré lors de notre première expérience ; il est présenté sur la figure 24 avec la variation du taux de perte d'énergie (hors canalisation) d'ions uranium d'énergie E , dans du silicium, en fonction de E (calcul du code TRIM).

L'extrapolation en $1/E$ du taux de perte d'énergie mesuré montre que les ions gelés devraient effectivement perdre plus d'énergie qu'en orientation aléatoire pour une énergie E inférieure à 15 MeV/u.

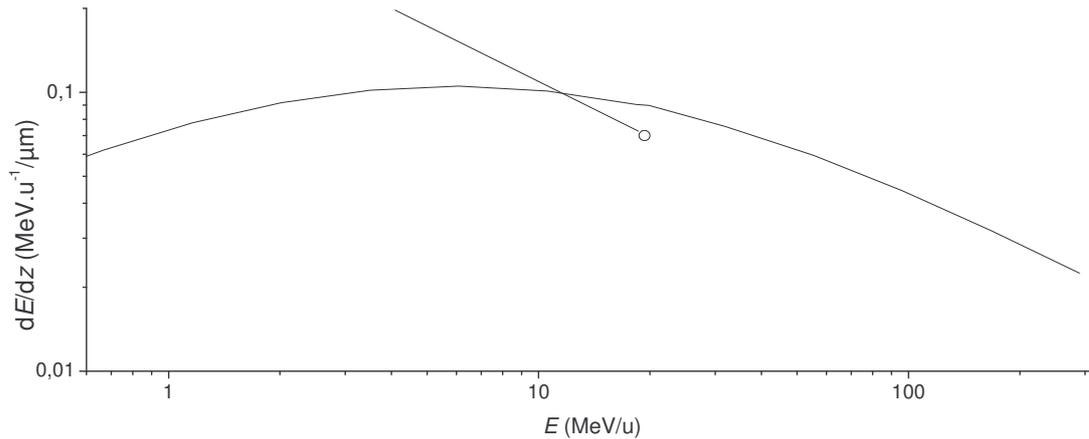


figure 24 : courbe : variation de la perte d'énergie linéique d'ions uranium d'énergie E , dans du silicium, en fonction de E (calcul du code TRIM). Point : mesure du taux de perte d'énergie d'ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ d'un cristal de silicium. Droite : extrapolation en $1/E$ de ce taux à plus basse énergie.

Le ralentissement de ce type d'ions lourds et très chargés est cependant limité par l'augmentation de la probabilité de capture, principalement celle du MEC, au cours de la traversée du cristal. Cette augmentation est due :

- à la forte dépendance du MEC en fonction de l'énergie des ions ($\sigma_{MEC} \propto 1/E^{-5,5}$ d'après l'équation 22). Les ions ont notamment une probabilité importante de capturer un ou plusieurs électrons à la sortie du cristal de silicium, car les surfaces cristallines sont recouvertes de quelques dizaines de couches atomiques amorphes d'oxyde de silicium,
- à la diffusion multiple sur les électrons de la cible qui augmente l'énergie transverse des ions au cours de leur traversée du cristal et accroît la probabilité de capture mécanique.

Chapitre II

Programmes de simulations

L'analyse des expériences de canalisation nécessite en général l'utilisation de programmes de simulation. Dans notre étude, nous avons tout d'abord utilisé un programme de calcul de trajectoires des ions canalisés. Ces simulations sont idéales pour déterminer les distributions de paramètres d'impact des projectiles par rapport aux atomes cible, qui sont nécessaires dans notre étude de la capture mécanique. Cependant, les calculs de trajectoires sont longs. Dans une première approche de l'étude des processus d'échange de charge ou de la perte d'énergie, des simulations fondées sur le calcul de distributions de flux à l'équilibre, nettement moins coûteuses en temps de calcul, ont donc été privilégiées au sein de notre équipe. Les justifications de ce choix sont données dans ce chapitre ainsi que dans la deuxième partie du chapitre IV.

A. Simulations de trajectoires d'ions canalisés

I. Exemples de simulations

Ce sont justement des calculs de trajectoires d'ions lents dans des cristaux qui conduisirent au début des années 60 à la découverte de la canalisation de particules chargées [**Robinson *et al.* 1963**] : des temps de calcul particulièrement longs ont en effet mis en évidence les longueurs anormales de parcours des ions pénétrant dans une cible le long d'un axe cristallin. De nombreuses expériences de canalisation d'ions légers de quelques MeV suivirent à partir de 1965.

À la fin des années 60, J. Barrett a mené une analyse détaillée de ces expériences à l'aide de simulations Monte Carlo [**Barrett 1971**]. L'un des objectifs principaux de ces simulations était la reproduction des grandeurs expérimentales les plus fréquemment

Chapitre II

mesurées, notamment le taux d'extinction des collisions nucléaires en condition de canalisation χ_{\min} , en fonction de l'amplitude des vibrations thermiques et de l'énergie des projectiles. L'intérêt fondamental de ce genre de calcul est que l'on suit le projectile au cours de la traversée du cristal. Barrett a ainsi calculé la variation de la probabilité de collision proche avec les atomes cible en fonction de la profondeur de pénétration du projectile en condition de canalisation. La figure 25 présente par exemple le résultat obtenu pour des protons de 0,4 MeV canalisés le long du plan (111) de l'aluminium. La probabilité de collision proche avec les atomes cible est maximale lors de la collision rasante à l'entrée du cristal (« pic de surface »). Elle décroît ensuite à mesure que les ions sont repoussés loin des plans atomiques jusqu'à atteindre un minimum quand les ions se trouvent au centre du canal. Le second pic apparaît lorsque les projectiles atteignent à peu près en phase le plan suivant. Si l'on note λ la longueur d'onde associée à la trajectoire de ces ions, les pics correspondant aux oscillations suivantes devraient apparaître à $\lambda/2$, λ , $3\lambda/2$ etc ... La simulation montre que ces pics tendent à s'estomper avec la profondeur de cristal traversée. Cet amortissement est dû au fait que la longueur d'onde λ dépend sensiblement de l'énergie transverse des ions et que les trajectoires des ions non canalisés ne sont plus du type oscillatoire dès que les ions subissent au moins une déflexion angulaire supérieure à l'angle critique ψ_c .

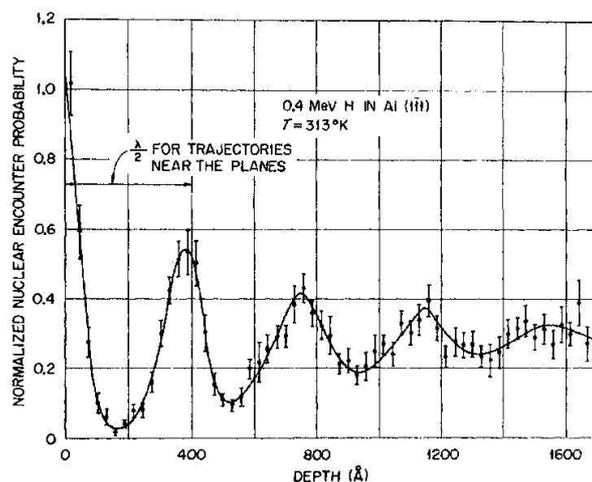


figure 25 : Probabilité, en fonction de la profondeur de pénétration, de collision proche avec les atomes cible de protons de 0,4 MeV canalisés le long du plan (111) d'un cristal d'aluminium [Barrett 1971].

Un autre cas où les calculs de trajectoires sont nécessaires est l'étude de l'excitation nucléaire par effet Okorokov [Okorokov *et al.* 1973], [Shindo *et al.* 1976].

Dans certaines conditions de résonance, la périodicité du potentiel d'une rangée atomique, qui est négligée dans l'approximation du potentiel continu, peut se manifester par l'excitation cohérente du projectile. D'un point de vue purement cinématique, on peut prévoir que la résonance est atteinte, au cours d'une collision rasante avec une rangée d'atomes, séparés d'une distance d , lorsque la fréquence associée à l'énergie d'excitation atomique ou nucléaire est un multiple de la fréquence de collision $\gamma v_p/d$ avec les atomes cible ; v_p est la vitesse du projectile et γ le facteur de Lorentz. Cette prédiction a été vérifiée dans le cas de l'excitation résonnante d'électrons K vers la couche L qui se révélait, au cours du balayage de l'énergie incidente du faisceau, par l'augmentation de la probabilité de perte de l'électron excité à chaque passage d'un multiple de la vitesse de résonance [Datz *et al.* 1978]. La mise en évidence de l'excitation cohérente d'un niveau nucléaire est plus difficile puisque l'excitation d'un niveau de l'ordre de 100 keV nécessite une énergie de faisceau de l'ordre de la dizaine de GeV par nucléon. Pour favoriser l'échange de photons virtuels entre les noyaux cible et le noyau projectile, les ions doivent être en condition de collisions rasantes avec les rangées d'atomes, à des paramètres d'impact légèrement supérieurs à l'amplitude des vibrations thermiques. Une étude théorique est actuellement en cours dans notre collaboration sur la faisabilité d'une telle expérience. Au vu de ce qui précède, on voit qu'elle nécessite le calcul des trajectoires pour déterminer précisément le potentiel électrique ressenti par un projectile en fonction du temps, au cours de la traversée du cristal. Ce genre de calcul a par exemple été effectué par Pivovarov dans le cas de l'excitation cohérente atomique [Pivovarov 1998].

II. Le programme utilisé dans notre étude

1) Vue d'ensemble et hypothèses

Notre programme de simulation permet de calculer les trajectoires d'ions canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ du silicium ou dans les plans contenant cet axe. Les collisions du projectile avec les atomes cible sont traitées comme une séquence de collisions binaires élastiques ; les atomes cible sont animés, indépendamment les uns des autres, de vibrations thermiques dans les trois dimensions, et le potentiel d'interaction ion-atome cible utilisé est le potentiel écrané de Thomas-Fermi $V(\vec{r})$ [Gemmell 1974]. Seule la contribution des noyaux à la diffusion multiple est prise en compte. L'interaction du projectile avec les

Chapitre II

électrons de la cible et donc la perte d'énergie du projectile sont négligées, ce qui n'est valable bien sûr que dans le cas de cibles minces.

Validité des hypothèses :

- hypothèse de collision binaire : la longueur d'écran de Thomas-Fermi a_{TF} d'une collision entre un ion nu ponctuel et un atome neutre est nettement inférieure à la distance interatomique d du silicium. $a_{TF} = \frac{0,8853 a_0}{Z_c^{1/3}} \sim 0,2 \text{ \AA}$ avec $Z_c=14$ et $a_0=0,529 \text{ \AA}$, $d=3,841 \text{ \AA}$ pour l'axe $\langle 110 \rangle$.
- Non-prise en compte de la perte d'énergie : les cristaux utilisés dans nos expériences sont minces et la perte d'énergie subie par les ions canalisés est faible. Par ailleurs, l'influence de la perte d'énergie sur le réchauffement transverse d'un ion (et donc sur les distributions de paramètres d'impact des projectiles vis-à-vis des atomes cible) est tout à fait négligeable (voir le paragraphe A.II.2)).
- Echanges de charge négligés : l'influence des échanges de charge sur l'énergie transverse est forte pour des ions de relativement basse énergie, de l'ordre de quelques MeV/u (voir le paragraphe A.II.2)). Dans nos conditions expérimentales, notamment avec des ions U^{91+} de 20 MeV/u, elle est négligeable. La capture s'effectue en effet au plus près des rangées ou des plans d'atomes, lorsque le projectile se trouve au bord de son espace transverse accessible, et que l'angle ψ est très petit devant l'angle critique ψ_c . On a alors :

$$\left(\frac{d\varepsilon_{\perp}}{dz} \right)_{E,\psi} = -\frac{E\psi^2}{Q^2} \frac{dQ}{dz} \ll -\frac{E\psi_c^2}{Q^2} \frac{dQ}{dz} \text{ qui, avec } dQ/dz=1, \text{ est de l'ordre de } 1 \text{ eV.}$$

- Non-prise en compte de la diffusion multiple sur les électrons du cristal : à partir d'une certaine épaisseur, la diffusion multiple ne peut plus être négligée. Nous verrons au chapitre IV comment la prendre en compte dans les résultats de nos simulations.

2) Le principe du calcul de trajectoires

Pour chaque collision entre le projectile et un atome cible, caractérisée par le paramètre d'impact b , nous recherchons l'angle de déflexion θ correspondant dans le référentiel du laboratoire. Pour cela, il faut d'abord connaître le potentiel d'interaction $V(r)$ et ensuite résoudre l'équation du mouvement.

(a) Choix du potentiel

Nous avons choisi le potentiel issu du modèle statistique de Thomas-Fermi :

$$V(r) = \frac{Z_p Z_c e^2}{r} \Phi(r/a_{TF}) \quad \text{équation 48}$$

où Φ et a_{TF} sont respectivement la fonction d'écran et la longueur de Thomas-Fermi. Une bonne approximation de cette fonction est le potentiel de Moliere [Moliere 1947] :

$$\Phi(r/a_{TF}) = \sum_{i=1}^3 a_i \exp(-b_i r/a_{TF}) \quad \text{équation 49}$$

avec $(a_1, a_2, a_3) = (0,1 ; 0,55 ; 0,35)$, $(b_1, b_2, b_3) = (6,0 ; 1,2 ; 0,3)$

Cette approximation présente le double avantage d'être sous forme analytique et de se rapprocher des calculs du type Hartree-Fock lorsque r est grand devant a_{TF} .

(b) Le calcul de la déflexion binaire lors d'une collision

La résolution de l'équation du mouvement est effectuée par un calcul itératif sur z allant de $-d/2$ à $d/2$ (l'origine de l'axe z est la position de l'atome cible A) : l'équation du principe fondamental de la dynamique est résolue par pas temporels Δt pendant lesquels la force $\vec{f} = -\vec{grad}(V(\vec{r}))$ subie par l'ion est considérée comme constante. La valeur ε fixée à 10^{-5} dans l'expression du pas $\Delta t = \varepsilon \frac{p}{f}$ (où p est l'impulsion du projectile) permet d'obtenir une bonne précision de la trajectoire calculée tout en limitant le temps de calcul. Avec ce même souci d'optimisation, un tableau de 70 valeurs d'angles de déflexion est élaboré en début de programme pour des valeurs de paramètres d'impact allant de 10^{-5} Å à $d=3,48$ Å

selon une suite géométrique de raison 1,2. Si le paramètre d'impact est inférieur à 10^{-3} \AA , on considère que le projectile est défléchi par un potentiel coulombien (non écranté) et l'on

applique la relation $\tan \frac{\theta_{cdm}}{2} = \frac{b_0}{2b}$ (où $b_0 = \frac{2Z_p Z_c e^2}{\mu v_p^2}$ est le diamètre de collision et

$\mu = M_p M_c / (M_p + M_c)$ la masse réduite du système atome cible-projectile).

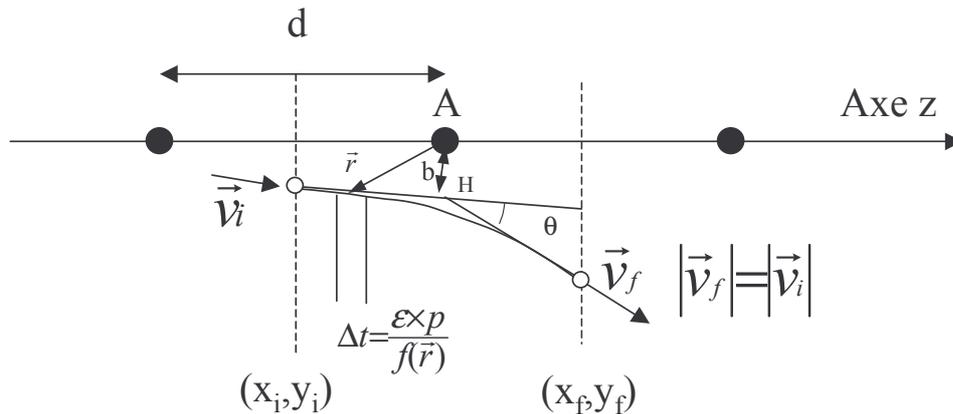
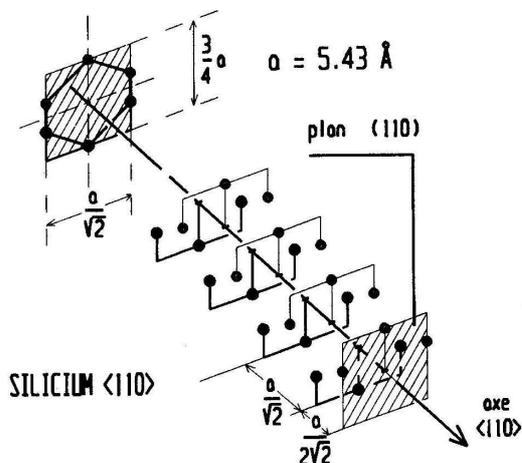


figure 26 : schéma de principe du calcul de la déflexion d'un ion par un atome cible.

La figure 27 présente la vue en perspective de l'axe $\langle 110 \rangle$ et la position dans le plan transverse des six rangées cristallines qui le constituent. On constate qu'une maille élémentaire de l'axe est constituée de 2 plans de 3 atomes chacun. Dans nos programmes, ces deux plans ont été regroupés dans un même plan (110) pour limiter les pas de calcul. Cette approximation est valable tant que l'angle d'incidence des ions par rapport à la direction de l'axe est relativement faible, de l'ordre de quelques degrés.

figure 27 : vue en perspective de l'axe $\langle 110 \rangle$ du silicium



A chaque plan d'atomes, les déflexions sur les douze atomes les plus proches sont calculées : les paramètres d'impact sont déterminés en fonction de la position initiale dans le plan transverse (x_i, y_i) et de la vitesse initiale \vec{v}_i . Les angles de déflexion associés à ces paramètres d'impact sont obtenus par interpolation linéaire des valeurs tabulées. On déduit de la somme dans l'espace de ces angles, le vecteur vitesse \vec{v}_f qui, associé aux coordonnées du point H (cf. figure 26), nous donne finalement la position (x_f, y_f) en $z=d/2$ du projectile après déflexion.

III. Distributions de paramètres d'impact et densités électroniques rencontrées

En enregistrant à chaque plan d'atomes la distance d'approche r à la rangée la plus proche du projectile, on obtient des distributions $\Phi(r)$ de paramètre d'impact r rencontrés sur l'ensemble de la cible. Les résultats de nos simulations sont présentés dans la deuxième partie du chapitre IV. Pour donner d'ores et déjà une idée des distributions $\Phi(r)$, nous présentons dans ce paragraphe les distributions déterminées par Andriamonje *et al.* [Andriamonje *et al.* 1996], avec le même type de programme de calcul de trajectoire, dans l'étude de la capture radiative du Kr^{36+} de 60,1 MeV/u dans un cristal de silicium de 37 μm . Ces distributions $\Phi(r, \psi_0)$, présentées figure 28, correspondent à divers angles d'incidence ψ_0 et sont normalisées de telle sorte que $\int \Phi(r, \psi_0) db = 1$. La distribution $\Phi(r)$ hors canalisation peut être obtenue rigoureusement en considérant que la probabilité de présence du projectile est uniforme dans la maille du réseau cristallin. Celle présentée figure 28 (en tirets) est en fait celle d'un flux uniforme le long de l'axe $\langle 110 \rangle$. Elle augmente linéairement avec r jusqu'à $r \sim 0,7 \text{ \AA}$ comme la distribution de flux uniforme autour d'une seule rangée. Au-delà de 0,7 Å , la distribution s'éloigne de ce comportement linéaire à cause de la présence des autres rangées atomiques du canal. La distribution $\Phi'(r, \psi_0=0^\circ)$ (en pointillés) correspond au flux à l'équilibre d'un faisceau incident parallèle à l'axe cristallin et sans divergence angulaire. Dans ce cas, le flux de particules est fortement concentré au centre du canal, à grande distance des rangées, et le nombre de petits paramètres d'impact rencontrés est considérablement réduit. Les distributions $\Phi(r, \psi_0=0^\circ)$ et $\Phi(r, \psi_0=0,03^\circ)$ (respectivement en ligne continue et en tirets-pointillés) ont été obtenues avec une divergence angulaire de faisceau réaliste (la divergence angulaire du faisceau est

supposée gaussienne dans toutes les directions du plan transverse avec une demi-largeur à mi-hauteur de 0,1 mrad) et en prenant en compte les diffusions multiples sur les électrons cible. Le rôle joué par les diffusions multiples n'est pas négligeable dans cette étude car la cible utilisée est relativement épaisse (37 μm d'épaisseur). On constate que dans ces conditions, la distribution $\Phi(r, \psi_0=0^\circ)$ présente une proportion d'ions hypercanalisés beaucoup plus faible. La distribution $\Phi(r, \psi_0=0,03^\circ)$ montre qu'avec un angle de désalignement légèrement supérieur à la moitié de l'angle critique $\psi_c=0,05^\circ$ les ions présentent pratiquement la même distribution qu'hors canalisation. Ils s'approchent cependant beaucoup moins des rangées à des paramètres d'impact inférieurs à 0,2 \AA .

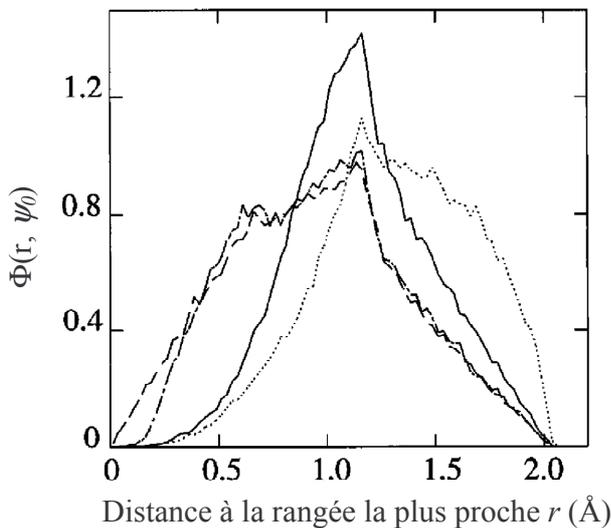


figure 28 : simulation de distributions $\Phi(r, \psi_0=0)$ de distance r à la rangée la plus proche obtenue pour un faisceau d'ions Kr^{36+} de 60,1 MeV/u traversant un cristal de 37 μm . Courbe en tirets : orientation aléatoire. Ligne en pointillés : $\psi_0=0$, sans divergence angulaire et sans diffusion multiple. Ligne continue et en tirets-pointillés : $\psi_0=0^\circ$ et $\psi_0=0,03^\circ$ en prenant en compte la divergence angulaire du faisceau de 0,1 mrad (HWHM) et la diffusion multiple [Andriamonje *et al.* 1996].

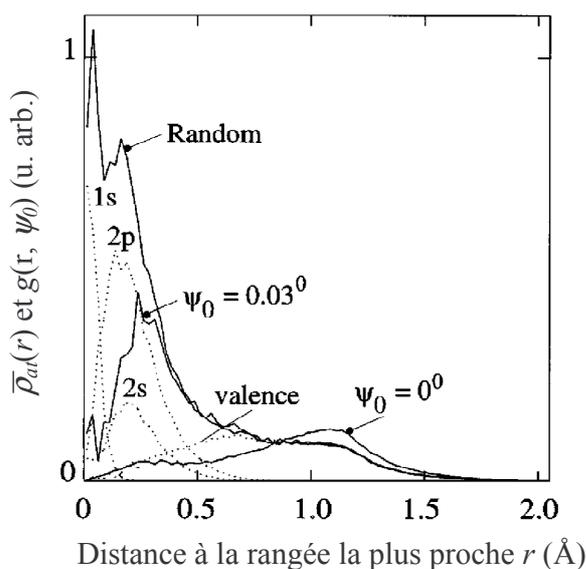


figure 29 : densités moyennes $\bar{\rho}_{at}(r)$ d'électrons de cœur et de valence d'un atome de silicium (lignes pointillées). Distributions $g(r, \psi_0)$ de densités d'électrons rencontrés pour trois angles d'incidence ψ_0 différents (lignes continues) [Andriamonje *et al.* 1996].

Les densités électroniques du silicium ont été introduites dans le programme de calcul de trajectoires et la densité locale d'électrons rencontrée lors de chaque collision est calculée de la manière suivante :

- Les densités électroniques de cœur sont tabulées en fonction du paramètre d'impact en début de programme, comme les angles de déviation. Les fonctions d'onde radiales, tirées des tables de Bunge *et al.* [Bunge *et al.* 1993], donnent la densité radiale d'électrons de cœur $\rho_{coeur} = 2|R_{1s}|^2 + 2|R_{2s}|^2 + 6|R_{2p}|^2$ (en $e^-/\text{\AA}^3$), où R_i est la fonction d'onde radiale de la couche i . La densité d'électrons $\rho_{coeur}^{atome}(b)$ (en $e^-/\text{\AA}^2$) rencontrée sur un atome, au paramètre d'impact b est alors donnée par l'intégrale suivante :

$$\rho_{coeur}^{atome}(b) = \int_{-d/2}^{d/2} \rho_{coeur}(\sqrt{z^2 + b^2}) dz \quad \text{équation 50}$$

- Comme pour la détermination de la carte de densité électronique de l'axe $\langle 110 \rangle$ de la figure 1, la densité d'électrons de valence $\rho_{valence}^{atome}(x, y)$ a été déduite des calculs de pseudo-potential non local de Chelikovsky et Cohen [Chelikovsky *et al.* 1976]. La densité d'électrons de valence $\rho_{valence}^{atome}(x, y, \vec{v})$ rencontrée sur un pas de calcul (entre deux plans d'atomes consécutifs) est déterminée par l'équation 51 (en $e^-/\text{\AA}^2$). La prise en compte de la direction du projectile intervient par l'intermédiaire de la dépendance, en fonction de z et \vec{v} , des variables d'intégration $x'(z, \vec{v})$ et $y'(z, \vec{v})$ associées aux coordonnées x et y .

$$\rho_{valence}^{atome}(x, y, \vec{v}) = \int_{-d/2}^{d/2} \rho_{valence}(\sqrt{z^2 + x'^2(z, \vec{v}) + y'^2(z, \vec{v})}) dz \quad \text{équation 51}$$

La figure 29 présente les densités $\bar{\rho}_{at}(b)$ des électrons de cœur (1s, 2s, 2p) et de valence, moyennées selon l'axe z en fonction de la distance b à une rangée atomique, ainsi que les distributions $g(r)$ de densités d'électrons rencontrés correspondant aux trois distributions $\Phi(r, \psi_\theta)$ présentées figure 28. Hors canalisation, la distribution $g(r)$ est simplement proportionnelle à la densité électronique totale. En canalisation, lorsque $\psi_\theta=0^\circ$, on constate

que les ions ne rencontrent qu'une partie des électrons de valence, essentiellement à grands paramètres d'impact. Pour l'angle d'incidence $\psi_{\theta}=0,03^{\circ}$, la probabilité de rencontre d'un électron 2s ou 2p est fortement augmentée. Les électrons 1s restent cependant toujours inaccessibles à cet angle.

B. Simulations d'échanges de charge d'ions canalisés

I. Exemples d'études nécessitant des calculs de trajectoires

Bien que les calculs de trajectoires soient relativement longs, certaines études ne peuvent en faire l'économie. Citons par exemple les simulations Monte Carlo sur le réchauffement et le refroidissement transverses étudiés dans les expériences d'Assman *et al.* (voir le chapitre I). Leur but est de permettre une meilleure compréhension de la forte influence des échanges de charge sur la trajectoire d'ions de quelques MeV/u dans une cible cristalline. Ces calculs Monte Carlo décrivent l'ensemble des interactions entre les particules, sauf celles entre électrons liés, et fournissent ainsi une description relativement complète de la dynamique du système, en particulier celle des processus multiples. La mécanique quantique intervient uniquement dans la détermination des conditions initiales des électrons [Grüner *et al.* 2003].

Une autre étude qui nécessite également le calcul de trajectoires est la simulation des échanges de charge des ions canalisés qui rasant des rangées ou des plans cristallins. La compétition entre les processus de capture et de perte d'électrons (principalement le MEC et l'ionisation par impact nucléaire) dépend à la fois :

- de la dépendance en fonction du paramètre d'impact de ces processus
- du rapport entre les temps de vie radiatifs τ_R des états excités et le temps τ_c entre deux collisions consécutives du projectile avec des noyaux cible. Si τ_R est par exemple petit devant τ_c , les électrons ont le temps de se stabiliser dans les couches atomiques de cœur du projectile et ils ont peu de chance d'être perdus lors de la collision nucléaire suivante.

Ce genre de simulations a été développé au sein de notre collaboration et il a été appliqué à l'étude des échanges de charge des ions Pb^{56+} de 29 MeV/u canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ d'un cristal de silicium de 1,1 μm et des ions U^{91+} de 20 MeV/u canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ d'un cristal de silicium de 11,7 μm [L'Hoir *et al.* 2006]. Les paramètres principaux de ces simulations sont les probabilités d'échange de charge calculées en collision unique en fonction du paramètre d'impact (du type CDW pour la capture et PWB pour l'ionisation et l'excitation) et les temps de vie radiatifs correspondant à chacune des configurations électroniques du projectile.

II. Etudes fondées sur l'équilibre du flux

1) Distributions d'énergies transverses et probabilité moyenne d'occurrence $P(\varepsilon_{\perp})$ d'un processus d'interaction ion-électron

Lorsque l'on s'intéresse à l'interaction avec les électrons cible d'ions suffisamment bien canalisés pour que l'approximation du potentiel continu soit valide, des simulations basées sur la notion d'équilibre de flux sont préférables car elles sont moins coûteuses en temps de calcul. On commence tout d'abord par déterminer la distribution

$G(\varepsilon_{\perp})$ d'énergie transverse réduite $\varepsilon_{\perp} = \frac{E_{\perp}}{Q_{in}} = \frac{E\psi^2}{Q_{in}} + U(\vec{r})$ associée à un faisceau aligné de

divergence angulaire donnée.

Deux exemples de distributions $G(\varepsilon_{\perp})$ sont présentées figure 30(a) dans le cas d'ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u pénétrant le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ du silicium. Elles correspondent à des distributions angulaires de faisceau gaussiennes dont les écarts types σ_X et σ_Y dans chacune des directions du plan transverse sont de 0,2 mrad et 0,3 mrad (les directions X et Y sont définies figure 31). L'angle d'incidence moyen est nul, et la distribution reflète essentiellement la convolution de la distribution d'énergie potentielle de la figure 3 avec la distribution d'énergie cinétique transverse due à la divergence angulaire du faisceau. On constate, sans surprise, que la fraction d'ions très bien canalisés dépend fortement de la divergence angulaire du faisceau.

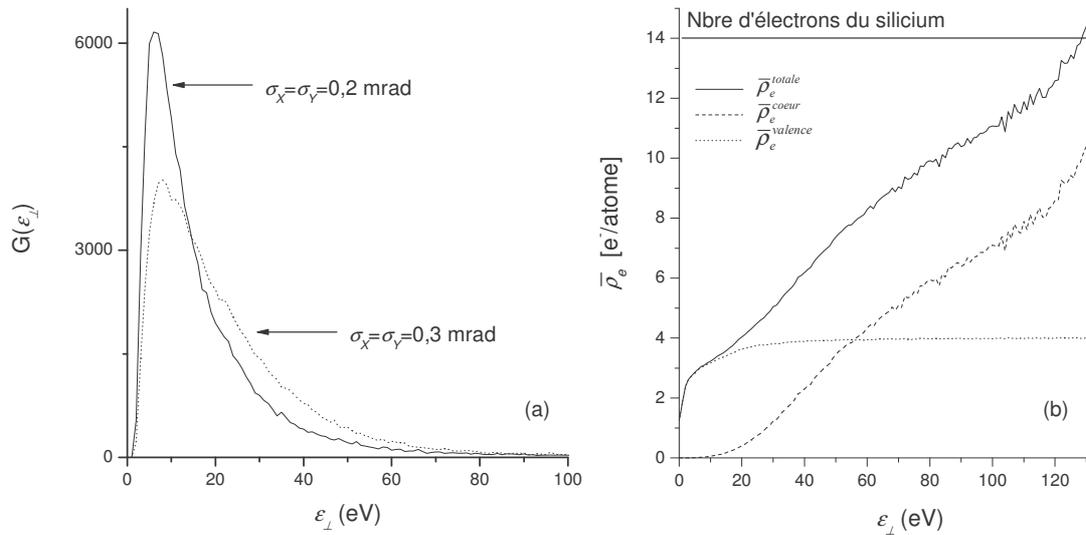


figure 30 : (a) distributions statistiques d'énergie transverse réduite $\varepsilon_{\perp}=E_{\perp}/Q$ pour des ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u pénétrant le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ du silicium avec des distributions angulaires de faisceau gaussiennes dont les écarts types σ_x et σ_y dans chacune des directions du plan transverse sont de 0,2 mrad et 0,3 mrad, respectivement (b) densités électroniques moyennes rencontrées sur l'espace transverse accessible en fonction de ε_{\perp} , dans l'axe $\langle 110 \rangle$ du silicium.

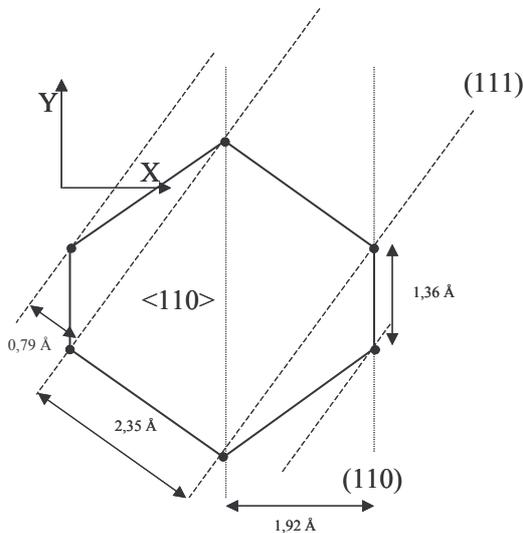


figure 31 : géométrie de l'axe $\langle 110 \rangle$ et des plans (110) et (111) . Définition des directions X et Y du plan transverse.

En appliquant la règle de l'équilibre du flux (un ion canalisé le long d'un axe cristallin explore l'ensemble des positions de son espace transverse accessible de manière équiprobable), on peut, à partir de la carte de densité électronique de l'axe $\langle 110 \rangle$ du silicium (cf. figure 3), déterminer la densité électronique moyenne $\bar{\rho}_e(\varepsilon_{\perp})$ rencontrée par un ion d'énergie transverse réduite ε_{\perp} , au cours de la traversée du cristal. Les densités

d'électrons de coeur, de valence et la densité électronique totale sont présentées figure 30(b). Les ions bien canalisés rencontrent entre trois et quatre électrons par atome (sur les quatre électrons de valence du silicium). A partir de 20 eV, les ions commencent à rencontrer les électrons de coeur et la densité électronique moyenne rencontrée augmente régulièrement jusqu'à atteindre la densité moyenne rencontrée en orientation aléatoire, c'est à dire les quatorze électrons par atome que compte un atome de silicium.

Finalement, la probabilité moyenne $P(\varepsilon_{\perp})$ d'occurrence d'un processus dû à l'interaction ion-électron cible (REC, EII, EIE ...) est donc : $P(\varepsilon_{\perp}) = 1 - \exp(-\sigma_e \bar{\rho}_e(\varepsilon_{\perp})l)$ où σ_e est la section efficace par électron du processus (en \AA^2), $\bar{\rho}_e(\varepsilon_{\perp})$ la densité électronique moyenne rencontrée (en $\text{e}^{-}/\text{\AA}^3$) et l la longueur de cible traversée (en \AA).

2) Etude des échanges de charge

Ce type de simulation a par exemple été utilisé pour déterminer les sections efficaces $\sigma_{EII}(Q \rightarrow Q+1)$ d'ionisation par impact d'électron d'ions Xe^{35+} de 27 MeV/u [L'Hoir *et al.* 1990].

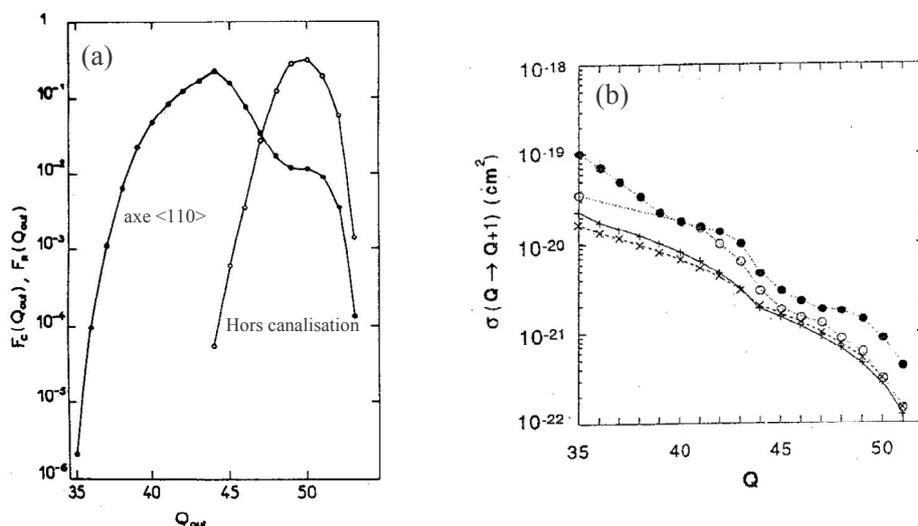


figure 32 : (a) distributions de charge hors canalisation et dans l'axe $\langle 110 \rangle$ en sortie du cristal de silicium de $20,7 \mu\text{m}$ des ions incidents Xe^{35+} de 27 MeV/u (b) sections efficaces d'ionisation $\sigma(Q \rightarrow Q+1)$ d'ions Xe^{Q+} ($35 \leq Q \leq 51$) par des électrons de 14,7 keV. Cercles pleins : mesures de l'étude présentée [L'Hoir *et al.* 1990] ; cercles ouverts : résultats de Donets [Donets 1983] ; ligne continue : valeurs de la formule de Lotz [Lotz 1968] ; ligne en pointillée : valeurs de la formule de Thomson avec une énergie de coupure sur les transferts d'énergie inférieure à l'énergie de liaison.

Elles ont été obtenues en ajustant la distribution de charge Q_{out} simulée de ces ions canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ d'un cristal de silicium de $20,7 \mu\text{m}$ à la distribution

expérimentale présentée figure 32(a) : la fraction d'ions gelés dans l'état de charge incident ($Q_{in}=35$) fournit la section efficace σ_{EII} (35→36) ; cette valeur connue, on en déduit $\sigma_{EII}(36\rightarrow37)$ à partir de la fraction d'ions qui ont perdu un électron et ainsi de suite. La figure 32(b) présente les valeurs de sections efficaces obtenues et met en évidence notamment l'effet de couche entre les sections efficaces σ_{EII} (43→44) et σ_{EII} (44→45) (la couche M du Xe^{44+} est vide). L'ionisation par impact nucléaire NII n'intervient que pour les ions de forte énergie transverse et d'état de charge en sortie $Q_{out}\geq 47$.

Un autre résultat de ce type de simulation est illustré par la figure 33(a) qui présente le nombre moyen d'ionisations EII et NII subies par des ions U^{73+} de 300 MeV/u canalisés le long de l'axe <110> d'un cristal de silicium de 120 μm [Dauvergne *et al.* 1999].

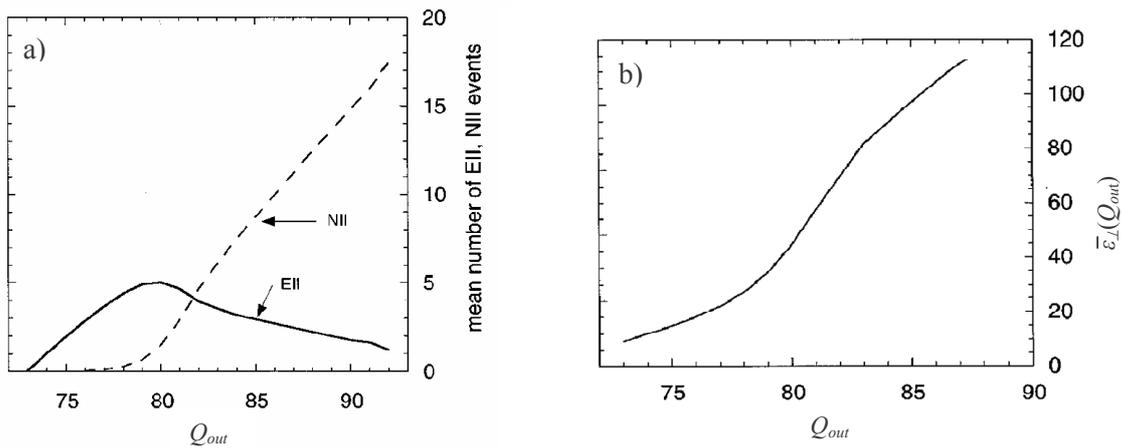


figure 33 : a) nombres moyens d'ionisations par impact d'électrons $N_{EII}(Q_{out})$ et par impact nucléaire $N_{NII}(Q_{out})$ (par ion) en fonction de l'état de charge de sortie Q_{out} pour des ions U^{73+} de 300 MeV/u canalisés le long de l'axe <110> d'un cristal de silicium. b) énergie transverse moyenne $\bar{\epsilon}_{\perp}(Q_{out})$ en fonction de Q_{out} . Ces valeurs correspondent au meilleur ajustement des distributions de charge axiale et des distributions de perte d'énergie par état de charge de sortie simulées sur les mesures [Dauvergne *et al.* 1999].

Ces ions sont très loin de leur état de charge à l'équilibre dans la matière, comme le Xe^{35+} de 27 MeV/u, et conduisent, en condition de canalisation, à une distribution très large d'états de charge Q_{out} en sortie du cristal. La figure 33(b) qui présente l'énergie transverse réduite moyenne $\bar{\epsilon}_{\perp}(Q_{out})$ en fonction de Q_{out} montre que dans ces conditions, on peut sélectionner des ions d'énergie transverse relativement bien définie à partir de leur état de charge Q_{out} . La figure 33(a) met donc en évidence l'importance relative des processus

d'ionisation EII et NII en fonction de l'énergie transverse des ions. On constate qu'à partir de l'état de charge $Q_{out}=81$, qui correspond à une couche M du projectile vide, l'ionisation par impact nucléaire devient prépondérante. Le nombre moyen d'ionisations EII des ions d'état de charge Q_{out} élevé est déterminé moins précisément que celui des ions bien canalisés ; en effet, le fait que l'approximation du potentiel continu soit de moins en moins valable à mesure que l'on se rapproche des rangées atomiques implique une plus grande incertitude sur le flux de particules près des rangées et donc sur les nombres moyens d'ionisations simulées.

3) Les potentiels continus utilisés

(i) Le potentiel continu de l'axe $\langle 110 \rangle$

Le potentiel continu est l'un des points clés de ces simulations. Celui que nous avons utilisé, et que nous noterons $U_{LDT}(\vec{r})$ pour une charge unité (\vec{r} est la position dans le plan transverse), combine le potentiel déterminé par L'Hoir *et al.* (cf. figure 3) et le potentiel Doyle-Turner. Ce dernier potentiel est une approximation analytique plus précise que le potentiel de Moliere, obtenue à partir de calculs relativistes de type Hartree-Fock. La convolution du potentiel Doyle-Turner d'un atome statique $V_{ps}(r)$ avec la distribution gaussienne des déplacements atomiques donne le potentiel Doyle-Turner moyen $V_{pt}(r, u_1)$ (où u_1 est l'amplitude des vibrations thermiques à une dimension) :

$$V_{pt}(r, u_1) = \int_{-\infty}^{\infty} V_{ps}(r - r') P(r', u_1) dr' \quad \text{équation 52}$$

En appliquant la définition du potentiel continu (équation 1), on obtient finalement le potentiel continu de Doyle-Turner $U_{DT}(r)$:

$$U_{DT}(r) = \frac{Z_p e^2}{a_0} \frac{2a_0^2}{d} \sum_{i=1}^4 \frac{a_i}{(B_i + u_1^2)} \exp\left(-\frac{r}{B_i + u_1^2}\right) \quad \text{équation 53}$$

$$\text{avec } B_i = \frac{b_i}{4\pi^2}$$

où les coefficients a_i et b_i , caractéristiques des atomes du cristal sont tabulés. Pour le silicium, $(a_1, a_2, a_3, a_4)=(2,1293 ; 2,5333 ; 0,8349 ; 0,3216)$ et $(b_1, b_2, b_3, b_4)=(57,7748 ; 16,4756 ; 2,8796 ; 0,3860)$.

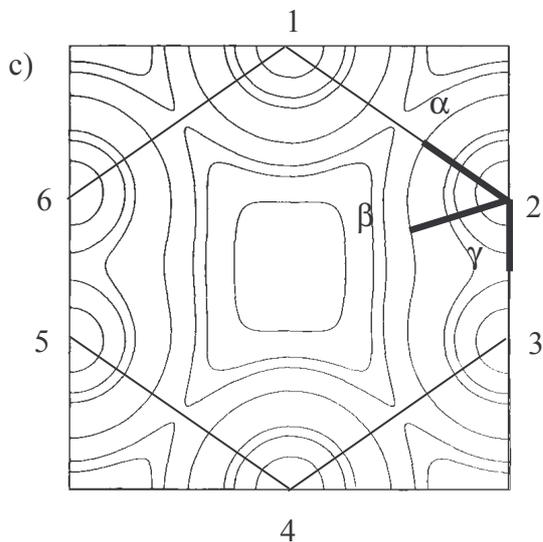
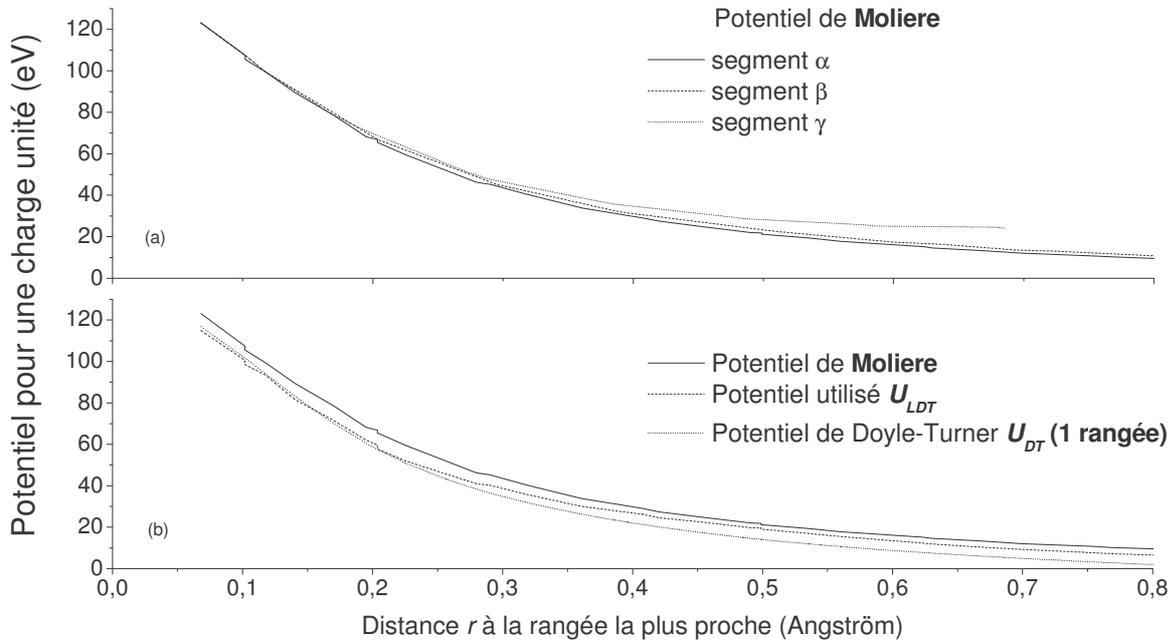


figure 34 : a) Potentiel de Moliere transverse en fonction de la distance à la rangée la plus proche le long de 3 segments : α , β , γ . b) Comparaison du potentiel utilisé U_{LDT} (voir texte) avec le potentiel Doyle-Turner U_{DT} d'une rangée et le potentiel de Moliere sur le segment α . c) Définition des segments α , β , γ sur la carte de l'énergie potentielle transverse de l'axe $\langle 110 \rangle$ du silicium.

Pour nous assurer de la cohérence entre les potentiels utilisés dans le programme de calcul de trajectoires et dans les simulations d'échange de charge, nous avons comparé le potentiel continu $U_{LDT}^{\langle 110 \rangle}(\vec{r})$ au potentiel de Moliere moyenné selon la direction de l'axe $\langle 110 \rangle$. La figure 34(a) présente tout d'abord le potentiel de Moliere en fonction de la

distance r_{min} à la rangée atomique la plus proche, le long de trois segments α , β , γ définis sur la figure 34 c). Elle illustre le fait que les lignes d'équipotentiel ne sont pas tout à fait circulaires au voisinage des rangées : pour un même r_{min} , le potentiel sur le segment γ est plus élevé que sur les deux autres en raison de la proximité des rangées 2 et 3. La figure 34 b) met en évidence le léger décalage entre le potentiel $U_{LDT}^{<110>}(r)$ et le potentiel de Molière, bien qu'ils soient tous les deux définis comme étant nuls au centre du canal. Elle donne une idée de l'incertitude Δr sur la distance minimale d'approche aux rangées r_{min} pour une énergie transverse donnée. On peut considérer Δr comme inférieur à $0,02 \text{ \AA}$. Enfin l'influence près d'une rangée d'atomes (entre $0,2$ et $0,8 \text{ \AA}$) du potentiel des rangées avoisinantes est illustrée par la comparaison du potentiel Doyle-Turner d'une seule rangée d'atomes avec le potentiel moyen de l'axe.

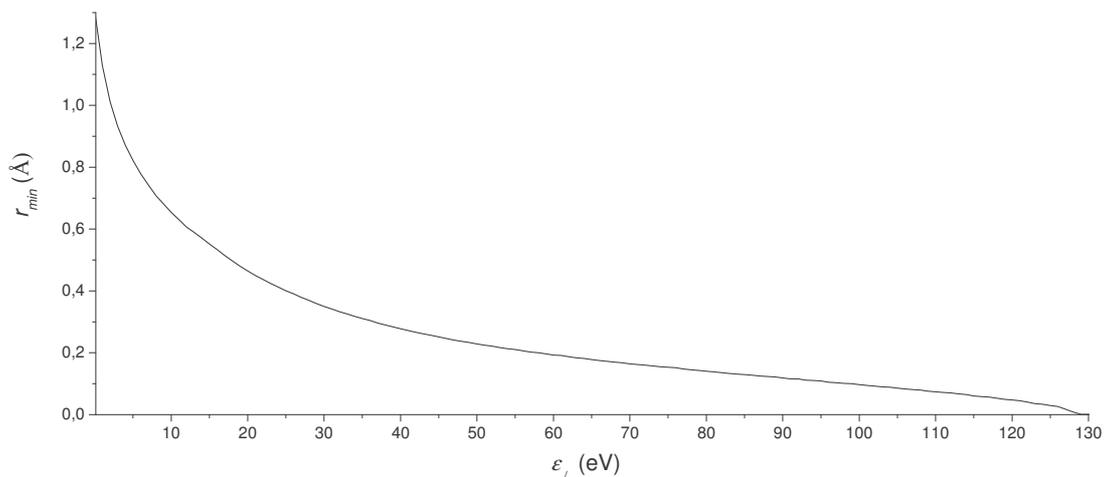


figure 35 : distance minimale d'approche aux rangées r_{min} en fonction de l'énergie transverse réduite ϵ_{\perp} dans l'axe $\langle 110 \rangle$ du silicium.

La correspondance entre la distance minimale d'approche d'une rangée atomique r_{min} et l'énergie transverse dans l'axe $\langle 110 \rangle$ du silicium peut être lue sur la carte de l'énergie potentielle présentée sur la figure 3. La figure 35 la présente de manière plus directe. On voit par exemple que les ions d'énergie transverse réduite inférieure à 20 eV , qui ne rencontrent pas les électrons de cœur, ont des distances minimales d'approche des rangées supérieures à $0,5 \text{ \AA}$.

(ii) Les potentiels continus et les densités électroniques $\bar{\rho}_e$ des plans (110) et (111)

Les potentiels continus $U_{LDT}^{(110)}(x)$ et $U_{LDT}^{(111)}(x)$ des plans (110) et (111) (où x est la position dans la direction orthogonale aux plans cristallins et $x=0$ correspond au centre des espaces interplanaires) ont été calculés en moyennant le potentiel continu $U_{LDT}^{<110>}(\vec{r})$ de l'axe $<110>$ le long de droites parallèles aux plans cristallins. Ils sont déterminés à une constante près et cette constante est choisie de manière à ce que les potentiels soient nuls au centre des espaces interplanaires.

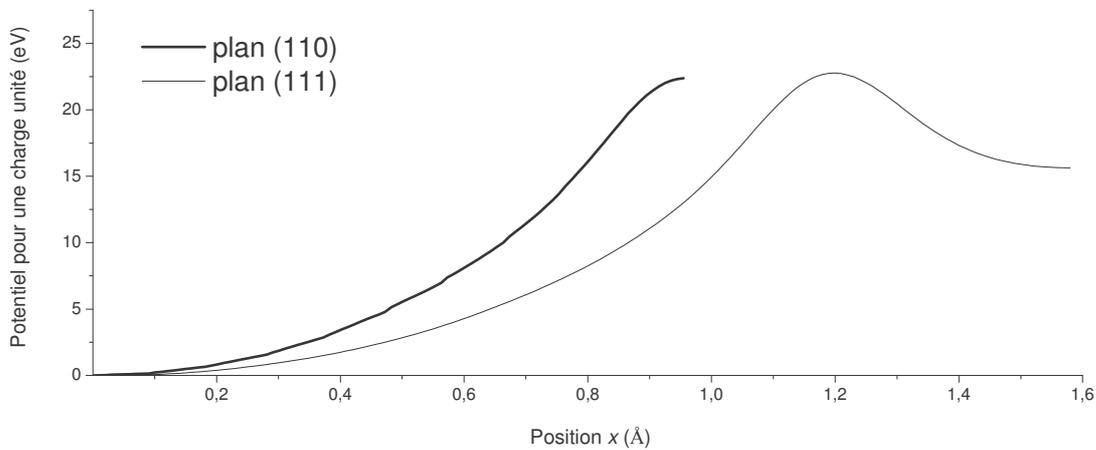


figure 36 : potentiels continus des plans (110) et (111) pour une charge unité en fonction de la position x dans la direction orthogonale aux plans cristallins. L'origine de l'axe x correspond au centre des espaces interplanaires.

La figure 36 présente les potentiels (110) et (111) ainsi obtenus en fonction de la position x . Rappelons que dans la direction (111), les distances interplanaires sont alternées (elles sont respectivement de $0,79 \text{ \AA}$ et de $2,35 \text{ \AA}$, cf. figure 31). Les valeurs de potentiel à une distance nulle des plans cristallins, proches de 22 eV , sont environ cinq fois faibles que la barrière de potentiel de l'axe $<110>$; le potentiel au centre de l'espace interplanaire étroit du plan (111) est relativement élevé : il correspond environ aux deux tiers de la valeur maximale du potentiel $U_{LDT}^{(111)}$. Les densités électroniques $\bar{\rho}_e$ rencontrées dans les plans (110) et (111) pour des distances r_{min} de $0,15 \text{ \AA}$ à $0,6 \text{ \AA}$ ont été déterminées avec les simulations de trajectoires. Elles sont comparées figure 37 à la densité électronique axiale $\bar{\rho}_e(r_{min})$. Les densités électroniques rencontrées dans ces différentes directions cristallines

sont relativement proches. La densité électronique $\bar{\rho}_e^{(110)}(r_{\min})$ rencontrée dans le plan (110) est cependant sensiblement supérieure aux densités $\bar{\rho}_e^{<110>}(r_{\min})$ et $\bar{\rho}_e^{(111)}(r_{\min})$ surtout pour de grandes distances r_{\min} et la densité rencontrée dans l'espace interplanaire étroit du plan (111) est supérieure à la densité électronique moyenne du cristal.

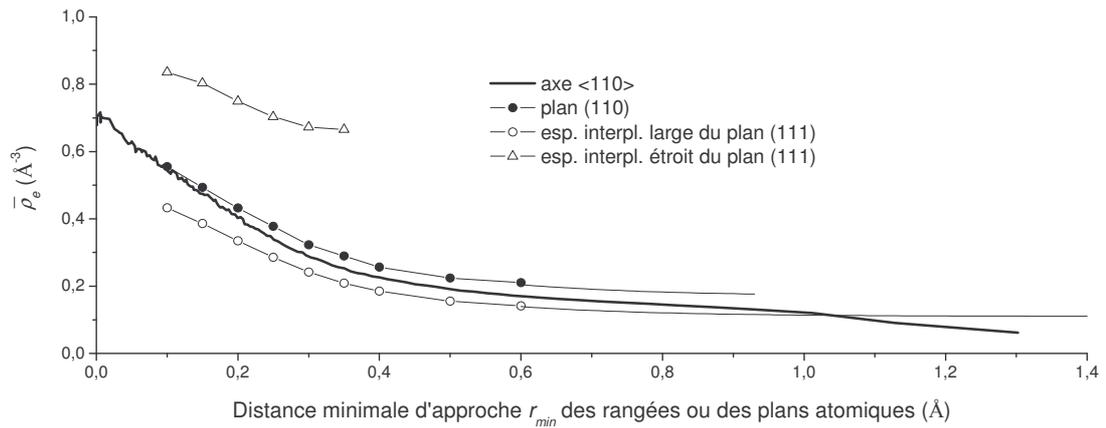


figure 37 : densité électronique moyenne $\bar{\rho}_e$ rencontrée dans l'axe <110> et dans les plans (110) et (111) en fonction de la distance minimale d'approche r_{\min} des rangées ou des plans atomiques.

4) Simulation de la forme des raies de REC

Tandis que l'énergie des photons de REC dépend essentiellement de la vitesse du projectile et de l'énergie de liaison de la couche du projectile sur laquelle l'électron est capturé, la forme de la raie de REC est en grande partie déterminée par le profil Compton des électrons capturés, l'effet Doppler, la résolution du détecteur et la perte d'énergie du projectile avant la capture.

La simulation des raies de REC a été effectuée par deux programmes : le premier calcule la contribution des profils Compton des électrons de coeur et de valence capturés à la largeur de la raie. Le second simule l'effet Doppler en prenant en compte la géométrie du détecteur et la perte d'énergie du projectile. Ce dernier programme convolue finalement le spectre obtenu avec deux gaussiennes associées à la résolution du détecteur et à l'élargissement Compton déterminé par le premier programme.

(a) Programme de calcul des raies de REC dans l'axe <110> d'un cristal de silicium

Le programme Monte Carlo consiste à déterminer la forme et l'amplitude des pics REC observés. On commence par tirer au hasard une énergie transverse réduite ε_{\perp} dans la distribution $G(\varepsilon_{\perp})$. On applique ensuite la règle de l'équilibre du flux en tirant une position (x,y) dans l'espace transverse accessible $A(E_{\perp})$ où a lieu l'événement de capture REC. Cet événement est pondéré par la densité locale d'électrons (sans prendre en compte la dépendance de la probabilité de REC en fonction de l'état de charge du projectile). A chacune des positions (x,y) sont calculés les profils Compton $|\bar{\psi}|^2$ des électrons de coeur et de valence :

- Le profil des électrons 1s est évalué grossièrement à partir du profil d'un gaz d'électrons de Fermi. La capture de ces électrons s'avère en fait très peu probable et sa contribution à la forme des pics REC observés est très petite.
- Le profil Compton $\bar{\psi}(p_z, b)$ des électrons L est calculé en fonction du paramètre d'impact $b(x,y)$ à l'atome le plus proche à partir de la transformée de Fourier partielle, le long de l'axe z , de la fonction d'onde radiale $\psi(\vec{r})$ de Bunge *et al.* [Bunge *et al.* 1993].

Enfin, les électrons de valence sont assimilés à un gaz d'électrons de valence dont le profil Compton $P_{\rho_e}(E)$ est donné par l'expression suivante :

$$P_{\rho_e}(E) = \frac{3}{2m_e^2 v_p v_F^3 (\rho_e)} \left[E_F(\rho_e) - \left(\sqrt{E_c} - \sqrt{E - E_f} \right)^2 \right] \quad \text{équation 54}$$

où E_F et v_F sont l'énergie et la vitesse de Fermi, v_p et E_c la vitesse et l'énergie cinétique classique de l'ion, E_f l'énergie de liaison finale de l'électron capturé ($E_f > 0$) [Dauvergne 1993] ; $\rho_e(x,y,z)$ est la densité locale d'électrons rencontrée, z étant obtenu par un tirage aléatoire entre -

$d/2$ et $d/2$ pondéré par la densité électronique locale. Pour compenser l'approximation due à l'assimilation des électrons de valence à un gaz de Fermi, la densité électronique locale $\rho_e(x,y,z)$ inclut celle des électrons de cœur.

(b) *Prise en compte de l'effet Doppler et de la perte d'énergie*

La relation entre les énergies d'un photon dans le centre de masse du projectile et dans le référentiel du laboratoire s'écrit :

$$E_{lab} = \frac{\sqrt{1-\beta^2}}{1-\beta \cos(\theta_{lab})} E_{cdm} \quad \text{équation 55}$$

L'effet Doppler introduit donc :

- un décalage en énergie,
- un élargissement des raies observées dû à l'angle solide du détecteur.

Pour illustrer ces simulations, la figure 38 présente la forme des distributions en énergie simulées des photons de REC-K dans les référentiels du projectile et du laboratoire pour des ions U^{91+} de 20 MeV/u canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ du silicium. Les valeurs des différents paramètres de ces simulations correspondent aux conditions expérimentales : la distribution angulaire du faisceau est celle déterminée par les simulations d'échanges de charge présentées au chapitre IV, le détecteur est positionné à 90° de la direction du faisceau à une distance de 11 cm de la cible avec un collimateur de 40 mm de large et la résolution du détecteur a été évaluée à $\sigma_{det}=220$ eV à 100 keV (σ_{det} est supposée proportionnelle à $E^{1/2}$ où E est l'énergie du photon – cf. équation 57 du chapitre III). Comme la dépendance de la probabilité de REC avec l'état de charge du projectile n'est pas prise en compte, on peut considérer que les simulations donnent ce que l'on devrait observer sans capture mécanique (et avec une probabilité de REC sur l'épaisseur du cristal petite devant 1). Dans ces conditions, on constate que l'ensemble des ions devrait effectuer en moyenne à peu près un tiers des REC sur les électrons de cœur, alors qu'un atome de silicium présente

Chapitre II

dix électrons de cœur et quatre électrons de valence ; le taux simulé de capture des électrons de cœur est donc fortement réduit en condition de canalisation.

Comme l'angle d'observation est proche de 90° , le pic observé dans le référentiel du laboratoire n'est décalé que de 2 keV environ par l'effet Doppler. La largeur du pic est augmentée de près de 50 % et l'influence de la résolution du détecteur est minimale. En revanche, le pic est relativement sensible à la perte d'énergie du projectile dans la cible : sa position est décalée de 160 eV et sa largeur augmente de 7 % pour une perte d'énergie de 4,5 % subie lors de la traversée de la cible de $11,7 \mu\text{m}$.

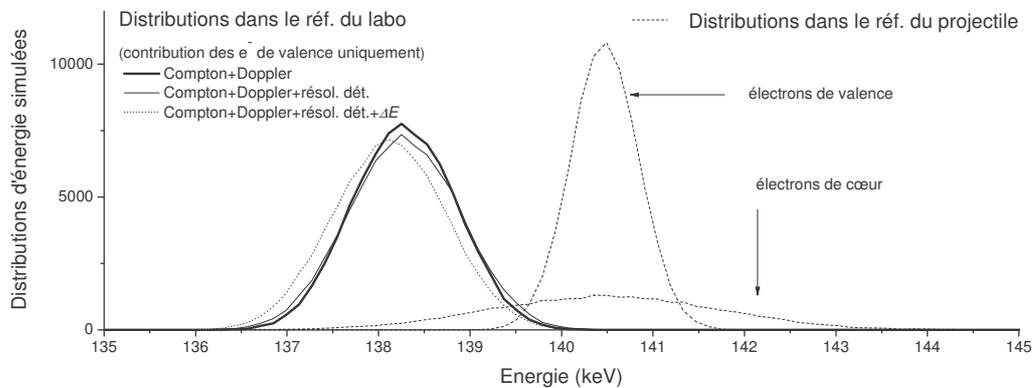


figure 38 : simulations de la forme des distributions en énergie des photons de REC-K dans les référentiels du projectile et du laboratoire pour des ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ du silicium. Les valeurs des différents paramètres de ces simulations correspondent aux conditions expérimentales.

Chapitre III

Dispositif expérimental

Depuis un peu plus d'une dizaine d'années, l'accélérateur GSI (Gesellschaft für Schwerionenforschung) de Darmstadt en Allemagne présente l'opportunité unique de fournir des ions très lourds, très chargés, à des vitesses intermédiaires (de quelques dizaines de MeV/u). Ces ions sont notamment utilisés pour effectuer des études de spectroscopie fine dans l'anneau de stockage ESR [Stöhlker *et al.* 2000]. En 1995, une première expérience a montré qu'il était possible d'extraire ces ions de l'anneau (en l'occurrence des ions Au^{78+} de 53 MeV/u) et d'étudier leur interaction avec la matière, en condition de canalisation dans des cristaux minces [Prinz *et al.* 1997]. Le dispositif expérimental utilisé lors des trois expériences qui suivirent en 2001, 2003 et 2005 est resté à peu près le même. Avant de décrire l'analyse et les résultats des expériences de 2001 et 2003 qui font l'objet de notre étude, nous présentons dans ce chapitre la manière dont est préparé le faisceau, le dispositif de détection et enfin le principe du système d'acquisition.

A. Le faisceau

I. Production

La figure 39 schématise les principales installations qui composent l'accélérateur GSI : l'accélérateur linéaire UNILAC, le synchrotron SIS (SchwerIonenSynchrotron), l'anneau de stockage ESR (Experimental Storage Ring) et les différentes aires expérimentales (notamment la cave A où se sont déroulées nos expériences).

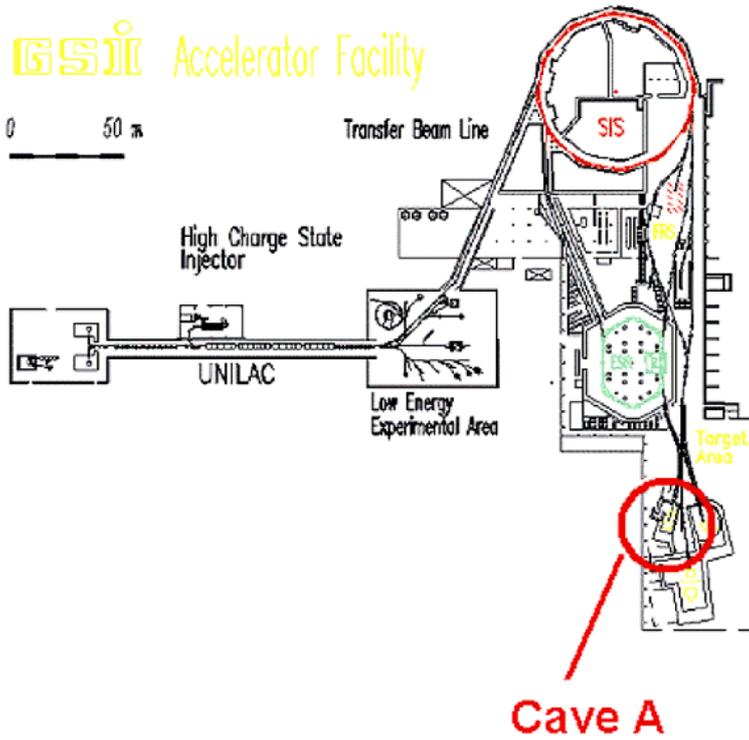
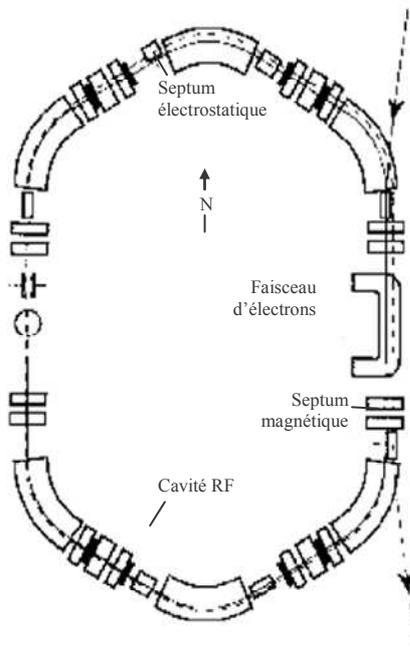


figure 39 : schéma de l'accélérateur GSI de Darmstadt.



U^{91+} ou Pb^{81+} d'environ 300 MeV/u
Paquet de $\sim 10^7$ ions

Injection

Refroidissement
Regroupement

Ralentissement

Refroidissement

Extraction

U^{91+} ou Pb^{81+} de 10 à 20 MeV/u
 10^4 à 10^5 ions/s

figure 40 : principe du ralentissement et de l'extraction des ions de l'anneau de stockage ESR.

Les ions lourds pratiquement nus peuvent être produits de manière efficace en transmettant le faisceau primaire d'ions à travers une cible mince à haute énergie. A GSI, le faisceau primaire d'ions multichargés est fourni par une source de type ECR (Electron Cyclotron Resonance). Les ions sont ensuite accélérés une première fois dans l'UNILAC et une seconde fois dans le SIS d'où ils ressortent à une énergie d'environ 360 MeV/u. Ils sont alors complètement épluchés en traversant une cible mince et introduits dans l'anneau de stockage ESR au début de chacun des cycles de ralentissement-extraction illustrés figure 40. Ces cycles commencent par le remplissage de l'ESR avec environ 10^7 ions. Les ions sont tout d'abord tangents par un faisceau d'électrons froids appelés « cooler » qui transmet sa faible dispersion en impulsion par l'intermédiaire de collisions élastiques électron-ion. Ils sont ensuite regroupés et décélérés par une cavité radio-fréquence. Cette phase de ralentissement est délicate car il faut adapter les différents champs magnétiques de l'anneau à l'énergie du faisceau. La proportion d'ions perdus lors de cette phase est évaluée à moins de 30 % des ions initialement stockés. L'énergie finale du faisceau est réglée précisément par l'intermédiaire du « cooler ». On procède enfin à l'extraction des ions de la manière suivante : l'intensité du « cooler » est sensiblement augmentée pour accroître la probabilité de recombinaison radiative entre les faisceaux d'ions et d'électrons ; on a donc, pendant la phase d'extraction, un faisceau d'ions nus et un faisceau d'ions hydrogénéoïdes qui circulent dans l'anneau avec des trajectoires différentes. Les ions hydrogénéoïdes sont défléchis par un septum électrostatique dans la « section nord » de l'anneau, où la dispersion des faisceaux est la plus grande, de manière à ce que les deux faisceaux soient bien séparés dans la « section droite est ». Après le « cooler », le faisceau d'ions hydrogénéoïdes est extrait de l'anneau par le champ magnétique d'un deuxième septum (voir figure 40).

II. Caractéristiques du faisceau extrait

L'extraction du faisceau d'ions hydrogénéoïdes se déroule sur une centaine de secondes avec une intensité qui décroît de manière exponentielle de 10^5 à 10^4 ions/s. Le cycle total du ralentissement et de l'extraction dure environ deux minutes. Andriamonje *et al.* [Andriamonje *et al.* 1997] ont évalué, par l'intermédiaire d'une simulation, la divergence angulaire du faisceau d'ions Au^{78+} de 53 MeV/u utilisé lors de l'expérience de 1995 : $\sigma_X = \sigma_Y = 0,018^\circ \pm 0,004$, où σ_X et σ_Y sont les écarts types dans chacune des directions du plan transverse de la distribution angulaire du faisceau supposée gaussienne. La grandeur

simulée était l'extinction en condition de canalisation, le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ d'un cristal de silicium de $17 \mu\text{m}$, des raies K_α émises par les ions Au^{78+} (après excitation ou ionisation de la couche K du projectile lors d'une collision proche avec un noyau cible). L'incertitude élevée sur σ_X et σ_Y est principalement due à la statistique des mesures et à l'hypothèse d'une forme gaussienne de faisceau. Le diamètre du faisceau autour de 4 mm a été évalué grâce à une chambre à fils qui a également mis en évidence l'existence d'un halo ($\sim 1\%$ du faisceau).

B. Le cristal et le dispositif de détection

La figure 41 présente schématiquement le dispositif de détection que nous avons utilisé lors de nos expériences de canalisation des ions U^{91+} de 20 MeV/u (2001) et Pb^{81+} de 13 MeV/u (2003), dans des cristaux minces de silicium :

- Le cristal cible est monté sur un goniomètre qui permet d'aligner les directions cristallines avec le faisceau.
- Des diodes germanium sont placées à 90° de la direction du faisceau et à une dizaine de centimètres de la cible. Elles détectent les photons émis par les projectiles lors de leur interaction avec la cible, dans un domaine d'énergie qui s'étend à peu près de 15 keV à 150 keV (l'efficacité de ces diodes est pratiquement nulle dans le domaine d'énergie des photons émis par la cible, typiquement inférieur à 10 keV).
- Le spectromètre magnétique dévie les ions transmis en fonction de leur charge et de leur vitesse en sortie du cristal. Le détecteur de particules fournit la distribution en rigidité $B\rho$ des ions qui le traversent (où ρ est le rayon de courbure de la trajectoire d'un ion dévié par le champ magnétique B du spectromètre). Les distances cible-spectromètre et spectromètre-détecteur de particules sont respectivement de 5 m et de 4 m environ.
- Les détecteurs silicium, situés à quelques centimètres de la cible, collectent par différence de potentiel les électrons émis en surface du cristal lors du

passage des projectiles. La différence de potentiel est obtenue en reliant les détecteurs à la masse et en polarisant la cible à -10 kV environ.

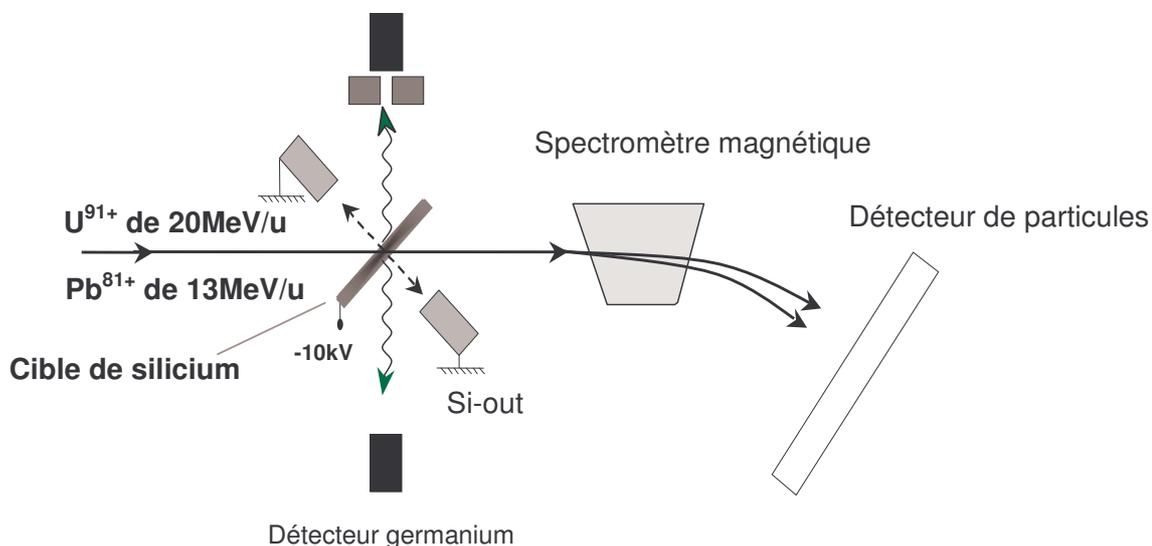


figure 41 : représentation schématique du dispositif de détection des photons, des multiplicités d'électrons secondaires émis en surface de la cible et d'analyse magnétique des ions transmis.

La figure 42 présente une photo de la chambre d'expérience où l'on peut voir le cristal et les détecteurs silicium montés sur le goniomètre. Les détecteurs germanium sont situés à l'extérieur de la chambre, derrière une fenêtre en béryllium, dans les puits situés à gauche et à droite de la figure.

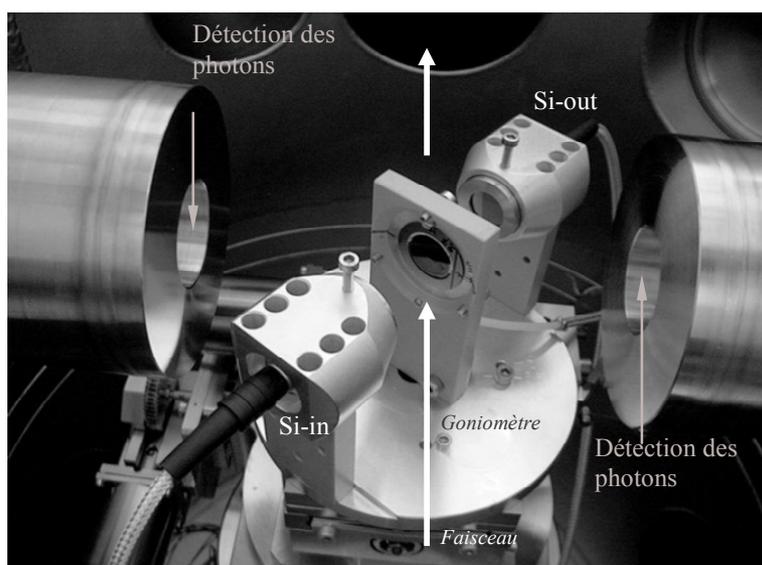


figure 42 : Photo du cristal et des détecteurs silicium montés sur le goniomètre.

I. Le cristal

1) Elaboration

Les cristaux minces de silicium utilisés lors de nos deux expériences de canalisation ont été fabriqués à l'université d'Aarhus, au Danemark, et à l'Institut de Physique Nucléaire d'Orsay. Leur élaboration s'effectue en 2 étapes :

- La première est l'obtention de la couche de silicium quasi-pure ou très faiblement dopée au phosphore (10^{13} à 10^{14} atomes cm^{-3}) par croissance épitaxiale. Cette technique consiste à déposer des atomes de silicium sur un substrat de silicium épais fortement dopé. Le substrat est préalablement chauffé pour que les atomes, en se déposant, aient une grande mobilité et se disposent parfaitement sur les sites cristallins. Dans le cas de nos cristaux, la surface du substrat est un plan (111) ou (100).
- Ensuite, la partie du substrat située au centre de la cible est supprimée par électrolyse pour libérer la deuxième face du silicium pur et conserver un bord épais qui sert de support (figure 43). La couche épitaxiale est posée sur une plaque en verre et une électrode est fixée à cheval sur les deux couches, de résistivités très différentes : $0,01 \Omega \text{ cm}$ pour le substrat dopé et 50 à $200 \Omega \text{ cm}$ pour le silicium pur. L'ensemble est introduit dans une cuve où l'on contrôle la dissolution électrochimique du substrat à tension constante par la mesure des variations de courant dans les deux couches. Lorsque la couche mince de grande résistivité est atteinte, le courant diminue.

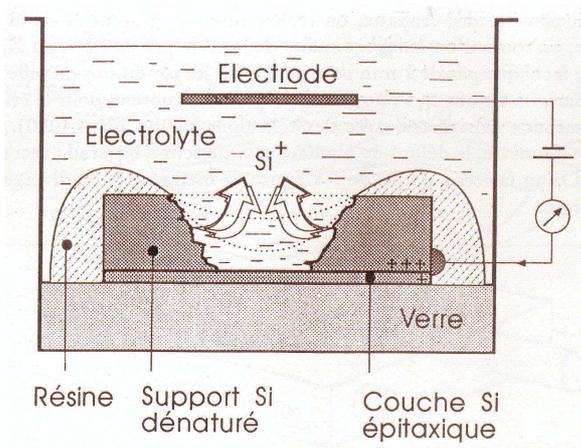


figure 43 : obtention d'un monocristal mince de silicium par électrolyse du substrat.

Après traitement, le diamètre du disque mince obtenu peut aller de quelques millimètres à plus d'un centimètre. Il est autoporté par la couronne résiduelle de substrat.

2) Caractérisation et pré-orientation de la cible

La mesure de la perte d'énergie subie par des particules α transmises à travers ces monocristaux permet de vérifier leur épaisseur. Les particules α sont fournies par une source d' ^{241}Am et leur énergie à la sortie de la cible est mesurée par une diode étalonnée. La comparaison de cette énergie avec le code de calcul TRIM permet de déduire l'épaisseur de cible à 0,05 μm près.

La figure 44 schématise la structure cubique face centrée type diamant d'un cristal de silicium. Les axes $\langle 110 \rangle$ constituent les diagonales des faces du cube. La pré-orientation des cristaux le long de cet axe a été effectuée par la méthode de Laue. Si la surface du cristal correspond à un plan (111), sa normale est un axe $\langle 111 \rangle$, à $35,25^\circ$ de l'axe $\langle 110 \rangle$. C'est l'angle de pré-alignement qui figure sur le schéma du goniomètre de la figure 45.

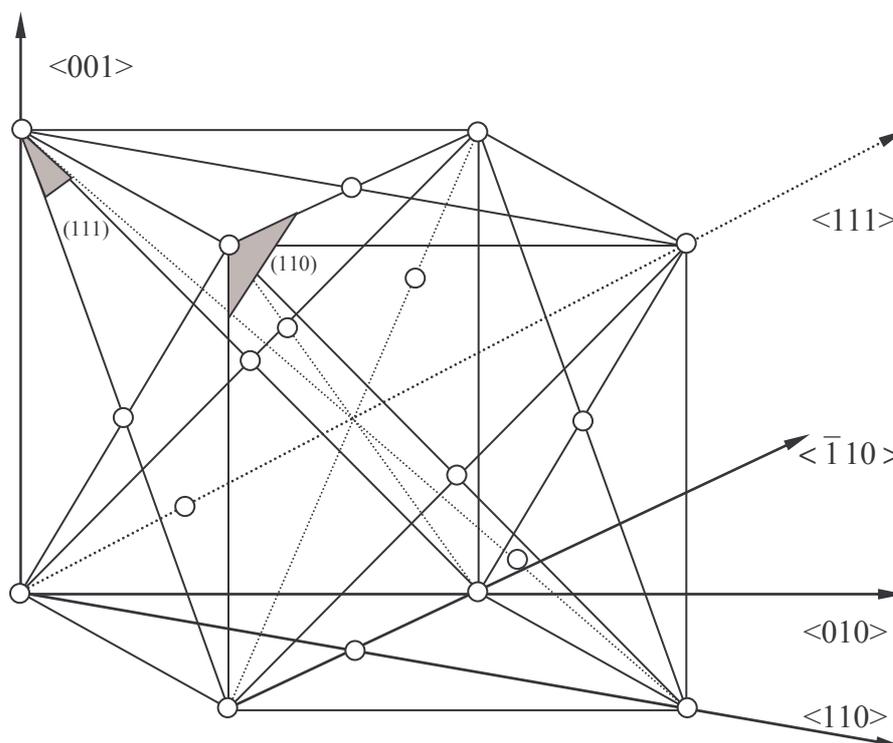


figure 44 : structure cubique face centrée type diamant d'un cristal de silicium.

3) Orientation du cristal : le goniomètre

L'orientation du cristal est assurée par un goniomètre (figure 45) comportant deux mouvements de rotation et un mouvement de translation entraînés par des moteurs pas à pas télécommandés par un ordinateur :

- la translation dans la direction verticale, perpendiculaire au faisceau qui permet d'escamoter ou de recentrer le cristal ; sa résolution est de $2,5 \mu\text{m}$.
- Le mouvement d'inclinaison autour de l'axe horizontal, perpendiculaire au faisceau.
- Le mouvement de rotation autour de l'axe orthogonal au plan P. Ce plan est la surface de la pièce sur laquelle est fixée la cible.

La précision relative des mouvements angulaires est de l'ordre de 10^{-3} degré.

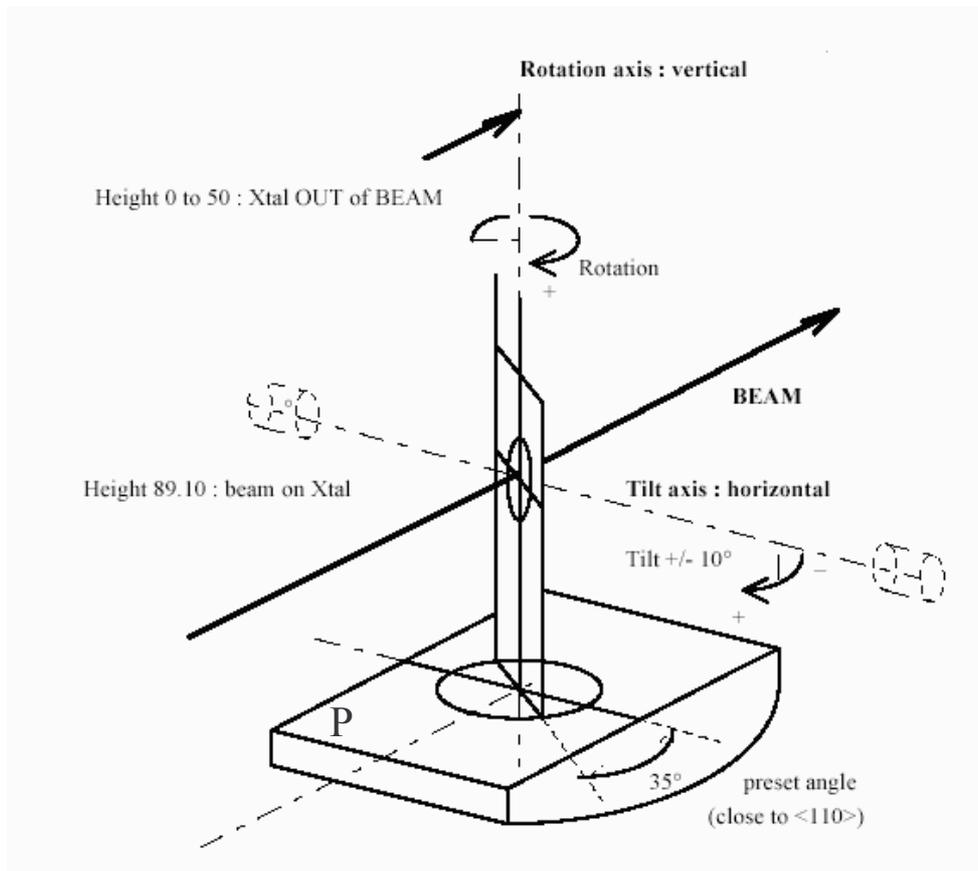


figure 45 : schéma du goniomètre

II. Les détecteurs

1) Détection des photons

Les détecteurs germanium de très grande pureté (GeHP) utilisés lors de nos expériences présentent une très bonne résolution (due au faible gap entre bande de valence et bande de conduction du germanium) et une très bonne efficacité dans la gamme d'énergie de 10 à 100 keV (favorisée par un numéro atomique élevé : $Z=32$).

(a) Principe

Ces détecteurs sont des diodes dopées au lithium. Leur polarisation en inverse permet d'augmenter la taille de la zone déplétée et d'améliorer considérablement la collection des charges produites lorsqu'un photon interagit avec le détecteur. Aux énergies considérées, l'effet photoélectrique domine. Le photoélectron émis perd son énergie cinétique par création de paires électron-trou qui sont collectées respectivement par l'anode et la cathode. L'énergie moyenne w nécessaire à la création d'une paire électron-trou est de 2,96 eV à 77 K. La tension V aux bornes de la diode est donnée par l'expression suivante :

$$V = \frac{Q}{C} = n \frac{E}{wC} \quad \text{équation 56}$$

où Q est la charge collectée par les électrodes, C la capacité de la région déplétée, n l'efficacité de collection et E l'énergie du photon. Statistiquement, le nombre d'ionisations $J=E/w$ produites pour une énergie déposée donnée est pratiquement une distribution de Poisson d'écart type σ_{det} .

$$\sigma_{det} = \frac{\sqrt{FJ}}{J} \quad \text{équation 57}$$

où F est le facteur de Fano propre au matériau. Il rend compte de l'ensemble des processus de transfert d'énergie ne conduisant pas à la production de charges comme les plasmons et les phonons.

Par ailleurs, à température ambiante, la faible énergie de gap entre bande de valence et bande de conduction permet des transitions induites simplement par agitation thermique. On limite le bruit qui en résulte en maintenant la diode à la température de l'azote liquide.

(b) *Caractéristiques du détecteur*

(i) *Efficacités intrinsèque et géométrique*

Un photon qui entre dans le détecteur a une certaine probabilité d'être totalement absorbé. Cette probabilité est l'efficacité intrinsèque du détecteur. La figure 46 présente l'efficacité déterminée par le constructeur [Ortec 1991].

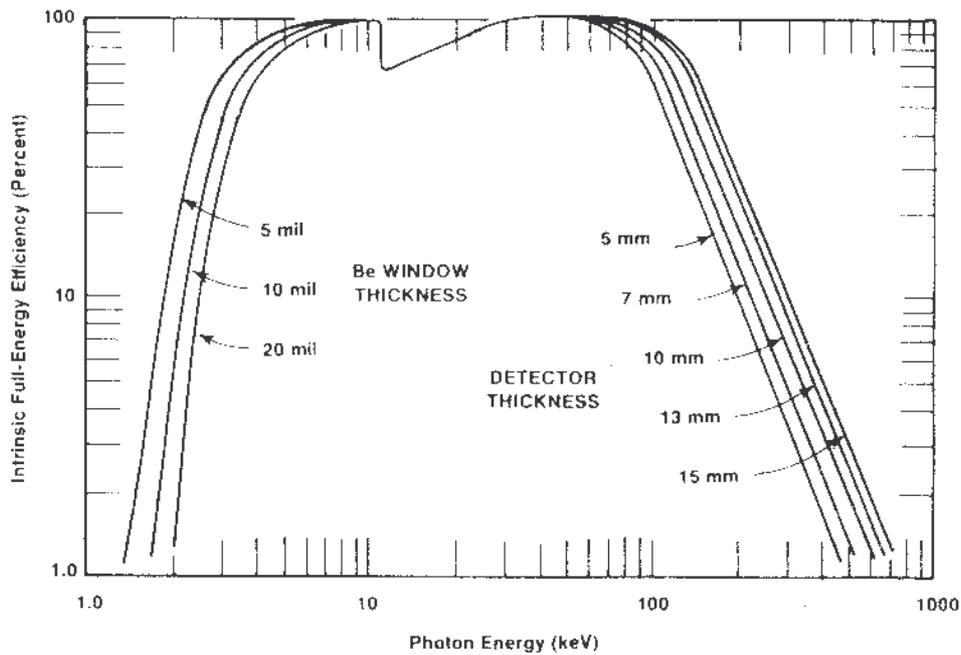


figure 46 : efficacité intrinsèque GeHP d'après le constructeur Ortec [Ortec 1991] (l'épaisseur des détecteurs utilisés dans nos expérience est de 10 mm).

- A basse énergie, ce sont les fenêtres de béryllium placées devant ces détecteurs qui absorbent une fraction des photons incidents.
- L'efficacité du détecteur chute de 35 % à 10 keV, qui correspond à l'énergie de liaison d'un électron K du germanium. Le ou les photons de désexcitation consécutifs à l'ionisation de la couche K peuvent ressortir du cristal si l'ion émetteur est proche de la surface. Lorsque l'énergie du photon croît, le libre parcours moyen vis-à-vis de cette ionisation augmente et la probabilité de perdre les rayons X de fluorescence diminue puisque les émetteurs sont en moyenne plus loin de la surface.

- A plus haute énergie, la section efficace de l'effet photoélectrique diminue au profit de l'effet Compton et l'efficacité décroît progressivement.

La surface et l'épaisseur des détecteurs que nous avons utilisés dans nos expériences sont respectivement de 1000 mm² et de 10 mm. Leur résolution, caractérisée par l'écart type σ_{det} , a été évaluée à environ 220 eV à 100 keV.

L'efficacité géométrique est par définition le rapport de l'angle solide couvert par le détecteur sur l'angle solide total. Elle peut être déterminée expérimentalement avec une source radioactive qui émet des rayons X dans un domaine d'énergie où l'efficacité intrinsèque est bien connue, par exemple entre 60 keV et 80 keV.

(ii) La calibration

Le signal émis par le détecteur est mis en forme et amplifié (cf. paragraphe C.1.). L'amplitude du signal analogique obtenu après amplification est convertie en un signal numérique par un ADC (Analogic-Digital Converter) : à une amplitude correspond un numéro de canal de sortie du convertisseur. Avec des sources radioactives dont l'énergie des raies X est proche des énergies mesurées dans nos expériences, on détermine par régression linéaire, la relation entre ce numéro de canal et l'énergie E du photon détecté :

$$E(\text{keV}) = a \cdot n^\circ(\text{canal}) + b \quad \text{équation 58}$$

2) Détection des électrons émis en surface du cristal-cible

Comme nous l'avons vu, les ions ionisent la matière le long de leur trajectoire et les électrons émis peuvent être classés en deux catégories :

- Les électrons δ très énergétiques, issus de collisions proches. Leur émission est piquée vers l'avant et elle produit de nombreux électrons secondaires.
- Les électrons de basses énergies, dûs aux collisions distantes, très majoritaires.

En polarisant la cible, à -10 kV par exemple, on peut collecter par différence de potentiel les électrons produits en surface de la cible sur des détecteurs en silicium reliés à la masse. Ces détecteurs, désignés sous l'appellation « PIPS » (Passivated Implanted Planar Silicon) sont des diodes à jonction p-n. Ils sont fabriqués à partir d'une pastille de silicium très pure dont la surface d'entrée est dopée p⁺, par implantation d'ions accepteurs d'électrons, et la surface arrière est dopée n⁺ avec des ions donneurs. Leur avantage principal est de fonctionner à température ambiante. Le principe de détection des multiplicités d'électrons secondaires, émis par des cibles minces sous l'impact de projectiles rapides, a notamment été étudié par Billebaud [Billebaud 1995]. Dans notre cas, ils sont utilisés pour fournir un signal proportionnel au nombre d'électrons collectés : les électrons arrivent en effet tous avec à peu près la même énergie de 10 keV, leur énergie cinétique initiale étant négligeable par rapport à celle acquise sous l'effet du champ électrique, et l'énergie déposée dans les détecteurs est proportionnelle à la multiplicité d'électrons N_{Si-in} et N_{Si-out} collectés respectivement en entrée et en sortie du cristal.

La profondeur moyenne d'échappement caractérise la région d'où proviennent les électrons collectés. Elle est d'une centaine d'Angströms à l'entrée du cristal et plutôt de l'ordre du millier d'Angströms, voire du micron en sortie, puisque les électrons secondaires se propagent dans la direction du faisceau. Plus la densité d'électrons rencontrés sur la profondeur d'échappement est élevée, plus la multiplicité d'électrons collectés est grande. Comme à l'entrée du cristal, cette profondeur est faible, la multiplicité N_{Si-in} est liée à la distance des ions aux rangées ou aux plans atomiques à l'entrée du cristal et donc à l'énergie transverse des ions. En sortie du cristal, on peut considérer que les ions explorent, sur la profondeur d'échappement de l'ordre du micron, l'ensemble de leur espace transverse accessible $A(E_{\perp})$: dans l'axe, l'équilibre du flux est pratiquement atteint et dans les plans, nous verrons au chapitre V que la longueur d'onde associée à la trajectoire d'ions Pb⁸¹⁺ de 13 MeV/u (qui est comparable à celle des ions U⁹¹⁺ de 20 MeV/u) est justement de l'ordre du micron. La perte d'énergie moyenne sur l'espace transverse accessible, et par conséquent la perte d'énergie subie au cours de la traversée du cristal, sont donc directement liées à la multiplicité N_{Si-out} d'électrons collectés en sortie.

3) Analyse en charge et en énergie des ions transmis

Les ions émergeant de la cible sont analysés en charge et en énergie par l'association d'un spectromètre magnétique (de rigidité maximale d'environ 4,5 T m) et d'un détecteur à localisation situé à un angle de déflexion de 20°, au plan focal du spectromètre.

(a) Le spectromètre magnétique

Dans l'entrefer de l'aimant du spectromètre, la trajectoire circulaire d'un ion est telle que $B\rho=p/Q$ avec B l'intensité du champ magnétique, ρ le rayon de la trajectoire circulaire d'un ion de charge Q et d'impulsion p . Sous forme différenciée, cette expression s'écrit :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = \frac{\Delta p}{p} - \frac{\Delta Q}{Q} - \frac{\Delta B}{B} \quad \text{équation 59}$$

L'écart à la linéarité du champ B avec le courant I de la bobine est considéré comme négligeable. Une partie des ions est transmise à travers le détecteur à localisation.

(b) Le détecteur à localisation

Le détecteur à localisation est l'association d'une galette à microcanaux (MicroChannel Plate - MCP) et de deux lignes à retard. La figure 47(a) présente un schéma de profil du détecteur et le principe de fonctionnement des lignes à retard est illustré par la figure 47(b). Le détecteur à localisation détermine la position (X, Y) à laquelle une particule chargée le traverse sur un disque de 8 cm de diamètre environ et avec une incertitude inférieure à la centaine de micromètres (X et Y sont respectivement les positions horizontale et verticale sur le détecteur ; cf. figure 47(b)).

Les galettes MCP sont constituées d'un maillage de millions de canaux d'environ 10 μm de diamètre et 1 mm de long. L'intérieur des canaux est recouvert d'une couche de semi-conducteur ; les surfaces d'entrée et de sortie de la galette qui constituent les électrodes du détecteur sont métalliques. Lorsqu'un ion frappe la galette, une cascade d'électrons se développe dans les microcanaux sous l'effet de la forte tension appliquée entre les électrodes. Le nuage d'électrons émis est très localisé et passe à travers deux lignes

à retard (les anodes du détecteur), une pour la position horizontale X , l'autre pour la position verticale Y . Les électrons collectés par ces lignes se propagent dans les deux directions des fils. Les temps $(t_1 \text{ et } t_1')$ et $(t_2 \text{ et } t_2')$, auxquels ils atteignent respectivement les extrémités des lignes horizontale et verticale, déterminent la position (X, Y) : X et Y sont en effet proportionnelles aux différences t_1-t_1' et t_2-t_2' .

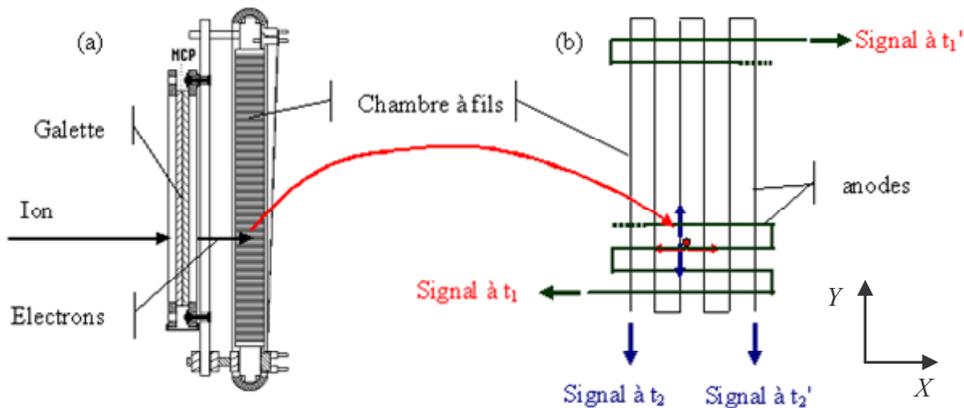


figure 47 : (a) le détecteur à localisation (vue de profil) (b) le principe de la collection des charges sur les lignes à retard (vue de face).

(c) La calibration

Au premier ordre, la position relative X sur le détecteur à localisation est proportionnelle à $\Delta\rho/\rho$ (où ρ est le rayon de la trajectoire circulaire d'un ion de charge Q et d'impulsion p) :

$$\Delta X = k \frac{\Delta\rho}{\rho} \quad \text{équation 60}$$

k peut être déterminé, par exemple, à partir :

- des positions X du faisceau direct pour différentes valeurs du champ magnétique B du spectromètre.
- des positions X des pics associés à différents états de charge d'ions transmis à travers une cible suffisamment mince (avec une valeur de B donnée). Dans ce cas, la perte d'énergie est négligeable et le décalage ΔX entre deux états de charge consécutifs est égal à $\Delta Q/Q$.

C. Le système d'acquisition

La figure 48 présente le schéma simplifié du système d'acquisition qui comprend l'élaboration des signaux électroniques, la sélection des événements et leur enregistrement.

I. Elaboration des signaux électroniques

Les signaux en sortie des détecteurs sont très faibles. Le rôle des préamplificateurs est de les amplifier, en y intégrant le moins de bruit possible, pour les adapter au transport par câble coaxial. Les préamplificateurs sont placés le plus près possible des détecteurs afin de réduire au maximum les parasites dus aux champs électromagnétiques ambiants.

Les amplificateurs mettent en forme les signaux issus des préamplificateurs. Les informations en temps et en amplitude du signal sont traitées par des modules différents :

- Les amplificateurs spectroscopiques : ils doivent respecter la proportionnalité entre les amplitudes d'entrée et de sortie et présenter un bon rapport signal sur bruit. En théorie, le meilleur rapport est obtenu avec un signal en sortie d'amplificateur de forme gaussienne. La mise en forme s'effectue en filtrant les basses fréquences par différentiation, et les hautes fréquences par intégration. La différentiation introduit un « undershoot » qui est corrigé par les systèmes de correction de « pôle zéro » et de restitution de la ligne de base.
- Les amplificateurs rapides : le temps de montée du signal doit être respecté ce qui nécessite une bande passante très large. Les gains sont relativement limités mais l'amplitude des signaux en sortie respecte celle des signaux d'entrée.

II. Sélection et enregistrement des événements

1) Les discriminateurs

Les discriminateurs fournissent, à partir du signal de sortie des amplificateurs rapides, les signaux logiques susceptibles de déclencher l'acquisition. Lorsque l'amplitude de leur signal d'entrée est supérieure à une valeur seuil, ils présentent, en sortie, un signal logique égal 1. Cette première sélection des signaux permet d'éviter de déclencher

l'acquisition dans le bruit. La réponse en temps des discriminateurs doit être aussi indépendante de la forme du signal d'entrée que possible. La plupart des discriminateurs déclenchent au moment du passage du seuil ce qui peut poser problème lorsque l'amplitude des signaux d'entrée varie beaucoup. Ceux que nous avons utilisés déclenchent au passage d'une fraction constante de l'amplitude du signal, ce qui donne une meilleure résolution temporelle.

2) La trigger box et le CAMAC

Les données sont enregistrées au cours de l'acquisition événement par événement. L'ensemble des signaux de sortie des discriminateurs est envoyé sur une boîte logique de déclenchement appelée « trigger box ». Lors du passage d'un ion, si l'un au moins des détecteurs émet un signal supérieur à la valeur de seuil de son discriminateur, cette boîte de déclenchement compare la configuration présente sur ses voies d'entrée à celles qu'elle doit retenir. On peut distinguer deux types de déclenchements :

- Le déclenchement simple (« single ») sur le signal associé à un seul détecteur, celui du détecteur à localisation par exemple dans le cas d'une mesure de distribution d'états de charge.
- Le déclenchement en coïncidence. Dans le cas de l'étude de l'émission de rayons X en fonction de l'état de charge des ions transmis, on sélectionne les événements de coïncidence entre le détecteur à localisation et un détecteur de photons.

Si l'on enregistre les deux types d'événements, simple et en coïncidence, il est préférable de ne sélectionner qu'une fraction des événements simples avec un diviseur. En effet, les détecteurs de photons X voient beaucoup moins d'événements que les autres car leur angle solide est de l'ordre de 10^{-3} stéradian, et le diviseur permet d'équilibrer le nombre d'événements enregistrés de chaque type.

Le signal de sortie de la trigger box est relié par l'intermédiaire d'une interface au contrôleur CAMAC en charge de la lecture des différents modules situés sur le support CAMAC :

- les convertisseurs analogiques-numériques ADC et TDC qui codent respectivement des signaux en amplitude et des temps. Leur temps de conversion est de l'ordre de 80 μ s.
- Le « Pattern Unit » dont la valeur permet de déterminer quel détecteur ou quelle coïncidence a déclenché l'acquisition et quels détecteurs ont été touchés lors de l'événement.
- Les échelles de comptage qui permettent notamment de suivre en ligne le taux de comptage.

Le contrôleur CAMAC assure également les échanges de données ou de commande entre le crate CAMAC, l'ordinateur d'acquisition et le système d'enregistrement des données sur bandes DLT (Digital Linear Tape).

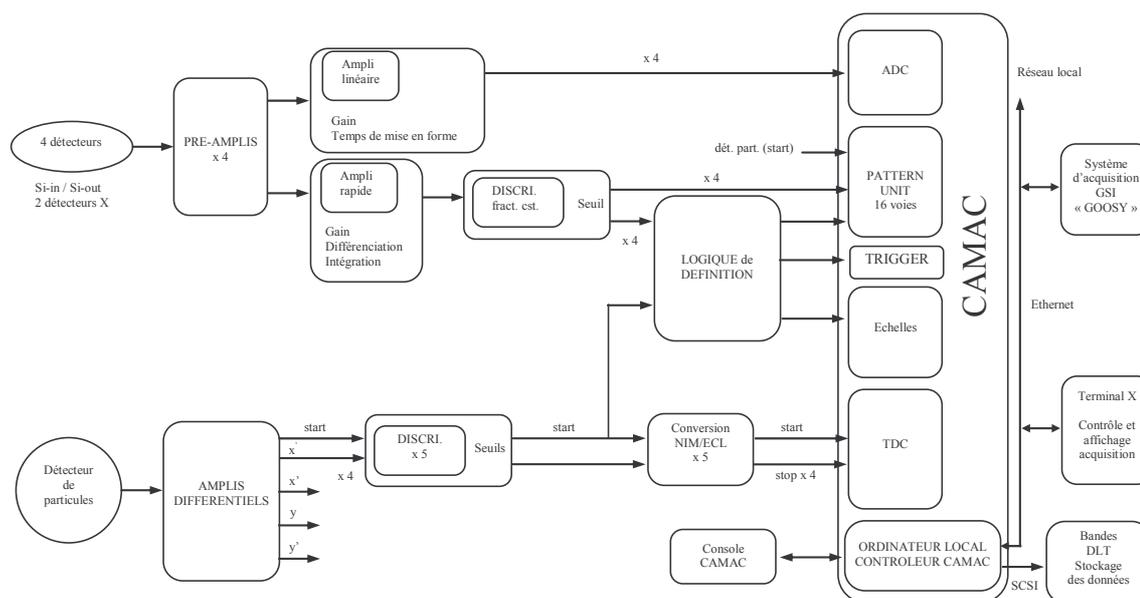


figure 48 : schéma de principe de l'acquisition électronique.

Chapitre IV

Compétition entre MEC et REC pour des ions U^{91+} de 20 MeV/u dans un cristal mince de silicium

L'expérience de canalisation d'ions U^{91+} de 20 MeV/u dans un cristal mince de silicium s'est déroulée en décembre 2001. Une partie des résultats expérimentaux a été publiée en 2003 ([Dauvergne *et al.* 2003]). L'article en cours de rédaction rassemblera l'analyse complète des données expérimentales et les résultats des simulations présentés dans ce chapitre.

A. Mesures

I. Choix du cristal

L'utilisation de cristaux de silicium pour la canalisation d'ions est avantageuse car ces cristaux sont de très bonne qualité et présentent un coût de fabrication relativement faible. Le choix de l'épaisseur dépend de l'objet de l'étude. Dans notre étude sur la capture électronique d'ions U^{91+} de 20 MeV/u, nous voulions :

- Une cible suffisamment épaisse pour que la perte d'énergie des ions transmis à travers le cristal soit mesurable et que l'équilibre de charge soit atteint hors canalisation.
- Une cible suffisamment mince pour que la fraction d'ions gelés dans leur état de charge incident soit importante (de l'ordre de la dizaine de pourcent) et que notre analyse magnétique puisse séparer les différents états de charge des ions transmis en condition de canalisation : en effet, la

distribution en énergie des ions par état de charge de sortie Q_{out} est d'autant plus large que la perte d'énergie est grande et, avec notre analyse magnétique, l'identification des états de charge Q_{out} devient difficile pour des pertes d'énergie typiquement supérieures à 5%. De plus, le réchauffement transverse est difficile à prendre précisément en compte sur des épaisseurs de plusieurs dizaines de microns.

L'épaisseur de cristal à notre disposition, qui se situait entre ces deux cas extrêmes était de 9,6 μm , soit 11,7 μm d'épaisseur effective lorsque la cible était inclinée à 35° en condition de canalisation le long de l'axe $\langle 110 \rangle$.

II. Mesures d'états de charge à la sortie de la cible

1) L'identification des états de charge par analyse magnétique

Quatre distributions de charge ont été étudiées : celle obtenue hors canalisation et les trois distributions de charges en condition de canalisation dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et dans les plans (110) et (111).

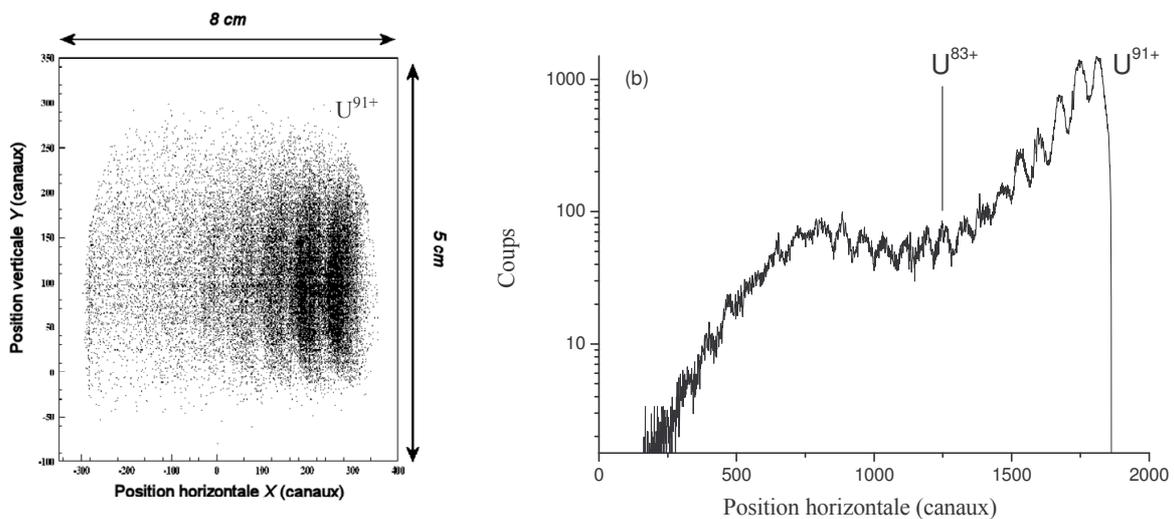


figure 49 : (a) position sur le détecteur à localisation des ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u, canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ du cristal de silicium de 11,7 μm , avec un état de charge en sortie supérieur à 83. (b) distribution en position obtenue par juxtaposition des quatre acquisitions de canalisation axiale $\langle 110 \rangle$.

Les états de charge sont identifiés sur le détecteur à localisation après l'analyse magnétique du spectromètre. Ce détecteur est placé dans le plan focal image de l'optique du

faisceau de manière à ce qu'un projectile d'énergie E et de charge Q_{out} atteigne une position sur le détecteur indépendante de son angle ψ_{out} en sortie de cristal. La figure 49(a) présente par exemple le spectre de positions (X,Y) obtenu sur le détecteur à localisation lors d'une acquisition en orientation axiale. Seuls s'y trouvent les états de charge les plus élevés, supérieurs à 83 ; en condition de canalisation, la détermination complète d'une distribution de charge nécessite quatre acquisitions effectuées avec quatre valeurs de champ magnétique différentes. Hors canalisation, deux acquisitions suffisent car la distribution de charge est moins large. La projection sur l'axe X de ces spectres et leur juxtaposition donnent finalement la distribution complète en p/Q des ions transmis (figure 49(b)).

Nous avons déterminé la relation de proportionnalité entre X et p pour un état de charge donné (équation 60) en supposant que les ions qui ressortent avec les états de charge 91 et 90 subissent la même perte d'énergie moyenne. Avec cette hypothèse, le coefficient k de proportionnalité entre ΔX et $\Delta p/p$ est donné par l'écart en canaux entre les centroïdes de ces deux états de charge, qui correspond à $\frac{\Delta Q}{Q} = \frac{1}{90,5} \left(= \left| \frac{\Delta p}{p} \right| = \left| \frac{\Delta B}{B} \right| \right)$. La valeur obtenue ($k=1,6 \cdot 10^{-4}$) est confirmée à 10 % près par celle mesurée avec la position moyenne des états de charge en sortie d'une feuille de carbone très mince, pour laquelle la perte d'énergie est négligeable.

Les ions les plus chargés et les plus ralentis pour une même charge sont les plus déviés (à droite sur la figure 49(b)). La normalisation des différentes acquisitions a été effectuée par « raccordement », c'est à dire en égalisant les intégrales correspondant aux pics d'états de charge situés dans la zone de recouvrement des spectres.

Pour différencier les états de charge, une première méthode consiste à choisir des fenêtres sur la position des particules. Cette différenciation est relativement simple, mais elle a l'inconvénient de négliger le recouvrement des états de charge qui vient du fait que des ions de même état de charge en sortie ne perdent pas tout à fait la même quantité d'énergie en traversant le cristal. Ces ions rencontrent en effet des densités électroniques moyennes $\bar{\rho}_e$ légèrement différentes et leur état de charge Q dans la cible peut évoluer de manière différente. La fluctuation du nombre de collisions violentes pour une densité électronique rencontrée donnée (le straggling collisionnel) conduit également à des

variations de perte d'énergie qui sont négligeables devant les effets des variations de $\bar{\rho}_e$ et de Q . La sélection des états de charge a donc été effectuée par une deuxième méthode présentée au paragraphe A.III.2).

2) Evolution de la qualité du faisceau au cours de l'extraction des ions de l'anneau de stockage

Avant de présenter les distributions d'états de charge obtenues dans les différentes orientations, nous donnons, dans ce paragraphe, une description de l'évolution de la qualité du faisceau au cours de l'extraction des ions stockés dans l'anneau ESR. On s'attend en effet à ce que la divergence du faisceau soit plus faible en fin d'extraction car le procédé de refroidissement du faisceau dans l'anneau est probablement d'autant plus efficace que le nombre d'ions stockés est faible. L'une des grandeurs intéressantes pour étudier l'évolution de la qualité du faisceau est la fraction d'ions gelés, car seuls les ions de faible énergie transverse ont une forte probabilité de ne pas capturer d'électrons. La fraction $F(Q_{out}=91)$ d'ions gelés dans l'état de charge incident devrait donc augmenter au cours de l'extraction. Elle est obtenue soit à partir du spectre déterminé par recouvrement de quatre acquisitions ($F_r(91)$) soit par la normalisation du nombre d'ions gelés au nombre d'événements Si-in ($F_{Si-in}(91)$), c'est-à-dire au nombre de particules incidentes (l'efficacité du détecteur Si-in étant proche de 1) :

$$F_r(91) = \frac{N(Q_{out} = 91)}{\sum_{i=0}^{91} N(Q_{out} = 91 - i)} \quad \text{équation 61}$$

$$F_{Si-in}(91) = \frac{N(Q_{out} = 91 \ \& \ Si - in)}{N(Si - in)} \quad \text{équation 62}$$

où $N(Q_{out}=91 \ \& \ Si-in)$ est le nombre d'événements de coïncidence entre un ion d'état de charge $Q_{out}=91$ observé sur le détecteur de particules et un signal du détecteur Si-in.

La première normalisation présente cependant l'inconvénient de « mélanger » l'évolution des différentes acquisitions utilisées pour couvrir la distribution de charge complète ; la fraction des ions d'états de charge $Q_{out}<83$ qui ne touchent pas le détecteur de particules lors d'une acquisition du type de celle de la figure 49(a) est de l'ordre de 20 % et

on évalue l'incertitude relative sur la fraction d'ions gelés déterminée par cette méthode de normalisation à 10 % environ.

Les fractions $F_r(91)$ et $F_{Si-in}(91)$ sont respectivement de 26% et 24% sur l'ensemble de l'extraction en condition de canalisation axiale. En découpant les données de l'acquisition en dix tranches de même nombre d'événements, on obtient sur la figure 50 une abscisse temporelle pratiquement logarithmique, puisque le nombre de particules dans le faisceau incident décroît de manière exponentielle. On remarque tout d'abord que les évolutions des fractions $F_r(91)$ et $F_{Si-in}(91)$ sont assez proches alors qu'elles correspondent à des acquisitions différentes. On voit ensuite que la fraction d'ions gelés varie relativement peu, de 0,19 à 0,27 pour $F_{Si-in}(91)$ et il ne semble donc pas nécessaire de supprimer le début d'extraction de chaque acquisition.

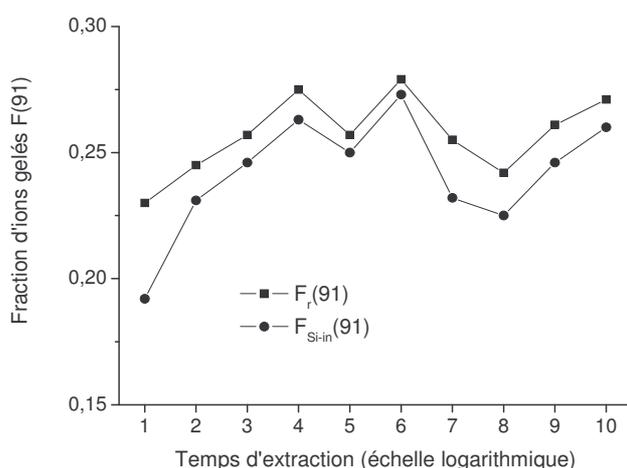


figure 50 : évolution de la qualité du faisceau au cours du temps par l'intermédiaire de la fraction d'ions gelés $F(91)$. $F_r(91)$ est la fraction obtenue par « recouvrement » de quatre acquisitions, $F_{Si-in}(91)$ est déterminée par normalisation sur le signal Si-in.

3) Les distributions d'états de charge

Les distributions d'états de charge Q_{out} (et de perte d'énergie) en orientation aléatoire et en conditions de canalisation axiale et planaire ont été déterminées à partir des distributions de positions relatives X sur le détecteur de particules (figure 51). On voit qu'en orientation aléatoire, l'analyse magnétique ne permet pas de séparer les états de charge, car les fluctuations de perte d'énergie des projectiles sont trop importantes hors canalisation. En revanche, les différents états de charge apparaissent nettement en orientations axiale et planaire, sur l'ensemble de la distribution. En supposant que la perte d'énergie des ions de plus faibles états de charge dans les plans est pratiquement la même que celle des ions en

orientation aléatoire, nous avons déduit de la figure 51(b) la position relative X des états de charge Q_{out} en orientation aléatoire (figure 51(a)).

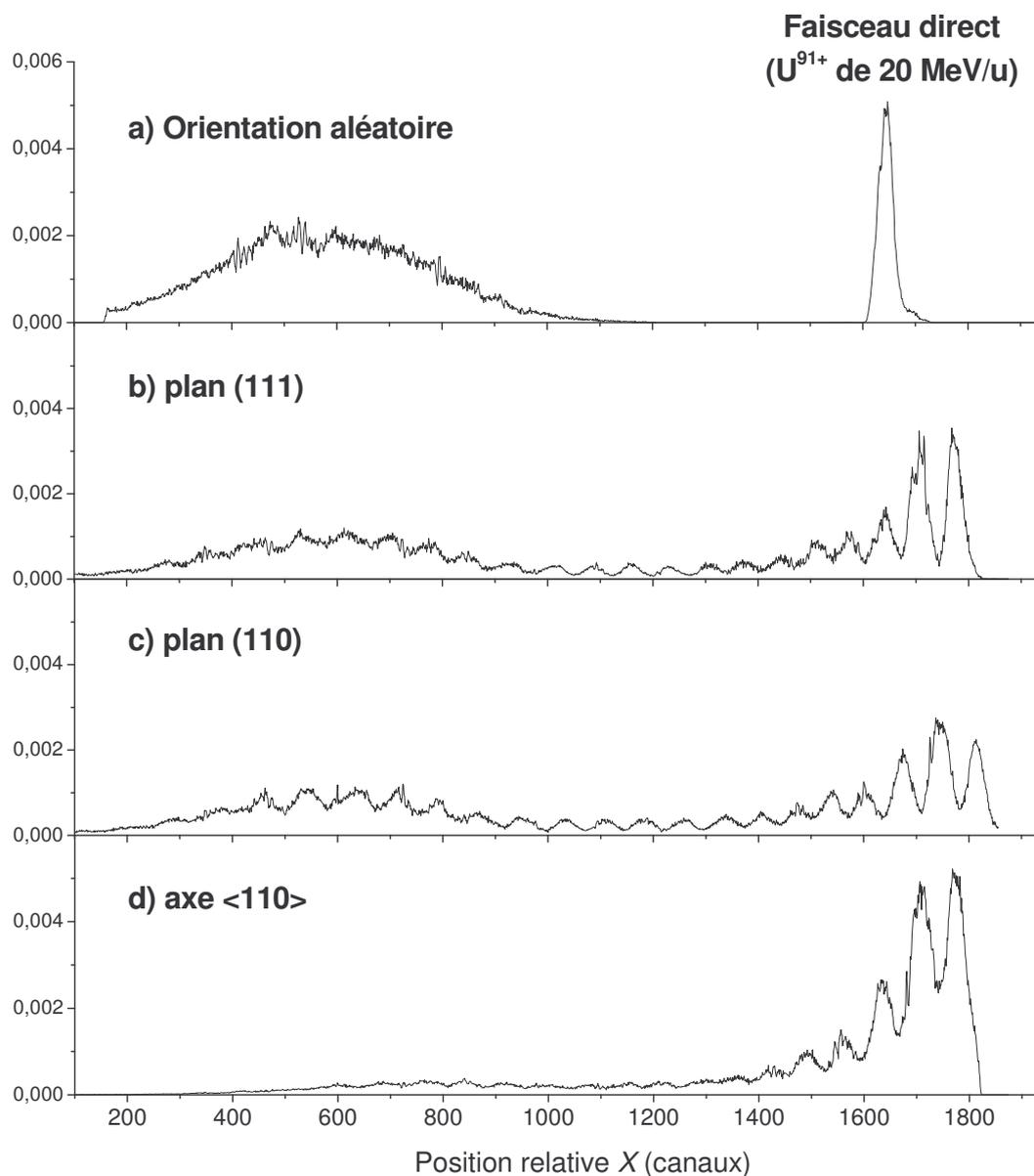


figure 51 : distributions normalisées de positions relatives X sur le détecteur de particules des ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u transmis à travers un cristal de $11,7 \mu\text{m}$, en orientation aléatoire et en condition de canalisation axiale et planaire.

(a) Distribution d'états de charge et perte d'énergie hors canalisation

La distribution de charge mesurée hors canalisation est présentée sur la figure 52. L'état de charge \bar{Q}_{out}^R moyen de cette distribution, proche de 73,6, est en bon accord avec la valeur \bar{Q} obtenue à partir de la formule de Léon [Léon 1998] : $\bar{Q} \sim 74,1$. Avec cette charge moyenne et la différence des positions X du centroïde des distributions de la figure 51(a), on obtient une perte d'énergie moyenne $(\Delta E)_R^{mes.}$ de 250 MeV environ, soit une perte d'énergie relative $(\Delta E / E)_R^{mes.}$ de 5 % environ. Cette perte d'énergie mesurée correspond à peu près à celle des tables de pouvoir d'arrêt $((\Delta E)_R = 236 \text{ MeV [Ziegler])}$. Par ailleurs, une erreur d'une unité dans l'évaluation des états de charge hors canalisation représenterait une incertitude de 2 % sur l'énergie moyenne des ions transmis et donc une incertitude de 40 % sur la perte d'énergie, très supérieure à l'incertitude sur les valeurs de pouvoir d'arrêt tabulées.

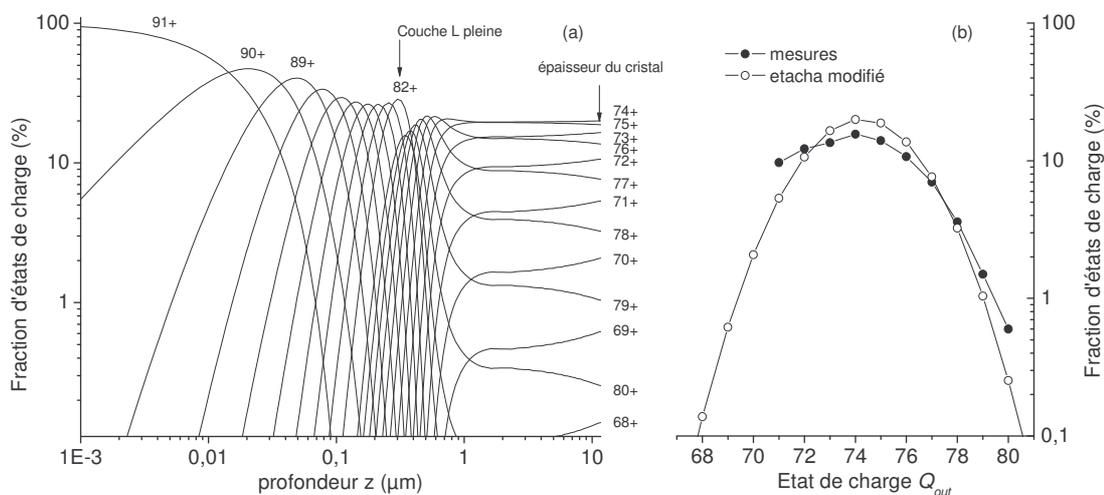


figure 52 : (a) évolution de la distribution de charge hors canalisation du faisceau d'ions U^{91+} de 20 MeV/u en fonction de la profondeur parcourue dans la cible de silicium obtenue avec une version modifiée du code ETACHA. Seules, les 3 premières couches atomiques du projectile sont prises en compte et la section efficace de capture sur $n=3$ a été multipliée par 20. (b) distributions de charge en sortie de cible, mesurée et calculée par la version modifiée du code ETACHA.

Le code ETACHA permet d'étudier la variation de la distribution de charge des ions en fonction de l'épaisseur de cible traversée en prenant en compte, pour chaque niveau électronique, à la fois les sections efficaces de capture mécanique et radiative, d'ionisation,

Chapitre IV

d'excitation et la probabilité de désexcitation radiative d'un niveau excité. Cependant ce code n'est valable que pour des ions tels que le rapport $\eta_M = (E_c/E_M)(m_e/M_p)$ (où E_c et M_p sont l'énergie cinétique et la masse du projectile et E_M est l'énergie de liaison d'un électron de la couche L) soit supérieur à 1, c'est-à-dire des ions pour lesquels seules les configurations électroniques des niveaux $n_f \leq 3$ interviennent dans la distribution de charge. Ce n'est pas le cas des ions U^{91+} de 20 MeV/u, mais pour avoir une idée qualitative de l'évolution de la distribution de charge en fonction de l'épaisseur, nous avons ajusté la section efficace $\sigma_{MEC}(n_f=3)$, de manière à ce que la distribution de charge simulée corresponde à la distribution mesurée. Le meilleur ajustement, obtenu en multipliant par 20 la valeur $\sigma_{MEC}(n_f=3)$, est présenté sur la figure 52(b). Ce facteur 20 n'est pas surprenant car la capture mécanique s'effectue principalement sur les couches $n_f \geq 4$ (figure 14) ; le rapport $\sum_{i=3}^{10} \sigma_i^{MEC} / \sigma_3^{MEC}$ est égal à 21 et contrairement à ce qui se passe à plus haute vitesse, les électrons capturés sur les couches supérieures peuvent avoir le temps de se stabiliser dans les couches internes du projectile. Cette stabilisation est par ailleurs favorisée dans le cas d'ions lourds car la probabilité de désexcitation radiative est proportionnelle à Z_p^4/n_f . On constate sur la figure 52(a) que le rhabillage des ions U^{91+} de 20 MeV/u est très rapide. Plus de 90% d'entre eux ont capturé au moins un électron au bout d'environ 0,05 μm de cible parcourue. La couche L est remplie avant 0,5 μm et l'équilibre de charge est atteint entre 1 et 2 μm . La lente évolution observée au-delà est due à la perte d'énergie qui modifie les sections efficaces, en favorisant la capture électronique.

Même si ce calcul n'est pas rigoureux, il montre bien que les projectiles remplissent leurs couches K et L rapidement et sont à l'équilibre de charge sur la majeure partie du cristal.

(b) Distributions de charge en canalisation axiale et planaire

En canalisation, les distributions de charge sont larges et présentent trois composantes (figure 53) :

- Une composante d'ions bien canalisés qui subissent au plus une capture : la fraction $F(Q_{out} \geq 90)$ est voisine de 50% dans l'axe, de 17% dans le plan

(110) et de 25% dans le plan (111). Nous verrons plus loin que la majorité des ions d'état de charge $Q_{out}=90$ effectuent leur capture par REC.

- Une composante d'ions d'énergie transverse intermédiaire et d'état de charge Q_{out} compris entre 80 et 89, qui capturent des électrons essentiellement par MEC.
- Une composante de particules très mal canalisées et non canalisées dont la distribution se rapproche de la distribution obtenue hors canalisation. Cependant, dans le cas de l'axe $\langle 110 \rangle$, trois unités de charge séparent les états de charge les plus probables de ces deux distributions. Ceci est dû à un effet de « superdensité » électronique rencontrée par les ions mal canalisés. Ces ions subissent en rasant les rangées des collisions multiples qui favorisent la perte des électrons capturés sur des couches de n_f élevé. En effet, ceux-ci n'ont pas le temps de retomber sur les couches internes du projectile avant les collisions suivantes et sont arrachés du projectile. La capture est donc moins efficace qu'en orientation aléatoire.

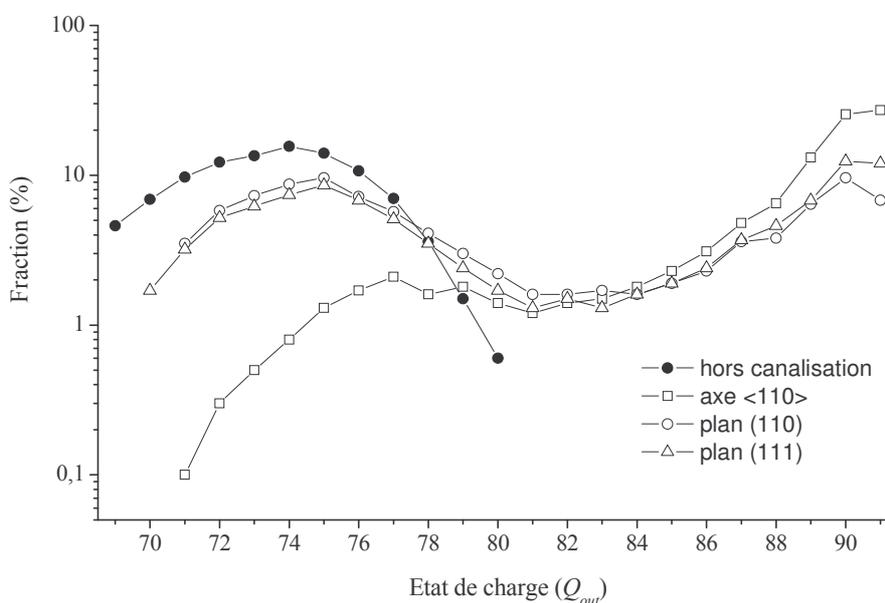


figure 53 : distributions de charge, en sortie du cristal de silicium de 11,7 μm , pour des ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u.

La grande différence entre les distributions axiale et planaire est essentiellement due au fait que la proportion d'ions qui entrent près des atomes cible est beaucoup plus importante en orientation planaire qu'en orientation axiale. En effet, en orientation planaire, la distribution de distance r vis-à-vis du plan d'atomes le plus proche est pratiquement uniforme, alors qu'en orientation axiale, la distribution de distance r vis-à-vis de la rangée la plus proche est proportionnelle à r (pour des distances typiquement inférieures à 0,5 Å). La forme de la distribution de charge des ions de faibles états de charge dans les plans est discutée au paragraphe A.III.

III. Perte d'énergie des ions canalisés

1) La perte d'énergie des ions gelés

La perte d'énergie relative mesurée dans l'axe $\langle 110 \rangle$ des ions U^{91+} est d'environ 4,6 %, ce qui correspond à une perte d'énergie absolue $\Delta E_{U^{91+}}$ de 218 MeV (0,92 MeV/u).

Bien qu'ils rencontrent une densité électronique réduite, les ions bien canalisés perdent donc plus de 90 % de la perte d'énergie des ions non canalisés à cause de leur état de charge

élevé. Le rapport des pertes d'énergie réduites $r_E = \frac{\Delta E_{U^{91+}}}{\Delta E_{rand}} \times \left(\frac{Q_{out}}{91} \right)^2$ (qui permet de

s'affranchir de la dépendance en Q^2 de la perte d'énergie) est proche de 0,6. Il est bien supérieur au rapport généralement mesuré, plus proche de 0,4 [Gemmell 1974]. Mais cette dernière valeur correspond à des ions hypercanalisés et faiblement chargés. Or, les ions uranium gelés, qui représentent plus de 25% du faisceau transmis ne sont pas hypercanalisés. Par ailleurs, la perte d'énergie d'ions très chargés n'est pas locale comme cela a été mis en évidence pour des ions Xe^{35+} de 27 MeV/u [L'Hoir *et al.* 1990] (cf. chapitre I.C.IV) et la réduction de la perte d'énergie de ces ions en condition de canalisation est donc moins forte que celle des ions légers.

La figure 54 présente les pertes d'énergie relative (en symboles pleins), en fonction de l'état de charge Q_{out} , des ions canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et dans les plans (110) et (111). Nous avons également défini deux pertes d'énergie réduites de la manière suivante :

$$\Delta \mathcal{E} = \Delta E \frac{Q_{out}^R}{Q^{*2}} \quad \text{équation 63}$$

où $\overline{Q^{*2}}$ est, suivant les cas, soit la moyenne quadratique $\langle Q^2 \rangle_{out}$ (Q_{out}) = $\sqrt{\frac{Q_{in}^2 + Q_{out}^2}{2}}$ des états de charge d'entrée et de sortie Q_{in} et Q_{out} , soit simplement le carré de l'état de charge Q_{out} . La perte d'énergie réduite avec $\overline{Q^{*2}}$ égale à la moyenne quadratique des états de charge d'entrée et de sortie est *a priori* plus réaliste pour les états de charge Q_{out} élevés alors que celle obtenue avec $\overline{Q^{*2}} = Q_{out}^2$ s'applique plutôt pour les ions moins bien canalisés qui atteignent rapidement dans le cristal leur état de charge de sortie.

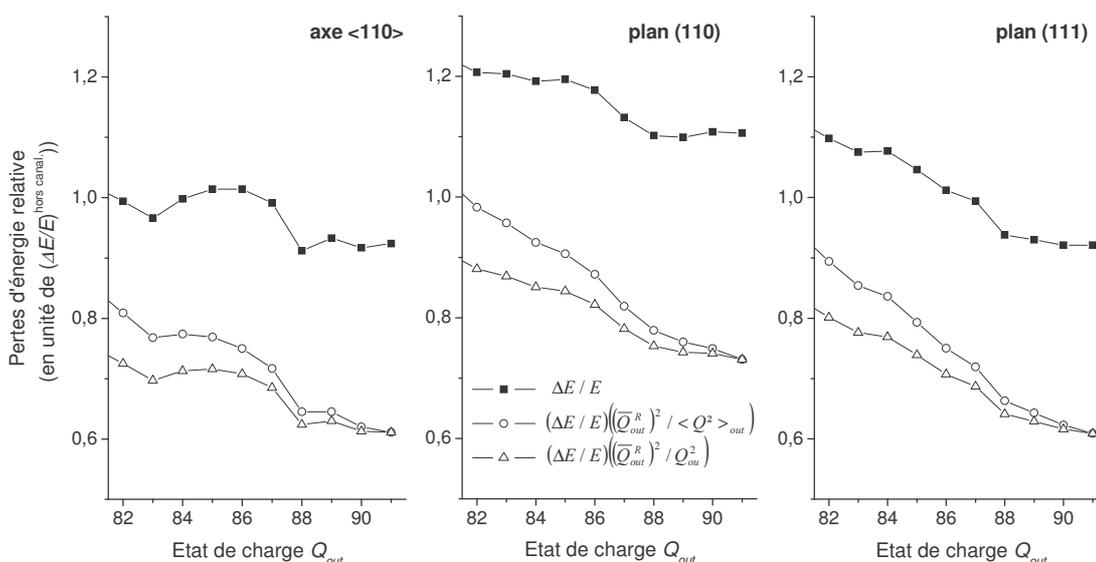


figure 54 : pertes d'énergie relatives, en fonction de l'état de charge Q_{out} des ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et dans les plans (110) et (111) du cristal de silicium de 11,7 μm (symboles pleins). Pertes d'énergie réduites définies par l'équation 63.

La caractéristique la plus frappante de la figure 54 est la perte d'énergie relativement élevée mesurée dans le plan (110) (également observable sur la figure 51 des distributions de positions relatives X sur le détecteur de particules). Elle est environ 20 % supérieure à celle subie par les ions dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et dans le plan (111) et ceci est difficilement explicable par une densité électronique rencontrée plus grande comme nous le verrons avec les simulations. Il est possible que cet effet soit dû à une imperfection de l'optique du faisceau

(une mauvaise focalisation du faisceau sur le détecteur de particules par exemple). Par ailleurs, il semble que dans l'axe, la perte d'énergie réduite n'augmente qu'à partir de $Q_{out}=87$, c'est-à-dire que les densités moyennes d'électrons rencontrées par les ions bien canalisés, qui font au plus trois captures, seraient très voisines.

2) Multiplicités d'électrons collectés par les détecteurs Si-in et Si-out

La perte d'énergie s'effectue en grande partie par l'ionisation des atomes cible le long de la trajectoire des ions. Les électrons secondaires émis à l'entrée et à la sortie du cristal sont collectés par les détecteurs en silicium et leurs multiplicités N_{Si-in} et N_{Si-out} sont d'autant plus grandes que la densité d'électrons rencontrés sur la profondeur d'échappement est élevée. Comme nous l'avons vu au chapitre III, la multiplicité N_{Si-in} correspond grossièrement à l'énergie transverse des ions à l'entrée du cristal alors que la multiplicité N_{Si-out} donne plutôt une information sur la perte d'énergie des ions.

(a) Sensibilité des mesures de multiplicité aux paramètres d'impact en entrée et en sortie du cristal

Les distributions de multiplicité N_{Si-in} et N_{Si-out} obtenues hors et en canalisation sont présentées sur la figure 55. Des problèmes d'électronique sont certainement responsables du mauvais fonctionnement du détecteur Si-in. Lors des acquisitions, le gain de ce détecteur était trop faible et un effet de seuil est observable en position axiale. On peut néanmoins s'intéresser qualitativement à son signal.

Tout d'abord, lorsqu'ils sont bien canalisés, les ions rencontrent de faibles densités d'électrons ; ils émettent par conséquent nettement moins d'électrons en entrée et en sortie du cristal qu'en orientation aléatoire.

On constate également que les ions mal canalisés présentent une multiplicité d'électrons en entrée supérieure à celle observée hors canalisation. Ceci est dû à leurs trajectoires proches des rangées atomiques en début de parcours, pendant lequel ils rencontrent une densité électronique élevée.

En revanche, en sortie, les ions mal canalisés présentent en moyenne une multiplicité N_{Si-out} inférieure à la multiplicité moyenne $\bar{N}_{Si-out}^{hors\ canal.}$ observée hors canalisation.

La plupart d'entre eux restent canalisés et relativement loin des rangées atomiques. Les multiplicités d'électrons supérieures à $\bar{N}_{Si-out}^{hors canal.}$ correspondent à des ions qui, sur la dernière fraction de leur parcours, rencontrent de fortes densités d'électrons en rasant les rangées.

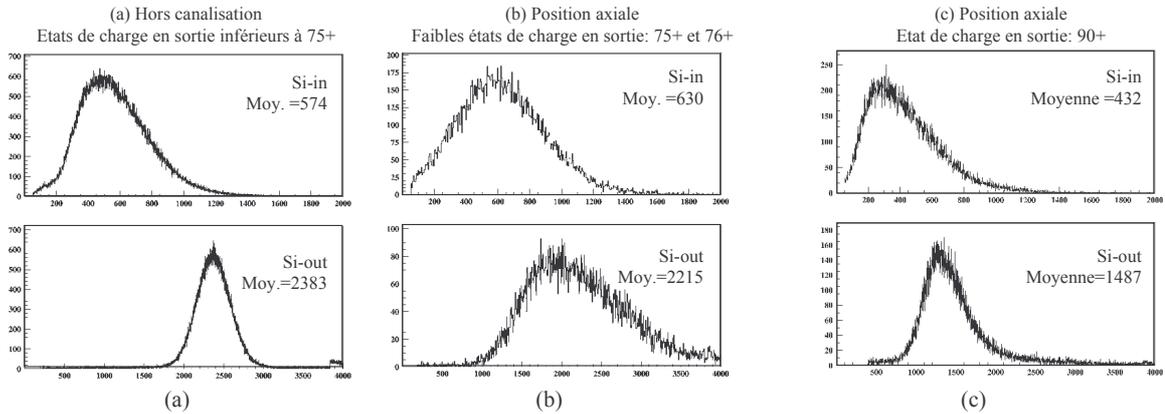


figure 55 : réponses des détecteurs Si-in et du Si-out pour un cristal non aligné (a) puis aligné suivant l'axe $\langle 110 \rangle$: distributions en coïncidence avec des ions faiblement chargés (b), avec les ions bien canalisés d'état de charge $Q_{out}=90$ (c).

(b) Perte d'énergie évaluée avec le détecteur Si-out

On définit pour les conditions de canalisation une multiplicité moyenne réduite d'électrons de sortie, \bar{n}_{Si-out} , qui permet de s'affranchir de la dépendance en Q^2 de la perte d'énergie (et donc de celle de la multiplicité N_{Si-out}) :

$$\bar{n}_{Si-out}(Q_{out}) = \frac{\bar{N}_{Si-out}}{\bar{N}_{Si-out}^{hors canal.}} \frac{Q_{out}^R}{\langle Q^2 \rangle} \quad \text{équation 64}$$

où $\langle Q^2 \rangle$ est la moyenne quadratique de l'état de charge des projectiles sur la profondeur d'échappement des électrons secondaires émis en sortie du cristal et Q_{out}^R est le carré de l'état de charge moyen mesuré hors canalisation. \bar{n}_{Si-out} est donc directement lié à la densité électronique moyenne rencontrée. Si l'on suppose que les ions canalisés ont pratiquement atteint leur état de charge de sortie sur la profondeur d'échappement des électrons, $\langle Q^2 \rangle \sim Q_{out}^2$. Hors canalisation, en revanche, les ions sont à l'équilibre de charge et $\langle Q^2 \rangle \sim 74^2$.

On constate tout d'abord sur la figure 56 que les multiplicités $\bar{n}_{Si-out}^{hors\ canal.}(Q_{out})$ ne sont pas tout à fait indépendantes de l'état de charge des ions transmis. L'état de charge moyen des ions, sur la profondeur d'échappement de sortie du cristal, doit donc dépendre, faiblement, de Q_{out} . Par ailleurs, la multiplicité réduite des ions les plus mal canalisés tend vers la multiplicité $\bar{n}_{Si-out}^{hors\ canal.}$ mesurée hors canalisation, autrement dit, la densité électronique moyenne rencontrée par les ions canalisés tend vers la densité moyenne d'électrons du cristal lorsque l'espace transverse accessible augmente. On remarque que le rapport des multiplicités $\bar{n}_{Si-out}(91)$ et $\bar{n}_{Si-out}^{hors\ canal.}$ d'environ 0,4 est sensiblement différent du rapport r_E de pertes d'énergie réduites. Ceci montre que la densité électronique moyenne rencontrée, la multiplicité d'électrons N_{Si-out} et la perte d'énergie sont liées mais non proportionnelles. La relation entre ces grandeurs a notamment été étudiée dans le cas d'ions Pb^{56+} de 29 MeV/u par Barrué *et al.* [Barrué *et al.* 2004].

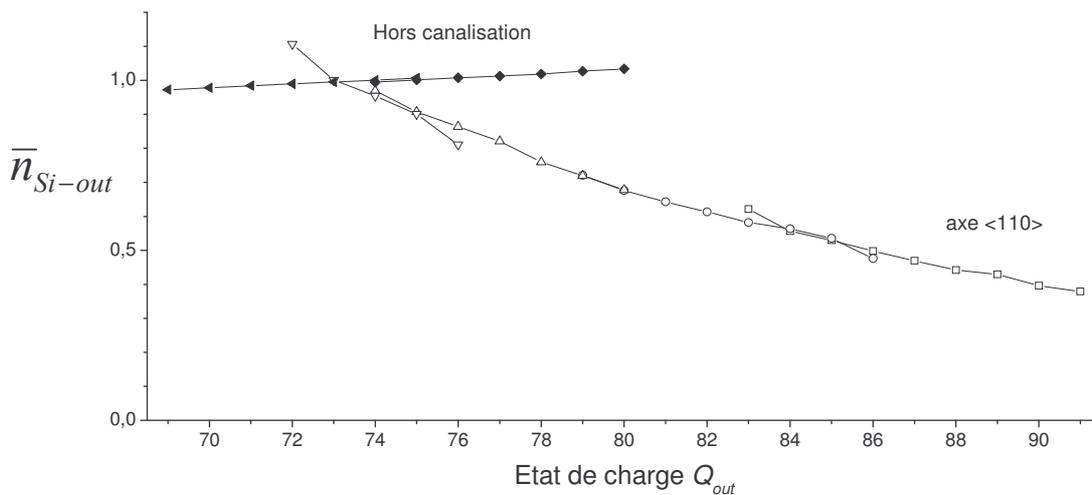


figure 56 : multiplicité réduite \bar{n}_{Si-out} d'électrons secondaires émis en sortie de cristal (en orientation aléatoire et en contion de canalisation axiale) en fonction de l'état de charge en sortie.

(c) Utilisation du détecteur Si-out pour différencier les états de charge

Le fait que la multiplicité N_{Si-out} d'électrons collectés en sortie du cristal soit liée à la perte d'énergie des ions peut être mis à profit pour différencier les états de charge.

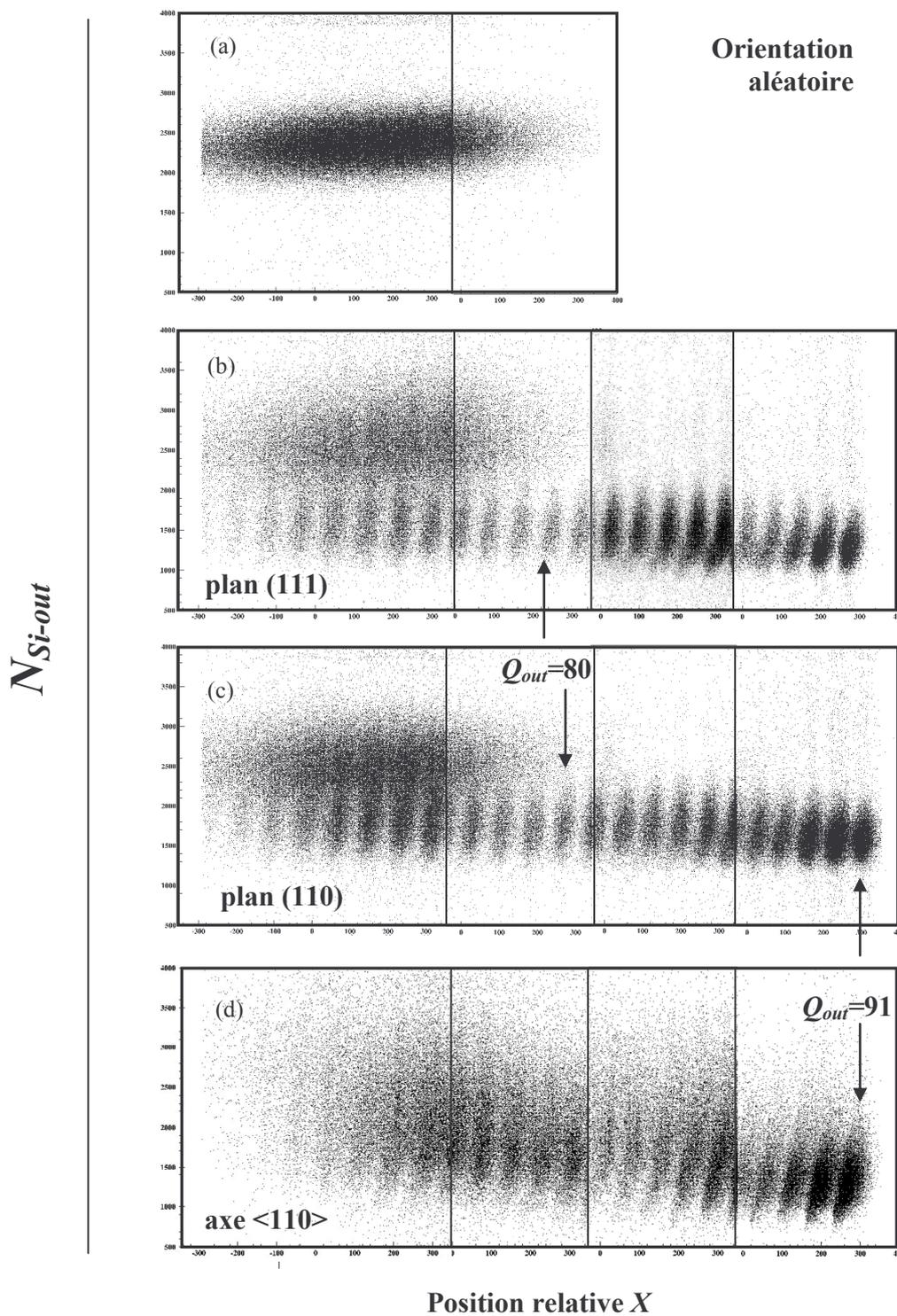


figure 57: diagrammes de multiplicités N_{Si-out} –position relative X sur le détecteur de particules des ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u, obtenus pour les différentes orientations du cristal de 11,7 μm . Les barres verticales délimitent les différentes acquisitions.

La figure 57 présente la multiplicité N_{Si-out} d'électrons émis en sortie du cristal en orientations aléatoire, axiale et planaire en fonction de la position relative X sur le détecteur de particules. Elle a été obtenue par juxtaposition des acquisitions effectuées avec des valeurs différentes de champ magnétique du spectromètre. Nous n'avons pas normalisé les différentes acquisitions pour que les figures correspondant aux fractions d'états de charge les plus faibles soient contrastées. On distingue bien l'ensemble des états de charge en condition de canalisation, ce qui n'est pas le cas en orientation aléatoire et on observe effectivement une corrélation entre la multiplicité N_{Si-out} et la position X des états de charge élevés. Les lignes obliques sur la figure 58(a) montrent la manière dont les états de charges les mieux canalisés de l'axe $\langle 110 \rangle$ ($Q_{out} \geq 84$) ont été sélectionnés. Les projections de ces sélections sur l'axe X donnent la distribution en énergie de chaque état de charge (figure 58(b)).

Les distributions de charge obtenues avec ces sélections N_{Si-out} -position relative X et celles déterminées avec des fenêtres en position sont très voisines : les fractions d'ions gelés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ ne diffèrent par exemple que de 4%. En revanche, les sélections N_{Si-out} -position relative X sont importantes pour l'étude des spectres de photons associés aux différents états de charge en sortie Q_{out} car une faible fraction d'états de charge adjacents $Q_{out} \pm 1$ peut avoir une influence non négligeable sur ces spectres.

La figure 58(c) présente les distributions de charge obtenues en sélectionnant des multiplicités d'électrons de sortie forte ($N_{Si-out} > 2000$) et faible ($N_{Si-out} < 900$) qui correspondent respectivement à de fortes et de faibles pertes d'énergie. On note $\overline{\Delta E}(91|N_{Si-out})$ la perte d'énergie des ions gelés conditionnée par la multiplicité N_{Si-out} . La

$$\text{différence de perte d'énergie relative} = \frac{\overline{\Delta E}(91|N_{Si-out} > 2000) - \overline{\Delta E}(91|N_{Si-out} < 900)}{\overline{\Delta E}(91)} = 40\%$$

donne une idée des différentes densités électroniques moyennes rencontrées par les ions gelés : on peut considérer que celle rencontrée par des ions hypercanalisés est d'environ 0,1 électron par \AA^3 . Si la perte d'énergie était purement locale, on pourrait en déduire que les ions gelés qui perdent le plus d'énergie rencontrent des densités électroniques moyennes proches de 0,15 électron par \AA^3 . Nous verrons dans la deuxième partie de ce chapitre, avec les simulations de distributions de perte d'énergie par état de charge Q_{out} que ces valeurs de

densités électroniques moyennes rencontrées sont vraisemblables bien que la perte d'énergie soit très délocalisée.

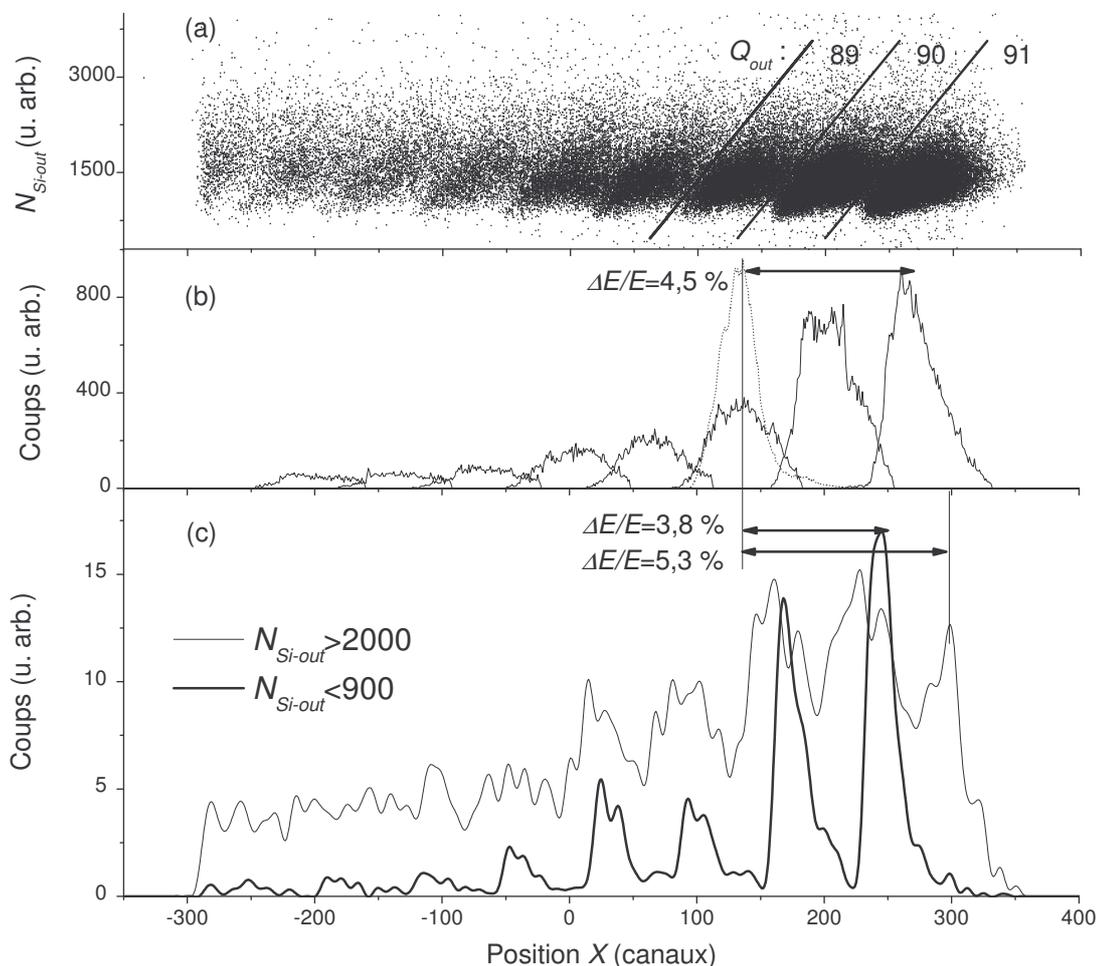


figure 58 : (a) Multiplicité d'électrons secondaires N_{Si-out} en fonction de la position X sur le détecteur à localisation dans l'axe $\langle 110 \rangle$ ($Q_{out}=84$ à 91). Les lignes obliques représentent les sélections des 3 états de charge de sortie $Q_{out}=91, 90, 89$. (b) Distributions de positions X du faisceau direct (en pointillés) et des différents états de charge sélectionnés sur le diagramme (a). (c) Distributions de charge conditionnées par des multiplicités $N_{Si-outs}$ inférieures à 900 et supérieures à 2000, respectivement.

Dans le cas de la sélection sur les multiplicités $N_{Si-out} < 900$, les états de charge sont complètement résolus. Les ions sont en effet pour la plupart bien canalisés et la densité réduite d'électrons rencontrés limite les fluctuations de perte d'énergie. Les fractions importantes d'états de charge 89, 88, 87 sont très probablement dues à la probabilité non négligeable de capture simple ou double dans les couches amorphes d'entrée et de sortie car

la probabilité de captures radiatives multiples est très faible et les ions très bien canalisés ont peu de chance d'effectuer des captures mécaniques dans le cristal.

3) Les deux populations de faibles états de charge obtenues en canalisation planaire

(a) *Présentation*

Deux populations distinctes apparaissent sur les diagrammes (b) et (c) de la figure 57 obtenus en condition de canalisation planaire. La distribution de multiplicité N_{Si-out} des ions les plus rhabillés, correspondant aux états de charge obtenus hors canalisation, présente en effet deux composantes dans les deux plans étudiés. Celle obtenue dans le plan (111) pour les états de charge $Q_{out} < 76$ (détectés lors de l'acquisition correspondant à la gauche de la figure 57(b)) est présenté sur la figure 59(a) avec les distributions mesurées hors canalisation et en coïncidence avec les états de charge $Q_{out} > 82$. On s'intéressera surtout au plan (111) pour lequel la séparation entre ces deux populations est nette.

- La première composante, associée aux multiplicités N_{Si-out} inférieures à 2000 correspond aux projectiles canalisés. Ces projectiles entrent suffisamment près des plans pour capturer à peu près le même nombre d'électrons qu'hors canalisation et suffisamment loin des plans pour rester canalisés tout au long de la traversée du cristal. Les simulations présentées dans la deuxième partie de ce chapitre montrent que leur distance minimale d'approche des plans atomiques r_{min}^e à l'entrée du cristal est comprise environ entre 0,1 Å et 0,3 Å. Leur multiplicité moyenne $\bar{N}_{Si-out}^{canal} \sim 1600$ dans le plan (111) est légèrement supérieure à celle des projectiles les mieux canalisés ($\bar{N}_{Si-out}^{Q>82} \sim 1300$), dont l'énergie transverse est très faible, tout en étant nettement inférieure à $\bar{N}_{Si-out}^{hors canal.} \sim 2400$ (figure 59(a)).
- La seconde composante, qui représente 23% du faisceau dans le plan (110) et 29% dans le plan (111), correspond aux ions non canalisés dès l'entrée du cristal ou décanalisés. Sa distribution de multiplicité N_{Si-out} en fonction de la position relative X sur le détecteur de particules (figure 57) ressemble

à celle de la distribution mesurée hors canalisation ; en particulier, les états de charge ne peuvent pas être distingués sur ces distributions. Les ions non canalisés en sortie de cristal entrent dans le cristal avec des distances minimales d'approche des plans r_{min} inférieures typiquement à $0,1 \text{ \AA}$. La multiplicité moyenne $\overline{N}_{Si-out}^{non\ canal.}$ qui leur est associée est légèrement supérieure à $\overline{N}_{Si-out}^{hors\ canal.}$ car les ions décanalisés peuvent raser les plans en sortie du cristal et émettre plus d'électrons qu'en orientation aléatoire. Cette fraction importante d'ions non canalisés en sortie du cristal n'existe pas en canalisation axiale pour deux raisons : la fraction des ions entrant près des rangées avec une distance $r_{min} < 0,25 \text{ \AA}$ est beaucoup plus faible que dans les plans et la probabilité de décanalisation, pour un même r_{min} , est plus forte dans les plans que dans l'axe $\langle 110 \rangle$ (car le gradient du potentiel continu de l'axe est nettement supérieur à celui des plans).

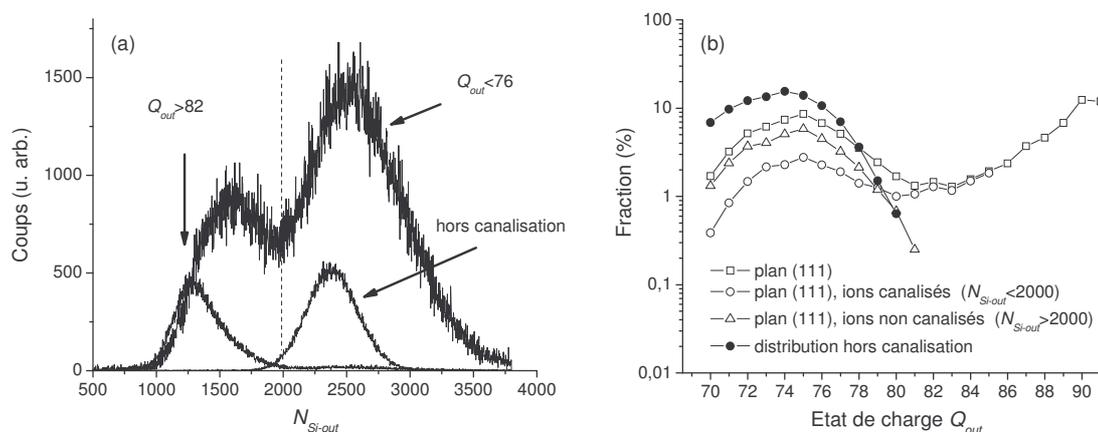


figure 59 : (a) distributions de multiplicité N_{Si-out} des ions qui ressortent du plan (111) avec des états de charge $Q_{out} > 82$ et $Q_{out} < 76$ (les états de charge $Q_{out} < 76$ sont ceux détectés lors de l'acquisition située à gauche de la figure 57(b)). (b) distributions de charge dans le plan (111) conditionnées par la multiplicité N_{Si-out} .

Les distributions d'états de charge associées à ces deux composantes sont présentées sur la figure 59(b) avec la distribution mesurée hors canalisation. La distribution de charge des ions non canalisés est très proche de celle obtenue hors canalisation. L'unité de décalage entre les états de charge les plus probables est peut-être due à l'incertitude sur l'identification des états de charge de la composante non canalisée : les ions qui rasant les

plans subissent une forte perte d'énergie qui pourrait décaler la distribution en rigidité $B\rho$ (où ρ est le rayon de courbure de la trajectoire d'un ion dévié par le champ magnétique B du spectromètre) de l'équivalent d'un état de charge. Dans ce cas, leur perte d'énergie serait supérieure de 40 % à celle mesurée en orientation aléatoire ! La similitude entre la distribution des ions non canalisés et celle mesurée en orientation aléatoire s'explique par la rapidité avec laquelle l'état de charge à l'équilibre est atteint hors canalisation. La distribution des ions canalisés a la même allure que la distribution de charge obtenue dans l'axe. Cependant, on constate que l'état de charge le plus probable des ions mal canalisés n'est décalé que d'un état de charge par rapport à celui de la distribution mesurée hors canalisation. L'effet de superdensité discuté à propos de la distribution de charge axiale est en effet beaucoup plus faible dans les plans car leur densité d'atomes est plus petite que celle des rangées atomiques de l'axe. Les électrons capturés sur les couches externes du projectile ont donc plus de chance d'être stabilisés dans les couches internes avant les collisions suivantes.

(b) *Multiplicités N_{Si-in} d'électrons collectés à l'entrée du cristal*

La distance minimale d'approche r_{min} est en grande partie déterminée par la position d'entrée dans le cristal dont dépend beaucoup la multiplicité N_{Si-in} d'électrons collectés à l'entrée du cristal. Les distributions de multiplicité N_{Si-in} correspondant aux ions d'état de charge $Q_{out} < 76$, canalisés et non canalisés dans le plan (111) en sortie du cristal sont présentées sur la figure 60 (le gain de l'amplificateur est supérieur à celui utilisé lors des acquisitions décrites dans la figure 55). Malgré le mauvais fonctionnement du détecteur Si-in, on constate que les ions non canalisés ont une multiplicité moyenne $\bar{N}_{Si-in}^{non\ canal.}$ très supérieure à la multiplicité moyenne $\bar{N}_{Si-in}^{hors\ canal.} \sim 2500$ mesurée hors canalisation. La densité électronique qu'ils rencontrent sur la première centaine d'angströms du cristal est en effet très élevée puisque ces ions entrent en rasant les plans.

La fraction des ions d'états de charge de sortie $Q_{out} < 76$ qui reste canalisée présente une distribution de multiplicités $N_{Si-in}^{canal.}$ qui se rapproche plutôt de celle observée en orientation aléatoire. Les ions, en rasant les rangées d'atomes à des distances comprises entre environ 0,1 et 0,3 Å rencontrent de fortes densités électroniques et émettent des quantités d'électrons secondaires comparables à celles observées en orientation aléatoire où

les ions traversent les rangées atomiques. Une partie des ions canalisés présente des multiplicités plus faibles, qui se rapprochent de celles des ions bien canalisés ($Q_{out}=90$). Ces ions doivent probablement entrer dans le cristal un peu plus loin des rangées, avec une énergie cinétique transverse importante.

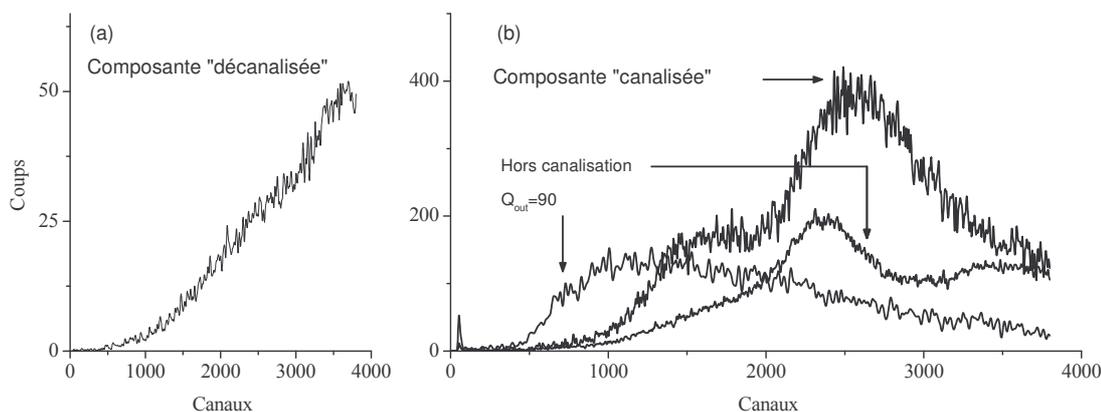


figure 60 : plan (111) (a) distribution de multiplicités N_{Si-in} associées aux ions non canalisés ($N_{Si-out}>2000$) (b) distributions de multiplicités N_{Si-in} associées aux ions canalisés ($Q_{out}<76$), aux ions n'ayant capturé qu'un électron ($Q_{out}=90$) et distribution obtenue hors canalisation.

IV. Spectres de raies X

1) Spectres en orientation aléatoire et en canalisation axiale

Les spectres de raies X détectées par les diodes Germanium, à 90° de la direction du faisceau dans le référentiel du laboratoire, ont été enregistrés en orientation aléatoire et en canalisation, selon l'axe $\langle 110 \rangle$ et le plan (110). On observe essentiellement sur ces spectres X les photons correspondant au remplissage des couches K et L du projectile (transitions K et L, REC-K et REC-L). En orientation aléatoire, l'équilibre de charge est atteint rapidement dans la cible, les ions subissent un grand nombre de processus de capture, d'ionisation, d'excitation et de désexcitation, et l'état de charge de sortie Q_{out} est fixé dans la toute dernière partie de la traversée de la cible (de l'ordre de la centaine d'angströms d'épaisseur) ou même éventuellement à l'extérieur de la cible, dans le cas d'auto-ionisation. Comme l'état de charge à l'équilibre correspond à une couche L pleine, le spectre X obtenu en orientation aléatoire, et présenté sur la figure 61(a), ne dépend pas de l'état de charge des ions transmis. En revanche, en condition de canalisation axiale, les spectres X dépendent fortement des états de charge Q_{out} détectés en coïncidence. Ceci est

Chapitre IV

mis en évidence sur les figure 61(b), (c) et (d) : la figure 61(b) correspond au domaine de charges $Q_{out}=76$ à 80 atteint hors canalisation, la figure 61(c) présente le spectre associé aux ions n'ayant subi qu'une capture ($Q_{out}=90$) et la figure 61(d) est le spectre obtenu sans sélection de charge.

Les détecteurs Germanium nous permettent essentiellement d'observer le remplissage des couches K et L de l'uranium, illustré dans le cas d'une capture unique par la figure 62 (niveaux atomiques de l' U^{90+} héliumoïde). Ce remplissage s'effectue :

- soit directement, par captures radiatives en couches K et L dans des états plutôt de faible moment angulaire ;
- soit indirectement, par captures mécaniques en couches $n_f > 3$ et dans des états de moments angulaires élevés, qui sont suivies de désexcitations radiatives en typiquement 10^{-16} s.

Ces désexcitations s'effectuent majoritairement par cascades radiatives mais on observe également des raies de désexcitation Lyman ou Balmer plus directes entre les couches $n_f=4, 5, 6$ et les couches $n_f=1$ et 2. Les différents sous-niveaux atomiques qui interviennent dans ces désexcitations ne peuvent être distingués sur nos spectres de raies X. Les groupes de sous-niveaux observés sont représentés en segments épais sur la figure 62 : deux sous-niveaux pour les couches $n_f=2$ et 3 (L_1/L_2 et L_3 pour $n_f=2$, $M_1/M_2/M_3$ et M_4/M_5 pour $n_f=3$), et un seul niveau pour les couches supérieures. L'énergie de liaison moyenne E_L de ces sous-niveaux a été déterminée à partir de l'énergie des raies de désexcitations observées (cf. paragraphe suivant). Les énergies de liaison des couches K et L sont des valeurs théoriques calculées par Drake [Drake 1988]. Dans tous les cas, la lacune K des projectiles incidents (U^{91+} hydrogénoïdes) est remplie une seule fois, soit par un REC-K, soit par la désexcitation d'un électron, capturé sur une couche supérieure, qui s'accompagne d'une émission Lyman (raies $K_{\alpha\beta\delta\dots}$). La désexcitation Auger-K est en effet négligeable pour les ions très chargés de Z élevé et la probabilité d'excitation ou de perte d'un électron de la couche K est inférieure au pourcent ($\sigma_{NII}(n=1) \sim 3,3 \cdot 10^{-23} \text{ cm}^2$ et $\sigma_{NIE}(n=1) \sim 1,8 \cdot 10^{-22} \text{ cm}^2$ pour des ions U^{91+} de 20 MeV/u).

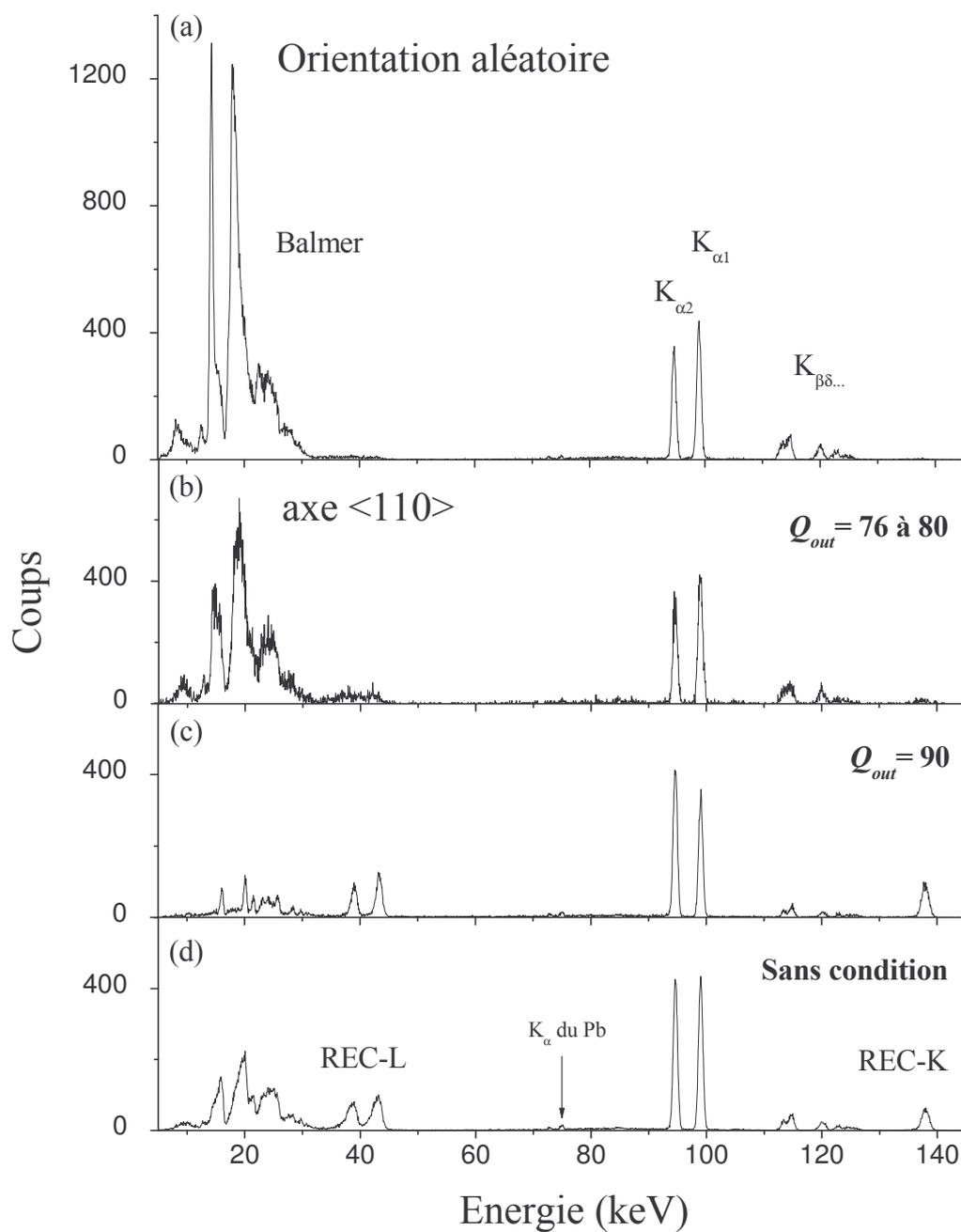


figure 61 : spectres de raies X détectés à 90° , dans le référentiel du laboratoire. (a) orientation aléatoire (b)-(d) orientation axiale en coïncidence avec divers états de charge. Tous les spectres ont été normalisés au même nombre d'ions transmis.

Nous avons utilisé cette caractéristique pour normaliser les spectres de la figure 61 au même nombre d'ions transmis.

Le spectre obtenu en orientation aléatoire met tout d'abord en évidence la domination complète du processus de capture mécanique dont la section efficace est deux à trois ordres de grandeur supérieure à celle du REC. On constate que les REC-K et L ont une faible probabilité de se produire avant le remplissage très rapide des couches $n_f=1$ et 2 du projectile par la capture mécanique. Les raies K correspondent à la désexcitation radiative de la première capture MEC. Les raies L proviennent de la désexcitation après les captures suivantes sur la couche L mais aussi de l'excitation ou de l'ionisation de cette couche par collisions avec les noyaux de la cible :

- Pendant le remplissage séquentiel très rapide de la couche L, la charge Q du projectile diminue et les électrons capturés écrantent le noyau du projectile. Ceci entraîne une réduction en valeur absolue de l'énergie de liaison des niveaux atomiques et un élargissement important des raies L qui forment la base du spectre de raies Balmer.
- Ensuite les électrons de la couche L ont de fortes chances d'être perdus ou excités et le remplissage des lacunes créées se fait alors dans une configuration électronique stable, ce qui explique l'étroitesse des raies associées.

En condition de canalisation axiale, on remarque que la base du spectre des Balmer correspondant aux ions mal canalisés, dont les états de charge de sortie sont ceux observés hors canalisation (figure 61 (b)), est tout à fait similaire à celle de la figure 61(a). Dans les deux cas, en effet, les états de charge sélectionnés correspondent à une couche L pleine et le nombre de transitions Balmer après capture électronique doit donc être le même.

En revanche les composantes étroites des raies Balmer n'apparaissent pas sur le spectre de la figure 61(b). Le transfert d'énergie pour exciter un électron de la couche L est en effet élevé, de l'ordre de 25 keV pour une excitation vers la couche M. Un tel transfert d'énergie ne peut avoir lieu lors d'une collision avec un électron. Il s'effectue lors d'une collision avec un noyau à des distances aux rangées atomiques inférieures à l'amplitude des

vibrations thermiques des atomes cible. Les ions canalisés, même de forte énergie transverse, n'ont pratiquement pas accès à ce genre de collision.

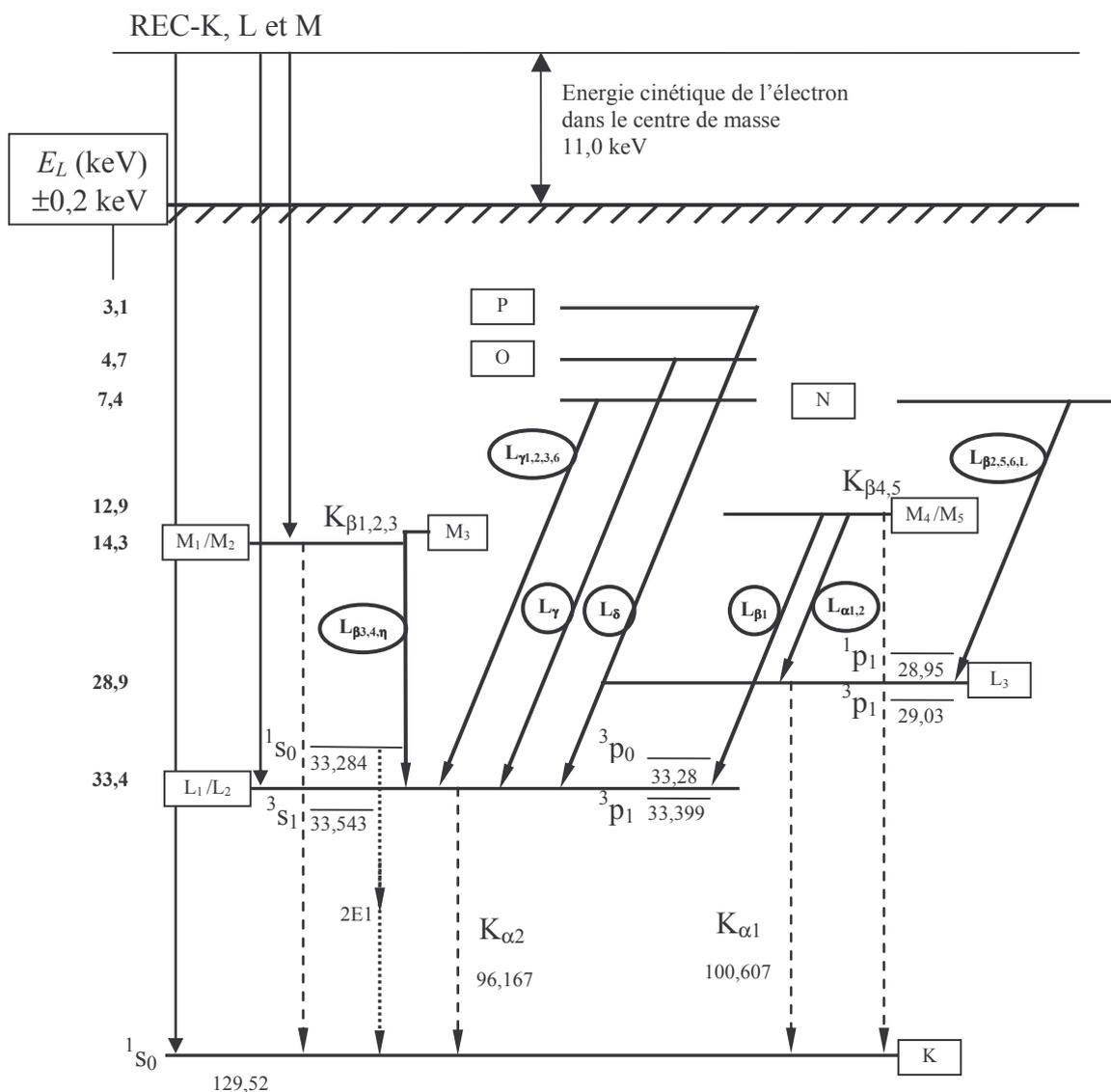


figure 62 : schéma de désexcitations Lyman et Balmer, et de captures radiatives (dans le référentiel du projectile) d'un ion U^{90+} héliumöide (cas d'une capture unique). Les énergies de liaison E_L sont obtenues à partir de l'énergie de liaison théorique de l'état fondamental [Drake 1988] et des énergies de désexcitations Lyman et Balmer mesurées.

La figure 63 présente les spectres mesurés en orientation planaire et axiale associés à des sélections de fortes multiplicités N_{Si-out} (en ligne fines) et de faibles multiplicités N_{Si-out} (en lignes épaisses) définies sur la figure 63(c). Les spectres des ions canalisés, de faibles multiplicités N_{Si-out} , sont pratiquement identiques dans l'axe et dans le plan ; les raies Balmer correspondent au remplissage séquentiel de la couche L. En revanche, l'amplitude de ces composantes étroites est plus faible sur le spectre axial de fortes multiplicités N_{Si-out}

que sur le spectre du plan (110), pratiquement identique à celui mesuré en orientation aléatoire : dans le spectre axial, la grande majorité des ions associés à de fortes multiplicités N_{Si-out} sont canalisés. L'effet de superdensité, dont nous avons parlé à propos des distributions de charge, peut également expliquer en partie l'absence de composantes étroites de raies Balmer sur le spectre associé aux ions mal canalisés de la figure 61(b) ; il pourrait en effet empêcher les électrons capturés sur les couches périphériques du projectile de se stabiliser, et par conséquent atténuer fortement les composantes étroites de raies Balmer en ralentissant le remplissage de la couche L.

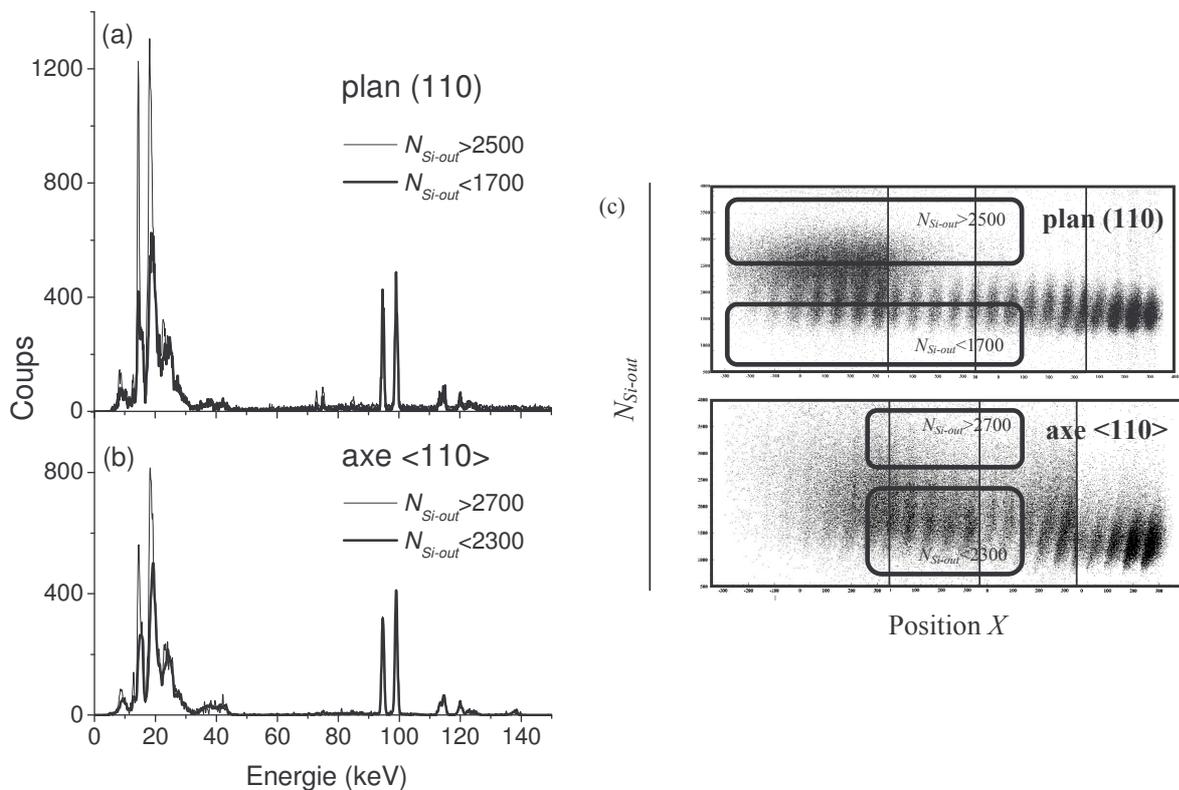


figure 63 : spectres de raies X détectés à 90°, dans le référentiel du laboratoire des ions en orientation planaire (110) (a) et axiale (b) orientation planaire (110) correspondant aux sélections N_{Si-out} -position X définies sur la figure (c). Tous les spectres ont été normalisés au même nombre d'ions transmis.

D'autre part, plus l'énergie transverse E_{\perp} des ions est faible, plus la probabilité de MEC diminue et donc plus la probabilité de REC par événement de capture devient importante. L'augmentation de la probabilité de REC se manifeste notamment sur la figure 61(c) par une inversion des amplitudes relatives des raies $K_{\alpha 1}$ et $K_{\alpha 2}$. Ceci est dû au fait que le REC s'effectue préférentiellement sur des états de faibles moments angulaires alors que

les cascades radiatives consécutives au MEC peuplent de préférence les états de moment angulaire élevé.

2) Etalonnage en énergie et efficacité des détecteurs

(a) Etalonnage

Une source d'américium (^{241}Am), émettant des photons de 13,9 keV, 17,8 keV, 26,3 keV, 33,2 keV, 43,4 keV et 59,5 keV, nous a permis d'établir la courbe d'étalonnage en énergie des détecteurs germanium placés à 90° de l'axe du faisceau :

$$E(\text{keV}) = aC(\text{canaux}) + b \quad \text{équation 65}$$

où C est l'amplitude du signal du détecteur (mis en forme par le préamplificateur et l'amplificateur) codé en canaux par un ADC.

Cependant, l'électronique d'acquisition a certainement dû légèrement dériver entre l'acquisition du spectre de l'américium effectuée en début d'expérience et les mesures de raies X, car la précision de cet étalonnage a été moins bonne que prévue. Cette précision était en particulier insuffisante pour mesurer les décalages ΔE_{REC} , dus à l'effet de sillage, entre les énergies des pics de REC-K, REC-L₁ et REC-L₂ attendues et mesurées (ces décalages seraient respectivement de 180, 40 et 10 eV avec cet étalonnage alors que d'après l'équation 40, ils doivent être indépendants de la couche sur laquelle a lieu la capture).

Le détecteur collimaté (Ge-Lyon) a fait l'objet d'un étalonnage plus précis. Nous avons tout d'abord utilisé les deux raies de désexcitation K_α du plomb qui apparaissent sur les spectres de ce détecteur et qui proviennent du collimateur en plomb. Ces raies, visibles sur la figure 61(d) par exemple, donnent deux points d'étalonnage à 72,8 keV et 75,0 keV. Nous avons ensuite imposé à la droite d'étalonnage de vérifier la condition suivante :

$$E_{REC-K} = E_{REC-L_i} + E_{K_\alpha} \quad \text{équation 66}$$

où $i=1,2$. Les positions en canaux des pics de REC-K, -L et K_α ont été mesurées sur le spectre associé à la capture d'un seul électron.

Chapitre IV

L'équation 66 revient à relier les coefficients a et b de la droite d'étalonnage. La source d'incertitude principale dans l'équation 66 provient de l'incertitude sur les sous-niveaux de la couche L mis en jeu lors d'un REC-L et d'une transition K_α consécutive à un MEC. Il semble raisonnable de considérer que les niveaux moyens d'énergie de la couche L qui interviennent lors d'un REC-L et des désexcitations K_α sont les mêmes à ± 30 eV près.

On obtient finalement :

$$a=0,06508 \pm 0,00001 \text{ (keV/canal) et } b=-0,988 \pm 0,012 \text{ keV.}$$

Avec cette calibration, les décalages, dus à l'effet de sillage, des énergies mesurées des pics REC sont pratiquement identiques (cf. chapitre V).

(b) Efficacité de détection

L'efficacité de détection des détecteurs de raies X en condition d'expérience semble ne pas être tout à fait la même que celle que nous avons déterminée avec une source radioactive de ^{241}Am . Nous avons donc procédé à une auto-calibration de l'efficacité des détecteurs à l'énergie des photons de REC-K, de REC-L et des transitions L à partir du spectre X associé aux ions d'état de charge $Q_{out}=90$.

(i) Efficacités aux énergies des photons de REC-K et de REC-L

Les efficacités intrinsèques e_{REC-K} et e_{REC-L} aux énergies des photons émis lors des captures radiatives en couches K et L ($E_{REC-K} \sim 140$ keV, $E_{REC-L} \sim 40$ keV) ont été évaluées par l'intermédiaire des taux de désexcitation K_α . Si l'on note $C_{REC}^{K_\alpha}$ la contribution du REC aux raies de désexcitation K_α , et que l'on néglige les captures radiatives sur les couches $n > 3$, les rapports $R_{K/LM}^{\text{exp}}$ et $R_{K/LM}^{\text{théo}}$ des taux de REC-K et de REC-L,-M expérimentaux et théoriques sont données par les expressions suivantes :

$$R_{K/LM}^{\text{exp}} = \frac{A(\text{REC} - K)}{C_{REC-L,M}^{K_\alpha} \times F_{\text{distrib}} \frac{A(K_\alpha)}{e_{K_\alpha}}} \quad \text{équation 67}$$

$$R_{K/LM}^{théo} = \frac{\sigma_{REC-K}}{\sigma_{REC-L,M}} \quad \text{équation 68}$$

où $A(i)$ est l'intégrale du pic associé au processus i et $F_{distrib} \sim 1,5$ est le facteur de normalisation du taux de REC observé qui prend en compte la distribution non isotrope des photons de REC (cf. chapitre I). L'efficacité $e_{K\alpha}$ du détecteur à l'énergie des K_α est considérée comme égale à 1 ($E_{K\alpha} \sim 100$ keV). La distribution des K_α est isotrope dans le référentiel du projectile et donc dans celui du laboratoire, la vitesse des projectiles étant faiblement relativiste. La manière dont nous avons évalué la contribution $C_{REC}^{K\alpha} \sim 0,66$ du REC aux K_α est décrite au paragraphe suivant.

L'efficacité e_{REC-K} du détecteur est donnée par le rapport suivant :

$$e_{REC-K} = \frac{R_{K/LM}^{exp}}{R_{K/LM}^{théo}} \quad \text{équation 69}$$

L'incertitude due à l'hypothèse que seuls les REC-L et -M contribuent aux K_α est d'environ 5%. Les efficacités e_{REC-K} obtenues pour les détecteurs Ge-Lyon et Ge-gsi sont respectivement de 0,29 et 0,36, en très bon accord avec l'efficacité intrinsèque évaluée par le constructeur.

On en déduit l'efficacité e_{REC-L} par la relation suivante :

$$e_{REC-L} = \frac{A(REC-L)}{A(REC-K) \frac{\sigma_{REC-L}}{e_{REC-K} \sigma_{REC-K}}} \quad \text{équation 70}$$

Les efficacités e_{REC-L} obtenues pour les détecteurs Ge-Lyon et Ge-gsi sont respectivement de 0,77 et 0,70. Elles sont sensiblement inférieures à l'efficacité attendue autour de 40 keV, plus proche de 1.

(ii) Efficacités aux énergies des photons de raies L

Nous avons déterminé l'efficacité moyenne \bar{e}_{Balmer} du détecteur à l'énergie des raies L par la relation suivante :

$$\text{Pour } Q_{out}, P(MEC) = P(K_{\beta}) + \frac{P(E < 35 keV)}{\bar{e}_{Balmer}} - 2P(REC - M, N, O) \quad \text{équation 71}$$

où $P(E^{photons} < 35 keV)$ est la probabilité de détecter un photon d'énergie inférieure à 35 keV qui correspond soit à une raie L consécutive à un MEC, soit à une capture radiative en couche M, N, O, elle-même suivie dans la plupart des cas par une raie L. On suppose dans cette relation que la capture mécanique des ions émergeant du cristal avec l'état de charge $Q_{out}=90$ est suivie soit par une raie $K_{\beta\delta\gamma\dots}$, soit par des raies L et K_{α} .

La probabilité $P(REC-L, M, O)$ (de 0,17 environ) est évaluée à partir de la probabilité de REC-L et des sections efficaces théoriques de Stobbe. La probabilité $P(MEC)\sim 0,3$ est déterminée au paragraphe A.IV.4). On obtient une valeur d'efficacité \bar{e}_{Balmer} de $0,8 \pm 0,2$.

3) Identification des raies L

La figure 64 présente un « zoom » sur les raies L et K du spectre X correspondant à une capture unique ($Q_{out}=90$, projectile héliumoïde). On distingue nettement les différentes raies de désexcitation provenant des états excités des couches $n_f \leq 6$.

Pour identifier l'ensemble des raies Balmer observées, nous avons utilisé la relation qui relie les énergies de désexcitation Balmer (E_{Balmer}) et Lyman ($E(K_{\beta,\gamma,\delta\dots})$) :

$$E_{Balmer} = E(K_{\beta,\gamma,\delta\dots}) - E(K_{\alpha 1}, K_{\alpha 2}) \quad \text{équation 72}$$

L'offset de la calibration du détecteur n'intervient pas dans cette relation. L'incertitude sur la détermination des énergies E_{Balmer} est due principalement au fait que les désexcitations Balmer et Lyman ne mettent pas en jeu tout à fait les mêmes sous-niveaux atomiques. Elle est de l'ordre de 100 à 200 eV. Les raies ont pu être identifiées sans ambiguïté. Les énergies mesurées sur le spectre de la figure 64 et déterminées par l'équation 72 correspondent à ± 200 eV près :

$L_{\alpha 1,2}$: $M_4/M_5 \rightarrow L_3$ à 16,05 keV

$L_{\beta 1}$: $M_4/M_5 \rightarrow L_1/L_2$ à 20,08 keV

$L_{\beta 2,5,6,L}$: $N \rightarrow L_3$ à 21,50 keV

$L_{\gamma 1,2,3,6}$: N \rightarrow L₁/L₂ à 25,73 keV

L_{γ} : O \rightarrow L₁/L₂ à 28,30 keV

L_{δ} : P \rightarrow L₁/L₂ à 29,74 keV

La raie $L_{\beta 3,4,\eta}$, beaucoup moins intense, serait située à 18,82 keV.

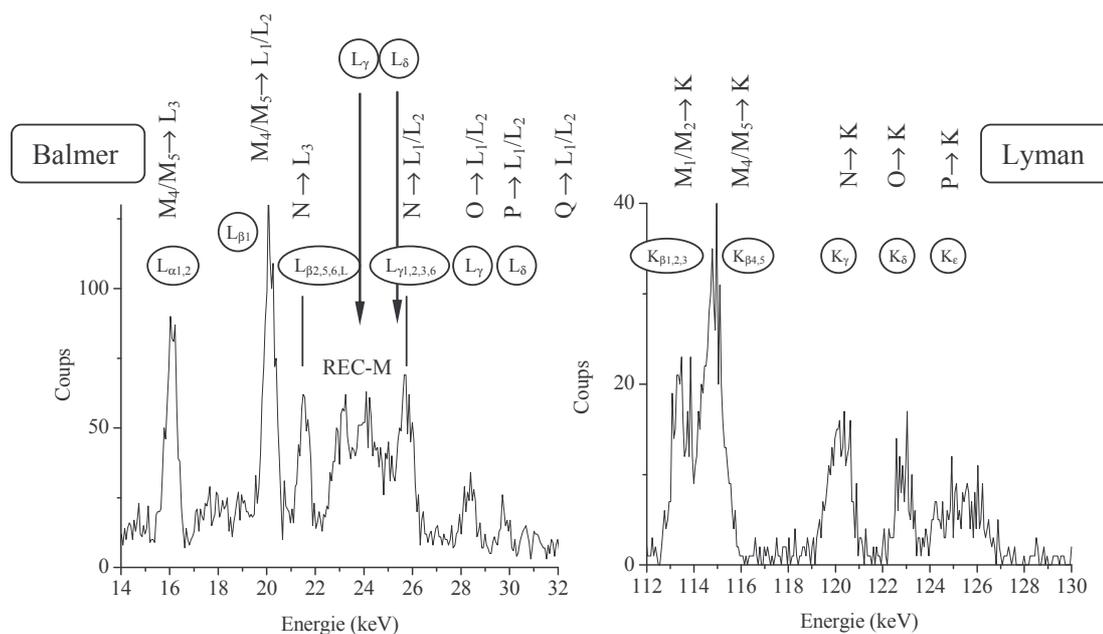


figure 64 : spectres de raies Balmer et Lyman (sans les K_{α}) de l'uranium héliumöide ($Q_{out}=90$).

L'énergie des photons de REC-M est donnée par la relation $E_{REC-M}=E_{REC-K}-E(K_{\beta})$. Les énergies obtenues $E_{REC-M1}\sim 23,1$ keV et $E_{REC-M2}\sim 24,5$ keV correspondent, à 0,1 keV près, à la position des deux pics situés entre les raies $L_{\beta 2,5,6,L}$ et $L_{\gamma 1,2,3,6}$. Cependant deux raies Balmer moins intenses qui n'apparaissent pas distinctement sur le spectre se trouvent dans cette gamme d'énergie :

L_{γ} : O \rightarrow L₃ à 23,86 keV

L_{δ} : P \rightarrow L₃ à 25,42 keV

Ce recouvrement de raies Balmer avec les pics de REC-M implique que des captures d'électron résonnantes RTE-LMO (excitation LM accompagnée d'une capture en

couche O) doivent se produire. Mais hors canalisation, les sections efficaces de RTE sont petites devant celles du MEC et en canalisation ce processus ne doit intervenir pratiquement que sur des ions mal canalisés ; les ions canalisés ont en effet une couche L pratiquement vide et le RTE est donc très peu probable.

On obtient enfin des énergies de liaison moyennes E_L (de sous-niveaux atomiques non résolus) de l'uranium héliumöide à partir de l'énergie de liaison théorique de l'état fondamental et des énergies mesurées de désexcitation Lyman et Balmer, corrigées de l'effet Doppler. Ces énergies de liaison, déterminées à $\pm 0,2$ keV près, sont présentées sur la figure 62.

4) Probabilité de capture mécanique des ions n'ayant fait qu'une capture : $P(\text{MEC}|Q_{\text{out}}=90)$

La figure 65 présente les spectres de raies Lyman K_β , K_γ , K_δ ...obtenus en orientation aléatoire et en coïncidence avec l'état de charge $Q_{\text{out}}=90$ en condition de canalisation suivant l'axe $\langle 110 \rangle$. Les spectres sont normalisés au nombre de K_β , K_γ , K_δ ... détectés hors canalisation. Ils correspondent à la désexcitation vers l'état fondamental, des états excités des couches $n \geq 3$ lors de la première capture. On constate que les niveaux d'énergie des états excités des ions hors canalisation ne sont pas tout à fait les mêmes que ceux des ions bien canalisés dans l'axe : le spectre des ions d'état de charge $Q_{\text{out}}=90$ présente des raies K_β , K_γ , K_δ décalées entre 100 et 200 eV vers les hautes énergies et des raies K de couches $n \geq 7$ qui n'existent pas hors canalisation. Ces différences sont expliquées de la manière suivante : tout d'abord, un électron capturé par MEC sur une couche périphérique d'un ion d'état de charge $Q_{\text{out}}=90$ a une probabilité relativement grande de ne pas être perdu par la suite alors qu'en orientation aléatoire, la probabilité de ioniser le projectile par collisions avec les noyaux cible est très élevée. Ensuite, les nombreux électrons capturés par MEC hors canalisation dans des états excités écrantent le noyau du projectile et diminuent l'énergie des raies K, ce qui décale le spectre mesuré en orientation aléatoire vers les basses énergies.

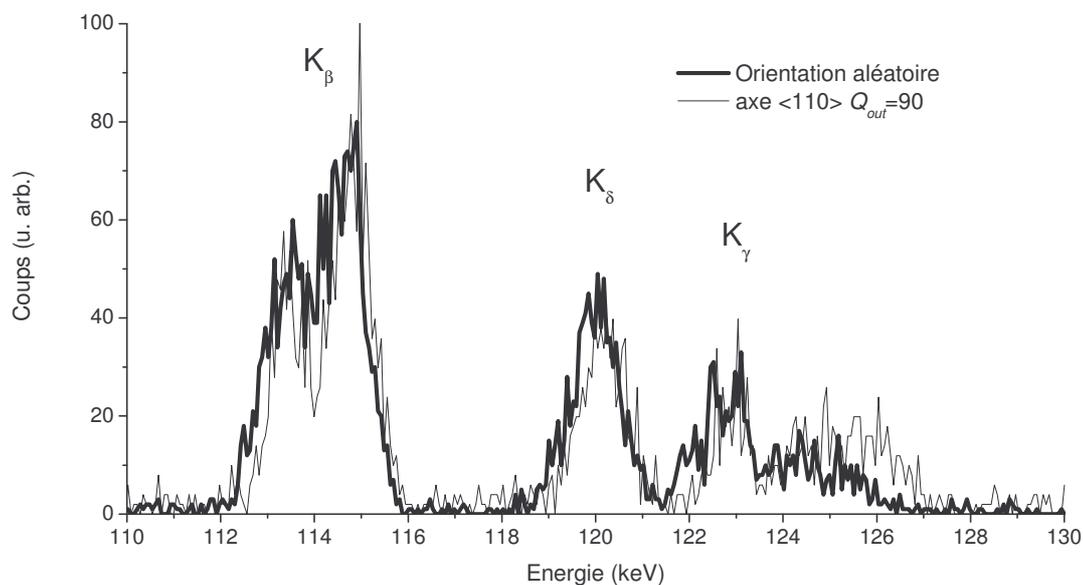


figure 65 : spectres de Lyman K_β , K_γ , K_δ ...obtenus en orientation aléatoire et en coïncidence avec l'état de charge $Q_{out}=90$ en condition de canalisation suivant l'axe $\langle 110 \rangle$. Les spectres sont normalisés au nombre de K_β , K_γ , K_δ ...détectés hors canalisation.

La contribution des captures REC- $n \geq 3$ à ces raies de désexcitations est estimée à $20\% \pm 10\%$ pour les ions qui ressortent avec l'état de charge $Q_{out}=90$. Si l'on néglige cette contribution, on peut déterminer la contribution des captures REC au remplissage de la lacune K par différence du spectre X associés aux ions qui ne font qu'une capture avec celui obtenu en orientation aléatoire, normalisé au même nombre de K_γ , K_δ Le spectre obtenu est présenté en ligne fine sur la figure 66. Le rapport de l'intégrale des pics K_α des deux spectres de cette figure donne la contribution $C_{REC}^{K_\alpha}$ du REC aux raies K_α : elle est de $0,66 \pm 0,04$. On en déduit la probabilité $P(\text{MEC}|Q_{out}=90)$ de $0,30 \pm 0,04$. et la probabilité de REC- $n \geq 3$ par l'intermédiaire du coefficient $C_{REC-n \geq 3}^{Q_{out}=90}$ appliqué à la probabilité de REC-L pour que la relation $P(\text{REC}|Q_{out}=90)+P(\text{MEC}|Q_{out}=90)=1$ soit vérifiée :

$$P(\text{REC}|Q_{out} = 90) = P(\text{REC} - K|Q_{out} = 90) + P(\text{REC} - L|Q_{out} = 90)C_{REC-n \geq 3}^{Q_{out}=90} \quad \text{équation 73}$$

On obtient $C_{REC-n \geq 3}^{Q_{out}=90} \approx 2,1$, ce qui est pratiquement la valeur du rapport $\frac{\sigma_{REC-LMNO}}{\sigma_{REC-L}}$.

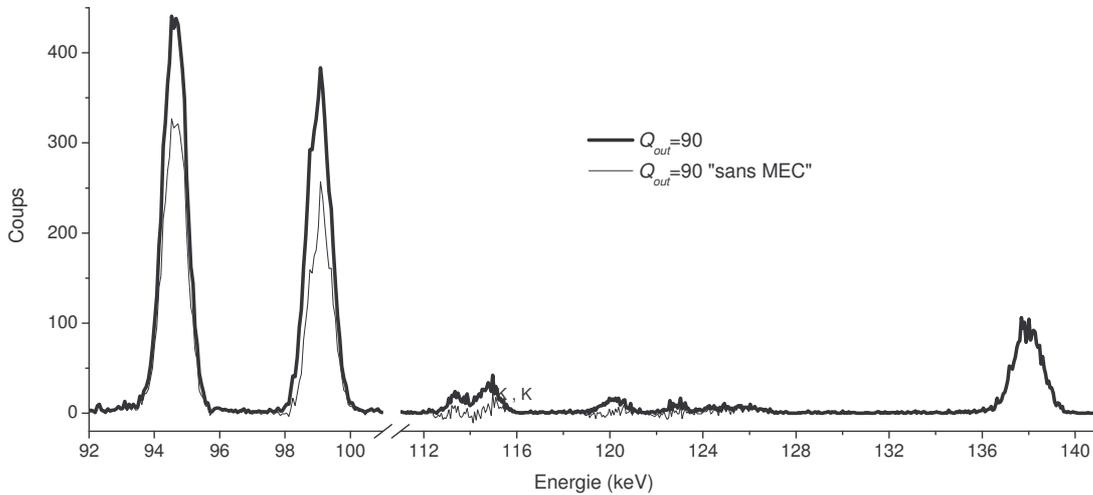


figure 66 : spectre des raies Lyman et du REC-K des ions n'ayant fait qu'une capture (ligne épaisse) et différence de ce spectre avec celui obtenu hors canalisation, et normalisé au même nombre de K_{γ} , K_{δ} ... issus essentiellement du MEC (ligne fine). Cette différence donne le spectre de la contribution du REC à la capture des ions d'état de charge $Q_{out}=90$.

Si l'on suppose que la capture mécanique effectuée par les ions d'état de charge $Q_{out}=90$ a lieu dans les couches amorphes du cristal, on a, au premier ordre, $P(\text{MEC}|90)=\sigma_{\text{MEC}}N_{at}L_{am}$, où σ_{MEC} est la section efficace de MEC des ions uranium de 20 MeV/u sur les couches $n_f \leq 10$, N_{at} la densité du silicium en cm^{-3} et L_{am} la somme des épaisseurs des couches amorphes. Avec cette hypothèse, L_{am} serait de 60 Å environ, ce qui correspond à l'épaisseur typique des couches amorphes du silicium.

Cependant, pour une sélection sévère (faibles multiplicités N_{Si-in} et N_{Si-out}) des ions U^{90+} définie sur la figure 67, la probabilité de capture mécanique est de 0,22 et donc inférieure à la probabilité $P(\text{MEC}|Q_{out}=90)=0,30$. Comme cette sélection correspond aux ions les mieux canalisés, qui ne font pas de capture mécanique à l'intérieur du cristal, et que la probabilité de capture simple dans la couche amorphe ne dépend pas de l'énergie transverse, on en déduit que la probabilité de capture mécanique dans le cristal est de 0,08 pour l'ensemble des ions d'état de charge $Q_{out}=90$.

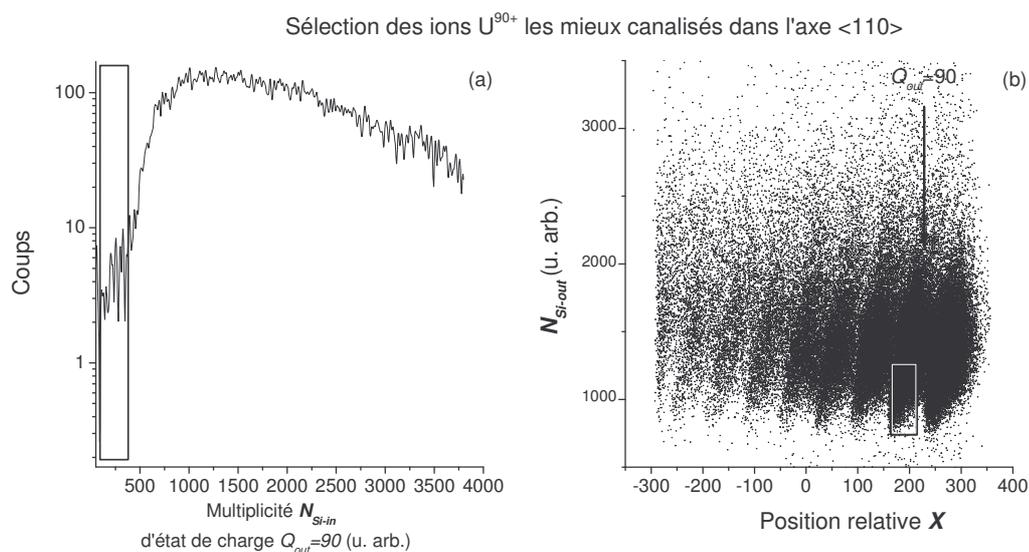


figure 67 : sélection des ions d'état de charge $Q_{out}=90$ les mieux canalisés de multiplicités N_{Si-in} et N_{Si-out} comprises respectivement entre 100 et 400 (a) et 800 et 1250, et des positions relatives X comprises entre 170 et 210 (b).

5) Evolution des taux de capture en fonction de Q_{out}

L'évolution des taux de captures REC et MEC en fonction de Q_{out} met en évidence la compétition entre ces deux processus en fonction de l'énergie transverse E_{\perp} puisque l'état de charge de sortie Q_{out} diminue lorsque l'énergie transverse des ions augmente.

La figure 68 présente la variation avec Q_{out} des taux (par ion) de REC-K et -L, de K_{β} et de Balmer (échelle de gauche) et des taux de REC par événement de capture (échelle de droite). Ces taux sont calculés en utilisant le fait mentionné précédemment que la lacune K des projectiles incidents est remplie une et une seule fois par un REC-K ou une transition K. Le nombre $N(ions)$ d'ions transmis, dont l'un au moins des photons émis a été détecté, est donc associé à une probabilité de 1 et l'on s'affranchit ainsi d'une détermination directe de l'efficacité géométrique du détecteur.

$$N(ions) = A(K_{\alpha}) + \frac{A(K_{\beta\delta\dots})}{e_{K\beta\delta}} + \frac{A(REC-K)}{F_{distri} e_{REC-K}} \quad \text{équation 74}$$

où $A(i)$ est le nombre de photons détectés correspondant au processus i et e_i est l'efficacité intrinsèque du détecteur à l'énergie des photons émis lors du processus i .

Chapitre IV

Les taux (nombres moyens) de REC-K, de REC-L et de transitions K_β par ion sont donc donnés par les expressions suivantes :

$$T_{REC-i} = \frac{A(REC-i)}{e_i F_{distri} N(ions)} \quad \text{équation 75}$$

$$T_{K_\beta} = \frac{A(K_\beta)}{e_i N(ions)} \quad \text{équation 76}$$

$$T_{Balmer} = \frac{A(Balmer)}{\bar{e}_{Balmer} N(ions)} \quad \text{équation 77}$$

où $\bar{e}_{Balmer} \sim 0,8$ est l'efficacité moyenne \bar{e}_{Balmer} du détecteur à l'énergie des raies Balmer déterminée au paragraphe A.IV.2.

Sur la figure 68, le taux de Balmer est présenté divisé par 5 par commodité. Il est fortement lié à la capture mécanique qui s'effectue essentiellement dans des états excités du projectile. Les électrons capturés se désexcitent soit radiativement, soit par émission Auger. Ce dernier processus n'intervient que pour des états multi-excités autoionisants. Par ailleurs, son influence sur les taux de désexcitation $T_{Balmer}(Q_{out})$ est faible puisque l'état de charge de l'ion avant la capture et après l'émission Auger n'a pas changé.

Si l'on suppose que la contribution des REC- $n \geq 3$ aux raies Balmer est négligeable, $T_{Balmer}(Q_{out})$ devrait augmenter comme le nombre de captures à partir de la 2^{ème} capture (couche K pleine) et tant qu'il reste une lacune sur la couche L ($Q > 82$). Dans ces conditions, le rapport $T(Balmer|82)/T(Balmer|89)$ doit être proche de 7/2. C'est ce que l'on observe sur les 2 raies Balmer $L_{\alpha 1,2}$ et $L_{\beta 1}$ les plus intenses. L'évolution de $T_{Balmer}(Q_{out})$ est plus lente pour les ions mal canalisés, de faibles états de charge, puisque leur couche L est pleine. L'ionisation de cette couche par collision nucléaire en orientation aléatoire conduit, comme nous l'avons vu au paragraphe A.IV.1, à un taux de Balmer nettement plus élevé. La variation du taux de désexcitation $K_{\beta\delta\dots}$ avec l'état de charge du projectile est beaucoup moins forte que celle des Balmer, la couche K étant remplie dès la première capture. $T_{K_{\beta\delta\dots}}$ augmente ainsi avec le nombre de captures jusqu'à $Q_{out} \sim 86$, à mesure que la probabilité de REC-K diminue, puis se stabilise.

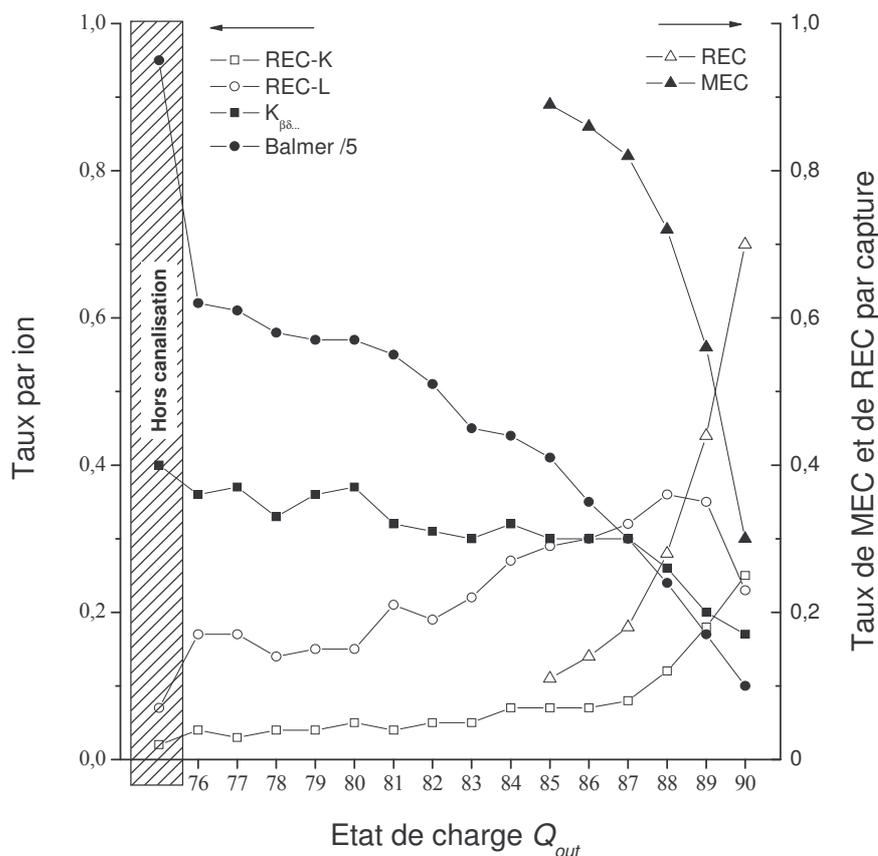


figure 68 : évolution, en fonction de Q_{out} , des taux par ion transmis du REC-K et L, et des transitions K_{β} et Balmer (échelle de gauche). Le taux de Balmer est présenté divisé par 5 par commodité.

Les taux $T^{hors\ canal.}$ mesurés hors canalisation sont présentés à gauche de la figure.

La différence entre les taux $T_{Balmer}(Q_{out} < 80)$ et $T_{Balmer}^{hors\ canal.}$ correspond au taux de raies Balmer consécutives aux excitations ou aux ionisations de la couche L en orientation aléatoire. Les rapports de taux de REC-K et -L $T_{REC-K}(Q_{out})/T_{REC-K}^{hors\ canal.}$ et $T_{REC-L}(Q_{out})/T_{REC-L}^{hors\ canal.}$ sont respectivement de 2,4 et de 2,1 environ. Le fait que les taux de REC des ions mal canalisés soient supérieurs aux taux mesurés hors canalisation est dû à un produit $\bar{\rho}_e \lambda_{K,L}$ plus élevé pour les ions mal canalisés (où $\bar{\rho}_e$ est la densité moyenne d'électrons rencontrée par le projectile pendant le parcours moyen λ_K (λ_L) effectué avant que la couche K (couche L) ne soit remplie). Des simulations de trajectoires semblent indiquer que ce produit $\bar{\rho}_e \lambda_{K,L}$ élevé en condition de canalisation proviendrait plutôt de fortes densités d'électrons

rencontrées à l'entrée du cristal. Cependant, il pourrait également être attribué, en partie, à des durées de vie des lacunes K et L plus longues en condition de canalisation à cause de l'effet de superdensité.

V. Les balayages angulaires

Pour avoir une information plus précise sur la dépendance de la probabilité de MEC en fonction de la distance aux rangées, nous avons effectué un balayage angulaire de l'axe $\langle 110 \rangle$ pendant lequel ont été mesurées les évolutions des fractions d'état de charge Q_{out} ($Q_{out} \geq 85$) et des probabilités de REC. Ces évolutions sont présentées sur la figure 69(a) et figure 70(a). La distribution de charge mesurée pour $\psi_0 = 0^\circ$ (condition d'alignement) est comparée, figure 69(b), à celle obtenue lors de l'acquisition dédiée à la détermination de la distribution de charge axiale, présentée figure 53. La différence entre ces deux distributions peut être attribuée à des changements de conditions de faisceau ou d'alignement du cristal.

Lorsqu'on écarte le faisceau de la direction d'alignement avec l'axe cristallin, l'énergie transverse moyenne des ions augmente. La densité électronique moyenne rencontrée est plus importante et les ions s'approchent des rangées atomiques à une distance r_{min} plus petite. On observe sur la figure 69(a) une nette diminution des fractions d'états de charge 91, 90 et 89 dès le premier pas de balayage angulaire, à $\psi_0 = 0,01^\circ$ qui correspond à une augmentation d'énergie transverse réduite moyenne du faisceau inférieure à 2 eV. Les ions les mieux canalisés font donc plusieurs captures, typiquement 2 ou 3 jusqu'à $\psi_0 \sim 0,03^\circ$, ce qui alimente les états de charge 88, 87 et 86 ; la fraction de ces derniers est stable ou augmente jusqu'à $\psi_0 = 0,02^\circ$. A partir de $\psi_0 = 0,04^\circ$, on peut considérer que le MEC devient prépondérant puisque les états de charge $Q_{out} \geq 85$ ont pratiquement complètement disparu. Cet angle de $0,04^\circ$ correspond à une énergie transverse de 25 eV et, pour les ions pénétrant dans le cristal au centre du canal (dont le potentiel $U(\vec{r}) = 0$), à une distance minimale d'approche des rangées atomique r_{min} de $0,5 \text{ \AA}$. Il y a donc capture multiple dès que les ions entrent dans les orbitales de coeur. Lorsque ψ_0 tend vers l'angle critique $\psi_c \sim 0,08^\circ$, l'ensemble des états de charge $Q_{out} \geq 85$ disparaît pratiquement. Leur fraction $F(Q_{out} \geq 85)$ qui se stabilise entre $\psi_0 = 0,04^\circ$ et $\psi_0 = 0,06^\circ$ signe très probablement la présence d'un halo dans le faisceau.

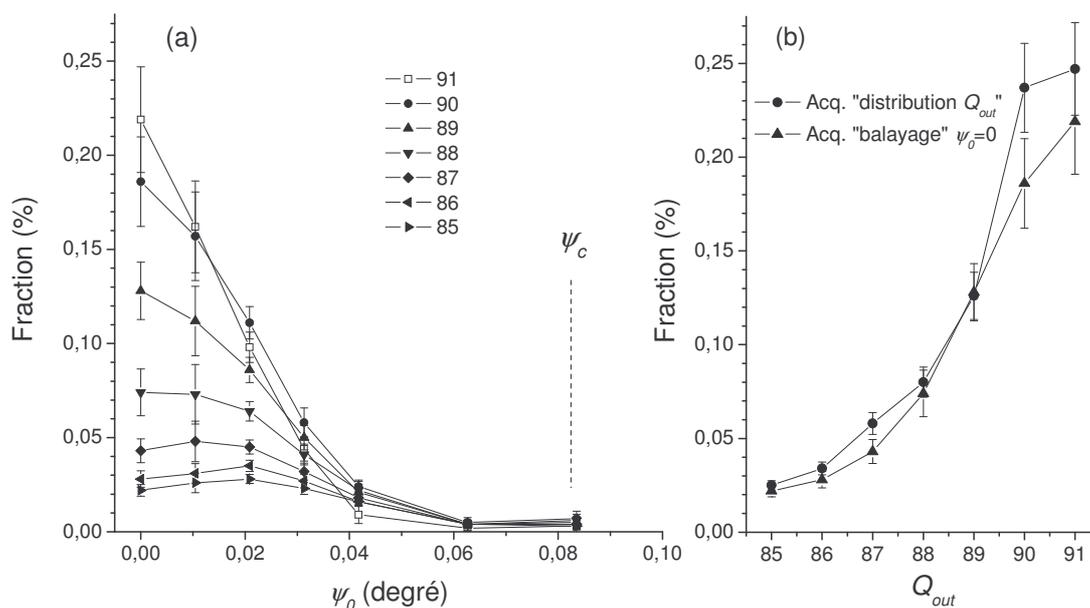


figure 69 : (a) évolution de la distribution de charge dans l'axe $\langle 110 \rangle$ ($Q_{out} \geq 85$) en fonction de l'angle de balayage ψ_0 . (b) Comparaison de la distribution de charge en condition d'alignement ($\psi_0=0$) avec celle obtenue lors de l'acquisition dédiée à la détermination de la distribution de charge axiale (cf. figure 53).

La figure 70(a) présente l'évolution correspondante de la probabilité de la probabilité de REC-K et de REC-L (sans sélection d'état de charge Q_{out}) en fonction de l'angle d'incidence du faisceau. Elle montre que la probabilité de REC diminue également dès le premier pas d'incrémentangulaire alors qu'on aurait pu s'attendre plutôt à une augmentation puisque la densité électronique rencontrée est plus importante lorsqu'on s'écarte de l'alignement. Une légère augmentation d'énergie transverse implique donc une probabilité de MEC accrue, qui limite la probabilité de REC en remplissant les lacunes K et L. Ceci n'est pas étonnant car en condition d'alignement, la probabilité $P(\text{MEC dans le cristal} | Q_{out}=90)$ est déjà proche de 10%. Lorsque l'angle de balayage ψ_0 tend vers l'angle critique, les probabilités de REC-K, -L devraient tendre vers celles des ions mal canalisés en condition d'alignement, d'état de charge $Q_{out} \leq 80$. La probabilité de REC-K tend effectivement vers la probabilité $P(\text{REC-K} | Q_{out} \leq 80) \sim 0,05$ mais la probabilité de REC-L pour $\psi_0 \sim \psi_c$ n'est que de 0,12, c'est-à-dire 20% inférieure à la probabilité $P(\text{REC-L} | Q_{out} \leq 80) \sim 0,15$. Cette légère différence est attribuée aux changements de conditions de faisceau. Les probabilités de capture radiative $P(\text{REC} | Q_{out})$ mesurées pour $\psi_0=0^\circ$ (condition

d'alignement) sont comparées, sur la figure 70(b), à celle obtenue lors de l'acquisition dédiée à l'acquisition de spectres de raies X, présentée sur la figure 59. Les probabilités de REC-K sont proches. En revanche, les probabilités de REC-L sont inférieures d'environ 20% lors de l'acquisition de balayage angulaire à $\psi_0=0^\circ$. Elles confirment l'hypothèse de l'augmentation de la divergence angulaire du faisceau ou d'un alignement moins précis du cristal, qui impliquent une probabilité de MEC dans le cristal plus élevée. La probabilité de REC-K change peu car la lacune K est comblée très rapidement à l'entrée du cristal. La couche L en revanche, reste libre sur une plus grande profondeur et la probabilité de REC-L dépend donc de la probabilité de MEC plus ou moins forte des ions.

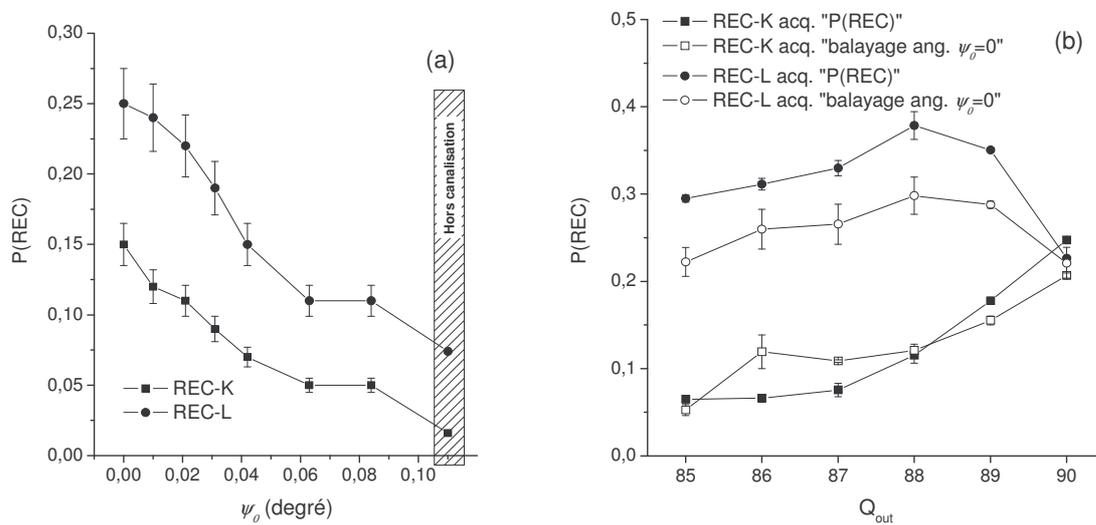


figure 70 : (a) évolution de la probabilité de REC en fonction de l'angle de balayage ψ_0 . (b) b) Comparaison des probabilités $P(\text{REC}|Q_{out})$ en condition d'alignement ($\psi_0=0^\circ$) avec celles obtenues lors de l'acquisition dédiée à cette mesure dans l'axe $\langle 110 \rangle$ (cf. figure 68).

B. Simulations

I. Les simulations des échanges de charge

Nos simulations visent essentiellement à déterminer :

- les nombres moyens de captures mécanique et radiative des ions U^{91+} de 20 MeV/u canalisés dans le cristal de silicium de 11,7 μm , en fonction de l'énergie transverse avec un programme d'échanges de charge présenté au paragraphe B.1.a. Ce programme, fondé sur l'équilibre du flux (et donc peu coûteux en temps de calculs), est adapté à l'étude de la compétition entre ces processus de capture car l'ensemble des données expérimentales tend à montrer qu'en condition de canalisation, la probabilité de capture mécanique des ions U^{91+} de 20 MeV/u est importante à des distances aux rangées ou aux plans atomiques relativement grandes, de l'ordre de 0,5 \AA .
- la probabilité de MEC par atome cible en fonction du paramètre d'impact à partir des nombres moyens de MEC déterminés par le programme d'échange de charge et des distributions de paramètres d'impact vis-à-vis des atomes cible simulées par des calculs de trajectoires décrits au paragraphe B.1.b. Ces probabilités de MEC par atome sont comparées aux calculs de Rivarola *et al.* [**Rivarola - communication privée**] au paragraphe B.1.c.

1) Le programme d'échange de charge

(a) *Le principe du programme*

Le principe du programme est d'associer à chaque énergie transverse :

- des nombres moyens de captures mécaniques et radiatives :

- un nombre moyen de REC déterminé à partir de la densité électronique moyenne rencontrée sur l'espace transverse accessible et la section efficace de REC,
- un nombre moyen de capture mécanique N_{MEC} .
- un taux moyen de perte d'énergie par unité de longueur $\overline{\Delta E}/\Delta z$ à partir duquel on détermine un taux moyen d'augmentation d'énergie transverse réduite $\Delta \varepsilon_{\perp} / \Delta z$ (équations 9, 10 et 11).

Pour limiter le nombre de paramètres de nos simulations, nous avons choisi de ne pas traiter directement les processus d'ionisation par collisions électroniques et nucléaires (EII et NII) : le nombre de captures simulé correspond en fait au nombre d'électrons capturés qui ne sont pas perdus par la suite. L'ionisation est prise en compte *a posteriori*, lors de la détermination de la probabilité de capture mécanique par atome.

Par ailleurs, nous avons choisi d'exprimer l'énergie transverse réduite ε_{\perp} en termes de distance minimale d'approche r_{min} aux rangées ou aux plans d'atomes cible pour comparer plus facilement les résultats obtenus en orientation axiale et planaire. Le réchauffement transverse est pris en compte en fractionnant le parcours dans la cible en un certain nombre de pas de calcul : à chaque pas de calcul, on détermine l'augmentation d'énergie transverse sur la longueur du pas et on en déduit la diminution de la distance r_{min} . Les résultats des simulations comme les nombres moyens de MEC effectif N_{MEC} ou les densités électroniques moyennes rencontrées seront exprimés en fonction de la distance r_{min}^e à l'entrée du cristal pour s'affranchir de l'évolution de r_{min} au cours de la traversée du cristal.

(i) *Distributions des distances minimales d'approche à l'entrée du cristal*

Le programme d'échanges de charge commence par déterminer la distribution de distances r_{min} à l'entrée du cristal, en fonction de la distribution angulaire du faisceau, et de l'orientation du cristal. La figure 71 présente les distributions $G(r_{min}^e)$ des distances r_{min}^e à l'entrée du cristal simulées dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et les plans (110) et (111) pour la distribution

angulaire de faisceau déterminée à partir des données expérimentales au paragraphe B.I.1)c(i). En orientation planaire, les distances r au plan atomique le plus proche à l'entrée du cristal sont équiprobables. Les distributions planaires $G(r_{\min}^e)$ sont donc pratiquement uniformes tant que l'énergie cinétique transverse $E\psi^2$ est petite devant l'énergie potentielle $QU(r)$. Dans le plan (111), $G(r_{\min}^e)$ est environ deux fois plus élevée pour $r_{\min}^e < 0,4 \text{ \AA}$ que pour $r_{\min}^e > 0,4 \text{ \AA}$ car ce plan est composé de deux espaces interplanaires de demi-largeurs respectives $d_{(111)}^L = 1,12 \text{ \AA}$ et $d_{(111)}^E = 0,4 \text{ \AA}$. En orientation axiale, $G(r_{\min}^e)$ est nettement plus faible pour de petites distances r_{\min}^e , typiquement inférieures à $0,2 \text{ \AA}$, car la distribution de distances r des projectiles à la rangée atomique la plus proche est proportionnelle à r à l'entrée du cristal.

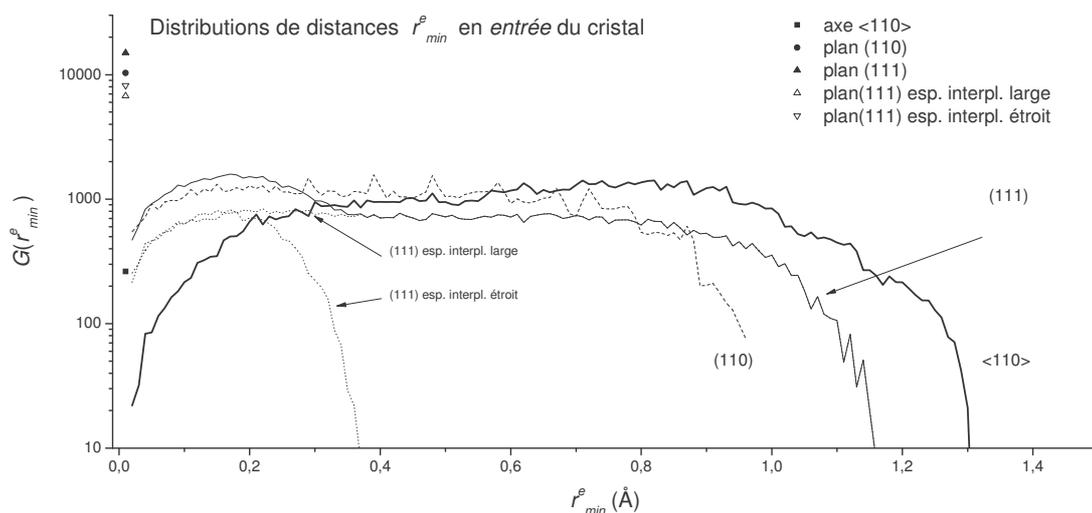


figure 71 : distributions, dans l'axe <110> et les plans (110) et (111), de distance minimale d'approche r_{\min}^e à l'entrée du cristal, d'ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u canalisés dans un cristal de silicium (distribution angulaire de faisceau déterminée au paragraphe B.I.1)c(i) ; nombre de tirages : 100000).

Les ions dont la distance r_{\min}^e est nulle (c'est-à-dire dont l'énergie transverse est supérieure au potentiel continu des rangées ou des plans) correspondent à la fraction non canalisée du faisceau. Leurs nombres dans l'axe et dans les plans sont représentés avec des symboles sur la figure 71. Les fractions simulées d'ions non canalisés sont de l'ordre de 0,25 % dans l'axe et de 10 % dans les plans. Nous verrons plus loin (au paragraphe

B.I.1)c)(vii)) que la fraction d'ions de distance r_{min} nulle augmente sensiblement au cours de la traversée du cristal de 11,7 μm à cause du réchauffement transverse.

(ii) *Le traitement séquentiel des captures électroniques*

✧ Les captures à l'intérieur du cristal

Lors de la traversée du cristal de 11,7 μm , la perte d'énergie est faible et la dépendance des probabilités de capture en fonction de l'énergie du projectile est négligeable. Elle a été cependant prise en compte pour que le programme puisse être utilisé dans le cas d'un cristal plus épais. A chaque pas, on calcule les libres parcours moyens λ_{REC} et λ_{MEC} vis-à-vis des captures radiative et mécanique effectives. Le libre parcours moyen $\lambda_{REC}(r_{min})$ est déterminé à partir de la section efficace de REC et de la densité électronique moyenne rencontrée sur l'espace transverse accessible $\bar{\rho}_e(r_{min})$, par la relation suivante :

$$\lambda_{REC}(r_{min}, E, Q) = \frac{1}{\sigma_{REC}(E, Q) \bar{\rho}_e(r_{min})} \quad \text{équation 78}$$

où $\sigma_{REC} = C_{REC} \sigma_{REC}^{Stobbe}$ (avec σ_{REC}^{Stobbe} est la section efficace de Stobbe et C_{REC} est un coefficient qui permet d'ajuster les probabilités de REC simulées aux valeurs mesurées), E et Q sont respectivement l'énergie et l'état de charge du projectile à la profondeur z considérée.

Le libre parcours moyen $\lambda_{MEC}(r_{min})$ est calculé à partir du nombre moyen de MEC effectif $N_{MEC}(r_{min})$ qu'effectueraient les ions à une distance minimale d'approche r_{min} des rangées ou des plans, sur l'épaisseur L du cristal (de 11,7 μm), et sans réchauffement transverse :

$$\lambda_{MEC}(r_{min}, E) = \frac{L}{N_{MEC}(E, r_{min})} \quad \text{équation 79}$$

Le nombre de MEC effectif $N_{MEC}(r_{min})$ est ajusté pour reproduire les données expérimentales. L'augmentation des probabilités de capture due au réchauffement transverse est prise en compte par l'intermédiaire de l'accroissement de la densité $\bar{\rho}_e$ et du

nombre N_{MEC} lorsque r_{min} diminue. En ce qui concerne la capture mécanique, le programme d'échange de charge permet de déterminer finalement le nombre de MEC effectif $N_{MEC}(r_{min}^e)$ en fonction de la distance r_{min}^e à l'entrée du cristal dont nous déduisons la probabilité de MEC effectif par atome au paragraphe B.I.3).

L'influence de Q sur σ_{REC} est importante car la capture radiative s'effectue préférentiellement sur les couches internes du projectile. En revanche, la probabilité de MEC est pratiquement indépendante de l'état de charge du projectile car cette capture s'effectue essentiellement dans des états excités, sur les couches $n \geq 4$.

Comme les deux processus de capture peuvent être considérés comme indépendants, leur probabilité d'occurrence s'écrit :

$$P_{REC}(z, Q, \bar{\rho}_e) = 1 - \exp\left(-\frac{z}{\lambda_{REC}(Q, \bar{\rho}_e)}\right) \quad \text{équation 80}$$

$$P_{MEC}(z, r_{min}) = 1 - \exp\left(-\frac{z}{\lambda_{MEC}(r_{min})}\right) \quad \text{équation 81}$$

On détermine si ces processus de capture ont lieu sur la longueur de pas Δz_{pas} en tirant des nombres aléatoires uniformément sur $[0 ; 1]$ (P_{REC}^* et P_{MEC}^*) : il y a capture lorsque $P_{REC}^* \leq P_{REC}(\Delta z_{pas})$ ou $P_{MEC}^* \leq P_{MEC}(\Delta z_{pas})$. Ce traitement pas à pas de la capture est correct si Δz_{pas} est suffisamment petit pour que la probabilité de double capture soit négligeable.

Les échanges de charge ont été simulés jusqu'au remplissage de la couche L, c'est-à-dire pour un nombre total de capture $N_{cap}=9$. Les ions qui subissent un nombre de captures plus important rencontrent les atomes cible à des paramètres d'impact tels que les processus d'excitation et d'ionisation par impact nucléaire des différentes couches du projectile sont très probables. Un nombre de captures effectives N_{MEC} supérieur à 9 correspond donc à un nombre de processus considérable, difficilement exploitable.

✧ Les captures dans les couches amorphes du cristal

Les couches amorphes des cibles de silicium sont minces, de l'ordre de la dizaine de couches atomiques. Cependant, dans nos expériences, les sections efficaces de capture mécanique sont telles que la probabilité de capture sur ces couches n'est pas négligeable. En particulier, dans notre cas où les ions incidents sont hydrogénoïdes, une capture dans la couche amorphe d'entrée bloque le REC-K et diminue la probabilité de REC d'un ion U^{90+} de 20 MeV/u d'environ 30% par rapport à celle d'un ion U^{91+} . Par ailleurs, dans le cas d'une perte d'énergie importante lors de la traversée du cristal, la couche amorphe de sortie joue un rôle crucial car la probabilité de MEC est alors fortement augmentée (la section efficace de MEC est proportionnelle à $E^{-5,5}$ d'après l'équation 22). Les probabilités de capture simple et multiple en couches amorphes sont considérées comme des paramètres de la simulation.

(iii) La perte d'énergie

La perte d'énergie réduite moyenne $\overline{\Delta\epsilon}(\bar{\rho}_e)$ est déterminée à partir de la densité électronique moyenne rencontrée $\bar{\rho}_e(r_{\min})$ par l'expression suivante :

$$\frac{\overline{\Delta\epsilon}(r_{\min})}{\Delta z} = a \bar{\rho}_e(r_{\min}) F_{\rho_e}(r_{\min}) + b \quad \text{équation 82}$$

où a (en $eV \cdot \text{\AA}^2$) et b (en $eV/\text{\AA}$) rendent compte respectivement de la perte d'énergie par collisions proches et distantes avec les électrons de la cible et F_{ρ_e} est un facteur qui prend en compte le caractère non local des transferts d'énergie par collisions proches (cf. chapitre I.C.IV.). Les paramètres a , b et F_{ρ_e} sont ajustés pour que les distributions simulées de perte d'énergie des ions transmis correspondent aux distributions mesurées.

(b) Les paramètres ajustables des simulations et les données expérimentales simulées

Les paramètres de la simulation sont les suivants :

- les nombres moyens de capture mécanique dans l'axe et dans les plans (respectivement $N_{MEC}^{axe}(r_{min}^e)$ et $N_{MEC}^{plan}(r_{min}^e)$) en fonction de la distance minimale d'approche r_{min}^e aux rangées ou aux plans,
- le coefficient C_{REC} appliqué à la section efficace σ_{REC}^{Stobbe} de Stobbe,
- la distribution angulaire du faisceau,
- la capture mécanique dans les couches amorphes d'entrée et de sortie du cristal,
- les paramètres a, b et F_{ρ_e} reliant la perte d'énergie des projectiles à la densité électronique moyenne rencontrée.

Ces paramètres ont été ajustés pour que les simulations reproduisent les données expérimentales suivantes :

- Le balayage angulaire des plans (110) et (111) effectués le long de la direction X avec un pas angulaire $\Delta\psi_X$ de $0,02^\circ$. Le signal mesuré $F(Q_{out} \geq 86, \psi_X)$ lors de ces balayages était le nombre d'événements détectés sur le détecteur de particules (correspondant aux ions d'états de charge de sortie $Q_{out} \geq 86$) normalisé au nombre d'événements Si-in, en fonction de l'angle d'incidence ψ_X du faisceau suivant la direction X .
- Les distributions de charge dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et dans les plans (110) et (111).
- Les probabilités $P(REC-K, -L|Q_{out})$ dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et le plan (111).
- La distribution de charge des ions très bien canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$.
- Les évolutions, dans l'axe $\langle 110 \rangle$, des fractions d'états de charge $F(Q_{out})$ ($Q_{out} \geq 85$) en fonction de l'angle d'incidence du faisceau $\psi_0 \sim (\psi_X^2 + \psi_Y^2)^{1/2}$. Les pas angulaires $\Delta\psi_X$ et $\Delta\psi_Y$ étaient respectivement de $0,003^\circ$ et $0,01^\circ$.

- Les distributions de perte d'énergie relative des ions bien canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$.

(c) *Reproduction des données expérimentales*

La simulation de chaque donnée expérimentale (les distributions de charge par exemple) fait intervenir plusieurs paramètres (les nombres de capture $N_{MEC}(r_{\min}^e)$, la section efficace de REC, etc ...). Un paramètre est donc déterminé pour obtenir un accord général entre les simulations et les mesures. Pour la présentation des différentes grandeurs expérimentales simulées, la valeur de certains paramètres est par conséquent donnée *a priori* et vérifiée par la suite.

(i) *Le balayage angulaire des plans*

Les évolutions, dans l'axe ou dans les plans, de la fraction des états de charge les plus élevés en fonction de l'angle d'incidence du faisceau sur le cristal dépendent à la fois de la forme du faisceau et de la dépendance de la probabilité de capture mécanique en fonction du paramètre d'impact vis-à-vis des atomes cible. L'influence de la capture radiative sur ces évolutions de fractions d'états de charge est en effet petite devant celle de la capture mécanique. Pour simuler l'évolution dans les plans de la fraction $F(Q_{out} \geq 86)$ des états de charge supérieurs à 86 en fonction de ψ_X , nous avons donc déterminé pour différentes formes de faisceau, le nombre de capture mécanique effectif $N_{MEC}(r_{\min}^e)$ dans les deux plans à partir des distributions de charge. La distribution angulaire $G_F(\psi)$ du faisceau est modélisée dans nos simulations sous la forme d'une somme de deux distributions gaussiennes de largeurs différentes :

$$G_F(\psi) = (1 - F_F^{large}) G(\sigma_X^E, \sigma_Y^E) + F_F^{large} G(\sigma_X^L, \sigma_Y^L) \quad \text{équation 83}$$

où (σ_X^E, σ_Y^E) sont les écarts types dans les directions X et Y de la distribution étroite du faisceau et (σ_X^L, σ_Y^L) sont les écarts types de la distribution large qui représente une fraction F_F^{large} du faisceau.

Les évolutions, en fonction de l'angle ψ_X , de la fraction d'ions $F(Q_{out} \geq 86)$ mesurée dans le plan (110) et simulée avec un faisceau à une seule composante sont comparées

figure 72. On constate qu'il est impossible de reproduire les fractions $F(Q_{out} \geq 86)$ mesurées à $\psi_X = \pm 0,07^\circ$ et $0,08^\circ$ (soit $\psi_X = \pm 1,2$ mrad et $1,4$ mrad) sans une composante plus large de faisceau.

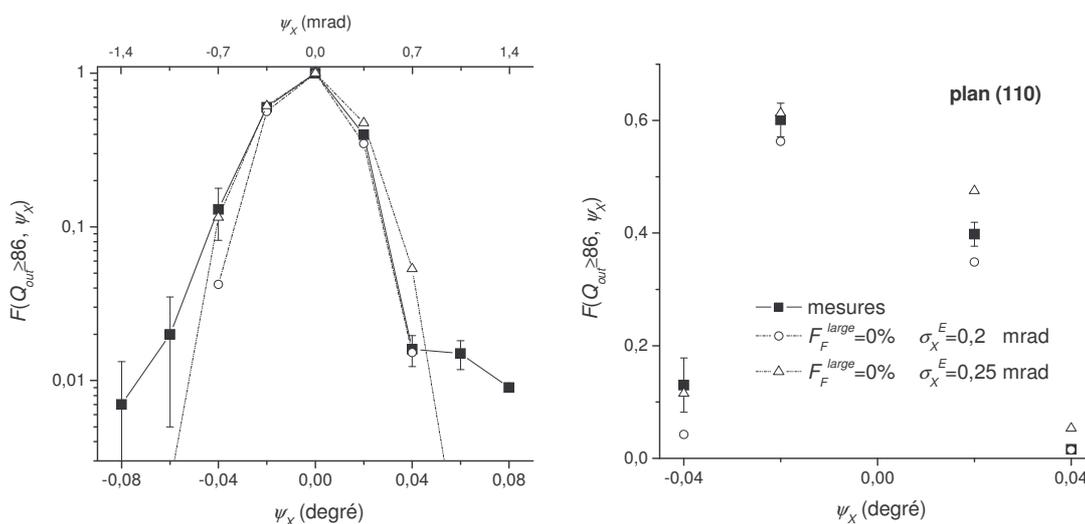


figure 72 : évolutions, en fonction de l'angle ψ_X , de la fraction d'ions $F(Q_{out} \geq 86)$ mesurée dans le plan (110) du cristal de silicium de $11,7 \mu\text{m}$ et simulée avec un faisceau à une seule composante. La figure de droite est en échelle linéaire.

Nous avons donc effectué une étude systématique de la distribution angulaire du faisceau avec des fractions de composante large F_F^{large} allant de 5 à 45%. Sur la figure 73 est représentée, pour les fractions F_F^{large} de 5, 25 et 45 %, l'évolution dans le plan (110) de la fraction $F(Q_{out} \geq 86)$ simulée la plus proche de l'évolution mesurée, obtenue avec des valeurs (σ_X^L, σ_Y^L) ajustées. Les évolutions correspondantes, obtenues dans le plan (111) en supposant le faisceau symétrique, sont comparées aux mesures dans la figure 74. Le meilleur accord entre les simulations et les mesures est obtenu avec des fractions F_F^{large} de 25 à 45 % et des valeurs $\sigma_X^E = \sigma_Y^E$, $\sigma_X^L = \sigma_Y^L$ respectivement de $0,14 \pm 0,02$ mrad et de $0,43 \pm 0,03$ mrad. Les distributions angulaires de faisceau $G_F(\psi)$ correspondant aux fractions F_F^{large} de 5 %, 25 % et 45% sont représentées figure 75. Elles sont relativement proches surtout les deux dernières, les plus réalistes. Les distributions en énergie transverse associées sont donc voisines et l'incertitude sur les nombres moyens de capture MEC due à l'incertitude sur la distribution $G_F(\psi)$ reste limitée. Par la suite, nous utiliserons une

distribution angulaire de faisceau définie par les valeurs suivantes : $F_F^{large} = 35\%$, $\sigma_X^E = \sigma_Y^E = 0,14$ mrad et $\sigma_X^L = \sigma_Y^L = 0,43$ mrad.

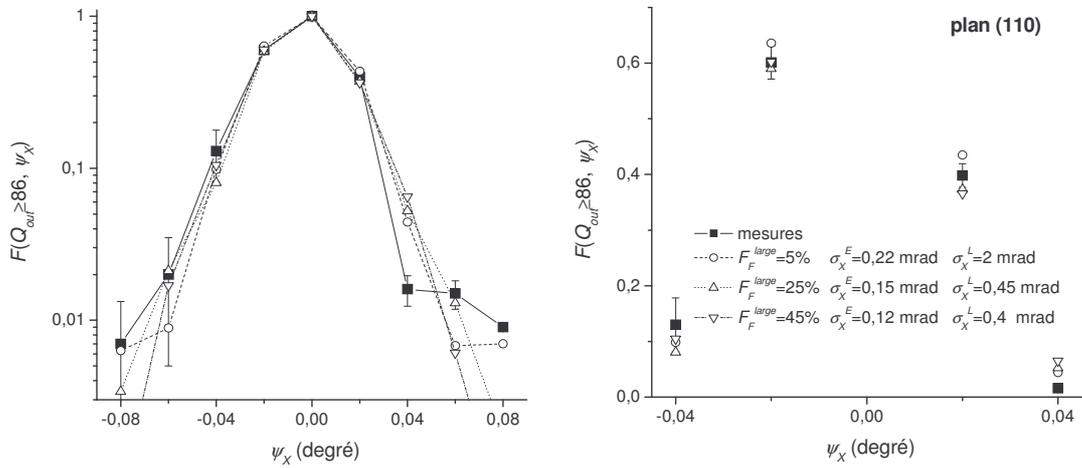


figure 73 : évolutions, en fonction de l'angle ψ_X , de la fraction d'ions $F(Q_{out} \geq 86)$ mesurée dans le plan (110) et simulée avec un faisceau à deux composantes.

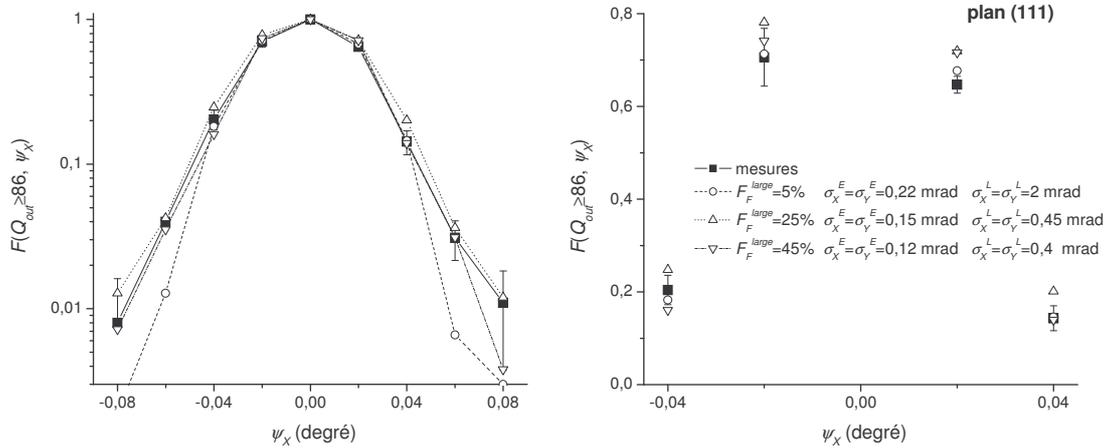


figure 74 : évolutions, en fonction de l'angle ψ_X , de la fraction d'ions $F(Q_{out} \geq 86)$ mesurée dans le plan (111) et simulée avec un faisceau à deux composantes.

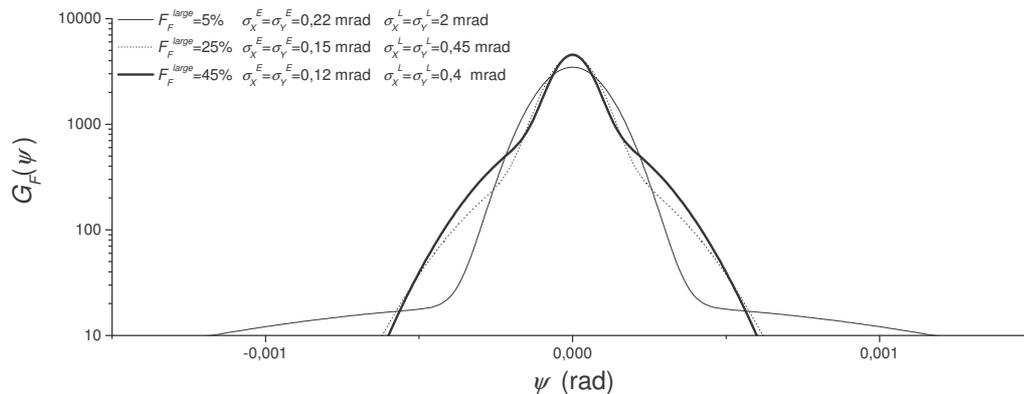


figure 75 : distributions angulaires $G_F(\psi)$ de faisceau suivant la direction X ou Y (faisceau à symétrie cylindrique)

(ii) Les distributions de charge axiale et planaire

La distribution angulaire du faisceau étant estimée, on détermine les nombres de MEC effectifs $N_{MEC}(r_{min}^e)$ en orientation axiale et planaire à partir des distributions d'états de charge (avec un coefficient C_{REC} sur la section efficace de Stobbe de 1,3 (cf. paragraphe suivant) et des probabilités de capture simple et multiple en couches amorphes déterminées au paragraphe B.I.1)(c)(iv)). Les distributions d'états de charge simulées sont comparées aux distributions mesurées $F(Q_{out})$ sur la figure 76(a) et les nombres moyens effectifs de captures mécaniques ($N_{MEC}(r_{min}^e)$) et radiatives ($N_{REC}(r_{min}^e)$) déduits des simulations sont présentés figure 76 (b). Comme nos simulations se limitent aux échanges de charge des ions relativement bien canalisés, qui font moins de neuf captures, les ions qui capturent plus de dix électrons sont regroupés dans la fraction $F(Q_{out} < 82)$. D'après la figure 76(a), les nombres moyens de MEC effectifs sont donc déterminés pour des distances minimales d'approche des rangées ou des plans atomiques r_{min}^e supérieures à 0,3 Å. On remarque que le nombre moyen de MEC augmente fortement autour de $r_{min}^e = 0,4$ Å, une distance aux rangées ou aux plans qui correspond grossièrement à l'extension spatiale des orbitales atomiques de cœur du silicium, et que le nombre moyen de REC-K, -L reste pratiquement constant quelque soit r_{min}^e alors que la densité électronique moyenne rencontrée augmente environ d'un facteur deux entre $r_{min}^e = 0,8$ Å et $r_{min}^e = 0,3$ Å.

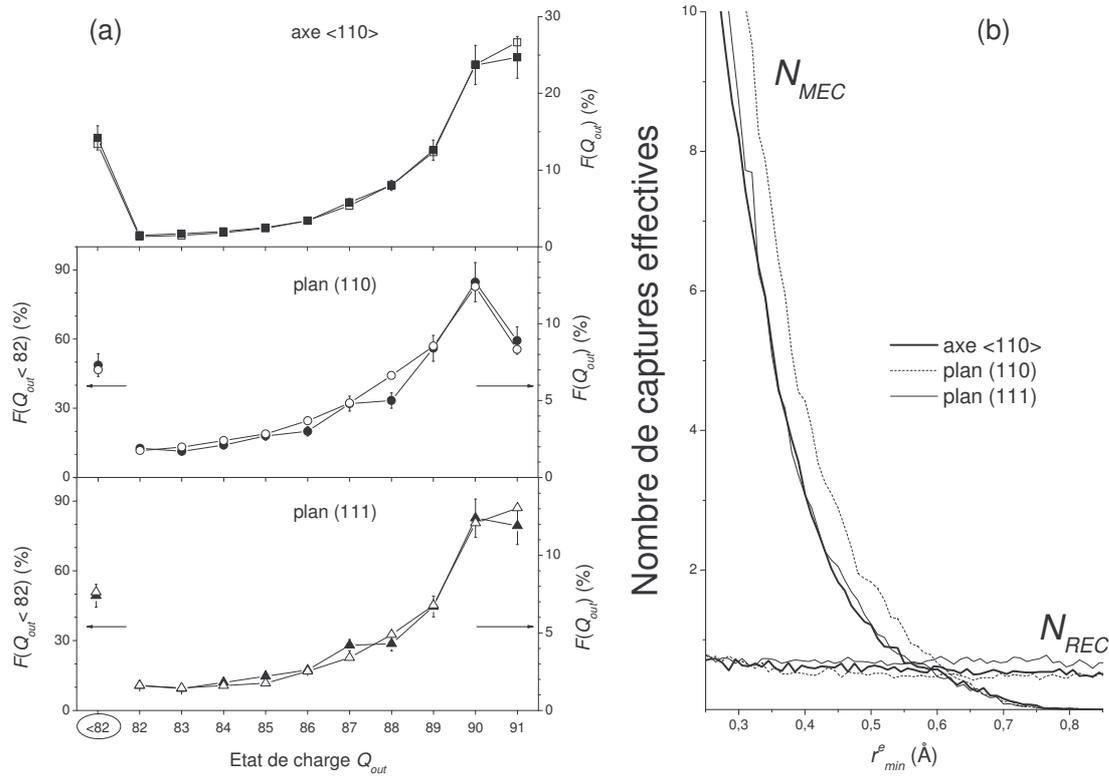
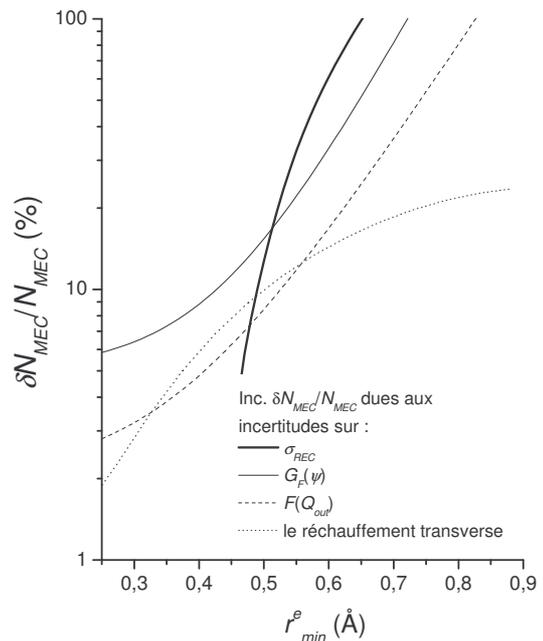


figure 76 : (a) distributions mesurée (symboles pleins) et simulée (symboles creux) d'états de charge $F(Q_{out})$ des ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et dans les plans (110) et (111) du cristal de silicium de $11,7 \mu m$ (b) distributions, en fonction de la distance minimale d'approche r_{min}^e à l'entrée du cristal, des nombres de MEC effectifs $N_{MEC}^{\langle 110 \rangle}(r_{min}^e)$, $N_{MEC}^{(110)}(r_{min}^e)$ et $N_{MEC}^{(111)}(r_{min}^e)$ et de REC effectifs effectués par ces ions au cours de la traversée du cristal.

figure 77 : Incertitudes relatives $\delta N_{MEC}/N_{MEC}$ sur les nombres moyens de MEC effectifs en fonction de r_{min}^e



Ce dernier point met en évidence la réduction de la probabilité de REC par le remplissage des couches internes des ions uranium par la capture mécanique. La figure 77 présente les incertitudes relatives $\delta N_{MEC}/N_{MEC}$ sur les nombres moyens de MEC effectifs dues aux incertitudes sur la probabilité de REC (c'est-à-dire sur le coefficient C_{REC} déterminé au paragraphe suivant), la distribution angulaire du faisceau, les fractions d'états de charge $F(Q_{out})$ et le réchauffement transverse. Les sources d'incertitude les plus importantes sont celles sur C_{REC} (évalué à $\pm 20\%$) et la distribution $G_F(\psi)$. Elles s'élèvent à environ 20 % pour une distance r_{min}^e de 0,5 Å et atteignent rapidement 100 % pour $r_{min}^e > 0,6$ Å.

(iii) Les probabilités $P(REC-K, -L)$ dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et le plan (110)

La figure 78 présente les valeurs mesurées et simulées dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et le plan (110) des probabilités $P(REC-K, -L)$ en fonction de Q_{out} , pour des valeurs C_{REC} de 1,3, 1,5, et 1,7 et les probabilités de captures dans les couches amorphes déterminées au paragraphe B.I.1)(c)(iv).

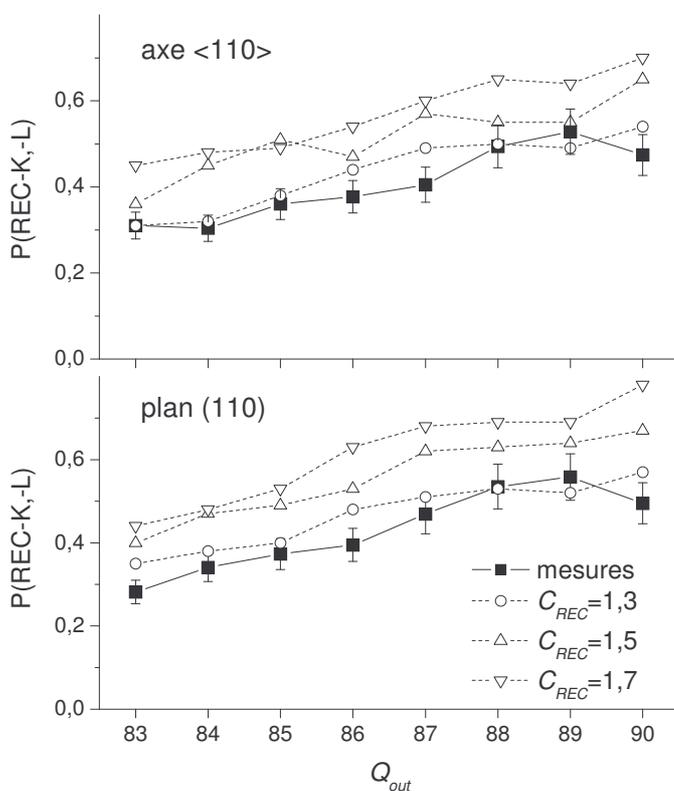


figure 78 : Probabilités $P(REC-K, -L)$ mesurées et simulées dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et dans le plan (110) pour trois valeurs de sections efficaces de REC $\sigma_{REC} = C_{REC} \sigma_{REC}^{Stobbe}$.

Chapitre IV

Ces valeurs sont en bon accord pour un coefficient C_{REC} de 1,3. La variation des probabilités simulées en fonction de l'état de charge de sortie Q_{out} dépend beaucoup du nombre de MEC effectifs $N_{MEC}(r_{min}^e)$ puisque la probabilité de capture radiative diminue rapidement lorsque les ions se rhabillent. Le fait que la variation simulée soit proche de la variation mesurée confirme donc les nombres de MEC effectifs déterminés à partir des distributions de charge et des balayages angulaires des plans.

	Simulations ($\sigma_{REC} = 1,3 \sigma_{REC}^{Stobbe}$)	Mesures
P(REC-K, -L, $Q_{out}=90$)	0,45	0,47
P(MEC, $Q_{out}=90$)	0,34	0,30
P(MEC à l'intérieur du cristal, $Q_{out}=90$)	0,16	0,08

tableau 2 : Probabilités mesurées et simulées de REC-K, -L et de MEC des ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u transmis à travers à l'axe $\langle 110 \rangle$ du cristal de silicium de 11,7 μm en ayant effectué une seule capture.

Les probabilités simulées P(REC-K, -L, $Q_{out}=90$), P(MEC, $Q_{out}=90$) et P(MEC à l'intérieur du cristal, $Q_{out}=90$), obtenues avec cette section efficace de REC, sont comparées aux valeurs mesurées dans le tableau 2. L'accord entre les mesures et les simulations est bon. La probabilité simulée de MEC à l'intérieur du cristal est cependant sensiblement supérieure à la valeur mesurée, ce qui est probablement dû à une probabilité de capture simple dans les couches amorphes sous-estimée.

Le fait que la section efficace simulée soit supérieure de 30 % à la section efficace de Stobbe n'est pas surprenant car les mesures de sections efficaces de REC dans des cibles solides sont en général supérieures à la valeur obtenue avec cette section efficace théorique, elle-même supérieure de 35 % environ aux mesures effectuées en cibles gazeuses (voir le paragraphe C.II.2) du chapitre I). Plus précisément, ces mesures mettent en évidence une augmentation du produit de la section efficace de REC, qui est définie pour une collision simple ion-électron, avec la densité d'électron rencontrée. La différence entre les mesures en cibles solides et gazeuses est attribuée à une augmentation de la densité électronique au voisinage du projectile en cible solide (voir le paragraphe A.C.II.2)(b) du chapitre I).

D'après l'équation 41 déterminée par Echenique *et al.* dans le cadre de la théorie de réponse linéaire du milieu [Echenique *et al.* 1979], cette augmentation serait proportionnelle à Z_p/v_p . Dans le cas des ions U^{91+} de 20 MeV/u, cette équation prévoit une augmentation relative de la densité électronique au voisinage du projectile d'un facteur 10 ! Nos mesures de probabilités de REC pour des ions U^{91+} de 20 MeV/u et pour des ions Pb^{81+} de 13 MeV/u (cf. chapitre V) montrent que l'augmentation de densité électronique due à l'effet de sillage n'est pas aussi locale que ce que prédit la théorie de réponse linéaire du milieu [Testa *et al.* 2005].

(iv) *La distribution de charge des ions très bien canalisés*

Les ions très bien canalisés capturent des électrons par capture mécanique dans les couches amorphes et par capture radiative à l'intérieur du cristal. La distribution de charge de ces ions donne donc une information sur la section efficace de REC et sur les probabilités de captures simple et multiple dans les couches amorphes. Trois sélections correspondant à de faibles énergies transverses réduites ont été effectuées à partir des multiplicités d'électrons secondaires N_{Si-in} et N_{Si-out} en entrée et en sortie de cristal. Elles correspondent à des fractions de faisceau $F_{faisc.}^{exp}$ respectivement de 3,8% ; 1,9% et 0,8%. Les fractions d'état de charge $F(Q_{out}=91, 90, 89)$ obtenues avec ces sélections sont représentées en symboles pleins figure 79(a).

Elles sont comparées aux fractions d'états de charge simulées pour différentes coupures $\varepsilon_{\perp}^{max}$ en énergie transverse ($\varepsilon_{\perp}^{max}=1, 2, 3, 5$ et 10 eV) et avec les paramètres suivants :

- La distribution angulaire de faisceau déterminée au paragraphe B.I.1)(c)(i) dont on déduit les fractions de faisceau $F_{faisc.}^{simu}$ qui correspondent aux sélections d'énergies transverses réduites inférieures à $\varepsilon_{\perp}^{max}$. Les barres d'erreur sur l'abscisse $F_{faisc.}$ des points simulés correspondent à l'incertitude sur la forme du faisceau.
- Un coefficient C_{REC} sur la section efficace de Stobbe de 1,3 et des probabilités de capture dans les couches amorphes fixées (de manière à ce que les fractions simulées d'état de charge $Q_{out}=91, 90$ et 89, obtenues

pour une fraction de faisceau $F_{faisc.}^{simu} \sim 3\%$, soient en bon accord avec les fractions mesurées pour $F_{faisc.}^{exp} = 1,9\%$.

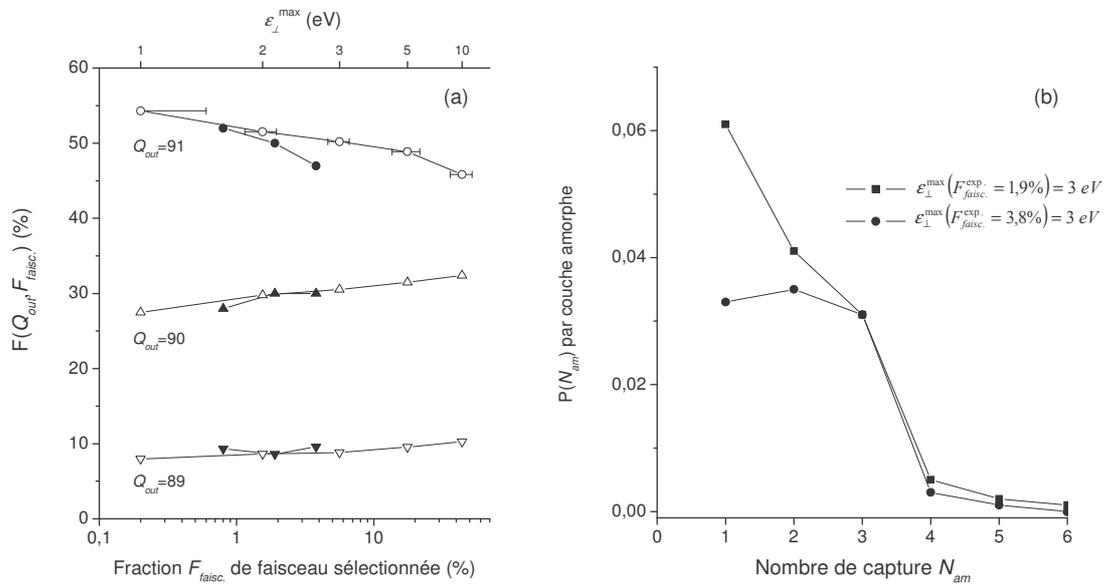


figure 79 : (a) Fractions d'état de charge $Q_{out}=91$, 90 et 89 en fonction de la fraction d'ions hypercanalisés sélectionnée (symboles pleins : expérience, symboles creux : simulation avec la distribution angulaire de faisceau déterminée au paragraphe B.I.1)(c(i)) Les barres d'erreur sur les points simulés $F(Q_{out}=91)$ correspondent à l'incertitude sur la distribution angulaire du faisceau. (b) Probabilités $P(N_{am})$ de captures simple et multiple par couche amorphe (N_{am} =nombre d'électrons capturés) obtenues par ajustement des fractions d'état de charge simulées sur les fractions mesurées pour $F_{faisc.}^{exp} = 1,9\%$ et $F_{faisc.}^{exp} = 3,8\%$.

Il n'est pas facile de statuer sur les énergies transverses réduites ϵ_{\perp}^{max} auxquelles correspondent les fractions de faisceau sélectionnées $F_{faisc.}^{exp}$. Il est probable que la sélection expérimentale sur les multiplicités d'électrons secondaires émis en surface du cristal ne soit pas stricte (principalement à cause du caractère statistique de l'émission), c'est-à-dire que la coupure moyenne en énergie transverse réduite qu'on associe à une fraction $F_{faisc.}^{exp}$ est certainement supérieure à ϵ_{\perp}^{max} . Ceci semble confirmé par le désaccord entre les variations mesurées et simulées de la fraction d'ions gelés en fonction de $F_{faisc.}$. Nous avons donc considéré que la coupure en énergie transverse réduite ϵ_{\perp}^{max} de 3 eV correspond à l'une ou l'autre des fractions $F_{faisc.}^{exp} = 1,9\%$ et 3,8%. La figure 79(b) présente les probabilités de captures simple et multiple par couche amorphe obtenues par ajustement des fractions d'état

de charge simulées sur les fractions mesurées pour $F_{faisc.}^{exp} = 1,9\%$ et $F_{faisc.}^{exp} = 3,8\%$. Comme on pouvait s'y attendre au vu des fractions importantes d'états de charge $Q_{out}=87, 88$ dans la sélection des ions très bien canalisés (figure 58), la distribution du nombre d'électrons capturés en couches amorphes n'est pas poissonnienne. Ceci laisse à penser que la probabilité de capture des deux électrons K d'un atome de silicium est peut-être du même ordre de grandeur que la probabilité de capture simple. Nous avons utilisé dans nos simulations les probabilités $P(N_{am})$ de capture par couche amorphe suivantes (où N_{am} est le nombre d'électrons capturés dans une couche amorphe) : $P(N_{am}=1)=0,3$, $P(N_{am}=2)=0,3$, $P(N_{am}=3)=0,25$.

(v) *Le balayage angulaire de l'axe <110>*

Nous avons vu au paragraphe A.IV.6), que les conditions de faisceau ou d'alignement ont changé entre les acquisitions dédiées à la détermination des distributions de charge et celle du balayage angulaire de l'axe <110>. L'évolution des fractions d'état de charge en fonction de l'angle de désalignement ψ_0 du faisceau avec la direction cristalline <110> n'a donc pu être utilisée pour contraindre précisément la distribution angulaire du faisceau et le nombre de MEC effectif $N_{MEC}^{<110>}(r_{min}^e)$. Cependant, à partir du nombre $N_{MEC}^{<110>}(r_{min}^e)$ et de la distribution $G_F(\psi)$ déterminés au paragraphe B.I.1)(c)(i), nous avons pu assez bien reproduire la distribution de charge mesurée pour $\psi_0=0^\circ$ en augmentant la fraction F_F^{large} et en laissant les autres paramètres inchangés ($\sigma_X^E = \sigma_Y^E = 0,14$ mrad et $\sigma_X^L = \sigma_Y^L = 0,43$ mrad.).

L'évolution, en fonction de ψ_0 , des fractions $F(Q_{out}=91$ à $86)$ simulées avec $F_F^{large} = 50\%$ est comparée figure 80 à l'évolution mesurée. Le fait qu'à partir de $\psi_0=0,01^\circ$, la pente de décroissance des fractions simulées $F(Q_{out}=91)$ et $F(Q_{out}=90)$ soit proche de la pente mesurée indique *a priori* que la divergence du faisceau n'a pas dû beaucoup changer. En revanche, l'évolution de ces fractions entre $\psi_0=0^\circ$ et $0,01^\circ$ suggère un léger désalignement initial $\delta\psi_X^0$, $\delta\psi_Y^0$ du faisceau avec l'axe <110>. On obtient en effet avec une fraction F_F^{large} de 45% et des angles $\delta\psi_X^0$, $\delta\psi_Y^0$ respectivement de $0,003^\circ$ et $0,007^\circ$ un très bon accord entre les évolutions simulée et mesurée des fractions $F(Q_{out}=91$ à $86)$ qui confirme principalement le nombre moyen de captures effectives $N_{MEC}^{<110>}(r_{min}^e)$.

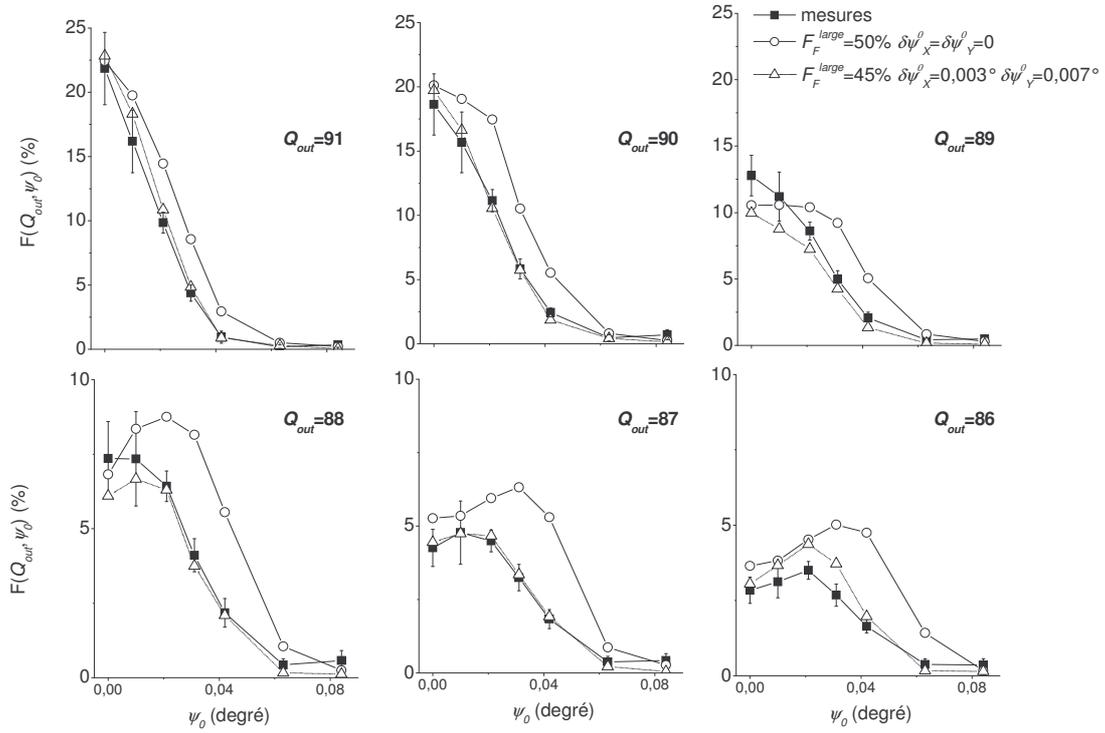


figure 80 : évolutions, mesurées et simulées en fonction de l'angle de désalignement ψ_0 , des fractions d'état de charge $F(Q_{out}=91 \text{ à } 86)$ des ions U^{91+} de 20 MeV/u canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ du cristal de silicium de 11,7 μm . (F_F^{large} est la fraction de composante large dans le faisceau, $\delta\psi_X^0, \delta\psi_Y^0$ sont les angles de désalignement initial - $\sigma_X^E = \sigma_Y^E = 0,14$ mrad et $\sigma_X^L = \sigma_Y^L = 0,43$ mrad.).

(vi) Distributions de perte d'énergie relative des ions canalisés

Comme la perte d'énergie réduite calculé dans nos simulations, la perte relative d'énergie réduite $\overline{\Delta\mathcal{E}}/\mathcal{E}$ des ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u, canalisés dans le cristal de silicium de 11,7 μm , a été exprimée en fonction de la densité électronique moyenne rencontrée $\overline{\rho}_e(r_{min}^e)$:

$$\frac{\overline{\Delta\mathcal{E}}(r_{min}^e)}{\mathcal{E}} = \alpha \overline{\rho}_e(r_{min}^e) F_{\rho_e}(r_{min}^e) + \beta \quad \text{équation 84}$$

où α (en \AA^3) et β rendent compte respectivement de la perte d'énergie par collisions proches et distantes avec les électrons de la cible et $F_{\rho_e}(r_{min}^e)$ est un facteur qui prend en compte le caractère non local des transferts d'énergie par collisions proches (cf. paragraphe B.I.1)). Le

produit $\bar{\rho}_e F_{\rho_e}(r_{\min}^e)$ sera considéré comme une densité effective d'électrons rencontrés dans la perte d'énergie des ions.

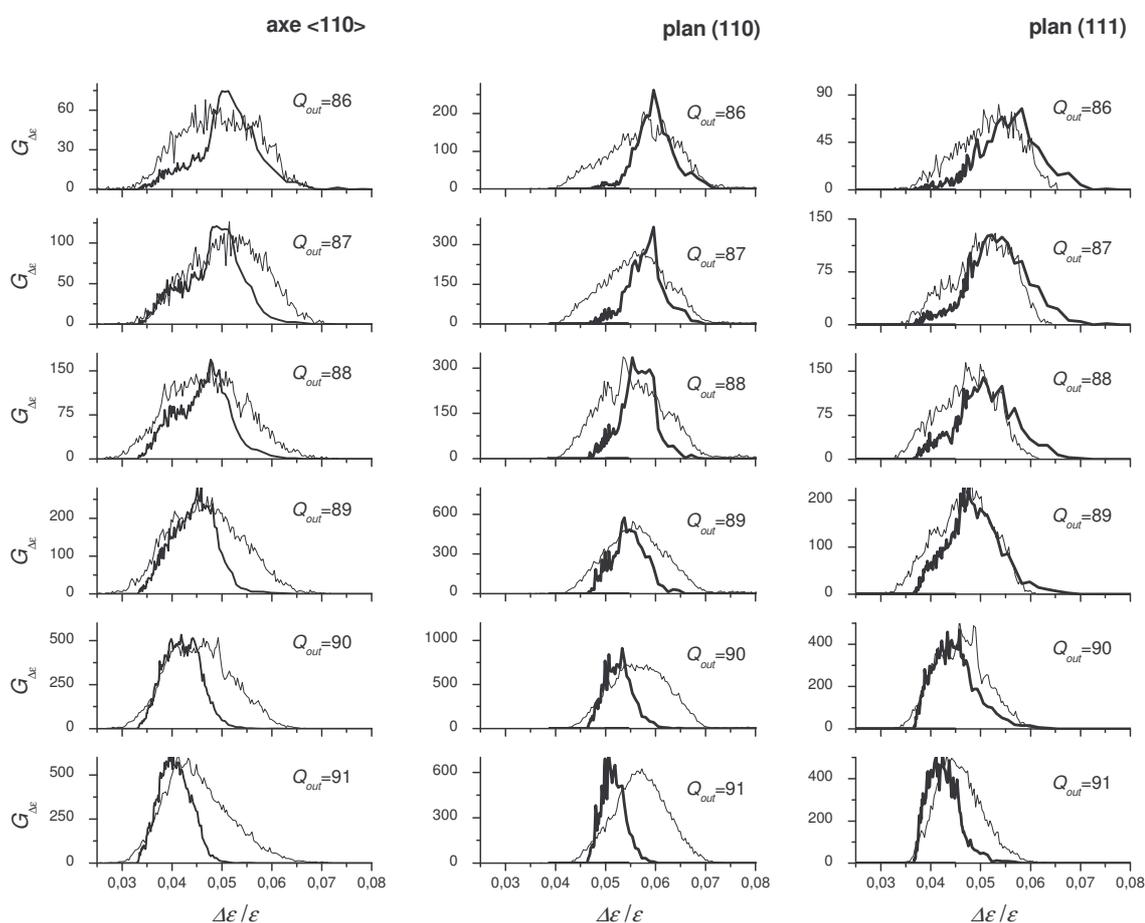


figure 81 : distributions mesurées (lignes fines) et simulées (lignes épaisses) de distributions de pertes d'énergie réduites relatives $G_{\Delta E}(Q_{out})$ en fonction de l'état de charge Q_{out} des ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u dans l'axe <110> et les plans (110) et (111) du cristal de silicium de 11,7 μm .

Cette modélisation rudimentaire de la perte d'énergie est une première approche de calculs plus complets prenant en compte la dépendance en fonction du paramètre d'impact b_e (vis-à-vis des électrons cible) des transferts d'énergie des projectiles aux électrons cible : le but est de sommer sur l'ensemble des paramètres d'impact b_e , et en chaque point de l'espace transverse, les transferts d'énergie aux électrons, pondérés par la densité électronique locale $\rho_e(b_e)$. Ce genre de calcul a par exemple été effectué de manière analytique par Andersen *et al.* [Andersen *et al.* 1996] dans le cas de la perte d'énergie (traitée de manière classique) des ions Br^{33+} de 15,6 MeV/u canalisés dans l'axe <110> d'un cristal de silicium de 1,1 μm . On peut également citer l'étude théorique de la perte

d'énergie d'ions ^4He et ^7Li de haute énergie canalisés dans un cristal de silicium effectuée à partir des calculs UCA de Schiwietz *et al.* [Schiwietz *et al.* 1999] (voir le paragraphe C.IV. du chapitre I).

Le but de notre modélisation était de reproduire simplement les distributions mesurées de pertes d'énergie réduites relatives $G_{\Delta E}(Q_{out})$ des ions incidents U^{91+} canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et les plans (110) et (111) du cristal de silicium de $11,7 \mu\text{m}$ (présentées en lignes fines sur la figure 81). Ces distributions sont les distributions de pertes d'énergie relatives, corrigées de la dépendance en Q^2 de la perte d'énergie en considérant que l'état de charge moyen (le long de la trajectoire) des ions bien canalisés est la moyenne quadratique des états de charge Q_{in} et Q_{out} .

Les distributions simulées $G_{\Delta E}(Q_{out})$ présentées en lignes épaisses sur la même figure ont été obtenues à partir :

- des densités électroniques moyennes rencontrées $\bar{\rho}_e(r_{min}^e)$ et des distributions simulées $D(Q_{out}, r_{min}^e)$ de distances r_{min}^e , en fonction de l'état de charge $Q_{out} \geq 86$ présentées sur la figure 82.
- de l'ajustement des paramètres α , β et $F_{\rho_e}(r_{min}^e)$. Notons que α et β ne sont pas indépendants car la perte d'énergie réduite calculée dans le cas de l'orientation aléatoire de la cible, avec une densité électronique de 0,7 électron par \AA^3 doit correspondre à la la perte d'énergie réduite mesurée.

Avant de comparer les distributions $G_{\Delta E}(Q_{out})$ mesurées et simulées, on remarque que les distributions simulées $D(Q_{out}, r_{min}^e)$ sont relativement similaires car les nombres de captures $N_{MEC}(r_{min}^e)$ dans l'axe et dans les plans sont relativement proches. Les distributions simulées dans le plan (110) sont cependant plus étroites que les autres à cause de l'espace interplanaire relativement petit dans ce plan. Les ions qui restent gelés ou qui sont transmis en ayant capturé un seul électron ont des distributions $D(r_{min}^e)$ larges qui s'étendent de $r_{min}^e \sim 0,4 \text{\AA}$ environ à la distance r_{min}^e correspondant à une énergie transverse

réduite pratiquement nulle. A partir de cinq captures, le centroïde des distributions $D(Q_{out}, r_{min}^e)$ tend rapidement vers une distance r_{min}^e de 0,4 Å environ et la largeur de ces distributions est de plus en plus étroite.

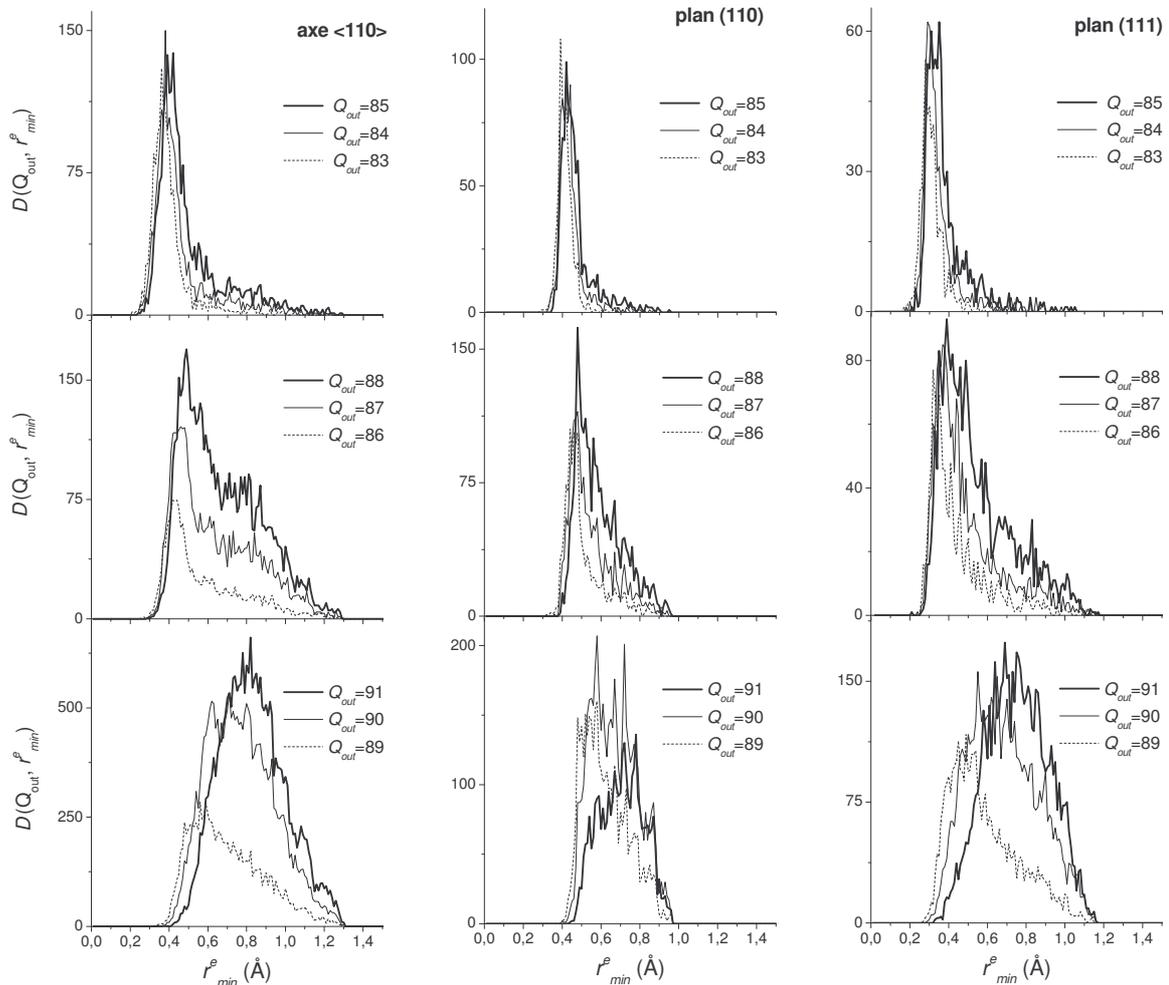


figure 82 : distributions $D(Q_{out}, r_{min}^e)$ de distances r_{min}^e , en fonction de l'état de charge $Q_{out} \geq 86$ des ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u, canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et les plans (110) et (111) du cristal de silicium de 11,7 μm .

Le meilleur accord entre les distributions $G_{\Delta E}(Q_{out})$ simulées et mesurées est obtenu avec des valeurs de paramètres α et β respectivement de 0,06 Å³ et de 0,028 et des densités électroniques effectives simulées $\bar{\rho}_e F_{\rho_e}(r_{min}^e)$ présentées figure 83 pour chacune des orientations cristallines. Le centroïde des distributions simulées dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et le plan (111) est relativement proche du centroïde des distributions mesurées. En revanche, la largeur des distributions simulées est globalement sous-estimée et les simulations ne

reproduisent pas la perte d'énergie relativement élevée des ions d'état de charge $Q_{out}=91, 90$ transmis à travers le plan (110), bien que la densité électronique effective simulée $\bar{\rho}_e F_{\rho_e}(r_{min}^e)$ soit nettement supérieure à celle utilisées dans l'axe et dans le plan (111). Ces désaccords peuvent être attribués à la simplicité de notre modèle de perte d'énergie mais il est probable que la précision du spectromètre ne soit pas vraiment suffisante pour effectuer une étude détaillée de la perte d'énergie des ions canalisés en fonction de leur espace transverse accessible. Malgré ces désaccords, les simulations mettent vraisemblablement en évidence un décalage de 0,2 à 0,3 Å en r_{min} entre les densités électroniques $\bar{\rho}_e$ et les densités électroniques effectives $\bar{\rho}_e F_{\rho_e}(r_{min}^e)$ de l'axe <110> et du plan (111). Ce décalage donne une idée du paramètre d'impact b_e typique auquel s'effectuent les transferts d'énergie qui contribuent le plus, en condition de canalisation, à la perte d'énergie des ions uranium très chargés.

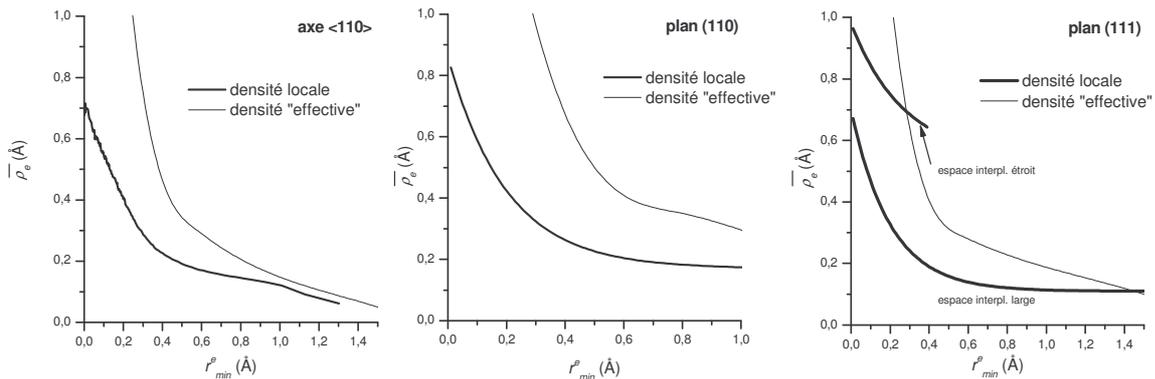


figure 83 : densités électroniques moyennes rencontrées sur l'espace transverse accessible des ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u canalisés dans l'axe <110> et les plans (110) et (111) en fonction de la distance r_{min}^e : densités électroniques moyennes $\bar{\rho}_e$ en lignes épaisses et densités électroniques effectives $\bar{\rho}_e F_{\rho_e}(r_{min}^e)$ utilisées pour simuler les distributions de perte d'énergie relative (valeurs de $\bar{\rho}_e F_{\rho_e}(r_{min}^e) > 0,7$ Å non significatives).

(vii) Fractions des ions non canalisés dans les plans

La figure 84 présente les distributions $G(r_{min}^s)$ des distances r_{min}^s en sortie du cristal simulées dans l'axe <110> et les plans (110) et (111) avec la distribution angulaire de faisceau déterminée au paragraphe B.I.1)(c)(i) et en prenant en compte l'augmentation d'énergie transverse des projectiles due aux collisions électroniques et nucléaires. Le réchauffement par collisions nucléaires est évalué à partir des calculs de trajectoires

présentés au paragraphe suivant. Les principales différences entre ces distributions $G(r_{\min}^s)$ et les distributions $G(r_{\min}^e)$ de distances r_{\min} à l'entrée du cristal présentées figure 71 sont les suivantes :

- Les paramètres d'impact maximum des distributions $G(r_{\min}^s)$ sont fortement diminués à cause du réchauffement transverse par collisions électroniques.
- Les proportions d'ions $F(r_{\min}^s = 0)$ dont la distance r_{\min} est nulle en sortie du cristal dans le cas des plans sont supérieures de 60 % environ par rapport à celles calculées à l'entrée.

	fraction du faisceau non canalisée à l'entrée du cristal	fraction du faisceau non canalisée en sortie du cristal	Fraction d'ions de fortes multiplicités N_{Si-out} (mesures)
plan (110)	10 %	16 %	23 %
plan (111)	14 %	25 %	29 %

tableau 3 : fractions simulées, dans les plans (110) et (111), d'ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u non canalisés en sortie du cristal.

A priori, on peut s'attendre à ce que les fractions $F(r_{\min}^s = 0)$ soient proches des fractions $F(N_{Si-out} > N_{Si-out}^{\min})$ d'ions associés à de fortes multiplicités d'électrons secondaires en sortie du cristal (avec $N_{Si-out}^{\min} = 2000$ dans le plan (110) et $N_{Si-out}^{\min} = 2200$ dans le plan (111)). Le tableau 3 montre que les fractions simulées $F(r_{\min}^s = 0)$ sont inférieures aux fractions expérimentales $F(N_{Si-out} > N_{Si-out}^{\min})$ de 30 % dans le plan (110) et de 15 % dans le plan (111). Cet écart peut être attribué aux approximations de nos simulations ; on peut également penser que les ions de faibles distances r_{\min} (non nulles), typiquement inférieures à 0,1 Å, émettent également de fortes multiplicités N_{Si-out} d'électrons secondaires en sortie du cristal; ils représentent une fraction de faisceau $G^{(110)}(0 < r_{\min}^s < 0,1 \text{ \AA})$ et $G^{(111)}(0 < r_{\min}^s < 0,1 \text{ \AA})$ respectivement de 5 % et 7 %.

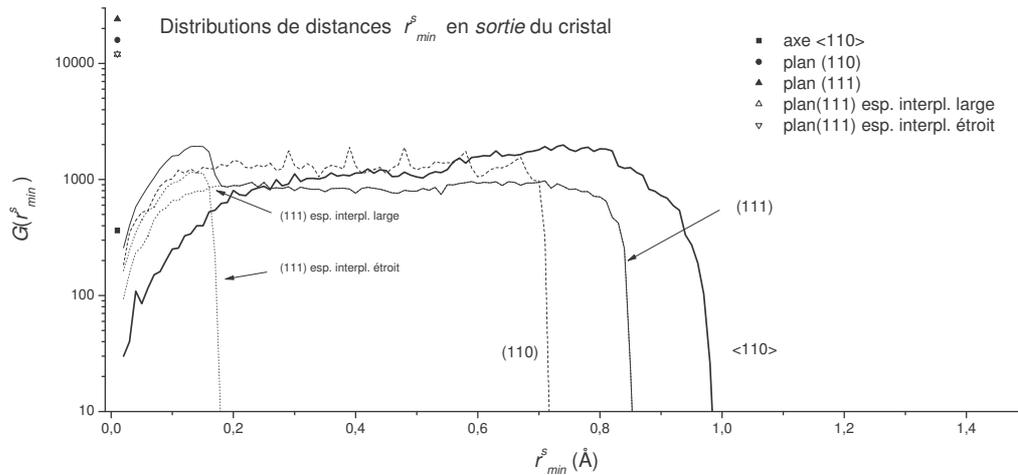


figure 84 : distributions, dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et les plans (110) et (111), de distance minimale d'approche r_{\min}^s à la sortie du cristal, d'ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u canalisés dans un cristal de silicium (distribution angulaire de faisceau déterminée au paragraphe B.I.1)(c)(i) ; nombre de tirages : 100000).

(d) Conclusion

Nos simulations d'échange de charge fondées sur l'équilibre du flux permettent de reproduire les principales données expérimentales, notamment les distributions d'états de charge Q_{out} des ions transmis dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et dans les plans (110) et (111) ainsi que les probabilités de REC-K, -L en fonction de Q_{out} dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et (110). La compétition entre les processus de capture mécanique et radiative a été évaluée par l'intermédiaire des nombres moyens de captures $N_{MEC}(r_{\min}^e)$ et $N_{REC}(r_{\min}^e)$ et le coefficient C_{REC} appliqué à la section efficace de Stobbe a été estimé à $1,3 \pm 0,2$.

La détermination de la probabilité $P_{MEC}^{eff}(b)$ de capture mécanique effective par atome de silicium nécessite le calcul de distributions de paramètres d'impact vis-à-vis des atomes cible et donc des calculs de trajectoires simulées par le programme présenté dans la première partie du chapitre II. La probabilité $P_{MEC}^{eff}(b)$ peut, en effet, être déduite des nombres moyens de MEC $N_{MEC}^{axe}(r_{\min}^e)$ et $N_{MEC}^{plan}(r_{\min}^e)$ simulées lors de la traversée du cristal par l'intermédiaire de la relation suivante :

$$N_{MEC}^{orient.}(r_{min}^e) = \int P_{MEC}^{eff}(b) \Phi_{r_{min}^e}^{orient.}(b) db \quad \text{équation 85}$$

où $\Phi_{r_{min}^e}^{orient.}(b)$ est la distribution de paramètre d'impact b vis-à-vis de l'atome cible le plus proche, pour une distance r_{min}^e d'approche des rangées ou des plans atomiques (*orient.* correspond à l'orientation du cristal suivant l'axe $\langle 110 \rangle$ ou les plans (110) ou (111)). Les deux parties suivantes sur les simulations d'échange de charge présentent les calculs de trajectoire et la détermination de la probabilité $P_{MEC}^{eff}(b)$ qui permet non seulement de mieux connaître le processus de capture mécanique, mais aussi de vérifier la cohérence entre les nombres de captures mécaniques simulées dans les différentes orientations du cristal.

2) Les grandeurs déterminées par calcul de trajectoires

(a) Les distributions de paramètres d'impact b

Les distributions $\Phi_{r_{min}^e}(b)$ présentées figure 85 ont été obtenues en moyennant les distributions de 900 trajectoires d'ions entrant dans le cristal de $11,7 \mu\text{m}$ à une distance r des rangées ou des plans (r allant de $0,25$ à $0,55 \text{ \AA}$, par pas de $0,05 \text{ \AA}$), avec un angle d'incidence nul par rapport à la direction cristalline (c'est-à-dire sans énergie cinétique transverse à l'entrée du cristal). La distance r est donc égale à la distance minimale d'approche r_{min}^e des rangées et des plans cristallins. Dans l'axe cependant, les lignes d'équipotentiel ne sont plus tout à fait circulaires lorsque l'on s'éloigne des rangées. La queue de la distribution $\Phi_{r_{min}^e=0,55 \text{ \AA}}^{\langle 110 \rangle}(b)$ à faible paramètre d'impact semble ainsi légèrement surestimée lorsqu'on la compare à celles des autres distributions.

Dans, le cas du plan (111), les distributions de la figure 85 correspondent uniquement aux ions situés dans l'espace interplanaire le plus large ($d_{(111)}^L=1,12 \text{ \AA}$). Les distributions $\Phi_{r_{min}^e}(b)$ dans chacun des deux espaces interplanaires sont présentées figure 86. On constate que les ions canalisés dans l'espace interplanaire étroit ($d_{(111)}^E=0,40 \text{ \AA}$) se trouvent plus souvent près des atomes cible pour une même distance minimale d'approche r_{min}^e . On peut donc s'attendre à un changement du nombre de MEC effectif $N_{MEC}^{(111)}(r_{min}^e)$ au voisinage de $r_{min}^e=0,4 \text{ \AA}$. Dans l'étude de la capture mécanique en fonction du paramètre

d'impact vis-à-vis des atomes cible, c'est la queue des distributions $\Phi_{r_{\min}^e}(b)$ à faible paramètres d'impact qui est déterminante car la probabilité de capture mécanique décroît très rapidement quand b croît. Cette queue de distribution dépend essentiellement des vibrations thermiques, comme l'illustre la comparaison des distributions de paramètres d'impact b vis-à-vis des atomes cible, avec et sans vibrations thermiques, dans l'axe $\langle 110 \rangle$ présentées figure 87 pour $r_{\min}^e = 0,35 \text{ \AA}$.

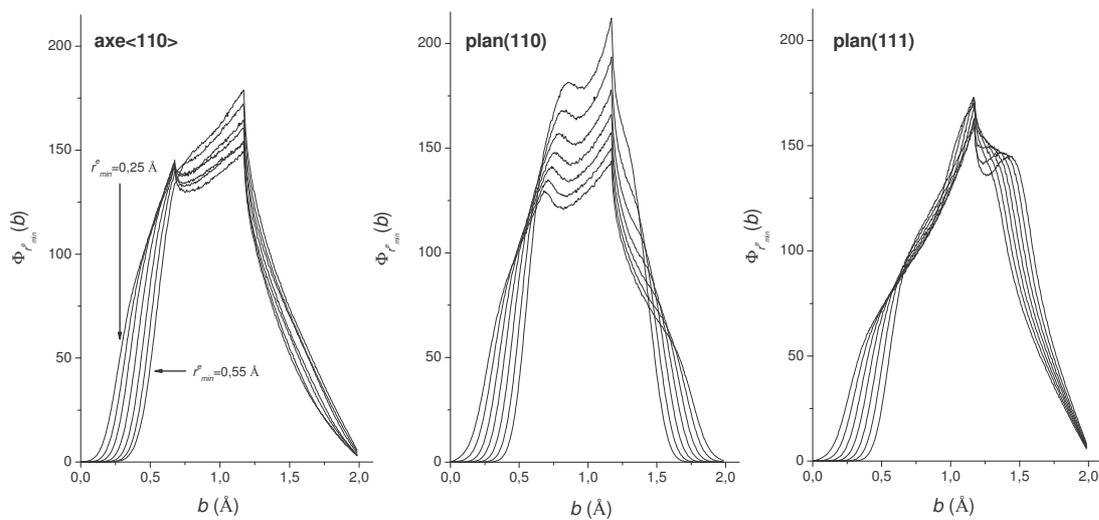


figure 85 : distributions $\Phi_{r_{\min}^e}(b)$ de paramètres d'impact b aux atomes, d'ions U^{91+} de 20 MeV/u canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et dans les plans (110) et (111) du cristal de silicium de $11,7 \mu\text{m}$ (distributions déterminées par calculs de trajectoires). Les distances minimales d'approche r_{\min}^e considérées s'échelonnent de 0,25 à 0,55 Å, par pas de 0,05 Å. Le réchauffement transverse n'est pas pris en compte.

Les distributions $\Phi_{r_{\min}^e}(b)$ obtenues dans l'axe et dans les plans avec deux distances minimales d'approche aux rangées ou aux plans r_{\min}^e sont comparées sur la figure 88 pour des paramètres d'impact b inférieurs à 0,5 Å. Les distributions sont très voisines pour une distance minimale d'approche aux rangées relativement grande ($r_{\min}^e = 0,4 \text{ \AA}$). En revanche, dans les plans et pour une distance $r_{\min}^e = 0,25 \text{ \AA}$, une fraction importante des ions subissent des collisions à grands angles. Ces ions présentent des distributions de paramètres d'impact qui se rapprochent de la distribution obtenue en orientation aléatoire et les valeurs

de $\Phi_{r_{\min}}(b)$ calculées dans les plans sont donc nettement supérieures à celles de l'axe à faibles paramètres d'impact.

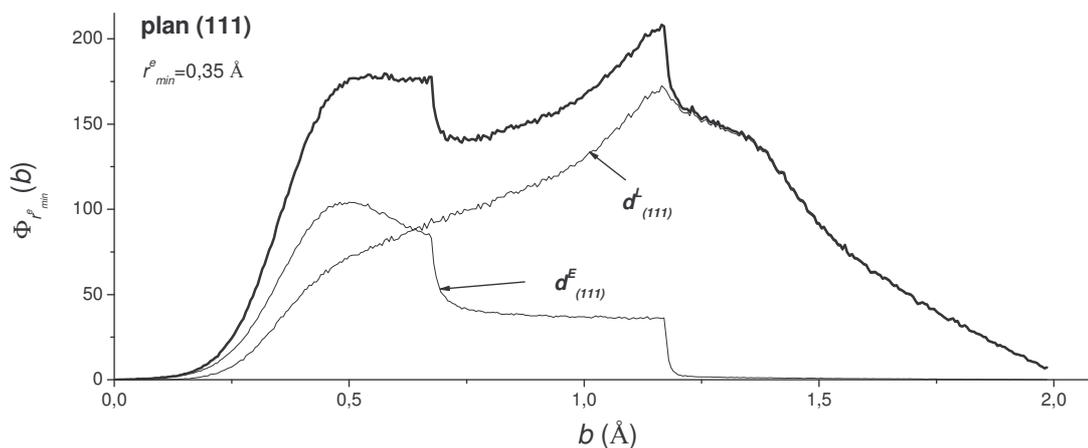


figure 86 : distributions $\Phi_{r_{\min}}(b)$ dans chacun des deux espaces interplanaires du plan (111), de largeur respective $d^{L(111)}=1,12 \text{ \AA}$ et $d^{E(111)}=0,40 \text{ \AA}$ (lignes fines). La somme de ces distributions est représentée en ligne épaisse.

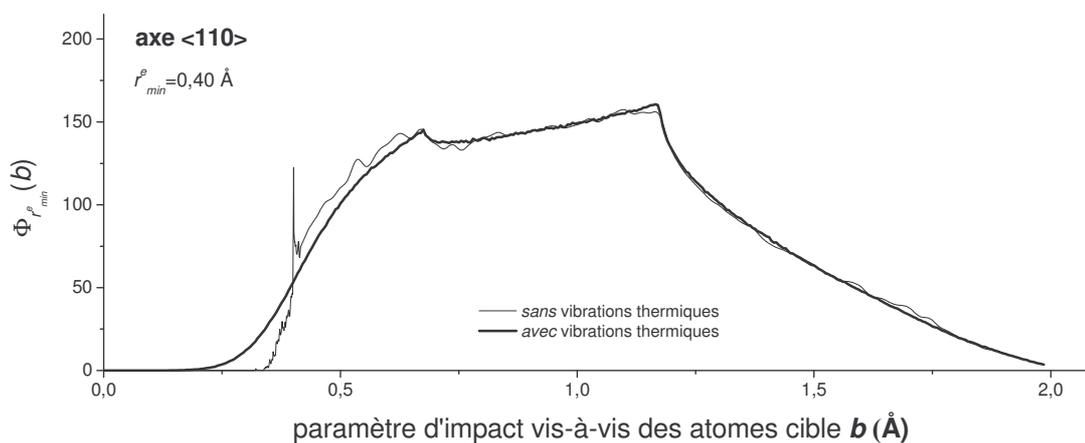


figure 87 : distributions dans l'axe $\langle 110 \rangle$ de paramètres d'impact b aux atomes cible avec et sans vibrations thermiques pour $r_{\min}^e=0,35 \text{ \AA}$ des ions U^{91+} de 20 MeV/u canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ du cristal de silicium de $11,7 \text{ \mu m}$.

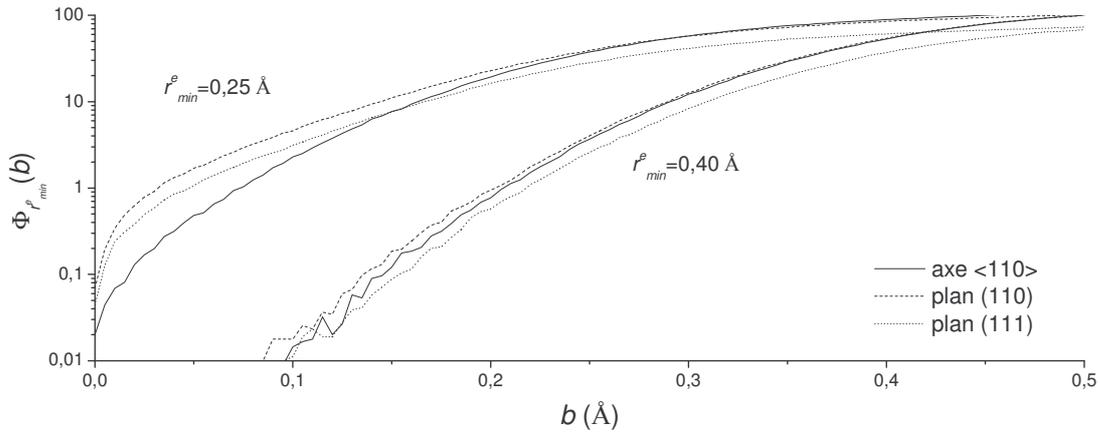


figure 88 : comparaison des distributions $\Phi_{r_{min}^e}(b)$ dans l'axe $\langle 110 \rangle$, dans le plan (110) et dans l'espace interplanaire large du plan (111) pour des distances r_{min}^e de 0,25 Å et 0,40 Å.

(b) Les fractions d'ions décanalisés par déflexion à grand angle en fonction de la distance r_{min}^e

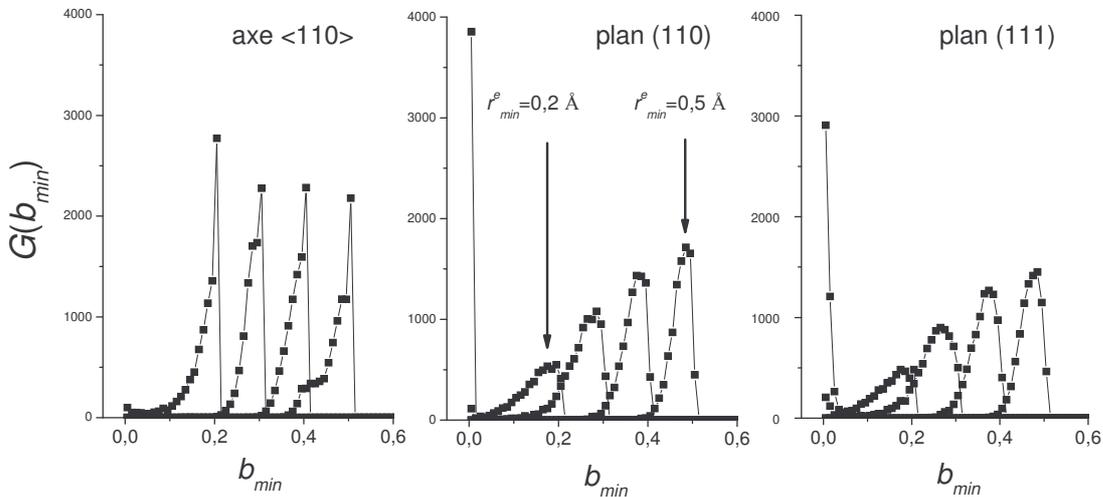


figure 89 : distributions de paramètres d'impact minimaux aux atomes b_{min} des ions U^{91+} de 20 MeV/u canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et dans les plans (110) et (111) du cristal de silicium de 11,7 μm pour des distances $r_{min}^e = 0,2, 0,3, 0,4$ et 0,5 Å.

La probabilité importante de déflexion à grand angle dans les plans pour r_{min}^e inférieure à 0,25 Å environ est illustrée par la figure 89. Cette figure présente les

distributions de paramètres d'impact minimaux b_{min} vis-à-vis des atomes cible dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et dans les plans (110) et (111) pour des distances r_{min}^e de 0,2, 0,3, 0,4 et 0,5 Å. La partie des distributions proches de r_{min}^e correspond à la fluctuation de b_{min} due aux vibrations thermiques des atomes. Leur largeur est donc du même ordre que l'amplitude moyenne $u_l=0,07$ Å de ces vibrations.

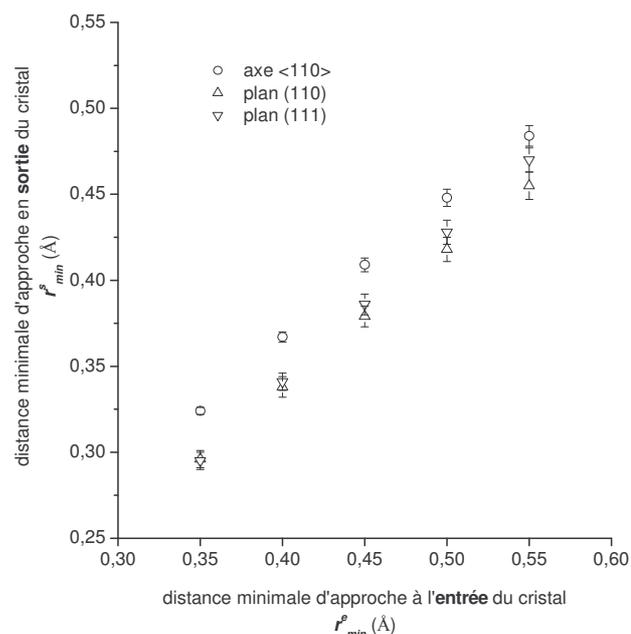


figure 90 : distance minimale d'approche r_{min}^s en sortie du cristal en fonction de la distance minimale d'approche r_{min}^e à l'entrée du cristal des ions U^{91+} de 20 MeV/u canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et les plans (110) et (111) du cristal de silicium de 11,7 μm . Les barres d'erreur correspondent à une incertitude de $\pm 10\%$ sur la perte d'énergie.

A partir de $r_{min}^e < 0,3$ Å, apparaît dans les plans une fraction $F_{déca}(r_{min}^e)$ d'ions de b_{min} nul, décanalisés par une ou plusieurs collisions proches avec les noyaux cible. Pour $r_{min}^e = 0,2$ Å par exemple, $F_{déca}^{(110)}(r_{min}^e = 0,2 \text{ Å}) \sim 40\%$ et $F_{déca}^{(111)}(r_{min}^e = 0,2 \text{ Å}) \sim 30\%$ alors que dans l'axe, la fraction $F_{déca}^{\langle 110 \rangle}(r_{min}^e = 0,2 \text{ Å})$ est beaucoup plus faible (de l'ordre du pourcent) car le gradient du potentiel répulsif des rangées atomiques est beaucoup plus fort que celui des plans. Ces fractions simulées $F_{déca}(r_{min}^e)$ ont été introduites dans le programme d'échanges de charge pour prendre en compte la décanalisation par collision avec les noyaux cible et évaluer les grandeurs suivantes sur les deux composantes d'ions de faibles états de charge de sortie identifiées dans les plans :

- les fractions d'ions qui ressortent non canalisés dans les plans (cf. paragraphe 1)(c)(vii))

- les distances minimales d'approche des plans atomiques r_{\min}^e à l'entrée du cristal des ions qui traversent le cristal en effectuant plus de dix captures, et qui ressortent en étant canalisés (c'est-à-dire qui ressortent du cristal avec une distance r_{\min} non nulle) et ceux qui ne sont pas canalisés ou qui sont décanalisés (cf. paragraphe A.III.3)).

(c) *Prise en compte du réchauffement transverse électronique*

L'influence du réchauffement sur les distributions $\Phi_{r_{\min}}(b)$ de paramètres d'impact b est prise en compte de la manière suivante :

- La distance minimale d'approche r_{\min}^s en sortie du cristal est calculée à partir de la perte d'énergie moyenne $\overline{\Delta E}(r_{\min}^e)$ des ions en fonction de la distance minimale d'approche r_{\min}^e à l'entrée du cristal. Cette relation entre $\overline{\Delta E}$ et r_{\min}^e est déterminée par l'ajustement, présenté au paragraphe B.I.1)(c)(vi), des distributions d'énergie $G_{\Delta E}(Q_{out})$ des ions d'état de charge $Q_{out} \geq 86$ sur les distributions expérimentales. La figure 90 présente la distance minimale d'approche r_{\min}^s en sortie du cristal en fonction de la distance minimale d'approche r_{\min}^e à l'entrée du cristal des ions U^{91+} de 20 MeV/u canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et les plans (110) et (111). Le réchauffement transverse est plus important dans les plans que dans l'axe et légèrement plus grand dans le plan (110) que dans le plan (111). La densité électronique moyenne loin des plans d'atomes est en effet plus forte dans le plan (110) que dans le plan (111).
- Les distributions de paramètres d'impact $\phi_{r_{\min}^e}(b)$ qui prennent en compte le réchauffement transverse sont déterminées par moyenne quadratique de $\Phi_{r_{\min}^e}(b)$ et $\Phi_{r_{\min}^s}(b)$, en supposant que le réchauffement transverse (électronique) augmente linéairement avec la profondeur de cible traversée. Cette hypothèse est probablement inexacte mais la manière dont

augmente l'énergie transverse influe peu sur la distribution de paramètres d'impact dans le cristal.

3) Probabilité de MEC effectif par atome

(a) Probabilité simulée de MEC effectif par atome

La probabilité $P_{MEC}^{eff}(b)$ de MEC effectif par atome est déterminée dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et dans les plans (110) et (111) en ajustant les intégrales $\int P_{MEC}^{eff}(b) \phi_{r_{min}^e}(b) db$ aux nombres moyens de MEC effectifs $N_{MEC}(r_{min}^e)$ (déterminés par le programme d'échanges de charge à partir des données expérimentales), pour r_{min}^e allant de 0,35 Å à 0,55 Å (par pas de 0,05 Å). Le fait que l'on obtienne pratiquement la même probabilité de MEC effectif par atome dans l'axe et dans les plans met en évidence la cohérence globale de nos simulations. Ces probabilités $P_{MEC}^{eff}(b)$ sont comparées dans la figure 91 avec les probabilités théoriques de MEC $P_{MEC}^{n_f}(b)$ ($n_f \leq 5$) calculées par Rivarola *et al.* [Rivarola - communication privée].

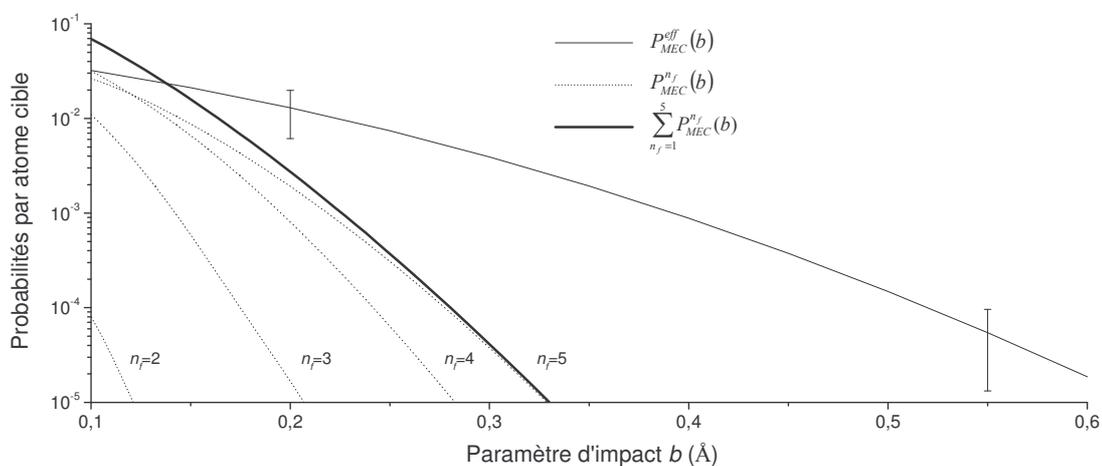


figure 91 : probabilités simulées $P_{MEC}^{eff}(b)$ de MEC effectif et probabilités théoriques $P_{MEC}^{n_f}(b)$ [Rivarola - communication privée], par atome cible de silicium, pour des ions U^{91+} de 20 MeV/u, en fonction du paramètre d'impact b vis-à-vis de l'atome cible.

La probabilité de MEC effectif simulé est nettement supérieure à la somme des probabilités de MEC théoriques, ce qui confirme l'allure des sections efficaces théoriques

Chapitre IV

CDW en fonction de la couche n_f : la grande majorité des captures mécaniques s'effectuent sur des couches n_f supérieures à 4 (figure 14). Une idée de l'incertitude sur cette probabilité $P_{MEC}^{eff}(b)$ due aux incertitudes sur les nombres de MEC effectifs simulés est donnée par les barres d'erreur en $b=0,2 \text{ \AA}$ et $0,55 \text{ \AA}$. Les nombres moyens de MEC effectifs $N_{MEC}(b) = P_{MEC}^{eff}(b)\phi_{r_{min}^e}(b)$ en fonction du paramètre d'impact b sont présentées figure 91.

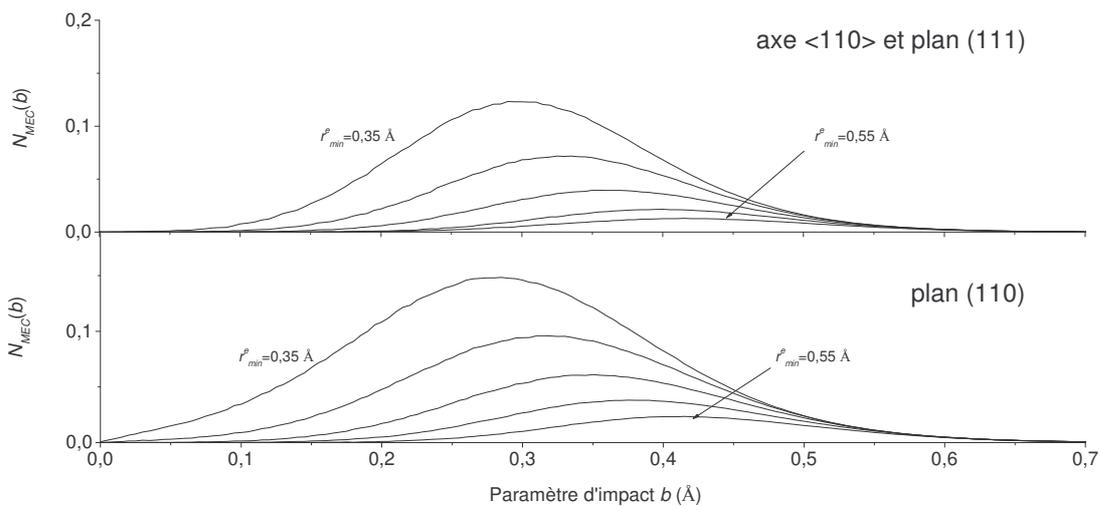


figure 92 : Nombres simulés de MEC effectifs dans l'axe <110> et dans les plans (110) et (111) en fonction du paramètre d'impact b vis-à-vis des atomes cible pour des distances r_{min}^e allant de $0,35 \text{ \AA}$ à $0,55 \text{ \AA}$.

On constate qu'avec les vibrations thermiques des atomes cible et le réchauffement transverse des projectiles, la plupart des captures mécaniques ont lieu à des paramètres d'impact b inférieurs à la distance minimale d'approche r_{min}^e des rangées ou des plans atomiques. Par ailleurs, les nombres moyens de MEC effectifs simulés $N_{MEC}(b)$ permettent de se rendre compte du domaine de paramètres d'impact b sur lequel la probabilité $P_{MEC}^{eff}(b)$ est déterminée relativement précisément. On peut considérer que ce domaine s'étend grossièrement de $0,15 \text{ \AA}$ à $0,5 \text{ \AA}$.

(b) *Comparaison de la probabilité de MEC effectif simulée avec les probabilités théoriques extrapolées*

La figure 91 met en évidence des probabilités élevées de capture sur les couches $n_f > 5$. Malheureusement, ces probabilités ne peuvent être calculées dans le cadre de l'approximation CDW-EIS car le nombre d'états finaux à considérer sur ces couches est trop important. Les paragraphes suivants proposent une extrapolation des probabilités de MEC théoriques qui, associée à une évaluation de la probabilité d'ionisation par impact d'électrons, permet de reproduire la probabilité de MEC effectif par atome simulée, à des paramètres d'impact b supérieurs à 0,25 Å (pour lesquels l'ionisation par impact nucléaire est supposée négligeable).

(i) *Extrapolation des probabilités de capture théoriques*

Pour extrapoler les probabilités de MEC théoriques, nous nous sommes intéressés aux liens éventuels entre les probabilités calculées par Rivarola *et al.* et les fonctions d'onde électroniques des ions U^{91+} . Comme la capture mécanique s'effectue préférentiellement lorsque les orbitales initiale (de la cible) et finale (du projectile) se recouvrent en espace et en impulsion, il est probable en effet qu'il existe des similitudes entre les fonctions $2\pi b |\varphi_{n_f}(b)|^2$ (où $\varphi_{n_f}(b)$ est la fonction d'onde radiale de la couche atomique n_f d'un ion U^{91+} hydrogénoïde) et $bP_{MEC}^{n_f}(b)$.

Tout d'abord, d'un point de vue classique, un bilan rudimentaire en impulsion permet tout d'abord d'interpréter le fait que les captures s'effectuent en grande majorité de la couche K du silicium sur les couches $n \geq 4$ des ions U^{91+} : comme la vitesse initiale $v_i^{n_i}$ de l'électron capturé de la couche n_i du silicium est petite devant la vitesse du projectile $v_p = 28 v_0$ (où v_0 est la vitesse de Bohr), la relation vectorielle $\vec{v}_i^{n_i} \approx \vec{v}_p + \vec{v}_f^{n_f}$ (où $\vec{v}_f^{n_f}$ est la vitesse finale de l'électron sur la couche n_f de l' U^{91+}) suggère que les vitesses \vec{v}_i et $\vec{v}_f^{n_f}$ soient respectivement dans le sens de la direction de propagation du projectile et dans le sens opposé. La probabilité de capture mécanique serait donc d'autant plus élevée que la valeur absolue $\Delta v(n_i, n_f) = |v_p - v_f^{n_f} - v_i^{n_i}|$ est faible. $\Delta v(n_i)$ est tout d'abord minimum pour $n_i = 1$, c'est-à-dire pour une capture d'un électron K de l'atome de silicium. Ensuite, le

Chapitre IV

tableau 4 présente les vitesses moyennes des orbitales d'un atome de silicium et d'un ion U^{91+} hydrogéoïde ainsi que la valeur de $\Delta v(n_i=1, n_f)$ en fonction de la couche n_f de l'uranium sur laquelle est capturé l'électron. On constate que Δv diminue rapidement jusqu'à $n_f \sim 6$ puis augmente lentement au-delà. L'accord en vitesse rend donc compte qualitativement des variations de la section efficace de capture mécanique en fonction de n_f (cf. figure 14).

$v_p(U^{91+})$	28	(vitesses en unité atomique)	
n	$v_f = v_n^{orb}(U^{91+})$	$v_i = v_n^{orb}(Si)$	$ v_p - v_f^{n_f} - v_i^{n_i=1} $
1	91	11,5	75
2	46	4	30
3	30	1	15
4	22		7
5	18		2,5
6	15		0,6
7	13		2,8
8	11		4,4
9	10		5,6
10	9		6,7
11	8		7,5

tableau 4 : vitesses moyennes des orbitales d'un atome de silicium ($v_n^{orb}(Si)$) [Ponce 1977] et d'un ion U^{91+} hydrogéoïde ($v_n^{orb}(U^{91+})$). Bilan en impulsion $\Delta v(n_i=1, n_f) = |v_p - v_f^{n_f} - v_i^{n_i=1}|$.

En ce qui concerne le recouvrement spatial des fonctions d'onde, nous avons étudié le lien entre les fonctions d'onde de l' U^{91+} et les probabilités de capture par couche atomique du projectile (la couche K du silicium avec un rayon moyen $\langle r \rangle_n(Si)$ de 0,06 Å est très localisée autour du noyau cible). Nous avons commencé par comparer les largeurs des fonctions $2\pi b |\varphi_{n_f}(b)|^2$ et $bP_{MEC}^{n_f}(b)$ présentées (en lignes continues) respectivement sur la figure 93 et la figure 94. Pour cela, nous avons approché les fonctions $bP_{MEC}^{n_f}(b)$ par des fonctions gaussiennes $bP_{MEC}^{*n_f}(b)$ (en pointillés) de même largeur que les approximations également gaussiennes des fonctions $2\pi b |\varphi_{n_f}(b)|^2$.

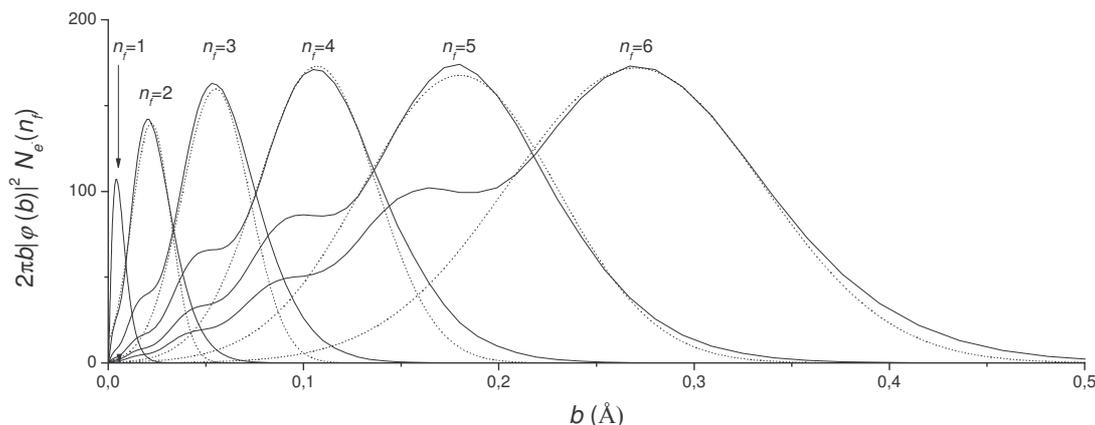


figure 93 : fonctions $2\pi b|\varphi_{n_f}(b)|^2 N_{e^-}(n_f)$ des couches n_f de 1 à 6 de l'ion U^{91+} (où $\varphi_{n_f}(b)$ et $N_{e^-}(n_f)$ sont respectivement la fonction d'onde radiale et le nombre d'électrons de la couche n_f ; $\int 2\pi b|\varphi_{n_f}(b)|^2 db = 1$): calculs théoriques en lignes continues [Indelicato - communication privée], approximations gaussiennes en pointillés.

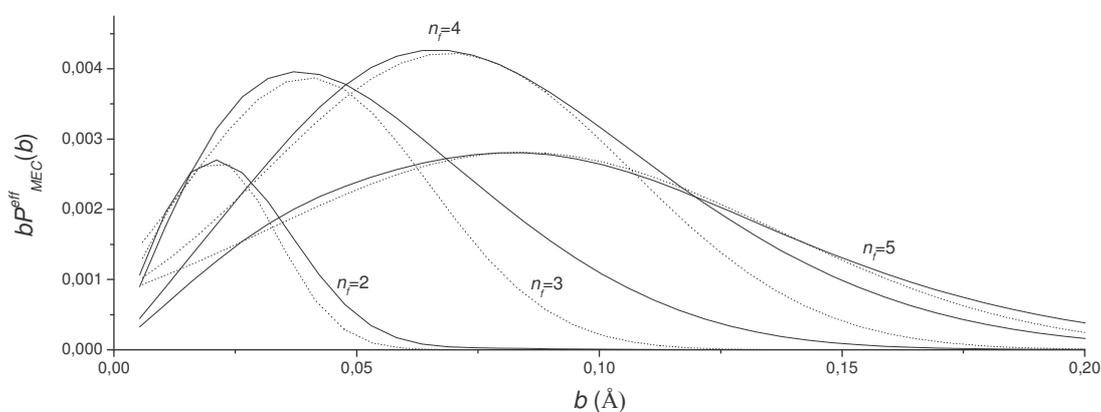


figure 94 : Fonctions $bP_{MEC}^{n_f}(b)$ des ions U^{91+} de 20 MeV/u sur du silicium. Lignes continues : calculs de Rivarola et al. (communication privée). Lignes pointillées : gaussiennes de même largeur que les approximations gaussiennes des fonctions $2\pi b|\varphi_{n_f}(b)|^2 N_{e^-}(n_f)$.

Il semble qu'il y ait effectivement un lien entre les fonctions d'onde de l' U^{91+} et les probabilités de capture et que ce lien soit d'autant plus fort que l'accord en impulsion (évalué par $\Delta v(n_i=1, n_f)$) entre les orbitales initiale et finale de l'électron capturé est bon : en effet, pour $n_f=5$, les largeurs des fonctions $2\pi r|\varphi_n(r)|^2$ et $bP_{MEC}^{n_f}(b)$ sont très proches.

Nous avons donc extrapolé les largeurs des fonctions $bP_{MEC}^{*n_f}(b)$ à partir des largeurs à mi-hauteur des fonctions d'ondes $2\pi r|\varphi_n(r)|^2$.

La relation entre la position $b_{n_f}^{\max}$ du maximum des fonctions $bP_{MEC}^{n_f}(b)$ et le rayon moyen $\langle b \rangle_{n_f}(U^{91+})$ des orbitales du projectile est plus délicate. La figure 95 permet de comparer ces deux grandeurs jusqu'à $n_f=5$, et présente l'extrapolation de $b_{n_f}^{\max}$ utilisée par la suite. Les distances $b_{n_f}^{\max}$ sont nettement inférieures au rayon moyen des orbitales des ions U^{91+} à partir de $n_f=5$.

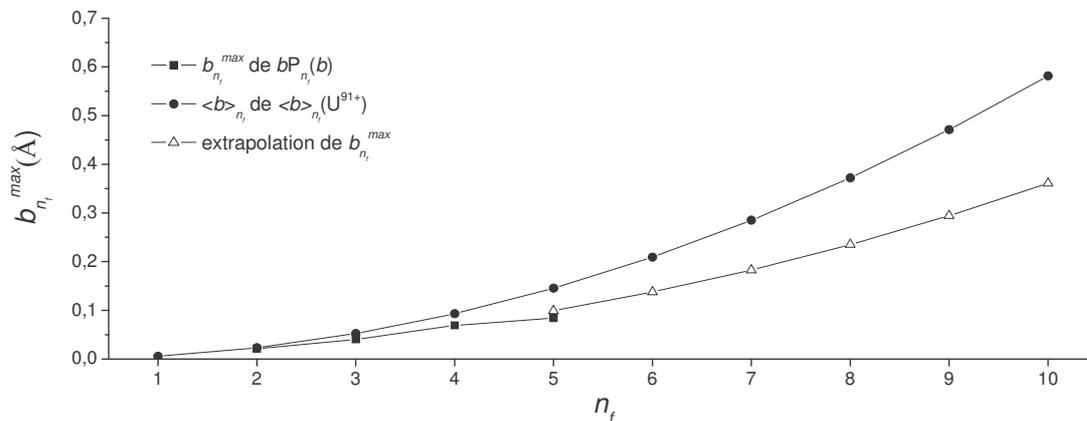


figure 95 : Comparaison de la position $b_{n_f}^{\max}$ du maximum des fonctions $bP_{MEC}^{n_f}(b)$ et du rayon moyen $\langle b \rangle_{n_f}(U^{91+})$ des orbitales du projectile. L'extrapolation de $b_{n_f}^{\max}$ est représentée en triangles creux.

Enfin, l'intégrale des fonctions $2\pi bP_{MEC}^{*n_f}(b)$ est normalisée à la section efficace CDW-EIS de MEC et l'on en déduit les probabilités extrapolées $P_{MEC}^{*n_f}(b)$ présentées figure 96. On remarque une nette différence entre les probabilités $P_{MEC}^{n_f}(b)$ calculées par Rivarola *et al.* (figure 91) et leur approximation gaussienne $P_{MEC}^{*n_f}(b)$ pour des probabilités inférieures à 10^{-3} , mais ceci n'a aucune conséquence sur la probabilité totale de MEC. Les sommes des probabilités $P_{MEC}^{*n_f}(b)$ jusqu'à la couche $n_f=10$ ou jusqu'au continuum montrent que la probabilité de MEC à grands paramètres d'impact est

déterminée par la capture sur les couches périphériques du projectile. Les électrons capturés sur ces couches ont une forte probabilité d'être perdus par collisions avec les électrons cible. La comparaison des probabilités théoriques extrapolées de MEC avec la probabilité simulée de MEC effectif nécessite donc la prise en compte de l'ionisation par impact d'électron EII ; l'ionisation par impact nucléaire est supposée négligeable pour des paramètres d'impact b supérieurs typiquement à $0,25 \text{ \AA}$.

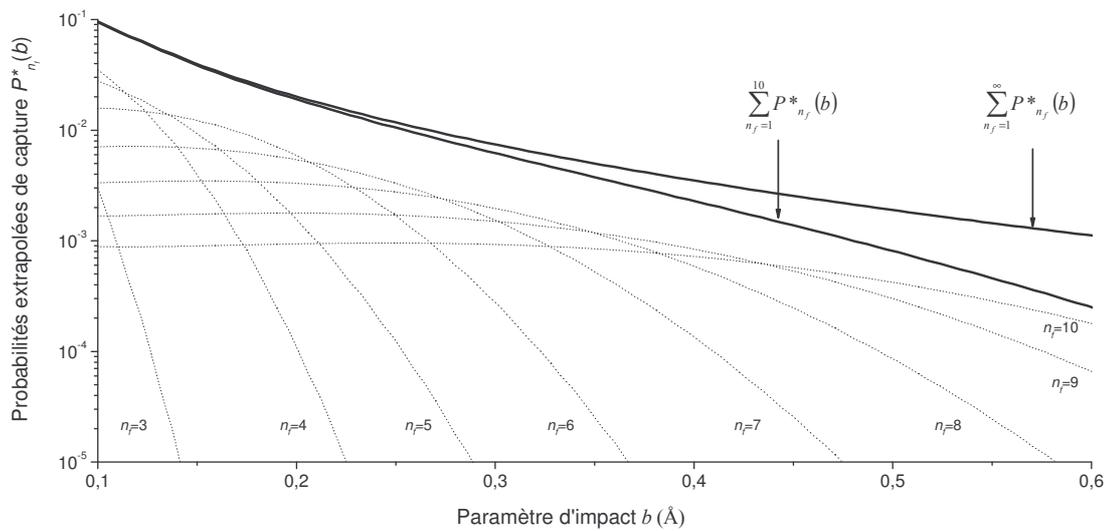


figure 96 : Probabilités de MEC extrapolées $P_{MEC}^{*n_f}(b)$ d'ions U^{91+} de 20 MeV/u sur un atome de silicium en fonction de la couche n_f où s'effectue la capture et du paramètre d'impact b .

(ii) *Prise en compte de l'ionisation par impact d'électrons (EII)*

La probabilité d'ionisation par impact d'électrons P_{EII} a été évaluée en fonction de la couche n_f à partir de l'expression suivante :

$$P_{EII}(n_f) = 1 - \exp \left[- \left(\sum_{n=1}^{n_f} \sigma_{EII}(n) \beta_{n,n_f} \tau_n \right) \bar{\rho}_e^{EII} v_p \right] \quad \text{équation 86}$$

où $\sigma_{EII}(n)$ est la section efficace d'ionisation par impact d'électron de la couche n des ions uranium très chargés de 20 MeV/u, $\bar{\rho}_e^{EII}$ est la densité électronique moyenne rencontrée par

le projectile pendant le temps où l'électron capturé reste lié au projectile, v_p est la vitesse du projectile et τ_n , β_{n,n_f} sont respectivement :

- Le temps de vie radiatif d'un état excité de la couche n du projectile.
- Les rapports de branchement qui correspondent à la probabilité, pour un électron initialement en couche n_f , d'atteindre la couche $n < n_f$ lors de sa désexcitation.

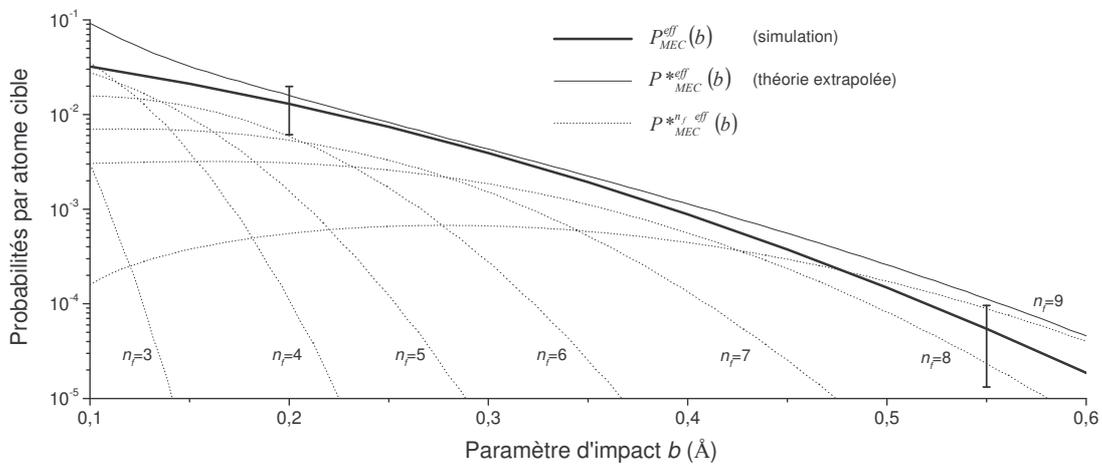


figure 97 : comparaison des probabilités de MEC effectif par atome théorique $P^*_{MEC}{}^{eff}(b)$ et simulée $P_{MEC}{}^{eff}(b)$ d'ions U^{91+} de 20 MeV/u sur un atome de silicium en fonction du paramètre d'impact b .

Les valeurs de τ_n , β_{n,n_f} utilisées sont celles calculées par Omidvar pour des ions hydrogénoïdes [Omidvar 1983] (avec une loi d'échelle en Z_p^{-4} sur τ_n). Elles sont supposées dépendre faiblement de l'état de charge du projectile. La contribution des probabilités de perte de l'électron capturé sur les couches $n < n_f$ à la probabilité totale de perte est d'environ 30 % pour $n_f=6$ et de 10 % pour $n_f=10$. Les sections efficaces $\sigma_{EII}(n)$ ont été évaluées à partir de la section efficace $\sigma_{EII}(n=3)$ du Pb^{56+} de 29 MeV/u déterminée par L'Hoir *et al.* [L'Hoir *et al.* 2006] et de lois d'échelle basées sur la formule de Lotz (voir le paragraphe B.II.2) du chapitre I). La probabilité d'ionisation P_{EII} dépend relativement peu de la densité électronique moyenne $\bar{\rho}_e^{EII}$ utilisée. Par ailleurs, la taille des orbitales des

couches du projectile n allant de 6 à 10 est relativement grande (cf. figure 95) devant le diamètre de l'axe $\langle 110 \rangle$ par exemple. Nous avons considéré dans notre calcul que la densité $\bar{\rho}_e^{EII}$ correspond pratiquement à la densité électronique moyenne rencontrée sur l'espace transverse accessible du projectile. Le produit de probabilités $P_{MEC}^{*n_f}(b)(1 - P_{EII}(n_f))$ donne finalement une évaluation de la probabilité théorique de MEC effectif $P_{MEC}^{*eff}(b)$ qui est comparée à la probabilité simulée sur la figure 97. Toutes les couches $n_f > 9$ sont complètement ionisées et l'accord entre les probabilités simulée et théorique est bon.

Notre extrapolation aux couches $n_f \geq 6$ des probabilités de capture de Rivarola *et al.* permet donc de rendre compte de la probabilité de capture relativement importante à grand paramètre d'impact déduite des simulations ($b > 0,3 \text{ \AA}$). Des calculs CTMC sont actuellement en cours de développement à l'Institut de Physique Nucléaire de Lyon pour vérifier la validité de cette extrapolation.

II. Simulation de la forme de raie de REC-K

Comme dans l'étude de la capture radiative des ions nus Kr^{36+} de 60,1 MeV/u, canalisés dans un cristal de silicium 37 μm (voir le paragraphe C.III. du chapitre I), nous avons effectué des simulations de la forme des raies de REC. Ces simulations, décrites au paragraphe B.II.4), sont fondées sur l'équilibre statistique du flux des ions canalisés et prennent en compte la divergence angulaire du faisceau, la perte d'énergie des ions, l'effet Doppler et la résolution du détecteur.

La figure 98 présente le résultat de ces simulations dans le cas du REC-K des ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u canalisés le long du cristal de silicium de 11,7 μm . La figure(a) compare la forme des raies de REC-K expérimentales, obtenues sans condition (histogramme fin) et en coïncidence avec les ions d'état de charge $Q_{out}=90$ (histogramme épais), à celle de la raie simulée dans le référentiel du laboratoire (ligne fine), avec la divergence angulaire du faisceau déterminée au paragraphe B.I.1)(c) et en supposant que l'ensemble des ions peuvent effectuer une capture radiative. Les contributions des captures des électrons de cœur et de valence obtenues sont représentées respectivement en pointillés et en tirets. La contribution des captures des électrons de cœur effectuées par les ions de

forte énergie transverse dépend beaucoup de la divergence angulaire du faisceau. Dans notre cas, cette contribution, qui tend à élargir la distribution en énergie des photons, représenterait environ 30 % des REC-K si l'ensemble des ions pouvait effectuer une capture radiative. Rappelons que le décalage d'une centaine d'électron-volts entre les raies mesurée et simulée est dû à l'effet de sillage.

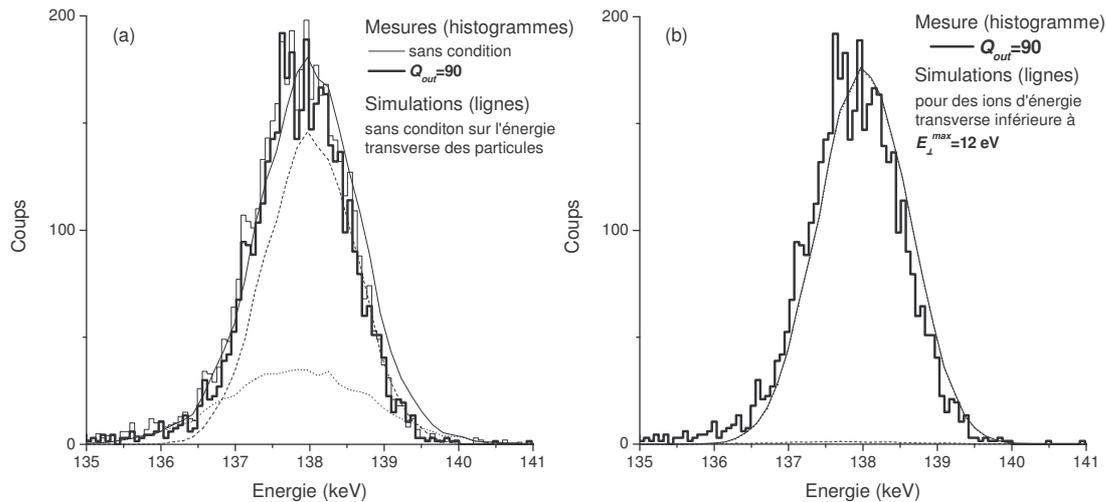


figure 98 : forme de raie de REC-K mesurée (histogrammes) et simulée à 90° , dans le référentiel du laboratoire, pour des ions incidents U^{91+} canalisés le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ du cristal de $11,7 \mu\text{m}$. La raie de REC-K simulée est présentée en ligne continue avec les contributions respectives des captures des électrons de cœur (en pointillés) et de valence (en tirets) : (a) sans condition sur l'énergie transverse des ions, (b) pour des ions d'énergie transverse inférieure à $E_{\perp}^{max}=12 \text{ eV}$; cette limite en énergie transverse correspond, pour la divergence angulaire de faisceau déterminée au paragraphe B.I.1)(c), à une fraction de faisceau proche de la fraction d'ions qui font au plus une capture.

On remarque tout d'abord sur la figure 98(a) que les spectres expérimentaux normalisés de REC-K obtenus sans condition et en coïncidence avec les ions d'état de charge $Q_{out}=90$ sont pratiquement identiques ; les ions d'état de charge $Q_{out} \geq 90$, qui contribuent pour environ 40 % à la raie de REC-K, capturent donc des électrons dont le profil Compton est très proche de celui des électrons capturés par les ions qui ne font qu'une seule capture. En revanche, la raie simulée est plus large que la raie mesurée et ceci montre que la probabilité de capture radiative sur les électrons de cœur est très faible ; par conséquent, la capture mécanique remplit rapidement la lacune K des projectiles dès que ceux-ci s'approchent des rangées atomiques, et elle empêche les ions d'effectuer des REC-K sur les électrons de cœur. La figure 98(b) présente la simulation de la raie associée aux

ions d'état de charge $Q_{out}=90$ obtenue en sélectionnant les ions d'énergie transverse inférieure à $E_{\perp}^{max}=12$ eV (qui représentent une fraction de faisceau proche de la fraction d'ions qui font au plus une capture). On constate que cette simulation reproduit précisément les raies mesurées et cela confirme la domination de la capture mécanique dès que les ions s'approchent des rangées atomiques, c'est-à-dire typiquement lorsqu'ils entrent dans les orbitales de cœur des atomes cible. Seuls les électrons de valence contribuent donc à la capture radiative.

Chapitre V

Ralentissement d'ions Pb^{81+} de 13 MeV/u dans un cristal de silicium de 37 μm

L'expérience sur le ralentissement d'ions Pb^{81+} de 13 MeV/u dans un cristal de silicium s'est déroulée en février 2003. L'épaisseur du cristal a été choisie pour que les ions les mieux canalisés perdent environ 30% de leur énergie initiale. A partir d'une loi d'échelle sur le taux de perte d'énergie subie par les ions gelés U^{91+} de 20 MeV/u, canalisés dans le cristal de 11,7 μm , nous avons évalué que la perte d'énergie d'ions gelés Pb^{81+} de 13 MeV/u serait d'environ 4,5 MeV/u dans un cristal de 35 μm (voir le paragraphe I.C.IV.4) du chapitre I). Nous avons donc utilisé le cristal de 33 μm dont nous disposions qui, orienté suivant l'axe $\langle 110 \rangle$, présente une épaisseur effective de 37 μm . Avant l'étude du ralentissement des ions Pb^{81+} de 13 MeV/u dans ce cristal relativement épais, nous avons commencé par mesurer les probabilités de MEC et de REC de ces ions à travers une cible très mince de 1,13 μm d'épaisseur. Ceci nous a permis d'évaluer la capture électronique dans les couches amorphes d'entrée et de sortie, et d'effectuer une mesure précise du décalage de l'énergie des photons de REC-K et -L dû à l'effet de sillage, pour un rapport Q/ν_p valant 3,7, qui est comparable à celui de l' U^{91+} de 20 MeV/u.

A. Mesures

I. Cristal de silicium de 1,1 μm d'épaisseur

1) Distributions de charge

Nous avons mesuré les distributions de charge en orientation aléatoire et en condition de canalisation dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et dans le plan (110). Comme dans l'expérience de 2001 (U^{91+} de 20 MeV/u), quatre acquisitions avec des valeurs de champ magnétique

différentes sont nécessaires en condition de canalisation pour identifier l'ensemble des états de charge sur le détecteur de particules.

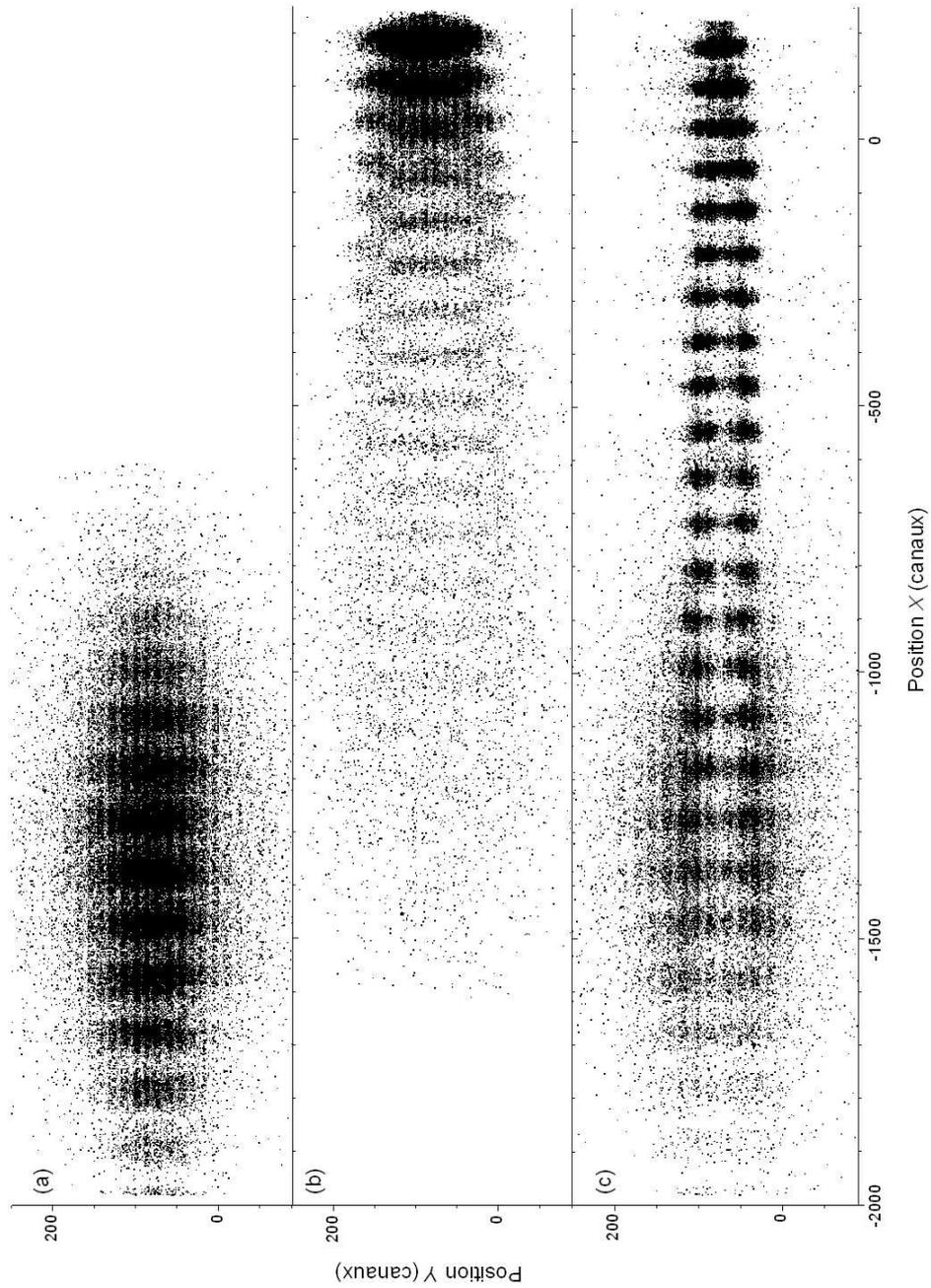


figure 99 : distributions de positions (X,Y) mesurées sur le détecteur de particules en orientation aléatoire (a) et en condition de canalisation dans l'axe $\langle 110 \rangle$ (b) et dans le plan (110) (c).

Hors canalisation, deux acquisitions suffisent car la distribution de charge est plus étroite. La figure 99 présente les distributions de positions (X, Y) obtenues sur le détecteur hors et en canalisation. La déviation des ions par le spectromètre magnétique s'effectue vers la droite de la figure. Contrairement à l'expérience de 2001, l'optique de faisceau en aval du cristal n'était pas optimisée pour focaliser les ions sur le détecteur de particules indépendamment de leur angle $\vec{\psi}_{out}$ en sortie de cible ($\vec{\psi}$ est l'angle entre la direction de propagation d'un ion et la direction cristalline). La position X d'un ion d'état de charge donné résulte donc de la convolution de la taille du faisceau avec l'énergie du projectile transmis et avec l'angle $\vec{\psi}_{out}$. Les états de charge apparaissent nettement quelle que soit l'orientation du cristal. La perte d'énergie à travers un cristal aussi mince est en effet très faible et la distribution d'énergie des ions en sortie de cristal est étroite.

La distribution mesurée en orientation aléatoire est présentée sur la figure 99(a) comme distribution de référence. La figure 99(b) est la distribution obtenue en condition de canalisation dans le plan (110). La particularité de cette figure est que pratiquement tous les états de charge sont constitués de deux tâches rondes. Ceci provient du fait que l'épaisseur du cristal cible de $1,1 \mu\text{m}$ est proche de $\lambda/4$ modulo $\lambda/2$, où λ est la longueur d'onde caractéristique des oscillations des ions dans le plan. La simulation de trajectoires d'ions Pb^{81+} canalisés dans ce plan (110) met en évidence ce phénomène de manière qualitative. La figure 100(a) présente l'évolution de l'angle ψ (entre la direction de propagation d'un ion et la direction cristalline de canalisation) en fonction de la profondeur de pénétration z pour 100 trajectoires simulées. La figure 100(b) est la distribution d'angle en sortie de cristal ψ_{out} pour 1000 trajectoires. On constate sur la première figure que la longueur d'onde $\lambda_{E\perp\downarrow}$ de la trajectoire des ions bien canalisés est d'environ $0,85 \mu\text{m}$ alors que celle des ions de forte énergie transverse ($\lambda_{E\perp\uparrow}$) est plus proche de $0,6 \mu\text{m}$. L'épaisseur du cristal correspond donc à environ $5\lambda_{E\perp\downarrow}/4$ et $7\lambda_{E\perp\uparrow}/4$ et les deux angles préférentiels en sortie de cristal des ions bien canalisés ($\psi_{out} \sim \pm 0,25 \text{ mrad}$) apparaissent nettement dans la distribution présentée figure 100(b). La dispersion angulaire en sortie de cristal des ions canalisés est relativement faible, ce qui explique que les dispersions spatiales des différents états de charge sur le détecteur soient petites en comparaison de celles observées hors canalisation où les ions subissent des diffusions à grands angles.

Chapitre V

En condition de canalisation dans l'axe $\langle 110 \rangle$, les trois premiers états de charge $Q_{out}=81, 80$ et 79 se présentent à peu près sous forme d'un disque homogène (figure 99(c)), alors que les états de charges plus faibles apparaissent sous la forme d'anneaux dont le diamètre augmente à mesure que l'état de charge en sortie décroît. Ceci s'explique de la manière suivante : le potentiel continu des rangées d'atome de l'axe $\langle 110 \rangle$ est nettement plus fort que celui des plans pour des distances r (par rapport aux rangées ou aux plans) inférieures à l'angström. Mais à des distances r supérieures à 1 \AA , l'énergie potentielle des ions dans l'axe $\langle 110 \rangle$ est inférieure à 2 eV (cf. figure 3). Comme le rayon de l'axe $\langle 110 \rangle$ est d'environ 2 \AA , on voit qu'une grande partie de l'espace transverse accessible des ions (quelle que soit leur énergie transverse) correspond à une faible énergie potentielle. L'énergie transverse se trouve donc le plus souvent sous forme cinétique ($E\psi^2$) et la probabilité que les ions ressortent du cristal avec un angle ψ_{out} élevé est grande.

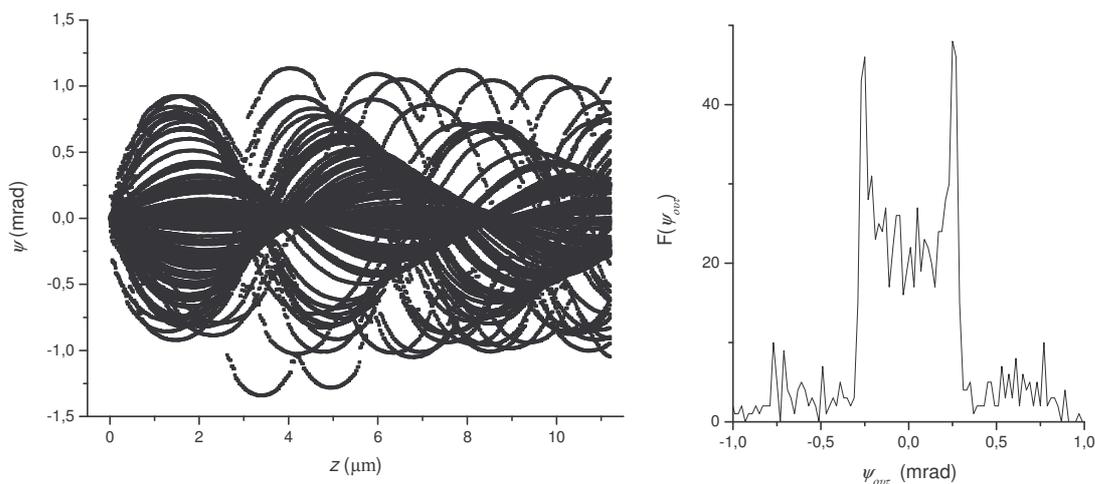


figure 100 : (a) simulation de l'évolution de l'angle ψ (entre la direction de propagation d'un ion et la direction cristalline de canalisation) en fonction de la profondeur de pénétration z pour 100 trajectoires d'ions Pb^{81+} canalisés dans le plan (110) (b) distribution simulée d'angle ψ_{out} en sortie du cristal de $1,1 \mu\text{m}$, pour 1000 trajectoires.

Les distributions de charge mesurées en orientation aléatoire et en condition de canalisation dans l'axe $\langle 110 \rangle$ et le plan (110) sont présentées figure 101. La sélection des états de charge en orientation aléatoire et planaire est effectuée à partir des projections selon l'axe X des distributions (X,Y) (cf. figure 102 pour l'orientation aléatoire). L'identification des états de charge observés hors canalisation est obtenue à partir des états de charge des

ions mal canalisés dans le plan, la perte d'énergie à travers la cible étant négligeable. En condition de canalisation axiale, les anneaux correspondant aux divers états de charge sont sélectionnés sur les distributions de positions (X,Y) (figure 99).

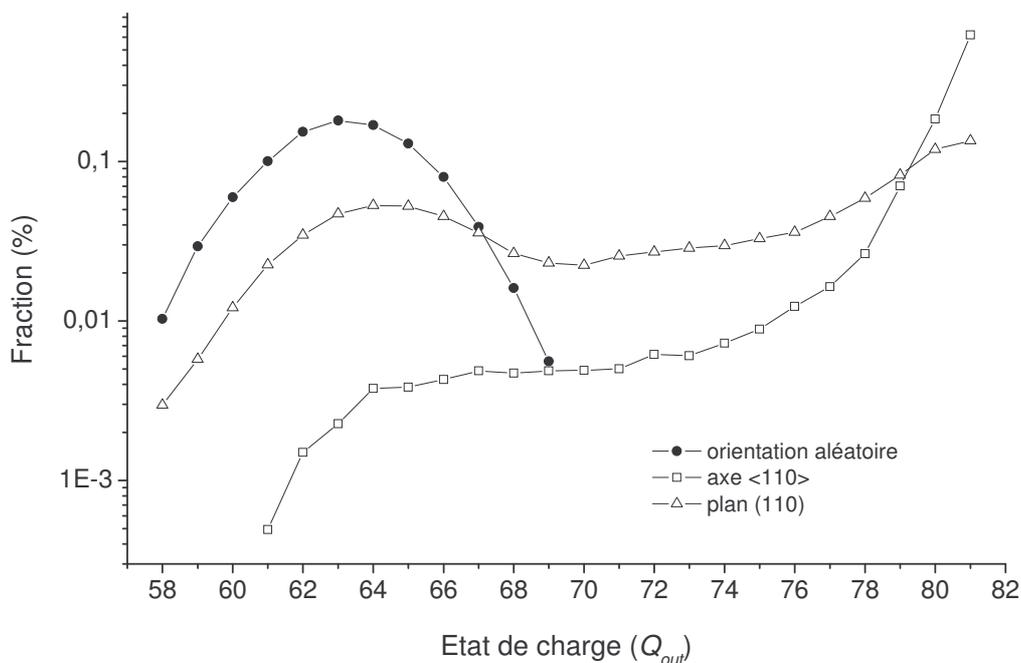


figure 101 : distributions de charge, en sortie du cristal de silicium de 1,1 μm , pour des ions incidents Pb^{81+} de 13 MeV/u transmis à travers le cristal de 1,1 μm en orientation aléatoire et en condition de canalisation le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ et du plan (110).

Hors canalisation, l'état de charge le plus probable en sortie de cristal est $\bar{Q}_{out}^R \sim 63$. Comme cette valeur de \bar{Q}_{out}^R est très proche de la valeur de l'état de charge moyen à l'équilibre de charge donnée par la formule de Léon [Léon 1998], on peut considérer que l'équilibre de charge est atteint dans cette cible de 1,1 μm d'épaisseur (d'autant plus que la distribution de charge mesurée est pratiquement symétrique). En orientation axiale, 62% des ions ressortent gelés dans leur état de charge incident et la fraction d'état de charge $F(Q_{out})$ diminue rapidement avec Q_{out} car les probabilités de MEC et de REC sur une cible aussi mince sont faibles : 90% des ions effectuent moins de trois captures. La probabilité de REC est de l'ordre de 10% et le MEC s'effectue pour la majorité des ions dans les couches amorphes d'entrée et de sortie du cristal. Le MEC dans le cristal intervient essentiellement pour les ions qui entrent très près des rangées atomiques. 5% des ions effectuent ainsi plus

d'une dizaine de MEC. Ces captures ont lieu essentiellement lors de la collision rasante à l'entrée du cristal car l'équilibre du flux est loin d'être atteint dans un cristal de $1,1 \mu\text{m}$ et les ions ont une faible probabilité de rencontrer à nouveau une rangée atomique. Lors d'une collision rasante d'une rangée atomique à une distance inférieure à $0,1 \text{ \AA}$, un ion rencontre environ une centaine d'atomes avec une probabilité de capture par atome vraisemblablement voisine de l'unité d'après l'ordre de grandeur des probabilités de MEC calculées par Rivarola *et al.* pour des ions U^{91+} de 20 MeV/u (voir le paragraphe C.I. du chapitre I) [Rivarola - communication privée]. On pourrait donc s'attendre à ce que les ions mal canalisés capturent pratiquement autant d'électrons qu'en orientation aléatoire. Le fait que cela ne soit pas le cas est attribué à l'effet de surdensité atomique en condition de collision rasante, discuté dans le cas de l'uranium au chapitre IV.

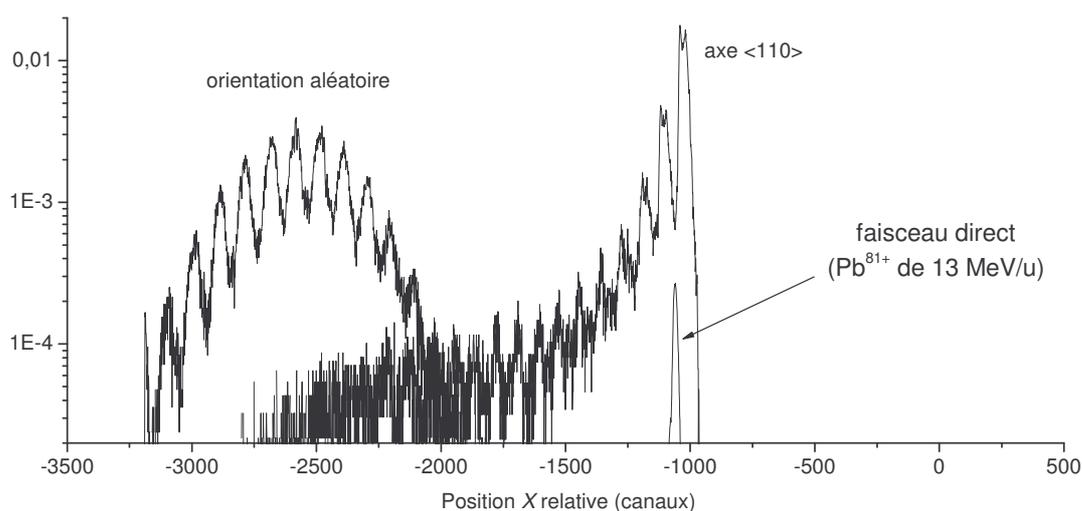


figure 102 : distributions de positions relatives X sur le détecteur de particules pour des ions incidents Pb^{81+} de 13 MeV/u transmis à travers le cristal de $1,1 \mu\text{m}$ en orientation aléatoire et en condition de canalisation dans l'axe $\langle 110 \rangle$.

En condition de canalisation dans le plan (110), la forme de la distribution de charge mesurée est similaire à celle obtenue avec les ions U^{91+} de 20 MeV/u , canalisés le long du même plan dans le cristal de $11,7 \mu\text{m}$: dans le cas du plomb, la fraction $F(N_{cap} \leq 1)$ d'ions qui traversent le cristal en capturant au plus un électron est de 25 % et la fraction $F(N_{cap} \geq 12)$ d'ions qui effectuent plus de 12 captures est de 34% ; dans le cas de l'uranium, $F(N_{cap} \leq 1) = 17 \%$ et $F(N_{cap} \geq 12) = 53\%$.

2) Spectres de raies X

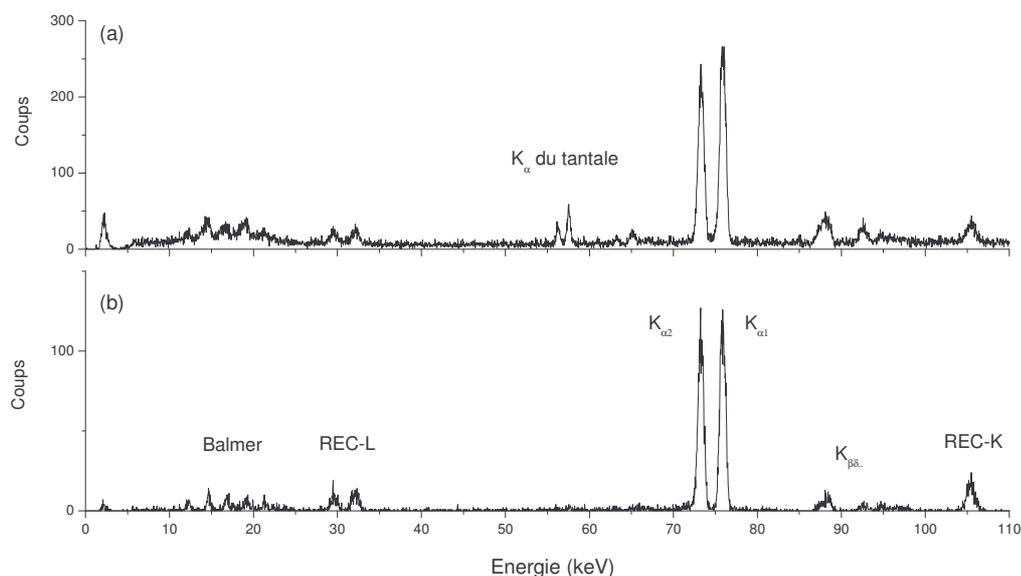


figure 103 : spectres de raies X détectés à 90° de la direction du faisceau, dans le réfénitel du laboratoire. (a) spectre sans coïncidence (« single ») (b) spectre correspondant aux ions qui ont effectué une seule capture ($Q_{out}=80$).

Le spectre de raies X détectés par la diode Germanium, à 90° de la direction du faisceau a été enregistré en condition de canalisation axiale. La figure 103 présente les spectres obtenus respectivement sans condition (« single ») (a) et en coïncidence avec l'état de charge $Q_{out}=80$ (capture unique) (b). Le second spectre contribue à peu près à la moitié des événements du premier car les ions d'état de charge $Q_{out}=80$ représentent environ 60% des ions émetteurs de photons. La probabilité de REC pour ces ions est comparable à celle de l'ensemble du faisceau. En revanche, on observe une diminution sensible du taux de Balmer entre les spectres (a) et (b) et une inversion des amplitudes relatives des raies $K_{\alpha 1}$ et $K_{\alpha 2}$ qui mettent en évidence une probabilité de MEC plus faible pour les ions bien canalisés. Les raies K_{α} du tantale (constituant le collimateur), visibles sur le spectre (a), fournissent des points de calibration en énergie du détecteur, ce qui est important pour la précision des mesures (voir le paragraphe c)).

(a) Identification des raies Balmer du plomb héliumoïde

La figure 104 présente les spectres de raies Balmer et Lyman du plomb héliumoïde détectés en coïncidence avec l'état de charge $Q_{out}=80$. On remarque que les raies $K_{\beta 1}$ et $K_{\beta 2}$ ne sont pas résolues alors qu'elles l'étaient sur le spectre de l'uranium héliumoïde. La différenciation des transitions provenant des sous-niveaux de la couche $n_f=3$ est donc plus délicate. L'identification des raies Balmer a été effectuée par l'intermédiaire de l'équation 72 utilisée dans l'étude des raies Balmer de l'uranium héliumoïde ; les raies observées dans les deux expériences sont les mêmes.

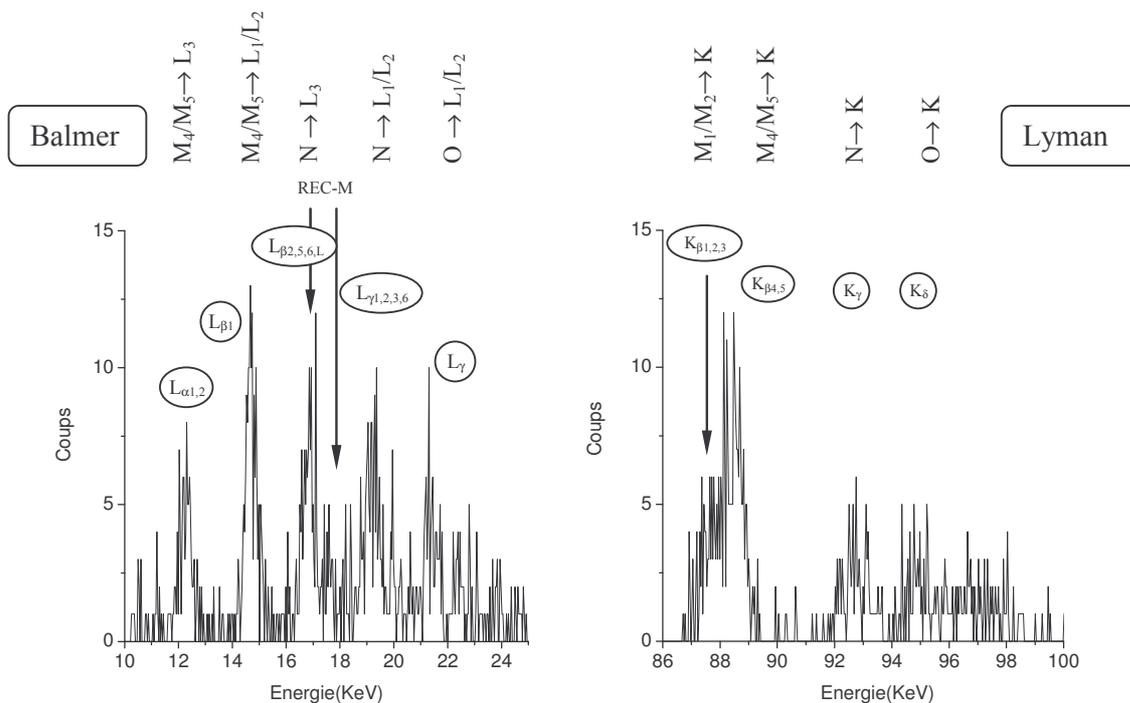


figure 104 : spectres de raies Balmer et Lyman (sans les K_{α}) du plomb héliumoïde, détectés en coïncidence avec l'état de charge $Q_{out}=80$.

Les énergies mesurées sur le spectre de la figure 104 et déterminées par l'équation 72 correspondent à ± 200 eV près :

- $L_{\alpha 1,2}$: $M_4/M_5 \rightarrow L_3$ à 12,3 keV
- $L_{\beta 1}$: $M_4/M_5 \rightarrow L_1/L_2$ à 14,7 keV
- $L_{\beta 2,5,6,L}$: $N \rightarrow L_3$ à 16,9 keV

(b) *Etalonnage et efficacité*

L'étalonnage du détecteur germanium placé à 90° de l'axe du faisceau a été effectué de la même manière que lors de l'expérience avec le faisceau d'ions U⁹¹⁺ de 20 MeV/u : en plus d'une source de ²⁴¹Am, nous avons utilisé les raies de fluorescence K_α du tantale (dont était constitué le collimateur du détecteur) visibles sur le spectre de la figure 103(a) et la relation $E_{REC-K} = E_{REC-L_1} + E_{K_{\alpha}}$ entre les énergies des photons de REC-K, de REC-L et de désexcitation K_α émis par les ions d'état de charge $Q_{out}=80$. Les coefficients a et b de la droite d'étalonnage $E(keV) = aC(\text{canaux}) + b$ (où C est l'amplitude du signal du détecteur codé en canaux par un ADC) obtenues sont :

$$a=0,03473 \pm 0,00002 \text{ (keV/canal)} \text{ et } b=-0,43 \pm 0,03 \text{ keV.}$$

L'efficacité intrinsèque e_{REC-K}^{Pb} de la diode à l'énergie du REC-K (~110 keV) des ions Pb⁸¹⁺ de 13 MeV/u a été déduite de celle déterminée à l'énergie du REC-K (~140 keV) des ions U⁹¹⁺ de 20 MeV/u : $e_{REC-K}^{Pb} \sim 0,8$. L'efficacité e_{REC-L}^{Pb} à l'énergie du REC-L est obtenue à partir de l'efficacité e_{REC-K}^{Pb} et du rapport des sections efficaces de REC-K et -L : $e_{REC-L}^{Pb} \sim 0,9$.

(c) *Décalage de l'énergie des photons de REC par l'effet de sillage*

Le passage d'une particule chargée dans un solide provoque une perturbation du gaz d'électrons cible (l'effet de sillage présenté au chapitre I) qui se manifeste notamment par un décalage vers les basses énergies de l'énergie mesurée des photons de REC par rapport à l'énergie théorique calculée pour la capture d'un électron libre. Pour des ions Pb⁸¹⁺ de 13 MeV/u et U⁹¹⁺ de 20 MeV/u dont les rapports Q/v_p sont respectivement de 3,57 et 3,26, ce décalage est proche de 100 eV d'après la formule théorique

$$\Delta E_{REC}^{théo} = -\frac{\pi Q \hbar \omega_p}{2 v_p / v_0}$$

(**équation 40**). Nous présentons dans ce paragraphe les décalages mesurés sur les raies de REC-K et de REC-L₁, -L₂ des spectres associés aux ions plomb et uranium n'ayant fait qu'une capture à travers leurs cibles respectives de 1,1 μm, et 11,7 μm d'épaisseur. Le décalage expérimental ΔE_{REC-n}^{exp} peut s'écrire de la manière suivante :

$$\Delta E_{REC-n}^{\text{exp}} = E_{REC-n}^{\text{labo}} C_{\text{dop}}(\theta_{\text{labo}}) - (\bar{E}_c + E_f^n) \quad \text{équation 87}$$

où E_{REC-n}^{labo} est l'énergie des photons de REC dans le référentiel du laboratoire, $C_{\text{dop}} = E^{\text{cdm}} / E^{\text{labo}}$ (E^{cdm} est l'énergie d'un photon dans le centre de masse du projectile) est le facteur Doppler qui dépend de l'angle d'observation θ_{labo} du détecteur vis-à-vis de la direction du faisceau, \bar{E}_c est l'énergie cinétique moyenne, dans le centre de masse du projectile, des électrons capturés et E_f^n est l'énergie de liaison de la couche n du projectile sur laquelle l'électron est capturé. Le facteur Doppler est déterminé à partir des énergies mesurée et théorique de la raie Lyman $K_{\alpha 1}$.

L'incertitude sur $\Delta E_{REC-n}^{\text{exp}}$ provient de la détermination de la position des pics REC sur le spectre, de la calibration en énergie du détecteur, de l'évaluation de la perte d'énergie des projectiles (dans le cas de l'expérience avec le faisceau d'uranium), et des niveaux d'énergie théoriques des ions héliumoïdes (calculés par Drake [Drake 1988]). La contribution des captures REC sur les électrons de cœur pourrait également décaler le pic REC mesuré vers les basses énergies. Mais comme on l'a vu au paragraphe B.II. du chapitre IV, cette contribution est négligeable. La sélection des ions qui sortent de la cible dans l'état héliumoïde présente les avantages suivants : la perte d'énergie des ions est minimale et il n'y a pas de décalage supplémentaire de l'énergie de REC-L dû à la variation de charge des ions.

Le tableau 5 présente les décalages mesurés $\Delta E_{REC-n}^{\text{exp}}$ sur les REC-K et -L lors des deux expériences (Pb^{81+} de 13 MeV/u et U^{91+} de 20 MeV/u) ainsi que la valeur moyenne $\overline{\Delta E_{REC}^{\text{exp}}} = (\Delta E_{REC-K}^{\text{exp}} + \Delta E_{REC-L}^{\text{exp}}) / 2$ et les décalages théoriques $\Delta E_{REC}^{\text{théo}}$ (équation 40). La valeur moyenne dépend moins de la calibration que les décalages mesurés sur chacun des pics REC-K et -L et son incertitude est donc plus faible. L'accord entre les valeurs expérimentale et théorique est bon. Les valeurs théoriques sont peut-être légèrement sous-estimées car elles ont été déterminées à partir de la densité moyenne d'électrons de valence du silicium (qui correspond à une énergie de plasmon $\hbar\omega_p$ de 16,6 eV), en supposant que les électrons de cœur ne contribuent pas de manière significative à la réponse collective du milieu [Testa *et al.* 2005].

		U ⁹¹⁺ (20 MeV/u)	Pb ⁸¹⁺ (13 MeV/u)
Q/v_p		3,26	3,57
$\Delta E_{REC}^{théo}$ (eV)		-85	-93
$\overline{\Delta E_{REC}^{exp}}$ (eV)		-92 ± 41	-123 ± 47
ΔE_{REC-n}^{exp} (eV)	REC-K	-94 ± 59	-120 ± 65
	REC-L ₂	-90 ± 55	-125 ± 62
	REC-L ₁	-89 ± 61	-127 ± 64

tableau 5 : décalages expérimentaux et théoriques de l'énergie des photons de REC dus à la polarisation du gaz d'électrons cible au voisinage du projectile. Les valeurs théoriques sont celles obtenues avec l'équation 40 et une énergie de plasmon $\hbar\omega_p = 16,6$ eV.

II. Cristal de silicium de 37 μm d'épaisseur

1) Distributions de position X sur le détecteur de particules

En condition de canalisation dans l'axe $\langle 110 \rangle$, six acquisitions avec des valeurs différentes de champ magnétique ont été nécessaires pour déterminer les distributions complètes de position relative X , sur le détecteur de particules, des ions transmis. Hors canalisation, trois acquisitions ont suffi. La juxtaposition de ces acquisitions donne la figure 106 dont l'axe des abscisses (la position relative X) correspond à une échelle en p/Q_{out} , où p est l'impulsion des ions transmis.

Nous avons vu au chapitre IV que l'analyse magnétique résolvait difficilement les différents états de charge de sortie des ions incidents U⁹¹⁺ de 20 MeV/u, transmis à travers la cible de 11,7 μm . Dans le cas des ions incidents Pb⁸¹⁺ de 13 MeV/u transmis à travers la cible de 37 μm , il peut y avoir plusieurs états de charge à une position X donnée sur le détecteur de particules, que ce soit en orientation aléatoire ou en condition de canalisation. Les valeurs de pouvoir d'arrêt tabulées [**Ziegler**] fournissent une perte d'énergie moyenne

de 3,52 MeV/u hors canalisation. Nous en déduisons un état de charge de sortie le plus probable d'environ 62,1, en bon accord avec la valeur d'environ 62,4 donnée par la formule de Léon [Léon 1998]. En canalisation axiale, la distribution de positions présente grossièrement deux composantes : une composante d'ions mal canalisés, sous la distribution obtenue hors canalisation, et une composante d'ions bien canalisés déviés plus fortement par le spectromètre à cause de leur état de charge élevé.

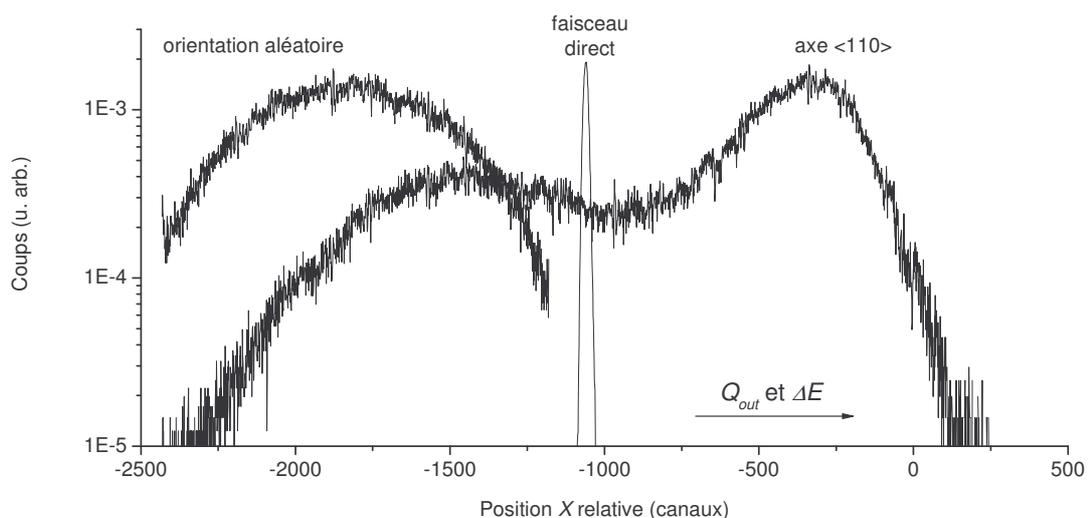


figure 106 : distributions de position relative X sur le détecteur de particules pour des ions incidents Pb^{81+} de 13 MeV/u transmis à travers le cristal de 37 μm en orientation aléatoire et en condition de canalisation dans l'axe $\langle 110 \rangle$.

2) Spectres de raies X

Les spectres de raies X détectés à 90° de la direction du faisceau ont été enregistrés en condition de canalisation, pour une valeur du champ magnétique du spectromètre telle que les ions les plus déviés (de position $X > -260$ sur la figure 106) traversent le détecteur de particules. Le détecteur n'était pas collimaté pour maximiser l'angle solide du détecteur. La figure 107 présente les spectres obtenus sans condition (a), le spectre correspondant aux ions qui traversent le détecteur de particules (b) et le spectre associé aux ions dont la position X sur le détecteur de particules est comprise entre -20 et 20 . Ces ions présentent un nombre moyen de captures minimum (voir le paragraphe suivant). Ces trois spectres sont normalisés au même nombre d'ions transmis.

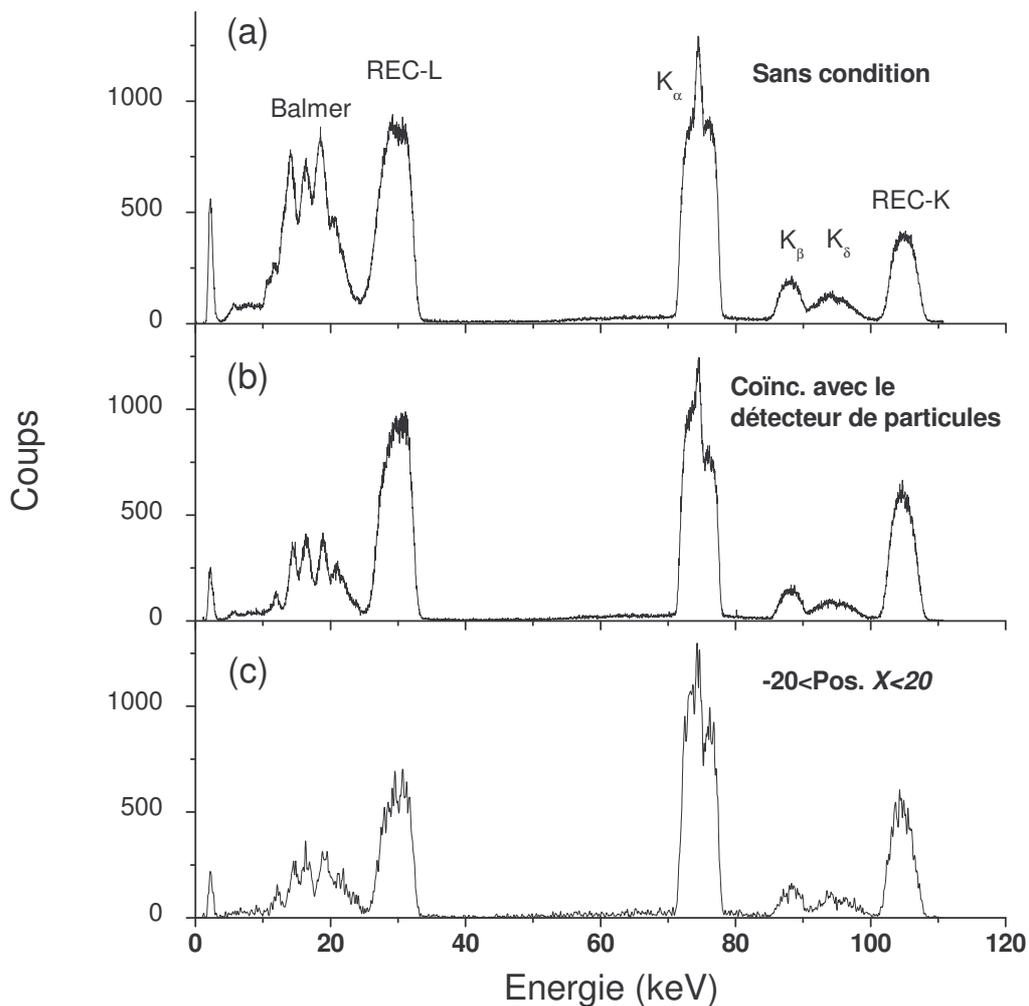


figure 107 : spectres de raies X (dans le référentiel du laboratoire) détectés à 90° de la direction du faisceau, pour des ions incidents Pb^{81+} de 13 MeV/u canalisés dans l'axe $\langle 110 \rangle$ du cristal de silicium de 37 μm . (a) spectre sans condition (b) spectre en coïncidence avec le détecteur de particules (c) spectre en coïncidence avec les ions dont la position X sur le détecteur de particules est comprise entre -20 et 20 (ces ions présentent un nombre moyen de captures minimum). Tous les spectres sont normalisés au même nombre d'ions transmis. Le détecteur n'était pas collimaté.

Le spectre sans condition montre que les ions Pb^{81+} de 13 MeV/u effectuent, en moyenne, environ une capture radiative le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ du cristal de 37 μm . La sélection des ions les plus déviés (figure 107(b)) présente un taux de raies Balmer par ion transmis environ deux fois moins important et une probabilité de REC-K sensiblement supérieure. Ces ions correspondent aux ions bien canalisés qui font peu de captures mécaniques. Leur lacune sur la couche K est donc comblée moins rapidement, ce qui favorise la capture radiative sur cette couche. Enfin, les ions dont la position sur le détecteur

de particules est comprise entre -20 et 20 font encore un peu moins de MEC et présentent des nombres moyens de REC nettement réduits, surtout celui de REC-L. La grande majorité de ces ions sont très bien canalisés et rencontrent une faible densité moyenne d'électrons. Pour évaluer le nombre moyen de captures mécaniques effectuées par les ions transmis, nous avons utilisé les taux de raies Balmer $L_{\beta 1}$ et $L_{\gamma 2,3,6}$ situées respectivement à 14,7 keV et 19,3 keV :

$$N_{MEC} \sim N_{cap} - N(\text{REC-K, -L, -M}) = a_{MEC} T(L_{\beta 1}, L_{\gamma 2,3,6}) + b_{MEC} \quad \text{équation 88}$$

où $T(L_{\beta 1}, L_{\gamma 2,3,6})$ est le taux (nombre moyen) de Balmer $L_{\beta 1}$, $L_{\gamma 2,3,6}$, $N(\text{REC-K, -L, -M})$ est le nombre moyen de REC-K, -L, -M et $a_{MEC} = 33,25 \pm 0,05$, et $b_{MEC} = 0,10 \pm 0,05$ sont déterminés à partir des taux de Balmer mesurés sur les spectres conditionnés par l'état de charge de sortie Q_{out} , avec le cristal de 1,1 μm . Cette détermination de N_{MEC} est donc indépendante de l'efficacité du détecteur. La faible incertitude sur a_{MEC} et b_{MEC} est due, essentiellement à l'incertitude sur la contribution des REC- $n \geq 3$ au nombre d'électrons capturés N_{cap} et aux taux de raies Balmer $L_{\beta 1}$, $L_{\gamma 2,3,6}$.

Les courbes (a) et (b) de la figure 108 sont les distributions de positions X et Y , sur le détecteur de particules, des ions transmis les plus déviés pour des ions incidents Pb^{81+} de 13 MeV/u. Le creux dans la distribution de positions Y observé aux alentours du canal 94 est dû à un problème de détection (un creux similaire est également présent sur la distribution mesurée en orientation aléatoire). Les courbes (b),(d) et (c),(e) présentent respectivement, en fonction des positions X et Y , les variations des nombres moyens de MEC et de REC (N_{MEC} et N_{REC}) et le rapport des nombres moyens de REC-K et de REC-L. Les barres d'erreur correspondent aux incertitudes statistiques.

On constate que N_{REC} diminue presque constamment avec la position X alors que le nombre moyen de MEC présente un minimum autour de la position $X=0$. Cette position correspond à la position moyenne de la fraction la mieux canalisée du faisceau. Dans la queue de distribution des positions X , la forte remontée du nombre N_{MEC} peut être attribuée à des ions un peu moins bien canalisés qui capturent plusieurs électrons par MEC et qui subissent une forte perte d'énergie. Les structures en disques ou en anneaux observées sur le détecteur de particules avec le cristal de 1,1 μm (cf .figure 99) laissent à penser que les

nombre de captures N_{REC} et N_{MEC} effectuées par les ions dans le cristal de 37 μm pourraient varier en fonction de la position Y . La courbe (d) montre qu'il n'en est rien.

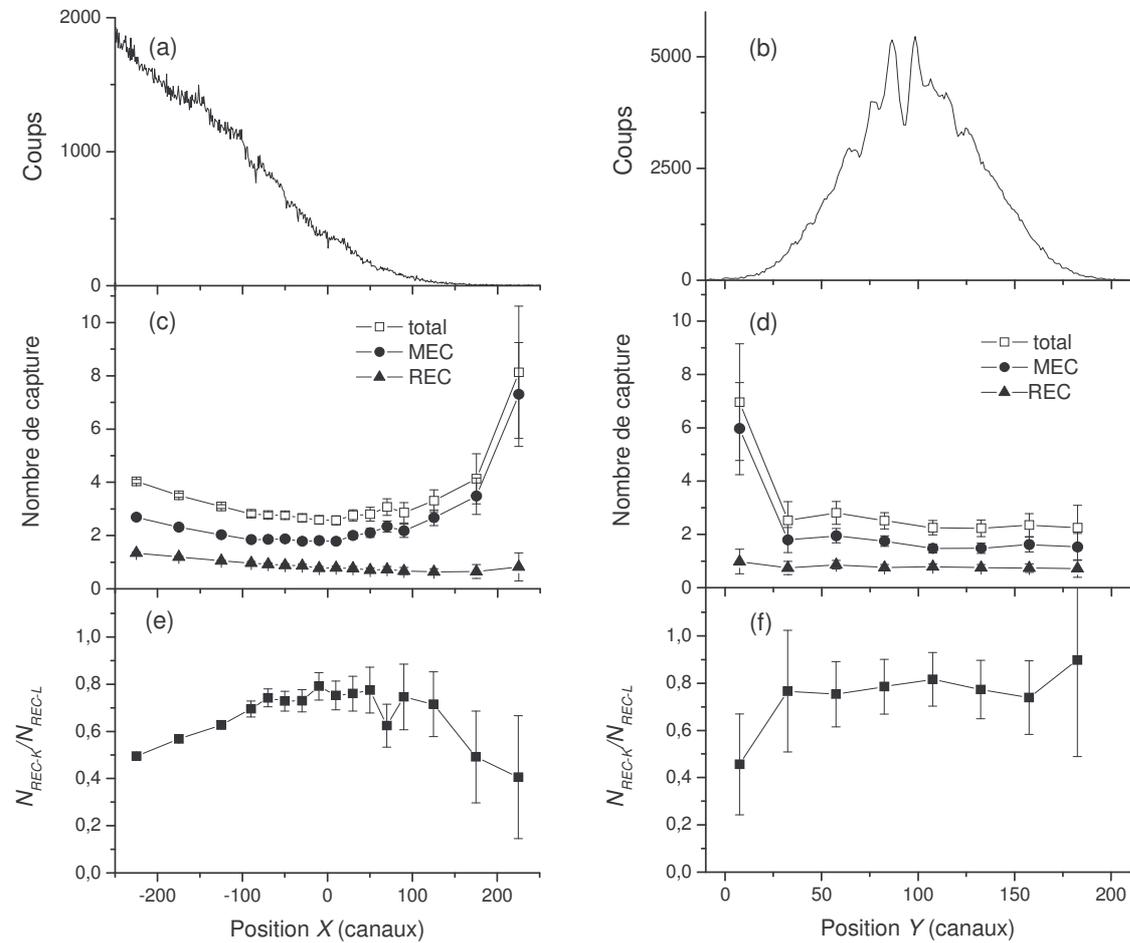


figure 108 : (a) et (b) positions X et Y sur le détecteur de particules des ions les plus déviés après la traversée du cristal de silicium de 37 μm en condition de canalisation le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ pour des ions incidents Pb^{81+} de 13 MeV/u. (c) et (d) nombres moyens de captures MEC et REC- n ($n \leq 5$) en fonction des positions X et Y . (e) et (f) rapport des nombres moyens de REC-K et -L en fonction des positions X et Y .

Enfin, on remarque que les variations du rapport des nombres moyens N_{REC-K} et N_{REC-L} de REC-K et de REC-L en fonction des positions X et Y correspondent à peu près à l'opposé des variations du nombre N_{MEC} . En particulier, N_{REC-K} / N_{REC-L} présente un maximum autour de la position $X=0$. En effet, les nombres moyens de REC-K et de REC-L sont respectivement donnés au premier ordre par $\bar{\rho}_e \lambda_K \sigma_{REC-K}$ et $\sum_{Q=Q_m}^{Q_m-9} \bar{\rho}_e^Q \lambda_L^Q \sigma_{REC-L}(Q)$ (où $\bar{\rho}_e$ est la densité moyenne d'électrons rencontrée par le projectile pendant le parcours

moyen λ_K effectué avant que la couche K ne soit remplie et $\bar{\rho}_e^Q$ la densité moyenne d'électrons rencontrée pendant le parcours moyen λ_L^Q où l'état de charge du projectile est Q . Comme les ions qui traversent le détecteur de particules capturent peu d'électrons, on peut considérer dans notre cas que la section efficace de REC-L change peu en fonction de Q . On a donc finalement $N_{REC-L} \approx \bar{\rho}_e \sigma_{REC-L}(Q)L$ (où est l'épaisseur du cristal), et $N_{REC-K}/N_{REC-L} \propto \lambda_K$; en d'autres termes, le rapport N_{REC-K}/N_{REC-L} est proportionnel à la durée de vie de la lacune K, qui est d'autant plus grande que la nombre de captures mécaniques est faible. Les courbes (e) et (f) confirment, par conséquent, les nombres N_{MEC} présentés sur les figures (c) et (d).

3) Perte d'énergie des ions les mieux canalisés

Nous avons déduit de l'analyse des spectres X que le nombre moyen de captures en fonction de la position relative X présente un minimum à $X=0$, avec en moyenne 2 captures mécaniques et 0,8 capture radiative. Cela correspond un état de charge moyen des ions en sortie du cristal d'environ 78 et à une perte d'énergie moyenne de 4,5 MeV/u. Les ions les mieux canalisés subissent donc une perte d'énergie supérieure de 25 % à la perte d'énergie des ions transmis en orientation aléatoire.

Nos mesures ne permettent pas de déterminer si des ions gelés Pb^{81+} ont été transmis ou pas. Mais avec un nombre moyen de REC de 0,8, on peut penser qu'un certain pourcentage d'ions ne subissent pas de REC. Et les captures mécaniques ont lieu probablement en grande majorité dans la couche amorphe de sortie, car une perte importante d'énergie implique une forte augmentation des probabilités de MEC. Nous verrons dans la deuxième partie de ce chapitre que des simulations d'échanges de charge montrent qu'effectivement des ions gelés ont très probablement été transportés au moins jusqu'à la couche amorphe de sortie du cristal.

B. Simulations

I. Le cristal de 1,1 μm : détermination de σ_{REC}

Nous avons simulé les échanges de charge des ions incidents Pb^{81+} de 13 MeV/u canalisés le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ du cristal de silicium de 1,1 μm . Le but de ces simulations est de fournir une deuxième valeur de la section efficace de REC dans des conditions de forte perturbation du milieu cible avec des ions lourds hydrogénéoïdes ralentis.

Les paramètres des simulations (présentés au chapitre IV) ont été ajustés pour reproduire :

- la distribution d'état de charge Q_{out} des ions transmis,
- les probabilités $P(\text{REC-K, -L} | Q_{\text{out}})$ de capture radiative en couches K et L conditionnées par l'état de charge de sortie.

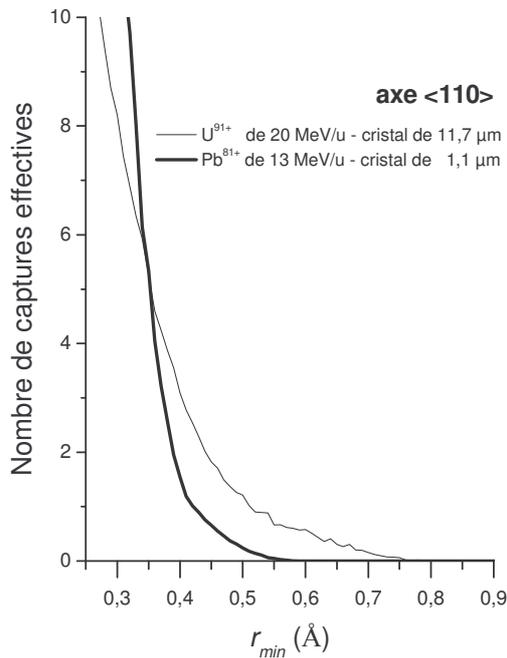


figure 109 : nombres de MEC effectifs en fonction de la distance minimale d'approche r_{min} à l'entrée du cristal pour des ions incidents Pb^{81+} de 13 MeV/u et U^{91+} de 20 MeV/u canalisés respectivement le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ des cristaux de silicium de 1,1 μm et 11,7 μm . Dans le cas de l'uranium, le nombre de MEC présenté correspond aux captures mécaniques effectives qu'effectueraient les ions sans réchauffement transverse.

Les principaux paramètres sont le coefficient C_{REC} appliqué dans les simulations à la section efficace de REC et la probabilité de capture dans les couches amorphes (les

probabilités $P(\text{REC-K, -L} | Q_{out})$ dépendent fortement de la capture dans la couche amorphe d'entrée). Les paramètres secondaires sont les suivants :

- la divergence angulaire du faisceau (on suppose que la distribution angulaire du faisceau est gaussienne)
- le nombre moyen effectif $N_{MEC}(r_{min})$ de captures mécaniques effectuées lors de la traversée du cristal en fonction de la distance minimale d'approche r_{min} vis-à-vis des rangées atomiques (le réchauffement transverse est pratiquement nul lors de la traversée du cristal de 1,1 μm et $r_{min}^e \sim r_{min}$). Ce nombre $N_{MEC}(r_{min})$ a été fixé de manière à ce qu'il soit compatible avec les résultats obtenus avec le faisceau d'uranium (les probabilités de capture des ions Pb^{81+} de 13 MeV/u et U^{91+} de 20 MeV/u sont d'après l'équation 21 du même ordre de grandeur) et qu'il permette de reproduire les données expérimentales avec une divergence angulaire de faisceau comprise entre 0,1 et 0,3 mrad.

La figure 109 présente les nombres de MEC effectifs simulés en fonction de la distance minimale d'approche r_{min} à l'entrée du cristal des ions incidents Pb^{81+} de 13 MeV/u et U^{91+} de 20 MeV/u canalisés respectivement le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ des cristaux de silicium de 1,1 μm et 11,7 μm . Dans le cas de l'uranium, le nombre de MEC présenté correspond aux captures mécaniques effectives qu'effectueraient les ions sans réchauffement transverse. Les différences entre les nombres de captures simulés de la figure 109 sont dues essentiellement à l'épaisseur du cristal cible. Ces différences peuvent s'expliquer de la manière suivante : les ions bien canalisés, dont la distance r_{min} est relativement grande, capturent les électrons sur l'ensemble du cristal, alors que les ions moins bien canalisés atteignent leur état de charge de sortie dès la première collision rasante avec une rangée atomique, à l'entrée du cristal.

Nous avons effectué une étude systématique de la section efficace de REC en faisant varier la divergence angulaire du faisceau, et en ajustant le coefficient C_{REC} appliqué à la section efficace de REC et la probabilité de capture dans les couches amorphes pour reproduire à la fois la fraction d'ions gelés et les probabilités $P(\text{REC-K, -L} | Q_{out})$. Trois distributions d'états de charge simulées sont comparées à la distribution expérimentale sur

la figure 110(a). Le meilleur accord entre les simulations et l'expérience est obtenu avec un coefficient C_{REC} de $1,4 \pm 0,2$, des probabilités $P(N_{am})$ de capture simple et multiple dans les couches amorphes du cristal présentées sur la figure 110(b), et une divergence angulaire de faisceau $\sigma_x = \sigma_y = 1,5$ mrad. Les probabilités $P(\text{REC-K, -L} | Q_{out})$ simulées avec ce jeu de paramètres sont comparées aux probabilités expérimentales sur la figure 110(c).

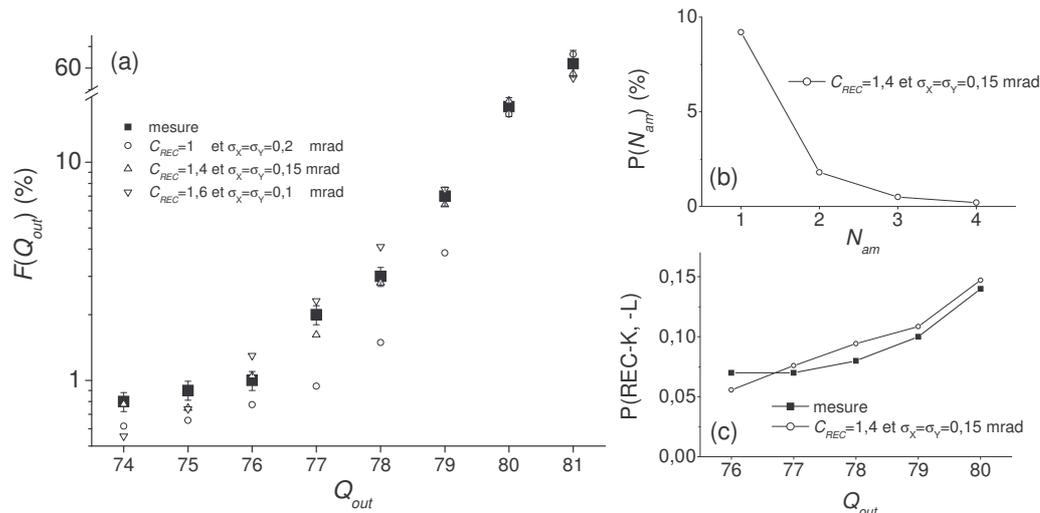


figure 110 : (a) distributions mesurée et simulées d'état de charge $F(Q_{out})$ pour des ions incidents Pb^{81+} de 13 MeV/u canalisés le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ des cristaux de silicium de $1,1 \mu\text{m}$ (C_{REC} est le coefficient appliqué à σ_{REC} et σ_x, σ_y sont les écarts types dans chacune des directions du plan transverse de la distribution angulaire du faisceau supposée gaussienne). (b) probabilité $P(N_{am})$ de capture simple et multiple par couche amorphe (N_{am} =nombre d'électrons capturés). (c) probabilités mesurée et simulée $P(\text{REC-K, -L})$ en fonction de Q_{out} .

II. Le cristal de $37 \mu\text{m}$

1) Spectres X

Nous avons simulé la forme des raies de désexcitation K_α et de REC-K mesurées en condition de canalisation des ions Pb^{81+} de 13 MeV/u le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ du cristal de silicium de $37 \mu\text{m}$ (figure 107) pour les raisons suivantes :

- comprendre l'origine du pic situé au milieu des raies K_α ,
- confirmer la perte d'énergie des ions très bien canalisés évaluée au paragraphe A.II.3) avec la forme et la position de la raie de REC-K.

(a) Les raies K_α

La figure 111 présente les spectres mesuré et simulés des raies K_α associés aux ions incidents Pb^{81+} de 13 MeV/u, canalisés le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ du cristal de silicium de 37 μm , qui traversent le détecteur de particules. Le spectre des raies X dépend fortement des conditions expérimentales de détection, c'est-à-dire de l'angle de détection (proche de 90°) et de la distance cristal cible – détecteur (d'environ 110 mm). Ces conditions expérimentales ont donc été déterminées précisément de la manière suivante :

- l'angle de détection est donné par la position des raies K_α détectées avec le cristal de 1,1 μm (cf. figure 103)
- la distance cristal cible–détecteur (qui n'est pas connue avec une grande précision) est ajustée pour reproduire la partie haute énergie du spectre de la raie $K_{\alpha 1}$ qui est déterminé par l'élargissement Doppler.

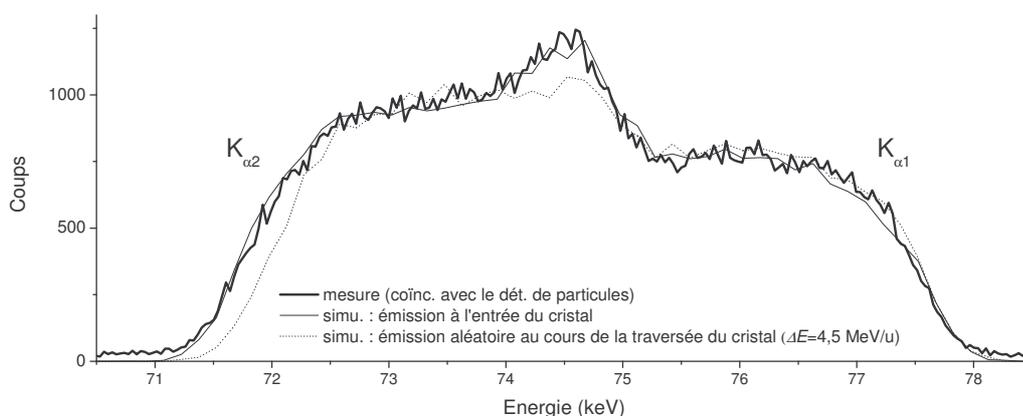


figure 111 : spectres mesuré et simulé des raies K_α émises pour les ions incidents Pb^{81+} de 13 MeV/u, canalisés le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ du cristal de silicium de 37 μm , qui traversent le détecteur de particules. Le détecteur de raies X n'était pas collimaté.

Les spectres simulés correspondent à des photons émis par les projectiles à l'entrée du cristal (ligne continue) et de manière aléatoire au cours de la traversée du cristal, dans le cas d'une perte d'énergie de 4,5 MeV/u (ligne en pointillés). La ligne continue est pratiquement identique au spectre mesuré (ligne épaisse) et elle reproduit notamment le pic situé au milieu des raies K_α qui provient du recouvrement des deux raies. En revanche, le

spectre en pointillés présente un pic très réduit autour de 74,5 keV et à basse énergie, il est décalé de 200 eV environ par rapport aux deux autres spectres. Ces différences sont dues aux diminutions de l'énergie moyenne $E_{K\alpha}$ et de la largeur des raies détectées lorsque les ions perdent de l'énergie. Le décalage à basse énergie (raie $K_{\alpha 2}$) entre les spectres en lignes continue et en pointillés montre que la diminution de la largeur des raies l'emporte sur la diminution de $E_{K\alpha}$. A haute énergie, le spectre est déterminé par la largeur du spectre de photons émis à l'entrée du cristal, ce qui permet de déterminer la distance cristal cible – détecteur à ± 2 mm près (la taille du détecteur étant connue). Enfin, le fait que le pic du spectre en pointillés soit moins prononcé est dû au décalage sur la raie $K_{\alpha 1}$ correspondant au décalage observé sur la raie $K_{\alpha 2}$, entre les spectres en lignes continue et en pointillés.

Le spectre mesuré des raies K_{α} varie peu lorsqu'on sélectionne les ions les mieux canalisés (dont la position X est proche de zéro) ou ceux qui ne traversent pas le détecteur de particules. Seule l'intensité relative des raies $K_{\alpha 1}$ et $K_{\alpha 2}$ change légèrement. On peut donc penser que la grande majorité des projectiles effectuent leur première capture rapidement, quelle que soit l'énergie transverse. Ceci est confirmé par nos simulations puisque le spectre correspondant aux photons émis par les projectiles à l'entrée du cristal est très proche du spectre mesuré, et que le spectre associé à une émission aléatoire au cours de la traversée du cristal est sensiblement différent de ces deux spectres (figure 111).

(b) La raie de REC-K

La figure 112 présente les raies mesurées et simulées de REC-K. La figure (a) permet de comparer les raies obtenues en coïncidence avec les ions qui ne traversent pas le détecteur de particules, ceux qui le traversent et ceux dont la position X est proche de 0 (les deux derniers spectres ont été lissés et normalisés pour une meilleure visibilité). Ce dernier spectre est présenté sur la figure (b) avec les spectres simulés correspondant à des REC-K effectués à l'entrée et en sortie du cristal et le spectre associé à l'émission de photons des REC-K au cours de la traversée du cristal (en prenant en compte le blocage du REC-K après la première capture). Ces deux derniers spectres simulés ont été obtenus avec une perte d'énergie de 4,5 MeV/u.

La figure (a) montre que la forme des raies de REC-K mesurées dépend sensiblement de la durée de vie de la lacune K des projectiles au cours de la traversée de cristal. Mieux les ions sont canalisés, plus le REC-K peut s'effectuer tardivement lorsque les projectiles ont perdu beaucoup d'énergie, et plus le spectre de photons de RECK est décalé vers les basses énergies. La différence entre les raies correspondant à des émissions en entrée et en sortie du cristal est en effet relativement importante (figure (b)). La simulation du spectre associé à l'émission des photons de REC-K au cours de la traversée du cristal confirme la valeur de la perte d'énergie des ions dont la position X est proche de zéro déterminée à partir de leur état de charge moyen (voir le paragraphe A.II.3) : $\Delta E = 4,5 \text{ MeV/u} \pm 0,3 \text{ MeV/u}$. Elle montre également que les ions très bien canalisés font du REC-K sur toute la cible et que, par conséquent, ils conservent leur lacune K jusqu'à la couche amorphe de sortie.

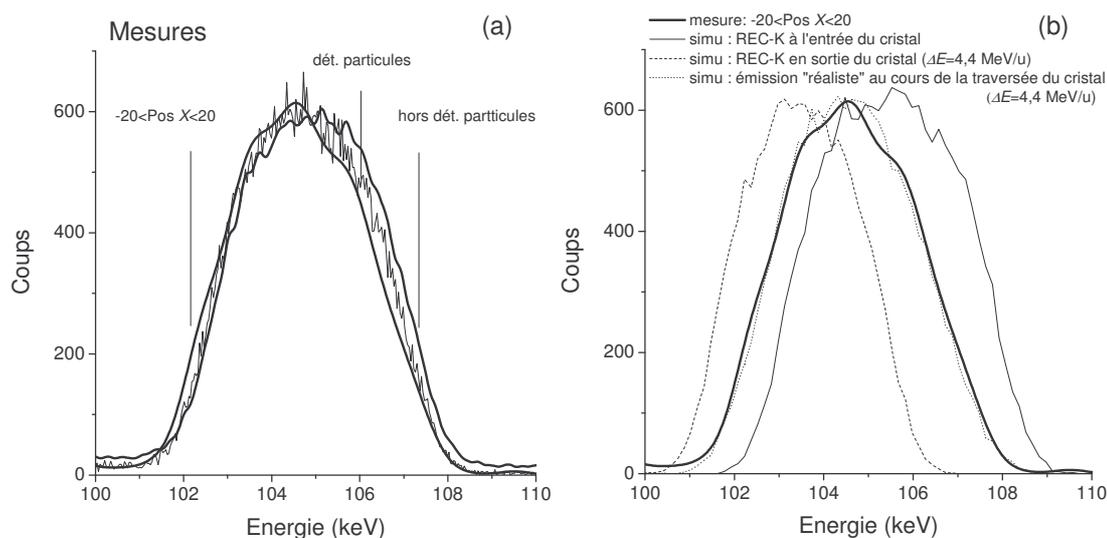


figure 112 : (a) raies de REC-K mesurées pour des ions incidents Pb^{81+} de 13 MeV/u canalisés le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ du cristal de silicium de $1,1 \mu\text{m}$ (b) comparaison des raies mesurée et simulées (voir texte).

2) Les échanges de charge

Nous avons effectué des simulations d'échanges de charge des ions bien canalisés pour évaluer la probabilité de transmission à travers le cristal d'ions gelés. Les données expérimentales que nous avons cherché à reproduire sont les suivantes :

- la distribution de position X des ions bien canalisés (position $X > -900$),
- les nombres moyens de captures effectives MEC et REC en fonction de la position X (pour des positions $X > -300$),
- le rapport des nombres moyens de REC-K et de REC-L,
- l'évolution de la fraction d'ions qui traversent le détecteur de particules (position relative $X > -300$) en fonction de l'angle de balayage ψ_X .

Nous avons utilisé dans ces simulations les valeurs des probabilités de capture dans la couche amorphe d'entrée du cristal et du coefficient C_{REC} (appliqué à la section efficace de REC) déterminées avec le cristal de 1,1 μm . La perte d'énergie a été calculée à partir de l'équation 82 avec les valeurs de coefficients a , b et F_{ρ_e} déterminées dans le cas des ions U^{91+} de 20 MeV/u auxquelles nous avons appliqué une loi d'échelle en Q^2/E . L'évolution de la fraction d'ions qui traversent le détecteur de particules en fonction de l'angle de balayage ψ_X nous a permis d'estimer la distribution angulaire $G_F(\psi)$ du faisceau : $G_F(\psi) = G(\sigma_X, \sigma_Y)$ avec $\sigma_X = \sigma_Y = 0,2 \pm 0,05$ mrad. Les paramètres des simulations étaient donc les suivants :

- le nombre moyen $N_{MEC}^{axe}(r_{\min}^e)$ de MEC effectif en fonction de la distance minimale d'approche r_{\min}^e aux rangées atomiques,
- les probabilités $P(N_{am})$ de capture dans la couche amorphe de sortie du cristal, où N_{am} est le nombre d'électrons capturés dans la couche amorphe (les probabilités de capture dans la couche amorphe d'entrée ont été déterminées avec le cristal de 1,1 μm),
- les valeurs des coefficients a et b qui déterminent la perte d'énergie à partir de la densité électronique moyenne rencontrée.

La figure 113 présente les résultats des simulations obtenues avec des probabilités de capture dans la couche amorphe de sortie du cristal égales à celles de la couche amorphe d'entrée ; le nombre moyen de MEC effectif $N_{MEC}^{axe}(r_{\min}^e)$ et les coefficients a et b ont été

ajustés pour que les distributions de position X mesurée et simulée correspondent à peu près (figure 113(a)). Les nombres moyens effectifs N_{MEC} et N_{REC} de captures mécaniques et radiatives mesurés et simulés en fonction de la position X sont comparés sur la figure 113(b). Le nombre $N_{MEC}^{axe}(r_{min}^e)$ est présenté sur la figure 113(c) en ligne épaisse. Le nombre de MEC correspondant, obtenu sans perte d'énergie (pas de réchauffement transverse et pas d'augmentation des sections efficaces de capture σ_{cap}), et présenté en ligne continue, est comparé avec le nombre de MEC déterminé dans le cas du cristal de 1,1 μm (ligne en pointillés). On peut ainsi vérifier que la capture débute dans les deux cas à peu près à la même distance r_{min}^e (cette vérification est qualitative, nos évaluations du réchauffement transverse et de la variation des sections efficaces de capture en fonction de l'énergie des projectiles étant rudimentaires). Les probabilités $P(N_{am})$ sont données par la figure 113(d).

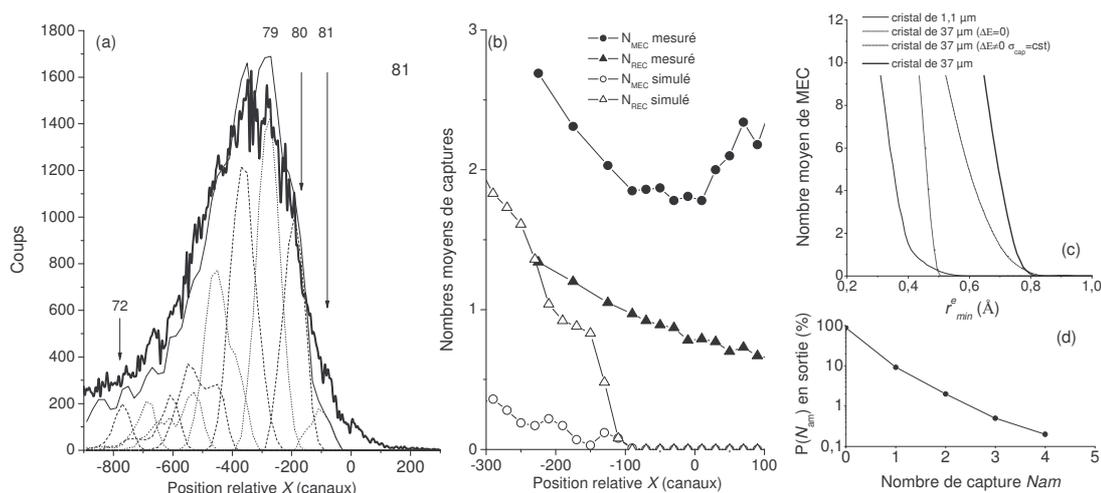


figure 113 : simulations des échanges charge pour des ions incidents Pb^{81+} de 13 MeV/u canalisés le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ du cristal de 37 μm , pour des probabilités de capture dans la couche amorphe de sortie du cristal égales à celles de la couche amorphe d'entrée (et qui sont déterminées dans le cas du cristal de 1,1 μm). (a) distributions mesurée et simulée de position X des ions bien canalisés (position $X > -900$). (b) nombres moyens de MEC et REC effectifs mesurés et simulés en fonction de la position X (c) nombres moyens de MEC effectif en fonction de r_{min}^e . (d) probabilités $P(N_{am})$ de captures dans la couche amorphe de sortie du cristal (N_{am} est le nombre d'électrons capturés).

On constate que, dans ces conditions, le nombre moyen effectif N_{MEC} de captures mécaniques simulées pour les ions bien canalisés est trop faible : les ions ont une faible probabilité de capturer des électrons en couches amorphes et dès que les ions s'approchent suffisamment près des rangées, ils capturent rapidement plus de quatre électrons. On

pourrait envisager que le nombre de MEC s'effectue à plus grande distance r_{\min}^e et qu'il augmente plus progressivement lorsque r_{\min}^e diminue. En effet, la figure 114 (a) qui présente les nombres moyens de MEC effectifs avec et sans perte d'énergie pour une capture MEC s'effectuant à légèrement plus grand paramètre d'impact que dans les simulations précédentes (figure 113) montre que le nombre moyen de captures dépend fortement du réchauffement transverse. Cependant, même dans ces conditions, les nombres moyens N_{MEC} simulés pour les ions les mieux canalisés sont très inférieurs aux valeurs expérimentales ; de plus, les nombre moyens de REC simulés sont nettement supérieurs aux nombres mesurés.

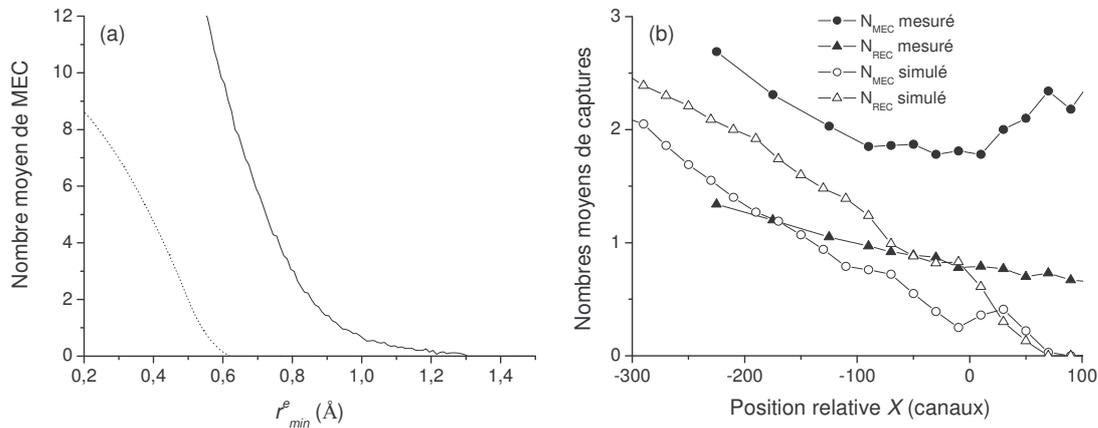


figure 114 : (a) nombres moyens de MEC effectifs avec et sans perte d'énergie, représentés respectivement par des lignes continue et en pointillés (c'est à dire sans réchauffement transverse et sans augmentation des sections efficaces de capture σ_{cap}) en fonction de la distance r_{\min}^e pour une capture MEC s'effectuant à légèrement plus grand paramètre d'impact que dans les simulations précédentes (figure 113) (et avec les mêmes probabilités de captures dans la couche amorphe de sortie). (b) nombres moyens de MEC et REC effectifs mesurés et simulés en fonction de la position X.

Ces résultats tendent à montrer que les captures mécaniques des ions les mieux canalisés s'effectuent en majorité dans la couche amorphe de sortie du cristal, comme le laisse à penser la section efficace de MEC, proportionnelle à v_p^{-11} d'après l'équation 21 (où v_p est la vitesse du projectile). Ceci est confirmé par la figure 115 qui présente les résultats des simulations effectuées avec des probabilités $P(N_{am})$ de capture dans la couche amorphe de sortie élevées : $P(N_{am}=0)=0,15$, $P(N_{am}=1)=0,35$, $P(N_{am}=2)=0,35$, $P(N_{am}=3)=0,14$. Les simulations reproduisent de manière très satisfaisante les mesures des nombres N_{MEC} et

N_{REC} de captures mécaniques et radiatives et du rapport N_{REC-K}/N_{REC-L} (figure 116), compte tenu des approximations de nos calculs d'échanges de charge ; la grandeur simulée avec la plus grande incertitude est probablement la largeur des distributions de perte d'énergie par état de charge de sortie Q_{out} . Par ailleurs, nous avons vu avec le cristal de $1,1 \mu\text{m}$ que l'optique de faisceau n'avait pas été optimisée pour focaliser les ions sur le détecteur de particules ; certains états de charge apparaissent par exemple sur les distributions de positions (X, Y) sous forme d'anneaux (cf. figure 99). Le recouvrement des états de charge sur les distributions mesurées de positions X est donc très certainement plus complexe que celui que nous avons simulé. En particulier, nos simulations ne peuvent reproduire la remontée du nombre N_{MEC} pour des positions $X > 0$.

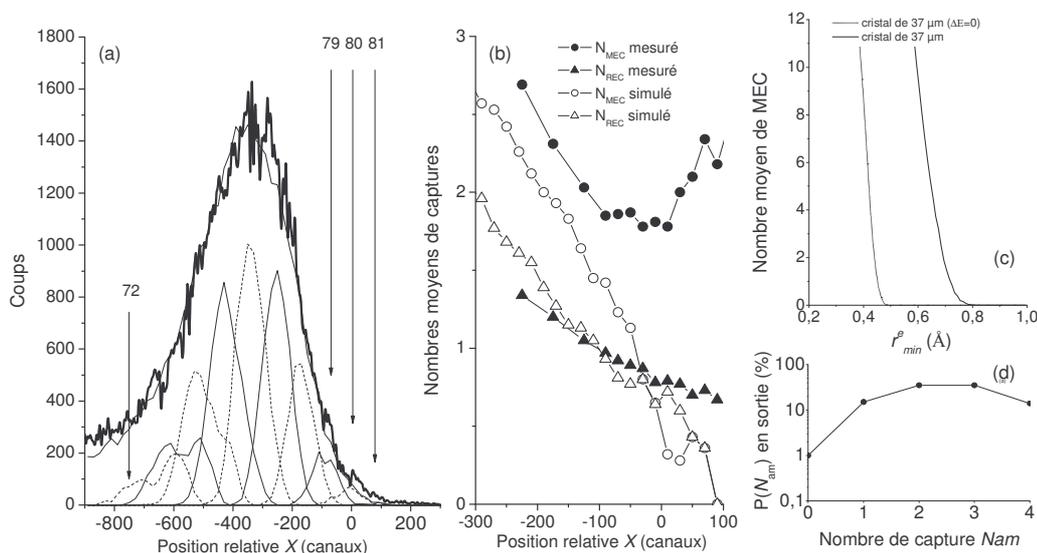


figure 115 : simulations des échanges charge pour des ions incidents Pb^{81+} de 13 MeV/u canalisés le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ du cristal de $37 \mu\text{m}$, pour des probabilités de capture dans la couche amorphe de sortie élevées. (a) distributions mesurée et simulée de position X des ions bien canalisés (position $X > -900$). (b) nombres moyens de MEC et REC effectifs mesurés et simulés en fonction de la position X (c) nombres moyens de MEC effectif en fonction de r_{min}^e . (d) probabilités $P(N_{am})$ de captures dans la couche amorphe de sortie du cristal (N_{am} est le nombre d'électrons capturés).

Ces simulations d'échange de charge montrent donc que la majorité des captures mécaniques effectuées par les ions bien canalisés ont lieu dans la couche amorphe de sortie et que, par conséquent, des ions gelés sont transportés jusqu'à la couche amorphe de sortie du cristal. Nous n'avons pu, cependant, déterminer si une petite fraction de ces ions traverse la couche amorphe de sortie sans capturer d'électrons. D'après la figure 115(a), si des ions

Chapitre V

gelés étaient transmis à travers le cristal, ils traverseraient le détecteur de particules à une position X proche de 100 (canaux) et présenteraient une perte d'énergie moyenne d'environ 4,1 MeV/u qui est légèrement inférieure à la perte d'énergie évaluée au paragraphe A.II.3) mais qui est nettement supérieure à la perte d'énergie mesurée en orientation aléatoire.

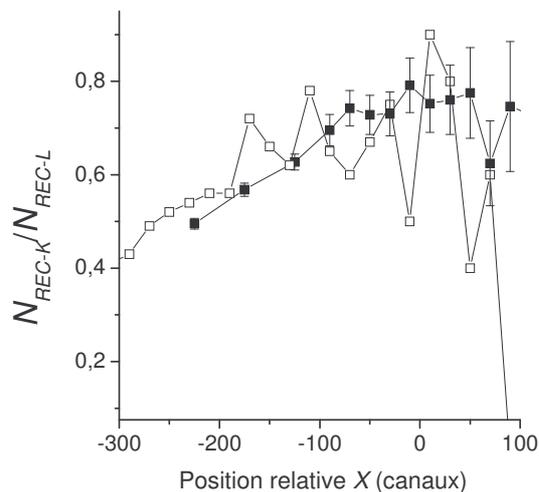


figure 116 : rapports mesuré (symboles pleins) et simulé (symboles creux) des nombres moyens de REC-K et -L en fonction des positions X .

La dernière expérience, réalisée en mai 2005, a cherché à mettre directement en évidence la transmission de ces ions gelés qui perdent beaucoup d'énergie. Les premiers résultats obtenus avec un cristal de 20 μm sont concluants : ils montrent qu'effectivement des ions gelés sont transmis avec une perte d'énergie supérieure à la perte d'énergie mesurée en orientation aléatoire.

Conclusion

Ce travail a consisté à étudier les processus d'échange de charge et la perte d'énergie d'ions lourds hydrogéoïdes, ralentis dans l'anneau de stockage ESR de l'accélérateur GSI, extraits de celui-ci et canalisés dans des cristaux minces de silicium.

Les différents processus d'échanges de charge d'ions dans une cible solide ainsi que la réaction du milieu lors du passage d'un projectile chargé sont présentés dans le premier chapitre de ce mémoire. Nous avons décrit la canalisation d'ions lourds dans le cadre du modèle de potentiel continu et montré que cette technique permet notamment d'étudier des processus d'interaction ion-atomes dans des cibles solides en donnant une information précise sur leur dépendance en fonction du paramètre d'impact.

Des calculs de trajectoires et d'échanges de charge des ions canalisés ainsi que des simulations de raies X ont été nécessaires pour exploiter en détail les résultats de nos expériences de canalisation ; leurs principes sont présentés dans le second chapitre.

Le troisième chapitre décrit, de façon générale, le principe des expériences de canalisation des faisceaux d'ions lourds hydrogéoïdes extraits de l'anneau de stockage ESR de l'accélérateur GSI.

Le quatrième chapitre est consacré à l'expérience sur la compétition entre les processus de captures électronique mécanique et radiative par des ions incidents U^{91+} de 20 MeV/u en fonction de l'orientation d'un cristal de silicium de 11,7 μm . Cette expérience montre, à l'aide des simulations, que la capture mécanique (MEC) peut s'effectuer à relativement grand paramètre d'impact, sur des états très excités du projectile. La probabilité expérimentale de MEC a été comparée aux calculs CDW-EIS de Rivarola *et al.*, qui sont limités aux couches atomiques du projectile $n_f \leq 5$. Ces calculs montrent que la capture mécanique sur ces couches s'effectue à des paramètres d'impact relativement

Conclusion

faibles (inférieurs à 0,2 Å) pour lesquels nous n'avons pas accès expérimentalement à la probabilité de capture. Leur extrapolation à partir des fonctions d'onde de l'uranium hydrogénoïde est compatible avec les résultats expérimentaux. Des calculs complémentaires de type CTMC sont en cours de développement à l'IPNL.

Par ailleurs, les ions lourds relativement lents polarisent fortement le gaz dense d'électrons cible. Cette polarisation a été étudiée dans notre travail par l'intermédiaire de la capture radiative ; la fluctuation de la densité d'électrons au voisinage du projectile est responsable en effet d'un décalage entre l'énergie moyenne d'une raie de REC et l'énergie théorique calculée pour la capture d'un électron libre. Ce décalage a été évalué à une centaine d'électron-volts environ lors des deux expériences réalisées au cours de notre étude (les mesures sont rassemblées dans le chapitre V). Il est en bon accord avec la valeur calculée dans le cadre de la théorie d'une réponse linéaire du milieu. Cette théorie prévoit de plus une augmentation de la densité électronique locale à la position du projectile qui serait susceptible d'augmenter la probabilité de capture radiative. Mais dans notre cas, la densité électronique à la position du projectile serait environ dix fois supérieure à la densité électronique moyenne du milieu alors que la probabilité de REC observée est au plus supérieure d'un facteur 1,6 à la probabilité théorique obtenue avec un gaz d'électrons non perturbés et la section efficace REC déterminée dans l'approximation dipolaire (formule de Stobbe). Comme l'on pouvait le penser dans un régime de forte perturbation ($Z_p/v_p \gg 1$), l'augmentation de densité électronique n'est donc pas aussi localisée que ce que prédit la théorie de la réponse linéaire du milieu. En revanche, le potentiel induit à la position du projectile résulte de l'intégration à grande échelle de la polarisation du milieu. L'approche perturbative est par conséquent plus réaliste dans le calcul du décalage de l'énergie des photons de REC que dans celui de la probabilité de REC.

Le cinquième chapitre présente les résultats de l'expérience de canalisation des ions incidents Pb^{81+} de 13 MeV/u le long de l'axe $\langle 110 \rangle$ de cristaux de silicium de 1,1 μm et de 37 μm . Cette expérience consistait à étudier le ralentissement d'ions lourds très chargés transmis à travers une cible cristalline et la probabilité pour ces ions de rester gelés dans leur état de charge incident. Elle a montré pour la première fois que des ions canalisés très chargés peuvent subir, en conservant un état de charge très élevé, une perte d'énergie supérieure à celle qui est mesurée hors canalisation (et ceci bien qu'ils rencontrent une

densité électronique réduite) : en canalisation, les ions les mieux canalisés émergent du cristal avec une énergie de 8,5 MeV/u (c'est-à-dire en subissant une perte d'énergie relative d'environ 35 %) alors que dans le cas d'une orientation aléatoire du cristal, les ions sont transmis en moyenne avec une énergie de 9,5 MeV/u, car ils atteignent rapidement leur état de charge à l'équilibre voisin de 62. Nous n'avons pu déterminer si des ions restent gelés lors de la traversée du cristal ; cependant le nombre moyen de REC dans la cible de 37 μm est relativement faible et il est très probable qu'une fraction du faisceau de l'ordre du pourcent ne subit pas de REC. De plus, on peut penser que les captures mécaniques ont lieu en grande majorité dans la couche amorphe de sortie car une perte importante d'énergie implique une forte augmentation des probabilités de MEC. Ces hypothèses ont été vérifiées par des simulations d'échange de charge qui montrent finalement que des ions gelés ont été transportés au moins jusqu'à la couche amorphe de sortie du cristal de 37 μm . Lors de la dernière expérience qui s'est déroulée en mai 2005 et qui n'est pas décrite dans ce travail, les surfaces du cristal ont donc été traitées à l'acide fluorhydrique et passivées à l'hydrogène pour éviter autant que possible leur oxydation lors des manipulations du cristal. Cette expérience a permis de mettre directement en évidence la transmission à travers un cristal relativement épais (de 20 μm d'épaisseur) d'ions incidents U^{91+} de 12 MeV/u gelés dans leur état de charge initial en condition de canalisation, et dont la perte d'énergie est supérieure à celle subie par les ions en orientation aléatoire. L'utilisation de cristaux pour ralentir à faible coût des ions lourds très chargés (dans le cadre d'études spectroscopiques) est donc prometteuse. Le rendement de transmission des ions gelés pourrait être sensiblement accru en améliorant encore l'état de surface des cristaux et en réduisant la divergence angulaire du faisceau extrait de l'anneau de stockage ESR. Par ailleurs, il serait très intéressant de comparer nos mesures aux calculs théoriques les plus récents des transferts d'énergie projectile-électron, dans le cas des ions relativement lourds, proches du régime de Bohr ($Z_p/v_p \gg 1$). Les simulations précises de la perte d'énergie des projectiles nécessaires pour cette comparaison seront développées très prochainement au sein de notre collaboration et serviront à l'analyse détaillée des expériences de pulvérisation ionique de cristaux en condition de canalisation qui débiteront l'année prochaine.

Bibliographie

- J. U. Andersen, J. Chevallier, G. C. Ball, W. G. Davies, J. S. Forster, J. S. Geiger, J. A. Davies, H. Geissel and E. P. Kanter *Phys. Rev. A* **54** (1996): 624-635.
- S. Andriamonje, K. Beckert, M. Chevallier, C. Cohen, D. Dauvergne, J. Dural, H. Eickhoff, B. Franzke, H. Geissel, R. Kirsch, A. L'Hoir, P. H. Mockler, R. Moshhammer, F. Nickel, F. Nolden, J. C. Poizat, H.-T. Prinz, H. Reich, J. Remilleux, F. Sanuy, C. Scheidenberger, D. Schmaus, M. Steck, T. Stöhlker and M. Toulemonde *J. Phys B* **30** (1997): 5099-5108.
- S. Andriamonje, M. Chevallier, C. Cohen, N. Cue, D. Dauvergne, J. Dural, F. Fijimoto, R. Kirsch, A. L'Hoir, J.-C. Poizat, Y. Quéré, J. Remilleux, C. Röhl, H. Rothard, J. P. Rozet, D. Schmaus, M. Toulemonde and D. Vernhet *Phys. Rev. A* **54** (1996): 1404-1416.
- S. Andriamonje, M. Chevallier, C. Cohen, J. Dural, M. J. Gaillard, R. Genre, M. Hage-Ali, R. Kirsch, A. L'Hoir, B. Mazuy, J. Mory, J. Moulin, J. C. Poizat, J. Remilleux, D. Schmaus and M. Toulemonde *Phys. Rev. Lett.* **59** (1987): 2271.
- R. Anholt, W. E. Meyerhof, H. Gould, C. Munger, J. Alonso, P. Thieberger and H. E. Wegner *Phys. Rev. A* **32** (1985): 3302.
- B. R. Appleton, C. Erginsoy and W. M. Gibson *Phys. Rev.* **161** (1967): 330.
- W. Assman, H. Huber, S. A. Karamian, F. Grüner, H. D. Mieskes, J. U. Andersen, M. Posselt and B. Schmidt *Phys. Rev. Lett.* **1759-1762** (1999).
- G. d. M. Azevedo, P. L. Grande, M. Behar, J. F. Dias and G. Schiwietz *Phys. Rev. Lett.* **86** (2001): 1482-1485.
- W. H. Barkas, N. J. Dyer and H. H. Heckman *Phys. Rev. Lett.* **11** (1963): 26.
- J. H. Barrett *Phys. Rev. B* **3** (1971): 1527.
- F. Barrué, M. Chevallier, D. Dauvergne, R. Kirsch, J. C. Poizat, C. Ray, L. Adoui, A. Cassimi, H. Rothard, M. Toulemonde, C. Cohen, A. L'Hoir, D. Vernhet, C. Demonchy, L. Giot, W. Mittig, S. Pita, P. Roussel-Chomaz and A. Billebaud *Phys. Rev. A* **70** (2004).
- G. Basbas, W. Brandt and R. Laubert *Phys. Lett.* **34A** (1971): 277.
- G. Bednarz, A. Warczak, D. Sierpowski, T. Stöhlker, S. Hagmann, F. Bosch, A. Gumberidze, C. Kozhuharov, D. Liesen, P. H. Mokler, X. Ma and Z. Stachura *Hyperfine Interactions* **146/147** (2003): 29-34.
- D. Belkić, R. Gayet and A. Salin *Phys. Reports* **56** (1979): 279-369.
- H. A. Bethe and E. E. Salpeter *The Physics of One- and Two-Electron Atoms*, New-York (1977).
- A. Billebaud (1995). *Etude expérimentale de l'émission électronique secondaire de cibles minces de carbone sous l'impact de projectiles rapides: ions lourds, ions hydrogènes (atomiques, moléculaires, ou sous forme d'agrégat)*, thèse de doctorat, Université Claude Bernard - Lyon 1. **170-95**.

- N. Bohr *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk.* **18** (1948).
- E. Bonderup, H. Esbensen, J. U. Andersen and H. E. Schiott *Radiat. Eff.* **12** (1972): 261.
- B. H. Bransden and M. R. McDowell *Charge exchange and the theory of ion-atom collisions*, Oxford University Press (1992).
- C. F. Bunge, J. A. Barrientos and A. V. Bunge *Atomic data and nuclear data tables* **53** (1993): 113-162.
- J. Burgdörfer *Nucl. Instr. and Meth. B* **67** (1992): 1-10.
- H. F. Busnengo, S. E. Corchs, A. E. Martinez and R. D. Rivarola *Physica scripta* **T73** (1997): 242-244.
- H. F. Busnengo, A. E. Martinez, R.D.Rivarola and L. J. Dubé *J. Phys. B* **26** (1993): 1579.
- A. Cassimi, S. Duponchel, X. Flechard, P. Jardin, P. Sortais, D. Hennecart and R. E. Olson *Phys. Rev. Lett.* **76** (1996): 3679-3682.
- J. R. Chelikovsky and M. L. Cohen *Phys. Rev. B* **14** (1976): 556.
- C. Cohen and D. Dauvergne *Nucl. Instr. and Meth. B* **225** (2004): 40-71.
- D. S. F. Crothers and J. F. McCann *XIII Electronic and Atomic collisions* (1983).
- N. Cue, J. C. Poizat and J. Remillieux *Europhysics Letters* **8** (1989): 19-23.
- S. Datz, C. D. Moak, O. H. Crawford, H. F. Krause, P. F. Dittner, J. G. d. Campo, J. A. Biggerstaff, P. D. Miller, P. Hvelplund and H. Knudsen *Phys. Lett.* **40** (1978): 843-847.
- S. Datz, C. R. Vane, P. F. Dittner, J. P. Giese, J. G. d. Campo, N. L. Jones, H. F. Krause, P. D. Miller, M. Schulz, H. Schöne and T. M. Rosseel *Phys. Rev. Lett.* (1989): 742.
- D. Dauvergne (1993). *Processus de capture électronique par des ions lourds très épluchés canalisés dans des cristaux minces à des énergies supérieures à 20 MeV/u*, thèse de doctorat, Université Claude Bernard Lyon 1. **69-93**.
- D. Dauvergne, A. Braüning-Demian, F. Bosch, H. Braüning, M. Chevallier, C. Cohen, A. Gumberidze, A. L'Hoir, R. Kirsch, C. Kozhuharov, D. Liesen, P. Mokler, J. C. Poizat, C. Ray, T. Stöhlker, M. Tarisien, E. Testa, S. Toleikis and M. Toulemonde *NIM. B* **205** (2003): 773-778.
- D. Dauvergne, C. Scheidenberger, A. L'Hoir, J. U. Andersen, S. Andriamonje, C. Böckstiegel, M. Chevallier, C. Cohen, N. Cue, S. Czajkowski, J. S. Forster, H. Geissel, H. Irnich, T. Kandler, R. Kirsch, A. Magel, P. H. Mockler, G. Münzenberg, F. Nickel, Y. L. Pivovarov, J.-C. Poizat, M. F. Politis, D. Schmaus, T. Stöhlker, T. Suzuki and M. Toulemonde *Phys. Rev. A* **59** (1999): 2813-2826.
- A. Desalvo and R. Rosa *J. Phys. C* **10** (1977): 1595.
- I. Despiney (1994). *Mélange cohérent et mélange collisionnel des états de structure fine d'ions lourds rapides en milieux condensés*, thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie - Paris 6.
- E. D. Donets *Phys. Scripta* **T3** (1983): 11.
- G. W. Drake *Can. J. Phys.* **66**(586) (1988).
- P. M. Echenique, R. H. Ritchie and W. Brandt *Phys. Rev. B* **20** (1979): 2567-2580.
- P. Fainstein, V. Ponce and R. D. Rivarola *J. Phys B* **21** (1988): 287-299.
- J. S. Forster, T. K. Alexander, J. U. Andersen, G. C. Ball, J. A. Davies, W. G. Davies, J. S. Geiger, H. Geissel and E. P. Kanter *Radiat. Eff. Defects Solids* **126** (1993): 299.
- D. S. Gemmell *Rev. Mod. Phys.* **46** (1974): 129.
- D. S. Gemmell, J. Remillieux, J. C. Poizat, M. J. Gaillard, R. E. Holland and Z. Vager *Phys. Rev. Lett.* **34** (1975): 1420.

- A. Gensmantel, J. Ullrich, R. Dörner, R. E. Olson, K. Ullmann, E. Forberich, S. Lencinas and H. Schmidt-Böcking *Phys. Rev. A* **45** (1992): 4572.
- P. L. Grande and G. Schiwietz *Nucl. Instr. and Meth. B* **195** (2002): 55-63.
- F. Grüner, W. Assman, F. Bell, M. Schubert, J. U. Andersen, S. Karamian, A. Bergmaier, G. Dollinger, L. Görgens, W. Günther and M. Toulemonde *Phys. Rev. B* **68** (2003): 174104.
- A. Ichihara, T. Shirai and J. Eichler *Phys. Rev. A* **49** (1994): 1875-1884.
- P. Indelicato (- communication privée).
- J. D. Jackson *Classical Electrodynamics*, Wiley, New-York (1975).
- T. Kirchner, L. Gulyas, R. Moshhammer, M. Schulz and J. Ullrich *Phys. Rev. A* **65** (2002): 042727.
- T. Y. Kuo and K. N. Huang *Phys. Rev. A* **64** (2001): 032710.
- A. L'Hoir, L. Adoui, F. Barru , A. Billebaud, F. Bosch, A. Brauning-Demian, H. Brauning, A. Cassimi, M. Chevallier, C. Cohen, D. Dauvergne, C. E. Demonchy, H. Rothard, J. P. Rozet, T. St hlker, M. Tarisien, E. Testa, S. Toleikis, M. Toulemonde and D. Vernhet *A para tre dans Nucl. Instr. and Meth.* (2006).
- A. L'Hoir, S. Andriamonje, R. Anne, N. V. D. Castro-Faria, M. Chevallier, C. Cohen, J. Dural, M. J. Gaillard, R. Genre, M. Hage-Ali, R. Kirsch, B. Farizon-Mazuy, J. Mory, J. Moulin, J. C. Poizat, Y. Qu r , J. Remillieux, D. Schmaus and M. Toulemonde *Nucl. Instr. and Meth. B* **48** (1990): 145-155.
- P. Legagneux-Piquemal (1984). *Etude du processus de capture dans les  tats de Rydberg d'ions multicharg s en collisions de haute vitesse*, th se de doctorat, Universit  Pierre et Marie Curie - Paris 6.
- A. L on *Atomic data and nuclear data tables* **69** (1998): 217.
- J. Lindhard *Dan. Mat. Fys. Medd.* **34** (1965): no. 14.
- J. Lindhard *Nucl. Instr. and Meth. B* **132** (1976): 1-5.
- J. Lindhard and M. Scharff *Dan. Mat. Fys. Medd.* **27** (1953): no.15.
- W. Lotz *Z. Physik A* **216** (1968): 241.
- R. E. Marrs, S. R. Elliott and J. H. Scofield *Phys. Rev. A* **56** (1997): 1338-1345.
- J. H. McGuire and P. R. Simony *Phys. Rev. A* **22** (1980): 2270.
- J. E. Miraglia, R. Gayet and A. Salin *Europhysics Letters* **6** (1988): 397-402.
- G. Moliere *Z. Naturforsch. A* **2** (1947): 133.
- R. Moshhammer and J. Ullrich *Phys. Rev. Lett.* **83** (1999): 4721.
- V. V. Okorokov, D. L. Tolchenkov, I. S. Khizhnyakov, Y. N. Cheblukov, Y. Y. Lapitsky, G. A. Iferov and Y. N. Zhukova *Phys. Lett. A* **43** (1973): 485.
- K. Omidvar *Atomic data and nuclear data tables* **28** (1983): 1-20.
- Ortec (1991). EG & G Ortec catalogue 91/92. P. D. EG & Ortec, 100 Midland Road, Oak Ridge, Tenn.37380 USA.
- J. M. Pitarke, R. H. Ritchie and P. M. Echenique *Phys. Rev. B* **43** (1991): 62-70.
- Y. L. Pivovarov *NIM. B* **145** (1998): 96-101.
- V. H. Ponce *Atomic data and nuclear data tables* **19** (1977): 63-82.
- H.-T. Prinz, D. Dauvergne, S. Andriamonje, K. Beckert, M. Chevallier, C. Cohen, J. Dural, H. Eickhoff, B. Franzke, H. Geissel, R. Kirsch, A. L'Hoir, P. H. Mockler, R. Moshhammer, F. Nickel, F. Nolden, J. C. Poizat, H. Reich, J. Remilleux, F. Sanuy, C. Scheidenberger, D.

- Schmaus, M. Steck, T. Stöhlker and M. Toulemonde *Hyperfine Interactions* **108** (1997): 325-332.
- R. D. Rivarola (- communication privée).
- R. D. Rivarola, P. D. Fainstein and V. H. Ponce *Physica scripta* **T28** (1989): 101-5.
- M. T. Robinson and O. S. Oen *Phys. Rev.* **132** (1963): 2385-2398.
- J. P. Rozet (communication privée).
- J. P. Rozet, A. Chetoui, P. Bouisset, D. Vernhet, K. Wohrer, A. Touati, C. Stephan and J. P. Grandin *Phys. Rev. Lett.* **58 n°4** (1987): 337-340.
- J. P. Rozet, A. Chetoui, P. Piquemal, D. Vernhet, K. Wohrer, C. Stephan and L. Tassa-Got *J. Phys B* **22** (1989): 33-48.
- M. M. Sant'Anna, E. C. Montenegro and J. H. McGuire *Phys. Rev. A* **58** (1998): 2148-2159.
- G. Schiwietz and P. L. Grande *Nucl. Instr. and Meth. B* **53** (1999): 1-9.
- D. Schmaus, F. Abel, M. Bruneaux, C. Cohen, A. L'Hoir, G. D. Mea, A. V. Drigo, S. L. Russo and G. G. Bentini *Phys. Rev. B* **19** (1979): 5581.
- R. Shakeshaft *Phys. Rev. A* **10** (1974): 1906.
- S. Shindo and Y. H. Ohtsuki *Phys. Rev. B* **14** (1976): 3929.
- E. Spindler, H. D. Betz and F. Bell *Phys. Rev. Lett.* **42** (1979): 832-835.
- T. Stöhlker, A. Krämer, S. R. Elliott, R. E. Marrs and J. H. Scofield *Phys. Rev. A* **56** (1997): 2819-2824.
- T. Stöhlker, T. Ludziejewski, H. Reich, F. Bosch, R. W. Dunford, J. Eichler, B. Franzke, C. Kozhuharov, G. Menzel, P. H. Mokler, F. Nolden, P. Rymuza, Z. Stachura, M. Steck, P. Swiat, A. Warczak and T. Winkler (1998).
- T. Stöhlker, P. H. Mokler, F. Bosch, R. W. Dunford, F. Franzke, O. Klepper, C. Kozhuharov, T. Ludziejewski, F. Nolden, H. Reich, P. Rymuza, Z. Stachura, M. Steck, P. Swiat and A. Warczak *Phys. Rev. Lett.* **85** (2000): 3109-3112.
- E. Testa, D. Dauvergne, A. Braüning-Demian, F. Bosch, H. Braüning, M. Chevallier, C. Cohen, A. Gumberidze, A. L'Hoir, R. Kirsch, C. Kozhuharov, D. Liesen, P. Mokler, J. C. Poizat, C. Ray, J. P. Rozet, T. Stöhlker, S. Toleikis, M. Toulemonde and P. Verma *A paraître dans Nucl. Instr. and Meth.* (2005).
- L. C. Tribedi, V. Nanal, M. B. Kurup, K. G. Prasad and P. N. Tandon *Phys. Rev. A* **51** (1995): 1312-1320.
- L. C. Tribedi, V. Nanal, M. R. Press, M. B. Kurup, K. G. Prasad and P. N. Tandon *Phys. Rev. A* **49** (1994): 374-378.
- J. Ullrich, R. Moshhammer, R. Dörner, O. Jagutzki, V. Mergel, H. Schmidt-Böcking and L. Spielberger *J. Phys B* **30** (1997): 2917-2974.
- D. Vernhet, J. P. Rozet, I. Despiney-Bailly, C. Stephan, A. Cassimi, J. P. Grandin and L. J. Dubé *J. Phys B* (1997).
- K. L. Wong, W. Wu, E. C. Montenegro, I. Ben-Itzhak, C. L. Cocke, J. P. Giese and P. Richard *J. Phys B* **29** (1996): L209-L216.
- J. F. Ziegler *Stopping powers and ranges in all elemental matter*. New York, Pergamon press (1977).

NOM : TESTA (avec précision du nom de jeune fille, le cas échéant) Prénoms : Etienne		DATE de SOUTENANCE 20 octobre 2005		
TITRE : Echanges de charge et perte d'énergie d'ions lourds ralentis, canalisés dans des cristaux de silicium				
Numéro d'ordre : 34-2005				
DIPLOME DE DOCT.	DOCTEUR- INGENIEUR	DOCTORAT D'ETAT	DOCTORAT DE 3e CYCLE	Spécialité : Physique des Particules
<input checked="" type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>	
Cote B.I.U. - Lyon : T 50/210/19 / et bis			CLASSE :	
RESUME : <p> Ce travail est consacré à l'étude des processus d'échange de charge et de perte d'énergie d'ions lourds très chargés ralentis, canalisés dans des cristaux minces de silicium. Les deux premiers chapitres présente le principe de la canalisation des ions lourds dans un cristal, l'ensemble des processus d'interaction ion-électrons et le principe de nos simulations d'échanges de charge et de trajectoires en conditions de canalisation. </p> <p> Les chapitres suivants décrivent deux expériences réalisées à l'accélérateur de GSI de Darmstadt dont les principaux résultats sont les suivants : la probabilité par atome cible de capture mécanique (MEC) des ions U^{91+} de 20 MeV/u en fonction du paramètre d'impact (à l'aide de nos simulations), l'observation de la forte polarisation du gaz d'électrons cible par l'intermédiaire de la capture radiative (REC) et le ralentissement d'ions Pb^{81+} de 13 à 8,5 MeV/u en conditions de canalisation, pour lesquelles la capture électronique est fortement réduite. </p>				
MOTS-CLES : Canalisation / Echange de charge / Capture mécanique / MEC/ Capture radiative / REC / Polarisation du gaz d'électrons / Perte d'énergie				
Laboratoire de recherche : Institut de Physique Nucléaire de Lyon				
Directeurs de recherches : M. Chevallier				
Président du jury : B. Ille Composition du jury : L. Adoui - A. L'Hoir - M. Boutemour - A. Demian-Bräuning - R. Rivarola - M. Chevallier				210 pages