



**HAL**  
open science

# Diagnostic du plasma de la source d'ions ECR SIMPA par spectroscopie X, Collision d'ions néon hydrogenoïdes avec des agrégats d'argon

Nacer Adrouche

► **To cite this version:**

Nacer Adrouche. Diagnostic du plasma de la source d'ions ECR SIMPA par spectroscopie X, Collision d'ions néon hydrogenoïdes avec des agrégats d'argon. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2006. Français. NNT: . tel-00105774

**HAL Id: tel-00105774**

**<https://theses.hal.science/tel-00105774>**

Submitted on 12 Oct 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.

# UNIVERSITE PARIS VI – PIERRE ET MARIE CURIE

Ecole Doctorale : La physique de la particule au solide,  
Modèles et expériences

## THESE

Présentée pour obtenir le titre de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS VI**

Par : **Nacer ADROUCHE**

## SUJET

**Diagnostic du plasma de la source d'ions ECR SIMPA par  
spectroscopie X -  
Collisions d'ions néon hydrogenoïdes avec des agrégats d'argon**

Soutenue le 29 septembre 2006 devant le jury composé de :

M<sup>r</sup> Lamri ADOUI, Rapporteur  
M<sup>r</sup> Gianni GIARDINO, Examineur  
M<sup>r</sup> Paul INDELICATO, Rapporteur  
M<sup>r</sup> Jean Pierre ROZET, Directeur de thèse  
M<sup>me</sup> Lydia TCHANG-BRILLET, Examineur



## Sommaire du manuscrit

<b>Introduction</b> .....	7
<b>Chapitre I : Fonctionnement d'une source d'ions ECR et performances en extraction de courant de la source SIMPA</b> .....	9
I. Les sources d'ions ECR .....	10
1. Principe de fonctionnement .....	10
2. Ionisation par impact électronique .....	11
3. Résonance cyclotronique électronique .....	13
4. Confinement du plasma .....	13
II. La source ECR SIMPA .....	14
1. Description et conception .....	14
2. Pression d'injection et gaz .....	15
3. Puissance et accord HF .....	16
4. Fonctionnement et optimisation .....	17
III. Performances en extraction .....	17
1. Description de la ligne de transport .....	17
2. Courants d'ions d'argon .....	18
3. Courants d'ions du krypton .....	21
4. Courants d'ions du néon .....	23
5. Synthèse et récapitulation .....	24
<b>Chapitre II : Diagnostic du plasma de la source SIMPA par spectroscopie X</b> .....	27
I. Dispositif expérimental et détection .....	28
1. Description et montage .....	28
2. Le détecteur silicium .....	29
3. Le spectromètre cristallin .....	30
II. Température électronique .....	34
1. Rayonnement de freinage .....	34
2. Spectres Bremsstrahlung et normalisation .....	36
3. Température électronique et comparaison .....	38
III. Fonction de distribution et densités .....	39
1. Fonction de distribution électronique .....	39
2. Charge moyenne du plasma .....	40
3. Nombre de photons émis par le plasma ou Produit des densités .....	42
4. Densités électronique et ionique .....	43
IV. Spectres de haute résolution .....	45
1. Présentation des spectres d'argon .....	45
2. Présentation des spectres de krypton .....	47

V. Production de lacunes en couche K .....	49
1. La simple ionisation .....	49
2. L'excitation électronique .....	50
3. La double ionisation .....	51
VI. Identification et comparaison .....	52
1. Cas des spectres d'argon .....	53
2. Cas des spectres de krypton .....	53
VII. Distribution en état de charge .....	54
1. Les ions dans le plasma d'argon .....	55
2. Les ions dans le plasma de krypton .....	58
VIII. Conclusion et perspectives .....	59
<b>Chapitre III : Aspects théoriques sur la collision d'un ion lent multichargé avec un agrégat. Vue d'ensemble sur les différentes expériences menées sur le sujet .....</b>	<b>61</b>
I. Aspects théoriques .....	62
1. Collisions périphériques .....	62
1.1. Processus de capture .....	62
1.2. Charge finale du projectile .....	65
1.3. Gain en énergie du projectile .....	67
2. Collisions frontales .....	69
2.1. Processus de capture .....	69
2.2. Charge finale du projectile .....	70
2.3. Perte en énergie du projectile .....	72
II. Etudes expérimentales .....	73
1. Scénario de la collision .....	74
2. Ionisation de la cible .....	74
3. Fragmentation et fission .....	77
4. Capture électronique et énergie du projectile .....	81
5. Emission électronique et photonique .....	85
III. Application à l'expérience $\text{Ne}^{9+}$ - agrégats d'argon .....	89
1. Processus séquentiel d'une collision périphérique .....	89
2. Processus séquentiel d'une collision frontale .....	90
3. Evolution des populations moyennes en collision frontale .....	94
4. Conclusion .....	95
<b>Chapitre IV : Dispositif expérimental et moyens de détection .....</b>	<b>97</b>
I. La chambre de collision et montage .....	98
II. Caractérisation du faisceau d'ions .....	99

---

III. Les agrégats, production et propriétés .....	101
1. Propriétés physiques .....	101
2. Production des agrégats .....	103
3. Estimation de la taille des agrégats .....	104
IV. Le spectromètre ionique .....	107
1. Trajectoire des ions .....	107
2. Principe du montage .....	108
V. Détection des photons X .....	109
1. Le spectromètre cristallin .....	109
2. Les détecteurs silicium .....	112
<b>Chapitre V : Premiers résultats de collision entre des ions Ne<sup>9+</sup> avec des agrégats d'argon et discussion .....</b>	<b>115</b>
I. Mode d'acquisition .....	116
II. Spectres type et intensité des raies .....	117
1. Présentation des spectres Gen et Van .....	117
2. Calcul du rapport des intensités des raies .....	118
3. Comparaison entre l'expérience et le calcul .....	120
III. Variation de l'intensité des raies .....	122
1. Variation avec la pression amont .....	122
2. Variation avec la distance buse-écorceur .....	123
3. Variation avec la fréquence d'ouverture de la vanne .....	124
IV. Variation de l'énergie des raies .....	126
<b>Conclusion .....</b>	<b>131</b>



## **Introduction**

Cette thèse a été effectuée dans le cadre d'une large étude entreprise par l'équipe dirigée par J.P.Rozet et D.Vernhet sur l'interaction d'ions multichargés avec des cibles atomiques et solides. Ces études ont pour but l'analyse de la dynamique de perturbation des systèmes projectile-cible. Dans la perspective de prolonger ces études à l'interaction d'ions lents multichargés avec des surfaces, le choix de prendre des agrégats comme cible dans un premier temps, s'inscrit dans une étape d'étude intermédiaire entre l'atome et la surface. Les agrégats, ensemble d'atomes agrégés de taille nanométrique, ont la particularité de se situer par leurs propriétés physiques entre l'atome isolé et une surface solide. Le travail présenté dans ce manuscrit à propos de l'interaction entre des ions hydrogénéoïdes de néon et des agrégats d'argon est un prélude, à une série d'investigations qui seront engagées dans l'avenir, sur le même sujet.

C'est dans ce contexte qu'une source d'ions à résonance électronique cyclotronique (ECR) a été acquise par l'équipe en partenariat avec une équipe du LKB dirigée par P.Indelicato. La source fut baptisée SIMPA (source d'ions multichargés de Paris). Cette source permet de produire des faisceaux d'ions multichargés de basse vitesse, nécessaires à la mise en place des expériences de collisions. Dans un premier temps, il fallait caractériser cette source d'ions pour connaître ses performances en matière d'états de charge produits et d'intensités de courants extraits. Nous avons étendu et élargi la caractérisation de la source d'ions à l'étude de son plasma, site de production des ions, par spectroscopie X. Cette méthode permet de déterminer l'énergie des électrons et la densité des ions dans le plasma, rendant possible une caractérisation complète de la source d'ions et la connaissance des limites de ses performances.

En parallèle avec la caractérisation de la source d'ions ECR, une grande partie de mon travail de thèse a été consacrée à la préparation de l'expérience dédiée à l'étude des collisions entre le  $\text{Ne}^{9+}$  et les agrégats d'argon. Cette préparation inclut la mise en place d'une chambre de collision, l'installation du dispositif de production des agrégats et la mise au point du transport du faisceau d'ions vers la chambre de collision et de sa définition. Dans une deuxième étape, les détecteurs de photons X ont été connectés à la chambre de collision, alignés et testés pour déterminer leur étalonnage en énergie et leur efficacité de détection. Enfin, un spectromètre ionique a été conçu spécialement pour l'expérience, afin de détecter la charge des ions après la collision.

Pendant cette thèse, nous avons obtenu et enregistré les premiers spectres d'une collision d'ions lents multichargés avec des agrégats d'argon, ouvrant ainsi le champ à des études plus poussées lors des prochaines campagnes expérimentales.

Ce manuscrit s'articule en cinq chapitres, les deux premiers sont consacrés à la caractérisation de la source d'ions ECR SIMPA et correspond à la première partie du titre de cette thèse et les trois derniers chapitres sont consacrés à l'étude des collisions des ions  $\text{Ne}^{9+}$  avec des agrégats d'argon et correspond à la deuxième partie du titre de la thèse.



Le premier chapitre a pour objet une description de la conception et du fonctionnement des sources d'ions ECR en général, incluant une description détaillée des caractéristiques techniques de la source d'ions SIMPA et de la présentation de ses performances pour les faisceaux extraits d'argon, de krypton et de néon.

Le deuxième chapitre est entièrement consacré à l'étude du plasma de la source SIMPA, qui nous a permis de déterminer dans un premier temps, la température électronique et la fonction de distribution énergétique des électrons dans le plasma. Plus loin dans ce même chapitre, nous présenterons les spectres X de haute résolution du plasma et les mécanismes induisant les lacunes en couche K pour les atomes et les ions constituant le plasma. Nous terminerons par la détermination des densités ioniques de quelques états de charges dans le plasma et la mise en comparaison de ce paramètre avec l'intensité des courants extraits de ces mêmes états de charge.

Le troisième chapitre est constitué de trois parties. La première concerne la présentation des différents aspects théoriques sur la collision d'ions lents multichargés avec des agrégats, en faisant un parallèle avec les surfaces. La deuxième partie est dédiée à la présentation d'une vue d'ensemble des études expérimentales les plus marquantes effectuées ces dernières années sur les collisions entre des ions lents et des agrégats, notamment les agrégats de fullerènes, qui ont été les plus largement étudiés jusqu'à présent. La troisième et dernière partie de ce chapitre, présente un calcul théorique simple, effectué en prenant comme partenaires de la collision des ions de  $\text{Ne}^{9+}$  et un agrégat d'argon, dans le but de mettre en avant les spécificités d'une telle collision, notamment au niveau de la capture électronique par le projectile.

Le quatrième chapitre est consacré à la description du dispositif expérimental mis en place pour les expériences de collisions entre les ions et les agrégats et à la présentation des moyens de détection. Enfin, le cinquième et dernier chapitre est dédié à la présentation des premiers résultats expérimentaux obtenus, pour une collision entre des ions  $\text{Ne}^{9+}$  et des agrégats d'argon.

# **Chapitre I :**

## **Fonctionnement d'une source d'ions ECR et performances en extraction de courant, de la source SIMPA**

### **Plan du chapitre :**

#### **I. Les sources d'ions ECR**

1. Principe de fonctionnement
2. Ionisation par impact électronique
3. Résonance cyclotronique électronique
4. Confinement du plasma

#### **II. La source ECR SIMPA**

1. Description et conception
2. Pression d'injection et gaz
3. Puissance et accord HF
4. Fonctionnement et optimisation

#### **III. Performances en extraction**

1. Description de la ligne de transport
2. Courants d'ions d'argon
3. Courants d'ions du krypton
4. Courants d'ions du néon
5. Synthèse et récapitulation

## **Introduction**

Afin de réaliser des expériences avec des ions fortement chargés, il est indispensable d'avoir recours à des sources d'ion qui peuvent fournir des ions avec une intensité suffisante et des états de charge élevés. A titre d'exemple, les sources d'ions Penning fournissent des intensités élevées d'ions mono-chargés mais peu d'ions sont produits dans des états de charge plus élevés. Pour la production des états de charge très élevés, on dispose de nos jours des sources EBIS (Electron Beam Ion Sources) dont quelques-unes peuvent fournir des ions de  $U^{92+}$  mais seulement avec de faibles intensités et dans un mode pulsé.

Les sources d'ions ECR (Electron Cyclotron Resonance) sont un compromis entre ces deux types de sources, elles peuvent produire des ions modérément chargés avec une intensité élevée. Depuis la première source d'ions ECR construite en 1975 [ref.1], un développement rapide en performance et en efficacité a été effectué dans ce domaine. Elles sont aujourd'hui largement répandues dans les expériences de physique atomique et dans le domaine des collisions ioniques. Elles sont aussi utilisées comme injecteurs dans les accélérateurs linéaires et les cyclotrons.

Les différents avantages de ce type de sources d'ions résident dans le fait qu'elles peuvent délivrer un faisceau continu d'ions hautement chargés, qu'elles sont faciles à manipuler et peuvent fonctionner pendant de longues périodes, qu'elles ont une appréciable stabilité et reproductibilité à long terme et qu'elles fonctionnent avec des pressions d'injection de l'ordre de  $10^{-4}$  mbar, ce qui correspond à une très faible consommation en gaz et en matériaux [ref.2].

### **I. Les sources d'ion ECR**

#### **1. Principe de fonctionnement**

La figure (1) montre le principe de fonctionnement d'une source d'ions ECR. Un plasma est confiné par un champ magnétique dans une configuration appelée champ minimum. La valeur de ce champ est minimum au centre de la source d'ions et augmente dans toutes les directions à partir de ce centre. Une telle configuration peut être réalisée par la superposition d'un champ magnétique axial et d'un champ magnétique radial.

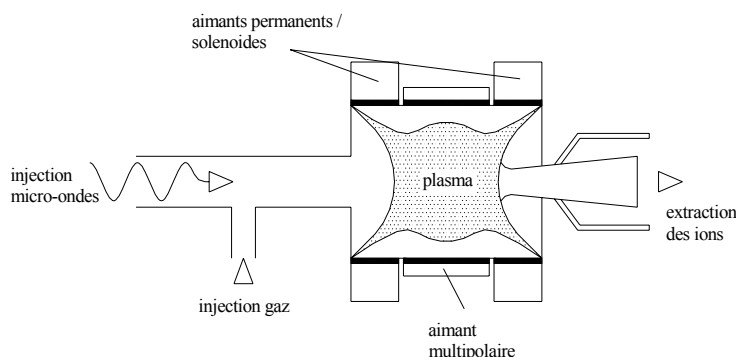


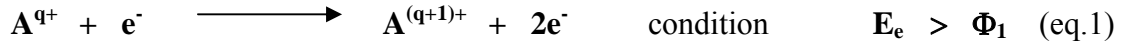
Figure (1) : principe de fonctionnement d'une source ECR

Les électrons dans le champ magnétique global ont un mouvement circulaire autour des lignes de champ avec la fréquence cyclotron. Si des micro-ondes électromagnétiques sont introduites dans le plasma, les électrons sont accélérés par résonance.

Ces électrons sont alors capables d'ioniser les atomes, les molécules et les ions du plasma par impact électronique et un faisceau peut alors être extrait à travers une ouverture.

## 2. Ionisation par impact électronique

Les atomes et les ions dans une source ECR sont ionisés par impact électronique. Pour que ce processus ait lieu, il faut que l'énergie  $E_e$  des électrons incidents soit plus grande que le potentiel d'ionisation  $\Phi_1$  de l'électron le moins lié de l'atome ou de l'ion.



La figure (2) montre les sections efficaces pour une ionisation simple par impact électronique de l'oxygène pour deux états de charges différents ( $q = 0$ ) [ref.3] et ( $q = 7$ ) [ref.4]. La section efficace d'ionisation par impact électronique de l' $O^{7+}$  est inférieure de presque quatre ordres de grandeurs à celle de l'oxygène neutre.

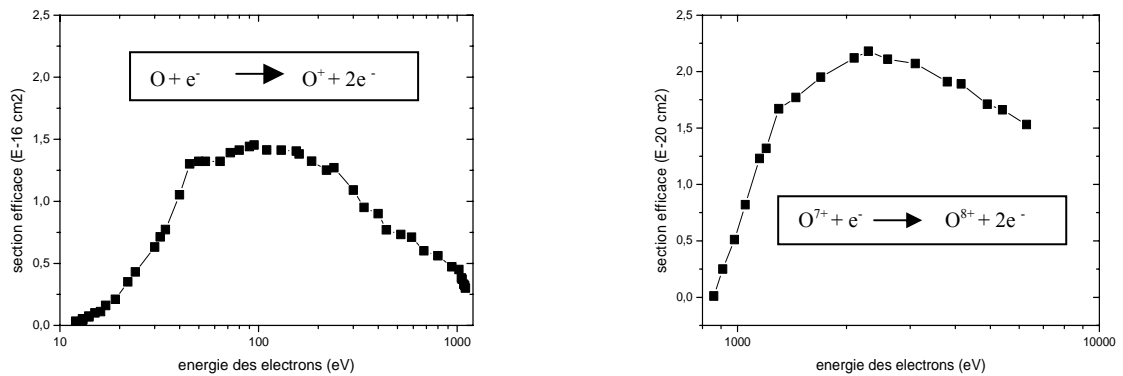


Figure (2) : section efficace d'ionisation par impact électronique de l'oxygène : à gauche oxygène neutre [ref.3], à droite  $O^{7+}$  [ref.4]

A partir de ces données, il apparaît que des énergies élevées d'électron sont nécessaires pour produire des états élevés en charge. En plus, une densité élevée en électrons est également requise pour la production des états de charge élevés. L'ionisation multiple directe par impact électronique joue un rôle mineur dans la production des ions multichargés dans une source ECR, sachant que les sections efficaces du processus sont au moins un ordre de grandeur inférieur à celui de la simple ionisation [ref.2].

Les ions multichargés dans une source ECR sont globalement produits par un processus d'ionisation simple successive. A partir de cette hypothèse, on peut établir une condition quantitative pour la production de ces ions, en définissant en premier lieu, la densité du courant électronique ( $j_e$ ) [ref.5].

$$\mathbf{j}_e = e \mathbf{n}_e \mathbf{v}_e \quad (\text{eq.2})$$

$$\mathbf{I} = \mathbf{j}_e \tau / e \quad (\text{eq.3})$$

Où ( $e$ ) est la charge de l'électron, ( $n_e$ ) est la densité électronique et ( $v_e$ ) la vitesse des électrons. On définit alors un paramètre ( $I$ ) qui décrit le processus d'ionisation, appelé le facteur d'ionisation dont l'unité est l'inverse de celle de la section efficace [ref.5].

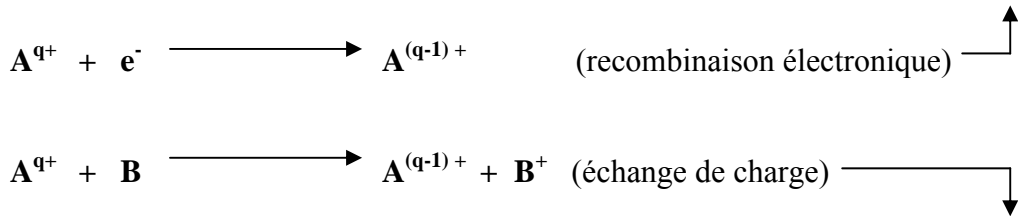
Le terme ( $\tau$ ) désigne le temps de confinement des ions dans le plasma. Quand ce temps de confinement est plus long que le temps moyen du processus d'ionisation par impact électronique, les ions de charge ( $q$ ) dans le plasma sont ionisés et se retrouvent dans l'état de charge ( $q+1$ ) si la condition suivante est remplie.

$$I = j_e \tau / e \geq [ \sigma_{q,q+1} ]^{-1} \tag{eq.4}$$

Le terme [ $\sigma_{q,q+1}$ ] désigne la section efficace d'ionisation simple par impact électronique d'un ion de charge ( $q$ ). Pour produire un ion d'état de charge ( $n$ ) à partir d'un atome neutre, il faut un facteur d'ionisation ( $I$ ) qui satisfasse la condition de l'équation (5). Des calculs ont été effectués pour estimer les facteurs d'ionisation de l'argon et du néon, et la figure (3) montre la correspondance entre les états de charge, le facteur d'ionisation et l'énergie des électrons nécessaires à leur production [ref.6].

$$I \geq \sum_{q=0}^{n-1} [ \sigma_{q,q+1} ]^{-1} \tag{eq.5}$$

En plus de l'ionisation par impact électronique, il existe d'autres processus dans le plasma qui ont une influence sur les états de charge des ions. L'un de ces processus est la recombinaison des ions avec des électrons libres, qui augmente avec la densité électronique. La section efficace de recombinaison électronique décroît rapidement si les électrons ont une énergie élevée, ceci est le seul moyen d'atténuer l'influence de ce processus.



L'autre phénomène qui se produit dans le plasma est l'échange de charge entre un ion et un atome, sa section efficace est supérieure à celle de l'ionisation par impact électronique, mais celle ci décroît également dans le cas où les deux particules en collision sont toutes les deux des ions. Avoir le minimum de particules neutres dans le plasma est donc également requis pour produire des ions dans un état de charge élevé [ref.2].

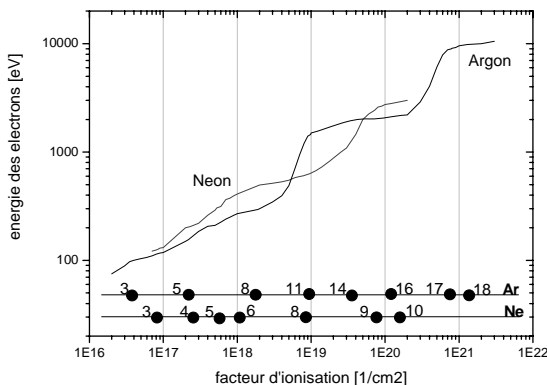


Figure (3) : calcul du facteur d'ionisation ( $I$ ) pour la production d'ions d'argon et de néon

### 3. Résonance cyclotronique électronique

Les électrons du plasma gagnent leurs énergies à partir des micro-ondes injectées dans le plasma. Dans un champ magnétique, les électrons ont un mouvement circulaire autour des lignes de champ avec une fréquence dite cyclotron définie en fonction de la charge de l'électron ( $e$ ), de sa masse ( $m$ ) et du champ magnétique ( $B$ ).

$$2 \pi \cdot f_{\text{cyc}} = (e/m) B \quad (\text{eq.6})$$

La résonance cyclotronique électronique se produit quand la fréquence de giration des électrons ( $f_{\text{cyc}}$ ) est égale à la fréquence ( $f$ ) des micro-ondes. Dans ce cas, le module de la vitesse transversale ( $v_T$ ) des électrons en résonance subit une augmentation ( $\Delta v_T$ ), en rapport avec le champ électrique des micro-ondes (figure 4) [ref.7].

$$\Delta v_T = (e/m) \cdot E \cdot \cos(\Phi) \cdot \Delta t \quad (\text{eq.7})$$

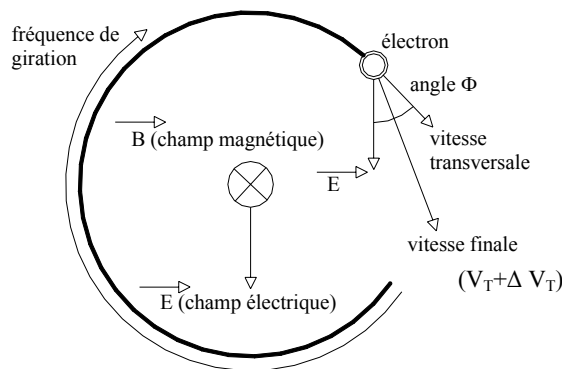


Figure (4) : modification du vecteur vitesse par le champ électrique

Le terme ( $E$ ) représente l'intensité du champ électrique, ( $\Phi$ ) l'angle entre le champ électrique ( $\vec{E}$ ) et la vitesse transversale ( $\vec{v}_T$ ) et ( $\Delta t$ ) le temps pendant lequel les électrons sont restés dans la région de résonance.

Des études sur le plasma des sources ECR par spectroscopie ont montré que les électrons peuvent atteindre des énergies de plusieurs centaines de keV [ref.8]. Pour atteindre de hautes énergies, les électrons doivent rester longtemps dans la zone de résonance, un bon confinement des électrons et des ions est donc nécessaire.

### 4. Confinement du plasma

Le confinement du plasma est essentiel, d'une part, pour que les électrons passent plusieurs fois dans la zone de résonance et y restent longtemps pour acquérir une énergie élevée et d'autre part, pour éviter que les ions soient en contact avec la chambre plasma pour minimiser la perte de charge par recombinaison électronique. En définitive, il faut que le temps de confinement des ions soit long (milli-seconde) pour atteindre des états de charge élevés.

Les ions dans le plasma ont une fréquence cyclotron très petite comparée à celle des électrons à cause de leur masse élevée. Le transfert d'énergie des micro-ondes injectées vers les ions est négligeable et l'interaction des ions avec le champ magnétique est également négligeable.

Le confinement des ions dans le plasma se fait essentiellement par la combinaison de la charge d'espace créée par les électrons et le potentiel électrostatique créé par le gradient de la densité électronique appelé aussi potentiel plasma [ref.9].

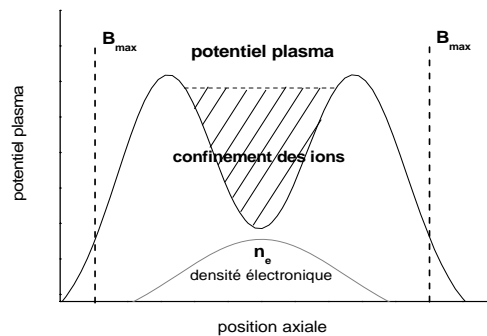


Figure (5): distribution du potentiel plasma

Les électrons dans le plasma sont confinés par un champ magnétique extérieur appliqué axialement et radialement par des électro-aimants ou des aimants permanents. Cependant, le confinement ne doit pas être parfait axialement pour permettre l'extraction des ions. En général, on utilise des solénoïdes pour créer le champ magnétique axial et un multipôle pour le champ magnétique radial.

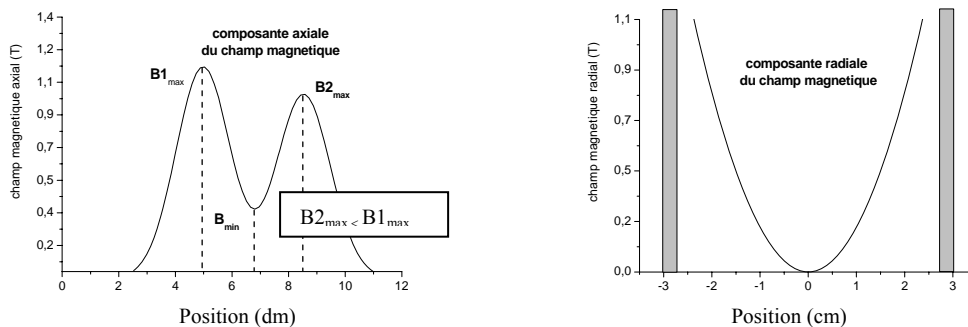


Figure (6) : exemple typique de la configuration Magnétique axiale et radiale

## II. La source ECR SIMPA

### 1. Description et conception

La source ECR SIMPA (Source d'Ions Multichargés de Paris) a été développée par la société Pantechnik. La source est de type Supernanogan fonctionnant avec une fréquence micro-ondes de 14,5 GHz. La configuration magnétique de la source est produite par des aimants permanents, deux cylindres pour le champ magnétique axial et un hexapôle pour le champ magnétique radial.

L'injection des micro-ondes et des gaz se fait sur un cube à l'arrière de la source perpendiculairement à l'axe de la source. La pression du gaz résiduel en ce point est de l'ordre de  $10^{-7}$  mbar sans injection des gaz et elle est de l'ordre de  $10^{-4}$  mbar pendant l'injection des gaz. Les micro-ondes sont produites par un klystron pouvant fournir jusqu'à 2 kW de puissance. Pendant le fonctionnement de la source, celle-ci est mise à une haute tension pouvant aller jusqu'à 18 kV, alors que l'électrode d'extraction est mise à la masse.

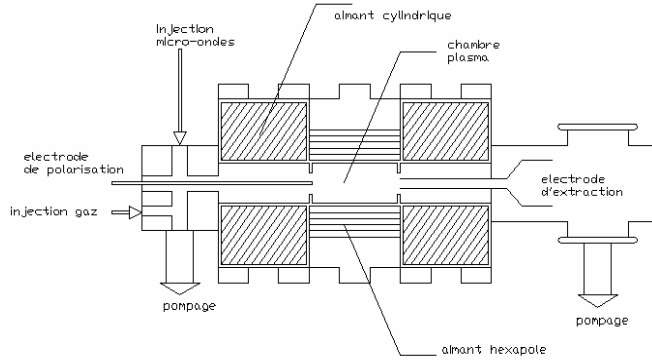


Figure (7) : schéma de la source SIMPA

Une exploration du champ magnétique axial de la source a été effectuée [ref.10] pour connaître son évolution à l'intérieur de la chambre plasma. La prise des mesures a été faite à l'aide d'un magnétomètre utilisant une sonde à effet Hall. A l'aide d'un moteur pas à pas, les mesures du champ magnétique ont été prises chaque 5 mm. La figure (8) montre l'évolution du champ magnétique axial engendré par les aimants permanents le long de l'axe d'extraction de la source. La configuration du miroir magnétique est caractérisée par le champ magnétique maximum du côté de l'injection ( $B_{\max\text{-inj}}$ ) et du côté de l'extraction ( $B_{\max\text{-ext}}$ ) ainsi que par le champ magnétique minimum ( $B_{\min}$ ) au centre de la chambre plasma.

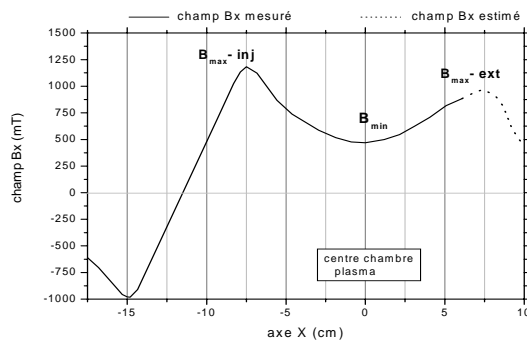


Figure (8) : champ magnétique axial de la source SIMPA

Pour des raisons techniques le champ magnétique ( $B_{\max\text{-ext}}$ ) n'a pas pu être mesuré et nous estimons sa valeur en nous référant à d'autres sources d'ion de même type [ref.11] où le rapport entre ( $B_{\max\text{-ext}}$ ) et ( $B_{\max\text{-inj}}$ ) est de 82%. On peut ainsi définir le rapport du miroir magnétique ( $R$ ) de la source SIMPA du côté de l'injection et du côté de l'extraction.

$$\begin{aligned} B_{\max\text{-inj}} &= 1182 \text{ mT} \\ B_{\max\text{-ext}} &= 970 \text{ mT} \\ B_{\min} &= 469 \text{ mT} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} R_{\text{inj}} &= B_{\max\text{-inj}} / B_{\min} = 2.52 \\ R_{\text{ext}} &= B_{\max\text{-ext}} / B_{\min} = 2.07 \end{aligned}$$

La fréquence des micro-ondes utilisée pour la source est de 14,5 GHz, le champ magnétique de résonance  $B_{\text{res}}$  se calcule à partir de (eq.6) et sa valeur est de 518 mT. En se référant à la courbe du champ magnétique axiale (fig.8), on peut déduire la longueur du plasma. Elle est égale à  $34 \pm 1$  mm.

## 2. Pression d'injection et gaz

L'injection du gaz dans la source SIMPA se fait par deux électrovannes, une pour le gaz porteur et l'autre pour le gaz principal. En effet, pour augmenter les performances d'une source, on injecte avec le gaz principal un autre gaz de masse atomique plus faible.



Dans notre cas, nous avons utilisé l'oxygène comme gaz porteur, après avoir fait des tests de comparaison entre l'hélium et l'oxygène, ce dernier gaz permettant d'extraire des courants plus intenses de la source dans le cas où l'argon est le gaz principal.

Le taux d'ouverture des électrovannes varie entre des valeurs d'indice arbitraire allant de 3.00 à 10.00. A 3.00 elles sont fermées et à 10.00 elles sont complètement ouvertes. Nous avons effectué une correspondance entre le taux d'ouverture des électrovannes et la pression d'injection de l'argon et de l'oxygène pour connaître les pressions partielles des deux gaz et donc le rapport entre la quantité de gaz porteur et principal lors du fonctionnement de la source. La figure (9) montre la courbe de correspondance entre le taux d'ouverture des vannes et les pressions d'injection.

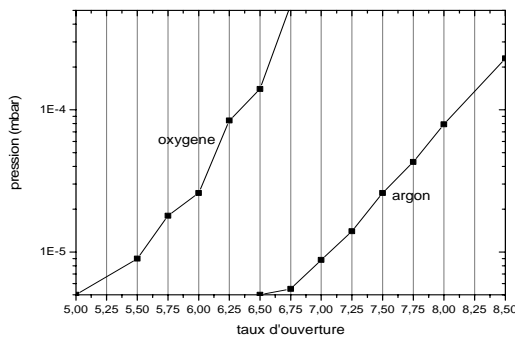


Figure (9) : correspondance taux d'ouverture/pression d'injection

### 3. Puissance et accord HF

Les ondes hautes fréquences (HF) de 14,5 GHz injectées dans la source SIMPA sont produites par un klystron qui peut débiter jusqu'à 2000 Watts de puissance. Les micro-ondes sont amenées vers la source à l'aide de guides d'ondes rectangulaires en connexion avec un cube d'injection (gaz et micro-ondes) qui se trouve juste derrière la source. Les micro-ondes passent vers la chambre plasma à travers un tube coaxial en cuivre. On dispose d'un piston monté sur un moteur sur le coté du cube (figure 10), qui permet d'accorder la puissance HF en modifiant le volume du cube d'injection. On peut ainsi amener un maximum de la puissance débitée par le klystron vers la chambre plasma.

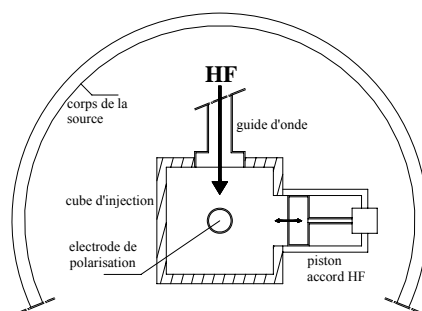


Figure (10) : principe de l'injection HF dans la source SIMPA

Bien que nous disposions de 2 kW de puissance HF, nous nous sommes limités à injecter au maximum 700 Watts. Au-delà de cette puissance, il se crée dans le plasma des instabilités qui font effondrer les courants extraits de la source et parfois même conduisent à l'extinction du plasma dans la source. Nous reviendrons plus loin sur ce point.

#### 4. Fonctionnement et optimisation

Durant le fonctionnement de la source SIMPA, on utilise différents paramètres pour atteindre un maximum de courant extrait tout en optimisant sa stabilité. Nous avons vu les deux principaux paramètres dans l'optimisation de la source. Le premier est la pression de gaz injecté et la proportion entre gaz porteur et gaz principal, le deuxième est la puissance HF utilisée pour le chauffage du plasma ainsi que la position du piston permettant d'accorder cette puissance. En plus de ces deux paramètres, nous disposons de deux autres que nous détaillons ci dessous.

Notons que nous avons utilisé une tension de 14 kV pour extraire le faisceau d'ions de la source. Nous avons fait le choix de cette valeur pour éviter les claquages électriques et ce d'autant plus que l'intensité des courants ioniques extraits ne s'améliore quasiment pas en augmentant d'avantage cette tension d'extraction.

Pour optimiser la source, nous utilisons donc deux autres paramètres. Le premier concerne l'électrode de polarisation qui se trouve être le même tube coaxial qui amène les micro-ondes dans la chambre plasma (fig.10). En mettant une polarisation négative de quelques centaines de Volts par rapport au corps de la source et en faisant avancer ou reculer de quelques millimètres l'électrode dans la chambre plasma, nous pouvons stabiliser les courants extraits et augmenter leurs intensités. La fonction de cette électrode est de repousser les électrons qui s'échappent du plasma et d'en fournir à ce dernier.

L'autre paramètre est la position des électrodes d'extraction. Effectivement du côté de l'extraction de la source, on dispose de deux électrodes d'extraction, qui sont à la masse. Par un dispositif mécanique, on peut faire bouger ces électrodes axialement l'une par rapport à l'autre et toutes deux par rapport à la chambre plasma. Cela permet pour une position donnée d'augmenter sensiblement les courants ioniques.

### III. Performances en extraction

#### 1. Description de la ligne de transport

Les ions extraits de la source sont transportés vers la chambre d'interaction dans une ligne de transport équipée d'un dipôle électro-magnétique de 90° d'angle. Le champ magnétique dans le dipôle peut atteindre 0,3 Tesla, et il permet de faire une sélection en état de charge des ions selon le rapport (M/q), (M) étant la masse atomique des ions et (q) leur état de charge .

$$\frac{M}{q} = 10^3 \cdot (B \cdot \rho)^2 \cdot \frac{\aleph e}{2V} \quad (\text{eq.8})$$

Le rapport (M/q) dépend exclusivement du champ magnétique (B) dans le dipôle, les autres termes étant constants, ( $\rho$ ) désigne le rayon effectif du dipôle, ( $\aleph$ ) est le nombre d'Avogadro, (e) la charge électrique élémentaire et (V) la tension d'accélération des ions à la sortie de la source ECR.

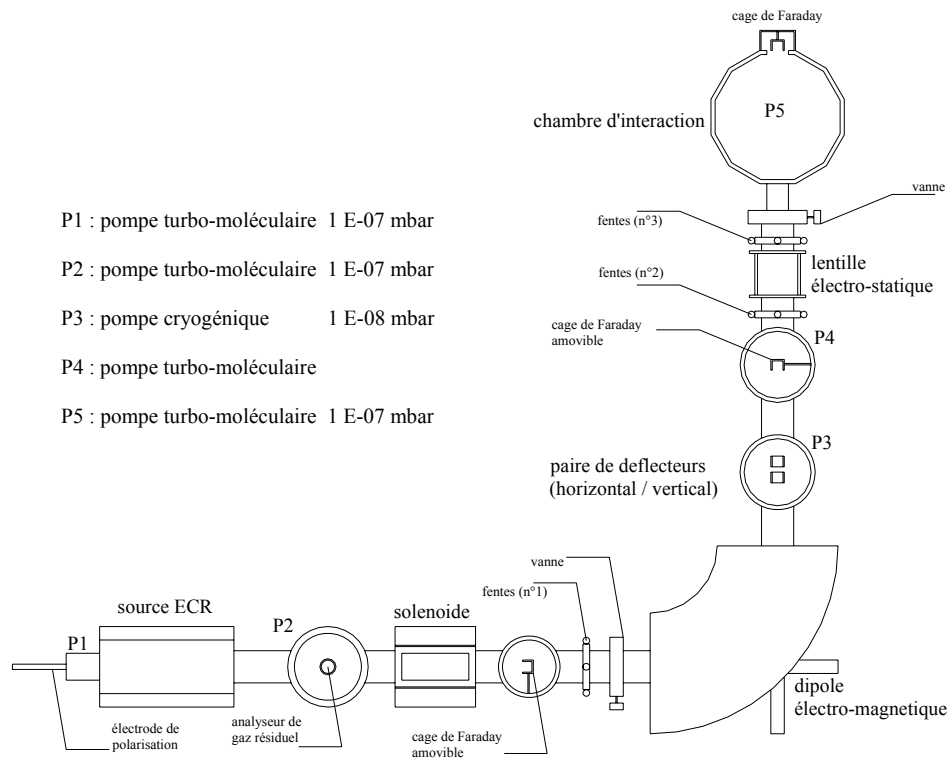


Figure (11) : schéma de la ligne de transport

Le premier segment de la ligne de transport, entre la source ECR et le dipôle, contient un solénoïde générant un champ magnétique atteignant 0,4 Tesla, dont la fonction est de focaliser le faisceau d'ions extraits au point focal objet du dipôle. La pression résiduelle dans cette ligne est de l'ordre de  $10^{-7}$  mbar. La ligne contient également un analyseur de gaz résiduel, une cage de Faraday amovible, un jeu de fentes (n°1) et une vanne d'isolation par rapport au deuxième segment de ligne.

Le deuxième segment de la ligne de transport contient une paire de déflecteurs électrostatiques, dont la fonction est de corriger la position du faisceau horizontalement et verticalement. Les déflecteurs sont composés de deux plaques parallèles mises sous une tension de quelques centaines de Volts. Avant d'arriver à la chambre d'interaction, le faisceau passe par une lentille électrostatique de type Einzel pour focaliser le faisceau au centre de la chambre d'interaction. La lentille Einzel est composée d'une série de trois cylindres, dont celui du milieu est mis à une tension de quelques kiloVolts. Ce deuxième segment contient également une cage de Faraday amovible, deux jeux de fentes (n°2) et (n°3) et une vanne d'isolation par rapport à la chambre d'interaction. Le vide résiduel dans cette partie de la ligne de transport est de l'ordre de  $10^{-8}$  mbar.

## 2. Courants d'ions d'argon

Nous présenterons ci dessous, les courants extraits à partir de la source SIMPA pour des ions d'argon et plus loin pour ceux du krypton et du néon afin de donner une idée des performances de la source. Dans les trois cas, comme avancé plus haut, nous avons utilisé l'oxygène ( $O_2$ ) comme gaz porteur. Ceci permet d'augmenter les performances d'une source en apportant des électrons en plus et donc une densité électronique plus grande.

La mesure du courant est faite en bout de ligne, dans la chambre d'interaction (fig.11) en utilisant une cage de Faraday avec un anneau de garde polarisé pour repousser les électrons, tous les jeux de fentes sur la ligne étant complètement ouverts.

Pour optimiser les paramètres de la source, on choisit un état de charge donné du faisceau d'ions extrait à l'aide du solénoïde et du dipôle électro-magnétique, en l'occurrence l'Ar<sup>13+</sup> pour les spectres ci-dessous et on fait varier les paramètres d'optimisation pour obtenir une intensité maximum de courant stable de l'ion choisi. Nous avons effectué cette optimisation pour différentes puissances HF et pris à chaque fois un spectre d'états de charge. La figure (12) montre deux spectres d'états de charge respectivement à 100 Watts et à 400 Watts de puissance HF.

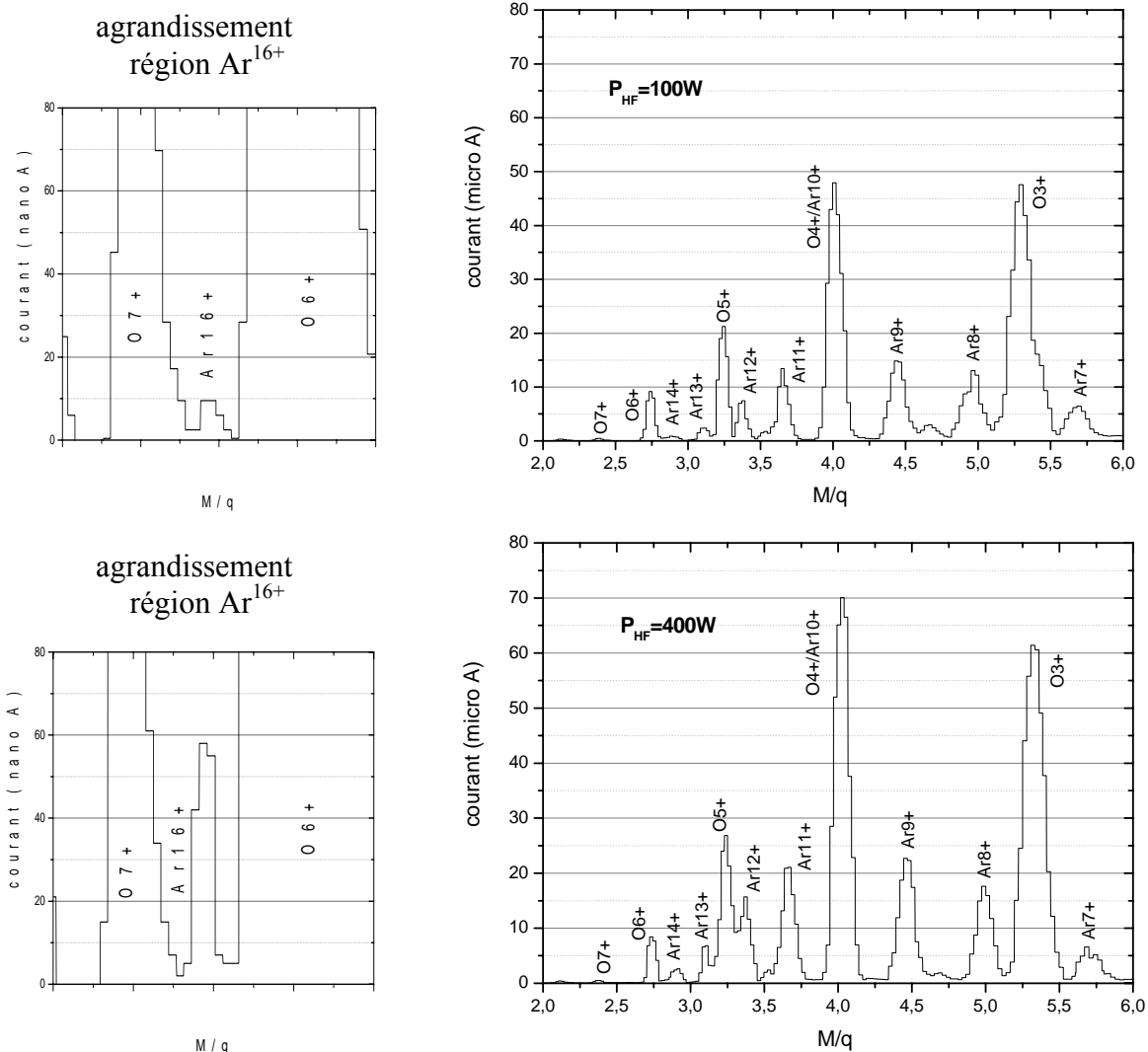


Figure (12) : spectres d'états de charge de l'argon

La pression totale d'injection des gaz durant cette optimisation avoisinait  $8 \cdot 10^{-5}$  mbar. La pression partielle d'argon était de ( $\approx 8 \cdot 10^{-6}$  mbar) et celle de l'oxygène était de ( $\approx 7 \cdot 10^{-5}$  mbar), ce qui correspond à un rapport entre gaz porteur et gaz principal d'environ 8,75. Cette valeur indique la nécessité d'avoir une densité électronique élevée dans le plasma, apportée par les électrons de l'oxygène, pour produire et extraire des états de charge élevés.

Nous mettons sous forme de graphique (fig.13) les courants de quelques ions d'argon extraits de la source SIMPA et ce en fonction de la puissance HF injectée, pour donner une idée des performances de la source et comment cela évolue avec la puissance des micro-ondes. La figure (14) montre les performances de la source dans le cas particulier de l'Ar<sup>16+</sup>, le courant maximum obtenu pour cet état de charge était de 57 nA et ce pour une puissance HF de 400 Watts.

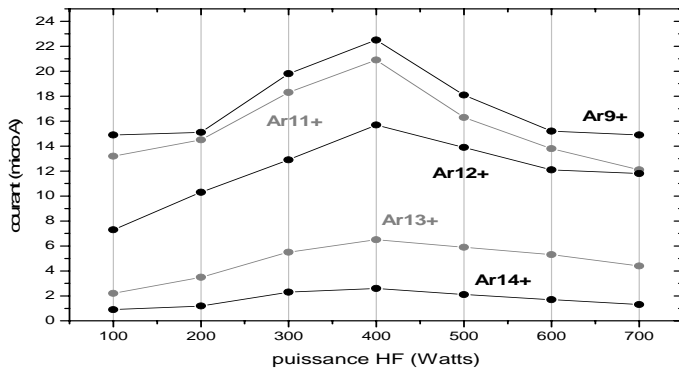


Figure (13): courants des ions d'argon en fonction de la puissance HF

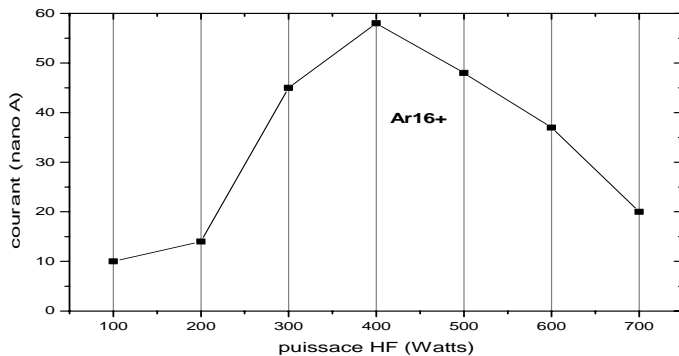


Figure (14): courants de l'Ar<sup>16+</sup> en fonction de la puissance HF

On remarque que le maximum du courant extrait pour les états de charge de l'argon se situe à 400 Watts de puissance HF et qu'à partir de 500 Watts, on observe une diminution des courants, qui est due à des instabilités apparaissant dans le plasma. Ce phénomène de limitation des performances d'une source ECR est bien connu [ref.12], et on l'explique par une augmentation de la vitesse transverse des électrons par rapport à la vitesse longitudinale de ces mêmes électrons. Lorsque la vitesse transverse devient trop grande par rapport à la vitesse longitudinale, les électrons peuvent sortir de la zone de confinement magnétique. Il se crée alors dans le plasma des instabilités dû à un déficit de la densité électronique et ceci conduit à l'effondrement des courants extraits et par la suite à une extinction du plasma.

Après observation de l'argon héliumuide parmi les états de charge extraits de la source SIMPA, nous avons continué l'investigation pour savoir s'il était possible de produire de l'argon hydrogénoide. Pour détecter et mesurer un très faible courant d'Ar<sup>17+</sup> éventuel, nous avons utilisé une technique beaucoup plus sensible qu'une cage de faraday polarisée. Dans la chambre d'interaction, nous avons placé une cible d'aluminium ainsi qu'un détecteur de photons X à cristal de silicium dont nous donnerons la description au chapitre suivant. Si un ion d'Ar<sup>17+</sup> vient en collision sur la cible d'aluminium, par capture électronique et par la suite par désexcitation radiative, on observera avec le détecteur silicium la transition de l'électron capturé vers la couche K de l'Ar<sup>17+</sup>.

La détection d'un photon X dû aux transitions  $1s\text{-}np$  vers  $1s^2$  de l' $\text{Ar}^{16+}$  (argon héliumoïde après capture d'un électron) est alors une signature exclusive de la production de l' $\text{Ar}^{17+}$ . Nous avons obtenu cette signature et le spectre ci dessous est celui enregistré par le détecteur silicium après collision de l' $\text{Ar}^{17+}$  sur la cible d'aluminium.

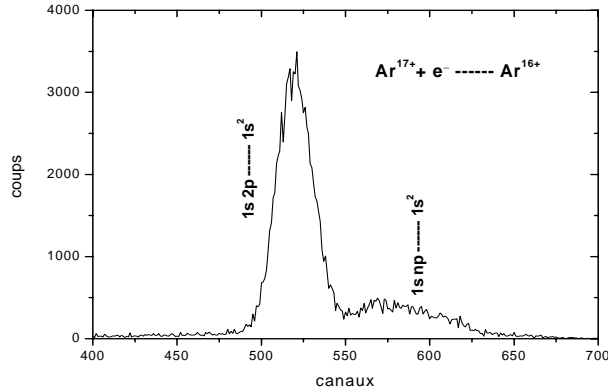


Figure (15) : détection de l' $\text{Ar}^{17+}$  avec le détecteur silicium

On observe distinctement la transition ( $1s2p \rightarrow 1s^2$ ) dont l'énergie est à 3134,13 eV ainsi que les transitions d'énergies plus hautes ( $1snp \rightarrow 1s^2$ ) avec  $n > 2$ . En faisant l'hypothèse que tous les ions  $\text{Ar}^{17+}$  font une capture électronique en étant en collision frontale avec la cible, que le rapport de branchement est au maximum égal à ( $\approx 0,5$ ) et connaissant l'angle solide du détecteur silicium ( $\Omega / 4\pi = 1,12 \cdot 10^{-5}$ ) et son efficacité dans cette gamme d'énergie (93%), on peut retrouver le courant d' $\text{Ar}^{17+}$  arrivant dans la chambre de collision. La figure (16) donne l'intensité des courants de l'argon hydrogénoïde extrait en fonction de la puissance HF. Là également l'intensité maximum est à 400 Watts et vaut 116 pico-Ampères.

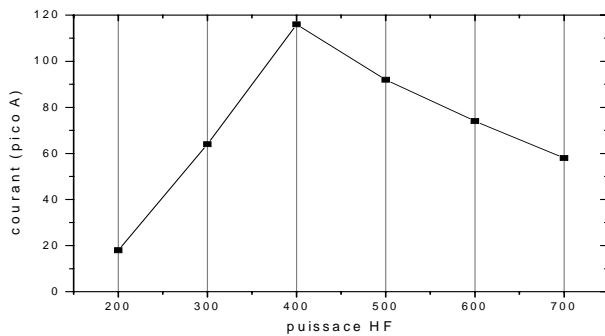


Figure (16) : courants d' $\text{Ar}^{17+}$  en fonction de la puissance HF

### 3. Courants d'ions du krypton

Comme dans le cas de l'argon, nous avons pris des spectres d'états de charge du krypton pour différentes puissances HF et ce en optimisant les paramètres de la source sur le  $\text{Kr}^{17+}$  à chaque fois. Nous présentons ci-dessous deux spectres d'états de charge, le premier à 50 Watts de puissance HF et le second à 400 Watts.

On constate que pour les hautes puissances HF (à partir de 200 Watts), on distingue clairement la série des ions de krypton dont la charge est comprise entre 17 et 20. Le  $\text{Kr}^{16+}$  est moins visible parce qu'il se trouve dans la queue du pic de l' $\text{O}^{3+}$ . La deuxième constatation est le déplacement de la distribution en états de charge entre 50 Watts et 400 Watts. L'état de charge en courant, le plus extrait à basse puissance HF est le  $\text{Kr}^{12+}$  alors qu'à haute puissance HF l'état de charge le plus extrait est le  $\text{Kr}^{14+}$ .

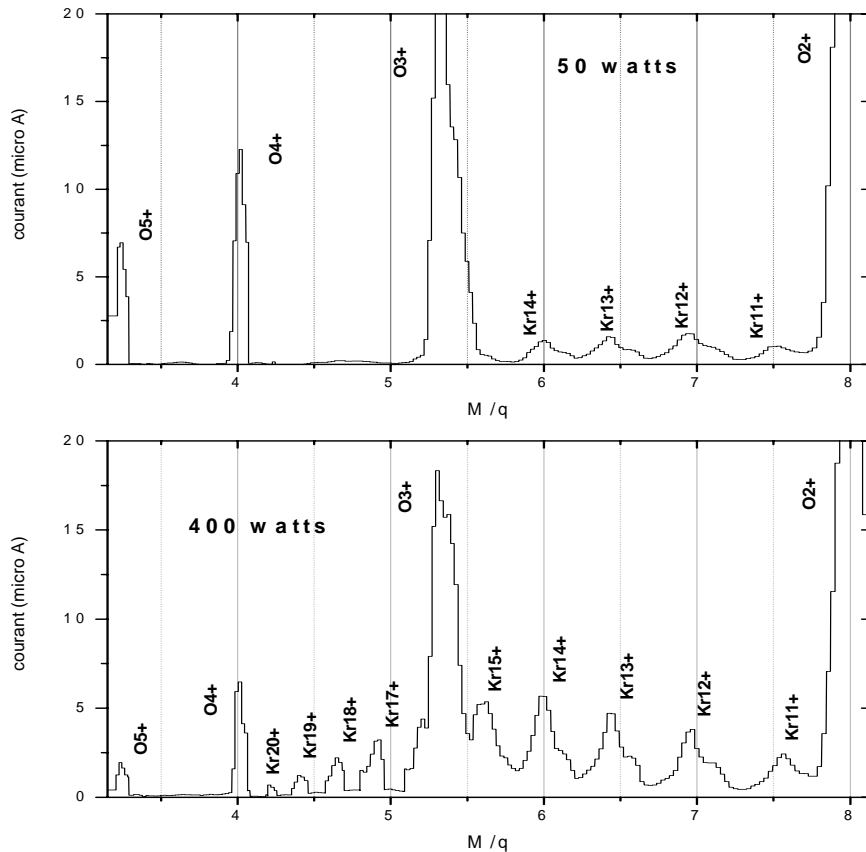


Figure (17) : spectres d'états de charge du krypton pour deux puissances HF

Dans le cas du krypton, l'état de charge maximum extrait de la source et observé est le  $\text{Kr}^{24+}$ . Nous avons effectivement mesuré les courants des ions du krypton dont l'état de charge varie entre 22 et 24, cette mesure n'a été possible que dans le cas d'une puissance HF de 400 watts. Pour les autres puissances HF, cette série d'états de charges n'a pas été observée. La figure (18) est un agrandissement du spectre d'états de charge à 400 Watts dans la zone comprise entre l' $\text{O}^{4+}$  et l' $\text{O}^{5+}$ , le  $\text{Kr}^{21+}$  étant confondu avec l' $\text{O}^{4+}$ .

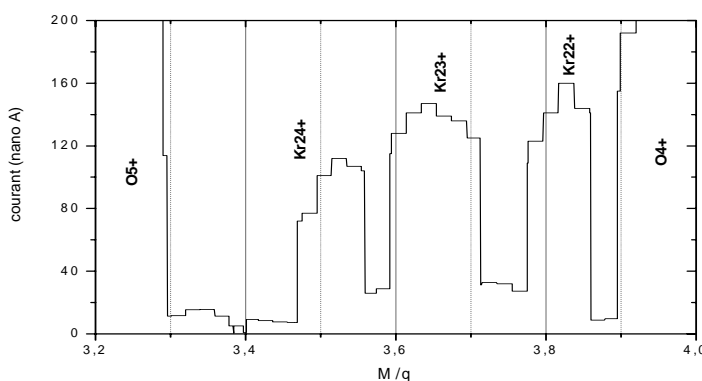


Figure (18) : observation de la série  $\text{Kr}^{22+} - \text{Kr}^{24+}$  à 400 Watts

Nous donnons dans la figure (19) sous forme de graphique, l'intensité des courants extraits de la source SIMPA de quelques ions de krypton en fonction de la puissance HF injectée (entre 50 et 500 Watts). Les intensités des courants sont de l'ordre du micro Ampère pour une large gamme d'ions krypton. Comme dans le cas de l'argon, les intensités maximum se trouvent à 400 Watts. La valeur de cette puissance HF peut être considérée comme la puissance optimum pour le fonctionnement de la source ECR SIMPA.

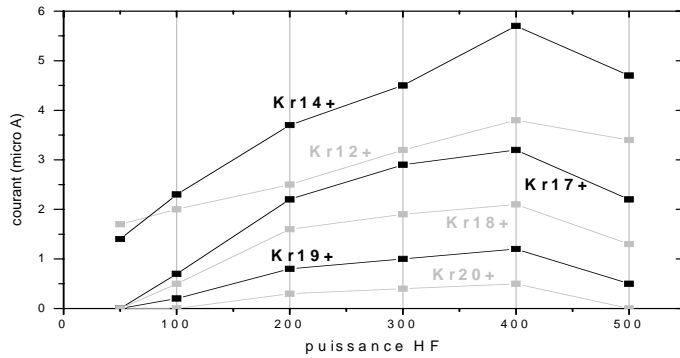


Figure (19) : courants des ions du krypton pour différents états de charge

#### 4. Courants d'ions du néon

Pour les états de charge du néon extraits de la source, nous avons vérifié que les courants maximum se trouvent également à la puissance HF de 400 Watts. Nous avons optimisé les paramètres de la source SIMPA à cette puissance pour extraire une intensité maximum de  $Ne^{9+}$ , dont la valeur est 605 nA, nous rappelons que tous les jeux de fentes sur la ligne de transport étaient complètement ouverts. La figure (20) représente le spectre d'états de charge du néon pris pour une puissance HF de 400 Watts.

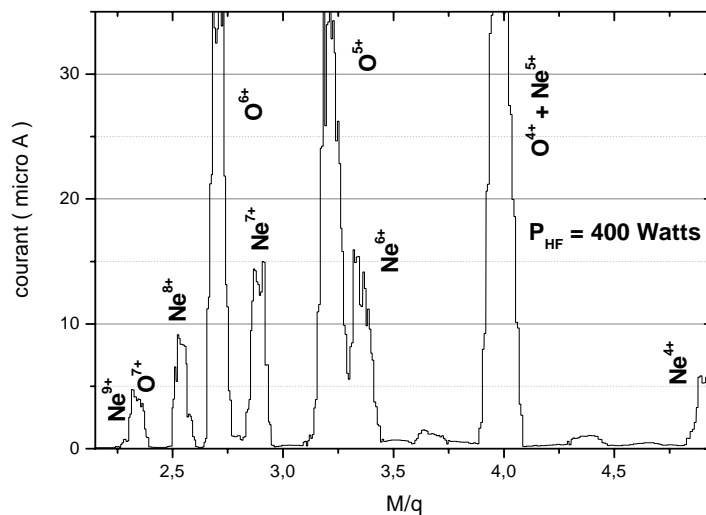


Figure (20) : spectre d'états de charge du néon à 400 Watts de puissance HF

Le spectre d'états de charge du néon est centré sur le  $Ne^{6+}$  dont l'intensité est de 15,6  $\mu A$  (fig.21) Cela est suffisant pour observer le néon hydrogénoïde dont on commence à mesurer le courant à 100 Watts de puissance HF. Nous présentons ci dessous (fig.22) l'évolution du courant du  $Ne^{9+}$  en fonction de la puissance HF entre 200 et 400 Watts.

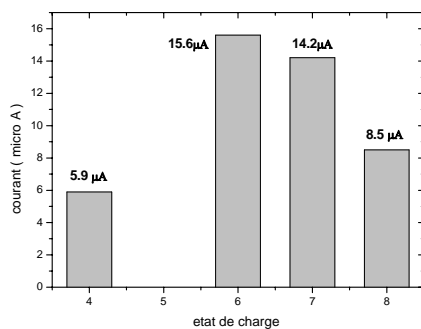


Fig (21) : courants des ions de néon à 400W

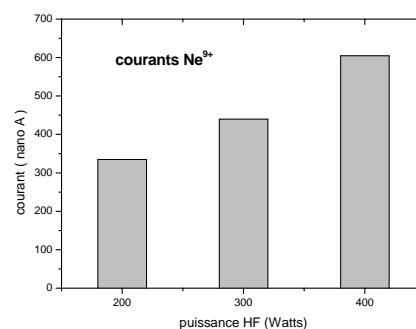


Fig (22) :  $Ne^{9+}$  en fonction de la puissance HF



## 5. Synthèse et récapitulation

En récapitulatif, nous présentons (tableau.1) les courants maximum extraits de la source SIMPA pour quelques ions représentatifs et ce dans les trois cas de l'argon, krypton et néon. Nous rappelons que la tension d'extraction était de 14 kV, que les fentes sur la ligne de transport étaient ouvertes et que l'optimisation des paramètres de la source a été effectuée sur les états de charges suivants,  $\text{Ar}^{13+}$ ,  $\text{Kr}^{17+}$  et  $\text{Ne}^{9+}$ .

La figure (23) représente pour les trois éléments (Ar, Kr, Ne), les énergies d'ionisation successives [ref.13] nécessaires pour arracher les électrons se trouvant dans les différentes sous couches électroniques.

Ions Ar	9+	13+	16+	17+
courants	22,4 $\mu\text{A}$	6,3 $\mu\text{A}$	57 nA	116 pA
Ions Kr	14+	17+	20+	24+
courants	5,7 $\mu\text{A}$	3,2 $\mu\text{A}$	520 nA	110 nA
Ions Ne	6+	7+	8+	9+
courants	15,6 $\mu\text{A}$	14,2 $\mu\text{A}$	8,5 $\mu\text{A}$	605 nA

Tableau (1) : récapitulatif des courants maximum extraits de la source SIMPA à une puissance HF de 400 Watts

Nous rappelons les configurations électroniques de l'argon, du krypton et du néon neutres dans leurs états fondamentaux,

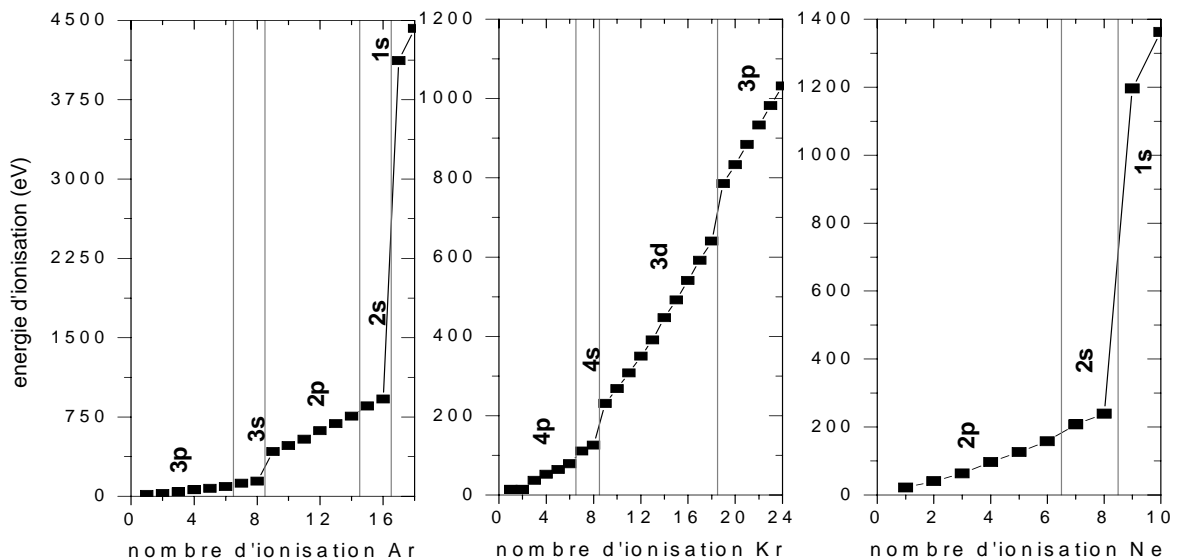
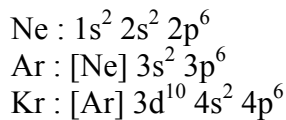


Figure (23) : énergies d'ionisation ( Ar , Kr, Ne )

On constate que les énergies d'ionisation dans une même sous couche sont relativement proches et évoluent pratiquement linéairement, ceci explique l'observation dans les trois cas (Ar, Kr, Ne) des états de charge correspondant à des sous couches complètement vides. En d'autres termes, si on observe un état de charge correspondant à l'ionisation du premier électron d'une sous couche, on devrait observer avec une intensité de courant moindre mais non nulle l'état de charge correspondant à l'ionisation du dernier électron de la même sous couche. Il est donc probable que si on produit des hydrogénoïdes d'argon et du néon dans le plasma de la source, on doit produire également de l'argon nu et du néon nu.

On constate également que d'une sous couche à l'autre, les énergies d'ionisation progressent par marche et que cette marche est généralement plus élevée quand on passe d'une couche à l'autre. Dans le cas du krypton, l'état de charge le plus élevé observé est le  $\text{Kr}^{24+}$  avec une intensité de courant d'une centaine de nano Ampères. Il est probable qu'on produit également du  $\text{Kr}^{25+}$  et du  $\text{Kr}^{26+}$  avec des courants plus faibles en entamant l'ionisation de la couche 3s du krypton. Par contre la production des états de charge plus grands, demanderait à ioniser des électrons en couche 2p et cela devient beaucoup moins probable.

La production de l' $\text{Ar}^{17+}$  implique l'ionisation du premier électron de la couche 1s de l'argon, dont l'énergie d'ionisation est de 4120,88 eV. C'est l'électron le plus lié arraché pour produire les différents états de charge présentés jusqu'alors. Pour arracher cet électron, cela implique la présence dans le plasma d'électrons dont l'énergie cinétique est au moins égale à cette énergie d'ionisation.

Enfin, les états de charge extraits peuvent être caractérisés par leurs énergies potentielles, qui est la somme des énergies d'ionisation permettant la production de l'état de charge en question. Parmi les états de charge extraits, celui qui possède la plus grande énergie potentielle est le  $\text{Kr}^{24+}$ , nous présentons sous forme de tableau les valeurs de l'énergie potentielle du  $\text{Ne}^{9+}$ ,  $\text{Ar}^{17+}$  et du  $\text{Kr}^{24+}$ .

Ions	$\text{Ne}^{9+}$	$\text{Ar}^{17+}$	$\text{Kr}^{24+}$
Energie potentielle	2149,44 eV	5850,73 eV	10218,04 eV

Tableau (2) : énergies potentielles des états de charge les plus élevés extraits de la source SIMPA



## **Chapitre II :**

# **Diagnostic du plasma de la source SIMPA par spectroscopie X**

### **Plan du chapitre :**

#### **I. Dispositif expérimental et détection**

1. Description et montage
2. Le détecteur silicium
3. Le spectromètre cristallin

#### **II. Température électronique**

1. Rayonnement de freinage
2. Spectres Bremsstrahlung et normalisation
3. Température électronique et comparaison

#### **III. Fonction de distribution et densités**

1. Fonction de distribution électronique
2. Charge moyenne du plasma
3. Produit des densités
4. Densités électronique et ionique

#### **IV. Spectres de haute résolution**

1. Présentation des spectres d'argon
2. Présentation des spectres de krypton

#### **V. Production de lacunes en couche K**

1. La simple ionisation
2. L'excitation électronique
3. La double ionisation

#### **VI. Identification et comparaison**

1. Cas des spectres d'argon
2. Cas des spectres de krypton

#### **VII. Distribution en état de charge**

1. Les ions dans le plasma d'argon
2. Les ions dans le plasma de krypton

#### **VIII. Conclusion et perspective**

## **Introduction**

Afin de caractériser au mieux la source ECR SIMPA, nous avons entrepris d'étudier le rayonnement X émis par le plasma et ce à basse et à haute résolution. A basse résolution, l'utilisation d'un détecteur silicium nous a permis de déterminer l'énergie des électrons dans le plasma ainsi que les densités électroniques et ioniques totales. A haute résolution un spectromètre cristallin permet d'obtenir la structure fine des raies et de connaître la distribution en état de charge des ions dans le plasma.

Les plasmas étudiés dans ce chapitre sont ceux de l'argon et du krypton. Ce choix est lié au cristal dont nous disposons pour le spectromètre cristallin, en l'occurrence un cristal de graphite. La distribution ionique dans le plasma sera comparée avec les courants extraits de la source. Le but est de mettre en évidence l'existence éventuelle d'une corrélation entre la production des ions dans le plasma et les états de charge des ions extraits.

Cette étude a fait l'objet d'une collaboration étroite avec P.Indelicato et son équipe du Laboratoire Kastler Brossel.

### **I. Dispositif expérimental et détection**

#### **1. Description et montage**

Pour observer le rayonnement X émis par le plasma, nous avons donc utilisé d'une part un détecteur silicium de basse résolution placé dans l'axe de la source ECR, et d'autre part un spectromètre cristallin associé à un détecteur à localisation de haute résolution, placé derrière la source ECR (figure 1). Le détecteur (Si) se trouve dans le prolongement de la ligne de faisceau, juste derrière le dipôle magnétique. Ce détecteur n'est pas sous vide, il est placé à 15 mm derrière une fenêtre de béryllium de  $127 \mu\text{m}$  d'épaisseur qui assure l'étanchéité de la ligne de faisceau. Un diaphragme de 0,2 mm de diamètre a été mis devant le détecteur (Si) afin de réduire le taux de comptage.

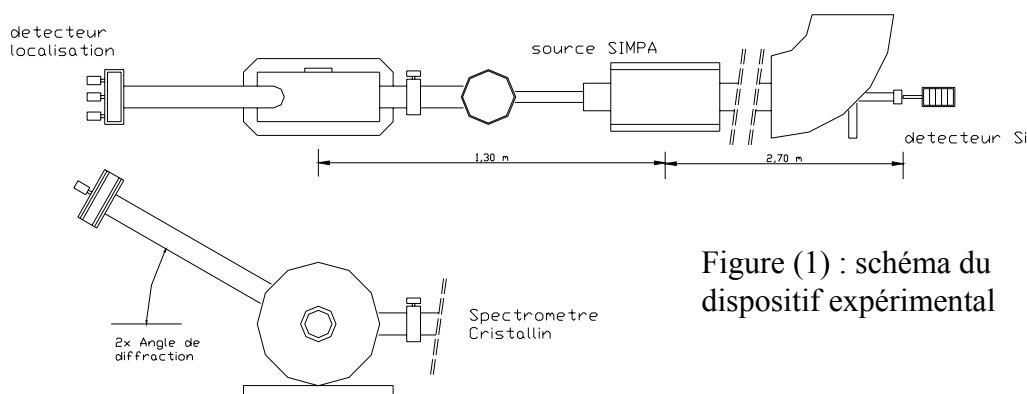


Figure (1) : schéma du dispositif expérimental

Le spectromètre cristallin est connecté à la source SIMPA à travers l'électrode de polarisation. Cette électrode a la forme d'un tube de 10 mm de diamètre intérieur permettant l'observation directe du plasma. A l'intérieur de ce tube, nous avons placé un diaphragme de 0,5 mm de diamètre afin de définir un point source des photons X pour le spectromètre cristallin. Ce diaphragme se trouve à 210 mm du centre de la chambre plasma.

A l'entrée du spectromètre cristallin, nous avons placé une paire d'aimants permanents à haut champ pour éliminer les électrons de haute énergie issus de la source, pouvant produire un bruit de fond important sur les spectres de haute résolution. La liaison source-spectromètre a été équipée d'un dispositif de pompage pour assurer un vide de  $10^{-5}$  mbar. La chambre du spectromètre est directement connectée sous vide et dispose de son propre pompage assurant un vide du même ordre de grandeur.

Le spectromètre cristallin se compose d'une chambre circulaire renfermant le cristal pour la diffraction des rayons X et de deux bras, le premier vers la source (L1) et le second vers le détecteur à localisation (L2), formant un angle  $\alpha = 2\theta_B$  avec le premier bras,  $\theta_B$  étant l'angle de diffraction. Pour réduire le taux de comptage au niveau du détecteur à localisation, nous avons mis une fente verticale de 0,5 mm de largeur devant le cristal.

Dans le cas des rayons X du krypton observés au 3<sup>ème</sup> ordre de diffraction, nous avons également rajouté au niveau de la fente verticale une feuille de cuivre de 10  $\mu\text{m}$  d'épaisseur afin d'absorber les rayons X du 1<sup>er</sup> et 2<sup>ème</sup> ordre, et émis par d'autres éléments que le krypton.

Nous donnons ci-dessous une description sommaire du détecteur silicium et du spectromètre cristallin. Ces deux détecteurs utilisés depuis de nombreuses années dans l'équipe ont fait l'objet de descriptions détaillées et complètes dans les différentes thèses effectuées au sein de l'équipe, notamment celles que l'on peut trouver en [ref.14] [ref.15] [ref.16].

## 2. Le détecteur Silicium

Le détecteur (Si) est un détecteur à semi-conducteur (X-flash) qui se compose d'une pastille de silicium de 300  $\mu\text{m}$  d'épaisseur et se comporte comme un semi-conducteur parfait. Après polarisation du semi-conducteur, un photon le traversant créera par effet photoélectrique un électron qui perdra son énergie en créant des électrons secondaires. Les électrons ainsi produits passeront vers la bande de conduction du cristal créant des paires électron-trou. La collection des charges fournit alors un signal proportionnel à l'énergie du photon incident.

L'étalonnage en énergie du détecteur (Si) a été effectué en utilisant les différentes raies émises à partir de la source ECR. Les électrons dans le plasma de l'ECR produisent en effet un rayonnement de freinage à cause de leurs mouvements circulaires autour des atomes et des ions. Ce rayonnement continu (bremsstrahlung) produit par fluorescence une émission de raies X des éléments qu'il rencontre. La chambre plasma étant en cuivre, les électrodes d'extraction du faisceau en inox et la matière isolante entre la source ECR et les électrodes contenant du zirconium, nous avons observé sur le détecteur (Si) les raies  $K_\alpha$  et  $K_\beta$  de ces éléments, dont nous donnons les énergies (tableau1) [ref.136].

Raies	$K_\alpha$ Cr	$K_\beta$ Cr	$K_\alpha$ Fe	$K_\beta$ Fe	$K_\alpha$ Ni	$K_\beta$ Ni	$K_\alpha$ Cu	$K_\beta$ Cu	$K_\alpha$ Zr
Energies (eV)	5411,7	5946,8	6399,7	7058,2	7472,5	8264,8	8041,2	8905,4	15746,8

Tableau (1) : énergie des raies observées provenant de la source [ref.136]

Pour l'obtention de la droite d'étalonnage, nous avons écarté la raie  $K_{\beta}$  du nickel et la raie  $K_{\alpha}$  du cuivre. En effet ces deux raies se chevauchent rendant un ajustement gaussien sur les deux raies difficile. Notons que la résolution (largeur à mi-hauteur de la raie) du détecteur (Si) utilisé est de 130 eV pour la raie  $K_{\alpha}$  du fer (6399,7 eV). En utilisant les autres raies, nous avons obtenu par régression linéaire une droite d'étalonnage reliant la position en canal sur le spectre à l'énergie correspondante (figure 2). L'équation de la droite étant :

$$E(\text{eV}) = 19,754 \times (\text{n}^{\circ} \text{ de canal}) - 337,96 \quad (\text{eq. 1})$$

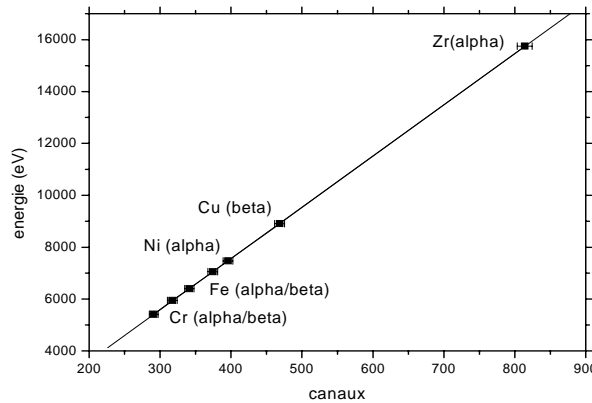


Figure (2) : droite d'étalonnage du (DSi)<sup>1</sup>

L'efficacité du détecteur (Si) a été déterminée par comparaison à un autre détecteur du même type dont on connaît parfaitement l'efficacité. Pour des raisons de simplification, nous appellerons le détecteur (Si) utilisé dans l'étude du plasma le (DSi)<sup>1</sup>. Nous donnons ci dessous la courbe représentative de son efficacité intrinsèque ainsi que son efficacité corrigée de l'absorption par la fenêtre de Béryllium de 127  $\mu\text{m}$  et par l'épaisseur de 15 mm d'air en avant du (DSi)<sup>1</sup>.

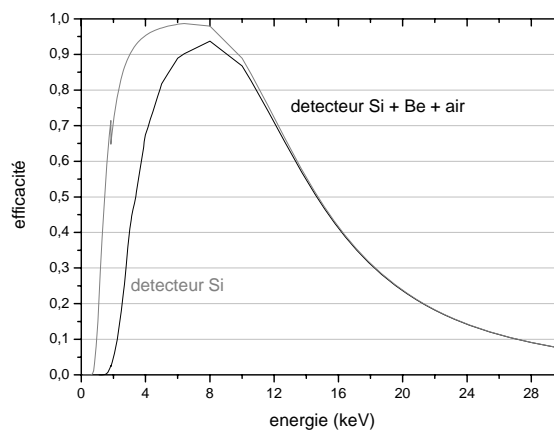


Figure (3) : efficacité du (DSi)<sup>1</sup>

### 3. Le spectromètre cristallin

Le spectromètre cristallin fonctionne sur le principe de la diffraction de Bragg. Un photon d'énergie (E) et de longueur d'onde ( $\lambda$ ) est réfléchi par le cristal avec un angle unique ( $\theta_B$ ) à un ordre de réflexion donné (n).

$$2d \sin(\theta_B) = n \lambda \quad (\text{eq.2})$$

Pour observer les rayons X de l'argon et du krypton, nous avons utilisé un cristal de graphite, dont la double distance entre les plans réticulaires ( $2d$ ) est de  $6,71 \text{ \AA}$ . Le cristal est de type mosaïque, il est composé de microcristaux plans orientés aléatoirement. La distribution angulaire de ces monocristaux par rapport au plan est une gaussienne dont la largeur est  $2\alpha = 0,4^\circ$ . L'utilisation d'un cristal mosaïque permet d'augmenter la transmission des rayons X par rapport à un cristal plan tout en effectuant une semi-focalisation de la tache image sur le détecteur si  $L1 = L2 = L$  (figure 4).

La largeur ( $a$ ) de la tache image sur le détecteur est fonction de la longueur des deux bras du spectromètre ( $2L$ ), de la mosaïcité du cristal ( $\alpha = 0,2^\circ$ ) et de l'angle de diffraction ( $\theta_B$ ) des rayons X [ref.14].

$$a = \frac{2L}{\tan\theta_B} \alpha^2 \quad (\text{eq.3})$$

L'avantage d'un cristal de graphite mosaïque par rapport à un cristal plan parfait apparaît en comparant la réflectivité intégrée (caractéristique intrinsèque d'un cristal) de ces deux types de cristaux. La réflectivité intégrée du cristal mosaïque est de plus d'un ordre de grandeur supérieure à celle du cristal plan parfait [ref.17]. L'observation des rayons X de l'argon a été effectuée par diffraction au premier ordre ( $n=1$ ), alors que pour le krypton le troisième ordre de diffraction ( $n=3$ ) a été utilisé.

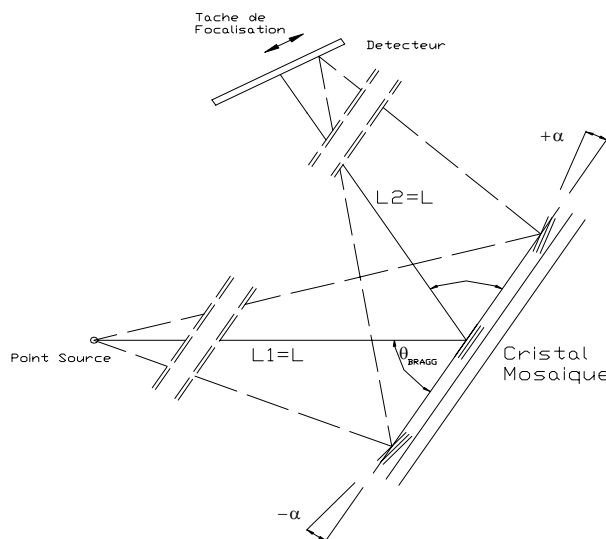


Figure (4) : schéma de principe d'un cristal mosaïque

La réflectivité ( $R_0$ ) du cristal que nous avons utilisé a fait l'objet d'une étude au sein de l'équipe [ref.18] et elle dépend entre autres de l'ordre de diffraction. Au premier ordre et à l'énergie de la  $K_\alpha$  de l'argon ( $2,96 \text{ keV}$ ), elle vaut  $6,7 \cdot 10^{-4}$  [ref.16]. Au troisième ordre et à l'énergie de la  $K_\alpha$  du krypton ( $12,63 \text{ keV}$ ), la réflectivité intégrée du cristal vaut  $2,3 \cdot 10^{-4}$ .

Pour détecter les photons diffractés par le cristal de graphite, nous avons utilisé un détecteur à localisation à gaz développé par l'équipe. Le détecteur a une dimension de  $60 \times 60 \text{ mm}^2$  et une épaisseur de détection de  $6 \text{ mm}$ . L'étanchéité par rapport au vide résiduel du côté du bras du spectromètre est assurée par une mince feuille de mylar aluminisé de  $12 \text{ }\mu\text{m}$  d'épaisseur. Le détecteur est rempli par un gaz ( $\text{Xe } 90\%$ ,  $\text{CH}_4 \text{ } 10\%$ ) qui fait office de gaz détecteur.



A l'intérieur du détecteur se trouve une anode constituée de 24 fils de tungstène aurifié portée à la haute tension et une cathode qui constitue la zone de détection (figure 5). Par effet photoélectrique un photon du rayonnement X incident crée un électron qui est accéléré vers l'anode polarisée. Il s'en suit une émission d'électrons secondaires induisant une avalanche locale d'électrons. Par influence, une charge opposée sera créée sur la cathode, cette charge se propage vers les deux extrémités de la cathode, et fournit deux signaux ( $Q_1$  et  $Q_2$ ) permettant de remonter à la position du photon et donc à son énergie.

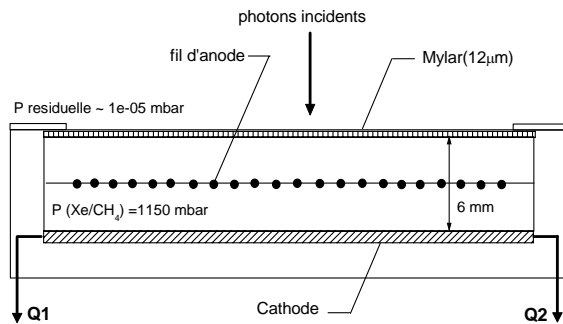


Figure (5) : schéma du détecteur à localisation

L'association du détecteur à localisation et du cristal de graphite forme le spectromètre cristallin, dont la transmission ( $T_S$ ) est fonction de la réflectivité intégrée ( $R_\theta$ ) du cristal et de l'efficacité ( $\epsilon_d$ ) du détecteur. Nous présentons ci-dessous la courbe d'efficacité du détecteur en fonction de l'énergie pour du Xe( $CH_4$ ) à une pression de 1150 mbar. En plus de ( $R_\theta$ ) et de ( $\epsilon_d$ ), la transmission du spectromètre cristallin dépend de la longueur des bras du spectromètre ( $2L$ ) et de la hauteur ( $H$ ) de détection qui est égale au maximum à la largeur du détecteur (60 mm), sinon à la hauteur de détection définie par le cristal. L'expression donnant la transmission du spectromètre s'écrit :

$$T_S = \epsilon_d \cdot \frac{R_\theta}{4\pi} \cdot \frac{H}{2L} \quad (\text{eq.4})$$

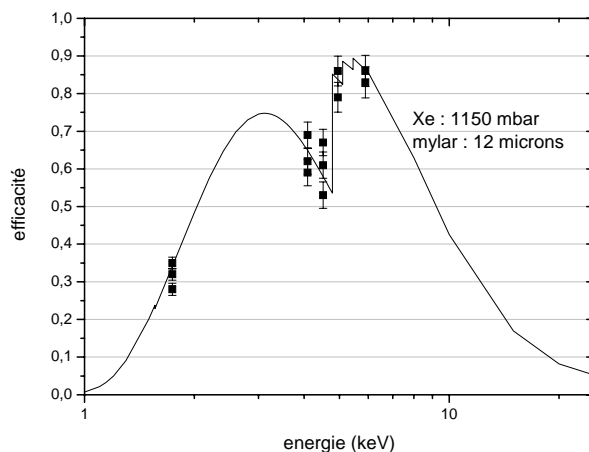


Figure (6) : efficacité du détecteur à localisation avec points expérimentaux

La résolution du spectromètre cristallin dépend de plusieurs termes qui sont fonction de la hauteur de source ( $h = 500$  microns) des rayons X, de la résolution spatiale ( $r = 500$  microns) du détecteur et de la mosaïcité ( $\alpha = 0,2^\circ$ ) du cristal de graphite. Nous donnons ci-dessous les principaux termes contribuant à la résolution totale du spectromètre cristallin.

$$\left(\frac{\partial E}{E}\right)_s = \frac{h}{2L} \cdot \frac{1}{\tan\theta_B} \quad (\text{eq.5}) \quad \text{contribution de la hauteur de la source des rayons X}$$

$$\left(\frac{\partial E}{E}\right)_d = \frac{r}{2L} \cdot \frac{1}{\tan\theta_B} \quad (\text{eq.6}) \quad \text{contribution de la résolution spatiale du détecteur}$$

$$\left(\frac{\partial E}{E}\right)_c = \left(\frac{\alpha}{\tan\theta_B}\right)^2 \quad (\text{eq.7}) \quad \text{contribution de la mosaïcité du cristal de graphite}$$

Les deux premiers termes ont une contribution gaussienne, alors que le troisième terme a une contribution exponentielle décroissante vers les grandes énergies. En prenant en compte ces contributions ainsi que les largeurs naturelles des raies, nous pouvons estimer la résolution du spectromètre cristallin. Nous donnons sous forme de tableau les résolutions calculées pour les raies  $K_\alpha$  de l'argon et  $K_\alpha$  du krypton.

Raies	Ar $K_{\alpha 2}$	Ar $K_{\alpha 1}$	Kr $K_{\alpha 2}$	Kr $K_{\alpha 1}$
Energies (eV)	2955,57	2957,68	12595,42	12648,00
Largeur naturelle	0,80 eV	0,81 eV	4,06 eV	3,92 eV
<b>Résolution (eV)</b>	<b>2,50</b>	<b>2,52</b>	<b>15,65</b>	<b>15,62</b>

Tableau (2) : résolutions calculées pour l'argon et le krypton

Pour étalonner en énergie le spectromètre cristallin, il est nécessaire de connaître la correspondance entre la position sur le détecteur et le numéro de canal du spectre enregistré. Nous avons pour ce faire mis juste devant le détecteur à localisation une plaque en cuivre comportant des fentes de 500  $\mu\text{m}$  de largeur, et distantes de 5 mm. Nous avons mis devant la plaque de cuivre une source radioactive de Fe (55) qui émet par désexcitation les raies  $K_\alpha$  et  $K_\beta$  du manganèse,  $K_\alpha$  (Mn) = 5,89 keV,  $K_\beta$  (Mn) = 6,49 keV. On observe sur le détecteur à localisation des raies dont les positions sont conditionnées par l'espacement entre les fentes de la plaque en cuivre, le spectre observé est présenté sur la figure (7).

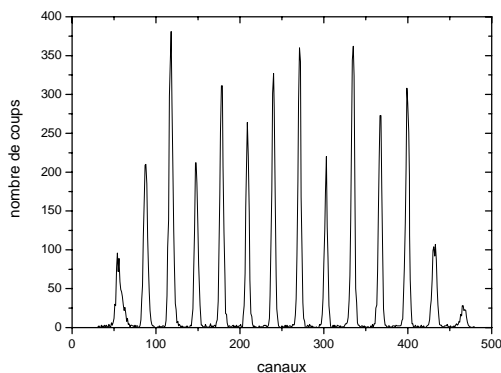


Figure (7) : spectre obtenu sur le détecteur à localisation avec fentes de 500  $\mu\text{m}$

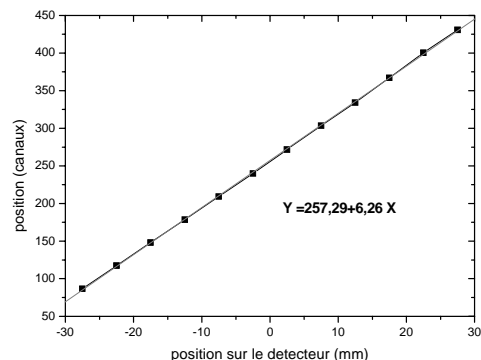


Figure (8) : droite d'étalonnage du détecteur à localisation déduite du spectre avec fentes

A partir de ce spectre, on déduit la pente de la droite d'étalonnage (canaux/mm) (fig.8), qui permet d'établir une relation entre la position en canal d'une raie et l'angle de Bragg ( $\theta_B$ ) correspondant à une énergie de photon X. La différence en numéro de canal entre deux raies est donnée par la relation :

$$\text{cnx}(2) - \text{cnx}(1) = P \cdot 2L \cdot \tan|\theta_B(2) - \theta_B(1)| \quad (\text{eq.8})$$

Le terme (P) correspond à la pente de la droite d'étalonnage et vaut 6,26 canaux/mm. Nous avons utilisé une longueur de bras ( $2L = 1950$  mm) pour l'observation des raies de l'argon et une longueur de bras ( $2L = 2000$  mm) pour l'observation des raies du krypton.

## II. Température électronique

Dans ce paragraphe, on s'intéressera aux spectres basse résolution enregistrés par le (DSi)<sup>1</sup> dont la gamme en énergie est très étendue (jusqu'à 20 keV). Ce détecteur est monté axialement par rapport à la source SIMPA pour observer le rayonnement émis par le plasma et plus particulièrement le rayonnement de freinage (Bremsstrahlung). L'étude de ce rayonnement nous permettra de déterminer la température électronique du plasma et la fonction de distribution des électrons en fonction de leur énergie.

### 1. Rayonnement de freinage

La diffusion des électrons du plasma par les ions ou les atomes produit un rayonnement par perte totale ou partielle de leur énergie cinétique. Un électron incident d'énergie ( $E_e$ ) est dévié et freiné par la présence d'un atome ou d'un ion. L'énergie cinétique est rayonnée sous forme d'un photon  $h\nu \leq E_e$ . Toutes les énergies de photons sont possibles et le rayonnement est donc continu. La probabilité d'interaction entre un électron de vitesse ( $v_e$ ) et un noyau de charge ( $Z$ ) pour produire un photon d'énergie ( $h\nu$ ) est donnée en première approximation par la section efficace de Kramers [ref.19].

$$\frac{d\sigma_K(h\nu)}{d(h\nu)} = \frac{16\pi}{3\sqrt{3}} \cdot \alpha^3 \cdot (\hbar/mc)^2 \cdot (c/v_e)^2 \cdot \frac{Z^2}{h\nu} = 5,61 \cdot 10^{-31} [\text{m}^2] \cdot (c/v_e)^2 \cdot \frac{Z^2}{h\nu} \quad (\text{eq.9})$$

Avec ( $\alpha$ ) la constante de structure fine, ( $m$ ) la masse de l'électron et ( $c$ ) la vitesse de la lumière dans le vide. La relation (eq.9) montre que l'émission de Bremsstrahlung se fait de préférence à basse énergie cinétique de l'électron et dépend fortement du numéro atomique ( $Z$ ) de l'atome ou de l'ion cible.

La section efficace de Kramers est assez approximative, en particulier, elle ne tient pas compte de la charge de la cible. Des auteurs [ref.20] [ref.21] se sont intéressés à cette question et ont établi un facteur correctif dit facteur de Gaunt. Ce facteur multiplicatif qui améliore (en l'augmentant) la valeur des sections efficaces de Kramers peut être important pour des photons dont l'énergie est inférieure à 1 keV, mais sa valeur chute brutalement pour des photons plus énergétiques et demeure inférieure à quelques unités (2 à 3 dans le cas des ions d'argon).

L'émission du rayonnement de Bremsstrahlung est anisotrope, elle est fonction de l'angle ( $\gamma$ ) formé entre le vecteur vitesse de l'électron et la direction d'émission du photon. La section efficace d'émission varie donc en fonction de cet angle d'émission ( $\gamma$ ). Plus l'énergie cinétique de l'électron est élevée, plus l'émission du rayonnement de freinage se fait préférentiellement vers l'avant (petits angles d'émissions). Dans la configuration d'une source ECR, les sections efficaces du Bremsstrahlung sont de fait plus grandes sur l'axe radial que sur l'axe axial, et c'est sur ce dernier que se fait l'observation du plasma avec le (DSi)<sup>1</sup>. La section efficace de Kramers ne prend pas en compte cette variation de l'émission en fonction de l'angle ( $\gamma$ ) et considère que le plasma est isotrope. Pour y remédier, des auteurs [ref.22, 23] ont calculé une section efficace plus élaborée tenant compte de l'anisotropie du plasma.

En définitive, la section efficace donnée par Kramers [ $d\sigma_K(h\nu)$ ] reste une bonne approximation, mais il convient de se souvenir que pour des calculs exacts, il faudrait utiliser une section efficace [ $d\sigma^*(h\nu)$ ] plus élaborée tenant compte de la charge de la cible et de l'anisotropie du plasma.

La puissance (P) dégagée par le rayonnement de freinage est donnée par une intégrale sur tous les photons d'énergie ( $h\nu$ ) et dépend de l'émissivité du plasma (eq.10). L'émissivité J( $h\nu$ ) est une grandeur caractéristique du plasma qui représente le nombre total de photons émis par un plasma de volume (V) (eq.11). L'intégrale qui apparaît dans la définition de l'émissivité représente la fonction spectrale N( $h\nu$ ), qui est en fait le spectre de Bremsstrahlung observé et enregistré par le (DSi)<sup>1</sup> après normalisation.

$$P = \int_0^{\infty} J(h\nu) \cdot d(h\nu) \quad (\text{eq.10})$$

$$J(h\nu) = h\nu/V \cdot \int_{h\nu}^{\infty} \frac{d\sigma^*(h\nu)}{d(h\nu)} \cdot v_e(E) \cdot f(E) \cdot dE = h\nu \cdot N(h\nu) \quad (\text{eq.11})$$

f(E) représente la fonction de distribution des électrons dans le plasma en fonction de leur énergie (E). En première approximation, on peut considérer cette distribution comme étant Maxwellienne (eq.12). En réalité les observations faites sur le plasma des sources ECR [ref.24] [ref.25], semble montrer que la distribution énergétique des électrons dans le plasma est mieux décrite par une forme non-Maxwellienne, dont nous donnons l'expression ci-dessous (eq.13).

$$f_{Mw}(E) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \frac{E^{1/2}}{(kT)^{3/2}} \cdot \text{Exp}(-E/kT) \quad \text{Maxwellienne (eq.12)}$$

$$f_{nMw}(E) = C_n \cdot E \cdot \left(1 + \frac{E}{2mc^2}\right) \cdot \left(1 + \frac{E}{mc^2}\right) \cdot \text{Exp}(-E/kT) \quad \text{non-Maxwellienne (eq.13)}$$

( $C_n$ ) est le coefficient de normalisation de la fonction [ $f_{nMw}(E)$ ], (k) étant la constante de Boltzmann et (T) la température électronique en Kelvin. Dans ce qui suivra, nous utiliserons le terme de température électronique pour désigner le produit (kT) dont la dimension est celle d'une énergie. Par ailleurs, nous utiliserons la notation ( $kT_M$ ) pour désigner la température électronique dans le cas Maxwellien et la notation ( $kT_N$ ) pour désigner la température électronique dans le cas non-Maxwellien.

Si on considère la section efficace de Kramers et une distribution Maxwellienne des électrons dans le plasma, on peut calculer aisément l'émissivité  $J^*(h\nu)$  du plasma. Celle ci est une exponentielle décroissante (eq.14). Le logarithme de l'émissivité possède alors une allure de droite dont la pente ( $p_\Delta$ ) dépend directement de la température électronique (eq.15).

$$J^*(h\nu) = 1/V \cdot \left( \frac{4\alpha}{\sqrt{6m}} \right)^3 \cdot \left( \frac{\pi Z^4 \hbar^4}{kT_M} \right)^{1/2} \cdot \text{Exp}(-h\nu/kT_M) \quad (\text{eq.14})$$

$$\text{Ln}[J^*(h\nu)] = \frac{-h\nu}{kT_M} + \text{Cst}$$

$$p_\Delta = \frac{\Delta \text{Ln}[J^*(h\nu)]}{\Delta(h\nu)} = \frac{-1}{kT_M} \quad (\text{eq.15})$$

Nous utiliserons ce résultat dans la suite du chapitre pour déterminer la température Maxwellienne des électrons. Avant cela, il faudra déterminer les spectres de la fonction spectrale  $N(h\nu)$  et de l'émissivité  $J(h\nu)$ .

## 2. Spectres Bremsstrahlung et normalisation

Nous traiterons dans ce paragraphe les spectres de Bremsstrahlung émis par le plasma d'argon et le plasma de krypton indifféremment, l'allure des spectres enregistrés étant identique pour une même puissance HF. Par ailleurs, nous nous limiterons dans l'étude des spectres de Bremsstrahlung à une gamme d'énergie allant de 4 keV à 12 keV. Dans le cas d'une distribution Maxwellienne cela n'influe aucunement sur la détermination de la température électronique puisque le logarithme de l'émissivité  $\text{Ln}[J^*(h\nu)]$  évolue d'une manière parfaitement linéaire. Par contre pour le cas d'une distribution non-Maxwellienne des électrons dans le plasma (ce qui est le cas d'une source ECR), le logarithme de l'émissivité évolue d'une manière quasi linéaire avec des changements de pentes d'une gamme d'énergie à l'autre. Ce changement de pente est de l'ordre de 15% par rapport à la pente moyenne du logarithme de l'émissivité [ref.25].

La gamme d'énergie choisie pour l'étude des spectres Bremsstrahlung (4 keV-12 keV) a été dictée par deux considérations. La limite à haute énergie (12 keV) est une conséquence due à l'imprécision dans la détermination de l'efficacité du (DSi)<sup>1</sup>, nous avons préféré étudier les spectres de Bremsstrahlung dans une gamme où cette efficacité (fig.3) est connue avec certitude. La limite à basse énergie (4 keV) a été fixée dans la perspective d'utiliser les résultats extraits de cette étude des spectres de Bremsstrahlung pour déterminer la densité ionique au travers de l'observation du plasma avec le spectromètre cristallin.

Nous avons observé avec le spectromètre cristallin les spectres d'émission vers la couche K des différentes espèces ioniques dans le plasma, on s'intéressera donc aux électrons dans le plasma capables d'ioniser l'argon et le krypton en couche K. Pour ioniser un atome d'argon en couche K, une énergie cinétique des électrons supérieure à 3,2 keV [ref.26] est requise, alors que pour ioniser en couche K l'ion  $\text{Ar}^{16+}$  l'énergie cinétique requise est de 4,1 keV [ref.13].

En conséquence, il n'est pas nécessaire d'inclure dans l'étude des spectres de Bremsstrahlung les photons provenant d'électrons dont l'énergie cinétique est inférieure au seuil d'ionisation en couche K de l'argon (le seuil du krypton étant plus haut en énergie). Prendre comme limite inférieure le seuil d'ionisation de l'argon neutre ou un seuil légèrement plus haut (4 keV) est donc suffisant dans le cadre de notre étude de la température électronique du plasma.

La figure (9) représente des spectres bruts enregistrés par le (DSi)<sup>1</sup> pour des temps d'acquisition de  $(2 \cdot 10^4 \text{s})$  et ce pour deux puissances HF injectées, en l'occurrence 50 Watts et 400 Watts. On observe sur les spectres les raies du rayonnement discret produit par fluorescence, ainsi qu'un fond sous ces raies qui représente le rayonnement de Bremsstrahlung, sujet de l'étude.

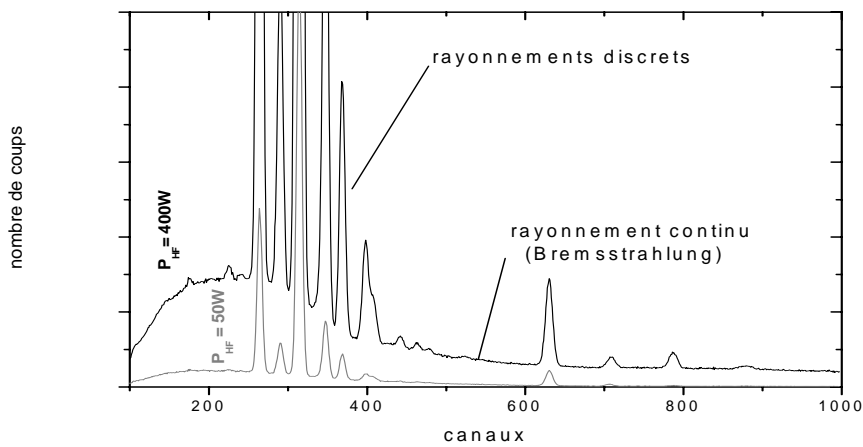


Figure (9) : spectres bruts enregistrés par le (DSi)<sup>1</sup> pour deux puissances HF

Pour transformer ces spectres bruts Bremsstrahlung  $N_{\text{brut}}(h\nu)$  en fonctions spectrales  $N(h\nu)$ , il faudra appliquer aux spectres l'étalonnage en énergie du (DSi)<sup>1</sup> déterminé plus haut (eq.1) et effectuer une normalisation des spectres. La normalisation (eq.16) se fait par rapport au temps d'acquisition ( $t_{\text{acq}}$ ), à l'efficacité ( $\eta$ ) du (DSi)<sup>1</sup>(fig.3), à l'angle solide ( $\Omega/4\pi$ ) du (DSi)<sup>1</sup> et au rapport de volume du plasma ( $\Delta V$ ) observé par le (DSi)<sup>1</sup>, ainsi que par rapport au nombre d'eV par canal ( $\Delta k = 19,754 \text{ eV/canal}$ ) du détecteur.

$$N(h\nu) = \frac{N_{\text{brut}}(h\nu)}{(t_{\text{acq}}) \cdot \eta \cdot (\Omega/4\pi) \cdot \Delta V \cdot \Delta k} \quad [\text{photons} / \text{s} \cdot \text{cm}^3 \cdot \text{eV}] \quad (\text{eq.16})$$

Dans le précédent chapitre, nous avons déterminé la longueur du plasma dans la source ECR SIMPA, qui est égale à (3,4 cm). Par ailleurs la largeur du plasma a été également déterminée [ref.10] et elle vaut (3,5 cm). Le plasma dans une source ECR a une forme sensiblement ovoïde [ref.24], et en faisant l'approximation d'une ellipsoïde, on peut donc estimer son volume. Dans le cas de notre source le volume du plasma ( $V$ ) est trouvé égal à  $(21,8 \text{ cm}^3)$ . Sachant que nous observons le plasma à travers l'électrode d'extraction dont le diamètre est égal à (0,8 cm) et que le (DSi)<sup>1</sup> se trouve à (270 cm) du centre de la chambre plasma, on peut aussi déterminer l'angle solide ( $\Omega/4\pi$ ) ainsi que la proportion du plasma ( $\Delta V$ ) observé par le (DSi)<sup>1</sup>.

Angle solide du (DSi)<sup>1</sup> :  $(\Omega/4\pi) = 3,43 \cdot 10^{-10}$

Proportion du plasma observé par le (DSi)<sup>1</sup> :  $(\Delta V) = 7,84 \%$

Après avoir obtenu les fonctions spectrales  $N(h\nu)$ , il est simple de retrouver finalement les émissivités  $J(h\nu)$  en appliquant la relation de l'équation (11), en l'occurrence  $J(h\nu) = h\nu \cdot N(h\nu)$ .

Nous présentons, figure (10), les spectres d'émissivité du plasma pour trois puissances HF (50, 100, 400 Watts). Nous avons ajusté chaque émissivité par deux droites, l'une correspondant à une pente maximum et l'autre à une pente minimum. C'est à partir de la moyenne de ces deux pentes que nous déterminerons la température électronique Maxwellienne ( $kT_M$ ) en appliquant la relation de l'équation (15).

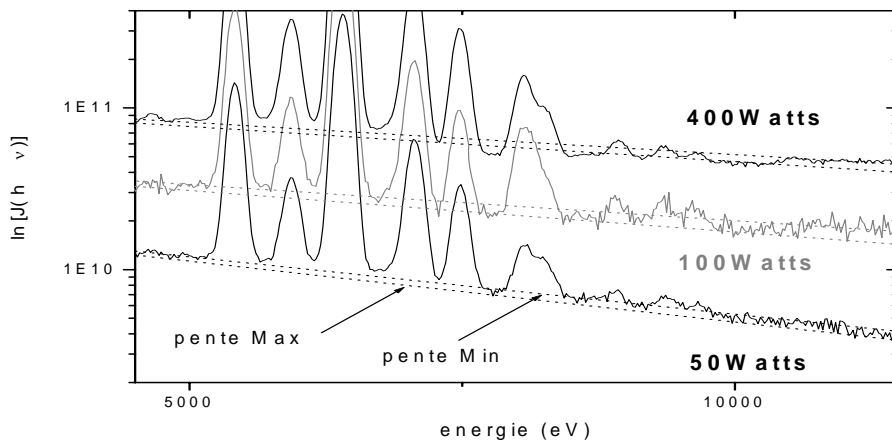


Figure (10) : émissivité du plasma pour trois puissances HF

### 3. Température électronique et comparaison

A partir des spectres d'émissivité, nous pouvons déterminer la température électronique Maxwellienne ( $kT_M$ ) qui correspond, rappelons le, au cas d'une distribution énergétique Maxwellienne des électrons dans le plasma (eq.12), et pour des sections efficaces de Bremsstrahlung de type Kramers [ $d\sigma_K(h\nu)$ ] (eq.9). Pour déterminer la température réelle ( $kT_N$ ) des électrons, il faudra effectuer une correction sur la température Maxwellienne.

En prenant une distribution non-Maxwellienne (eq.13) et des sections efficaces de Bremsstrahlung élaborées [ $d\sigma^*(h\nu)$ ], Barué et al [ref.24] proposent une correspondance entre les températures électroniques ( $kT_M$ ) et ( $kT_N$ ), dont nous donnons la forme ci dessous.

$$(kT_N) = (kT_M) \cdot [ 1,0 + 4,68 \cdot 10^{-3} (kT_M) + 1,63 \cdot 10^{-5} (kT_M)^2 ] \quad (\text{eq.16})$$

Nous utiliserons cette relation (eq.16) pour déterminer la température électronique réelle ( $kT_N$ ) du plasma. Nous présentons sous forme de graphique (fig.11) les températures ( $kT_M$ ) déduites des spectres d'émissivité du plasma ainsi que les températures ( $kT_N$ ) et ce pour des puissances HF injectées allant de 50 Watts à 400 Watts. Nous remarquons que la correction apportée par l'équation (16) est de l'ordre de quelques pour cents (3 à 5%) et que la température électronique dans le plasma de la source SIMPA est de l'ordre de la dizaine de keV.

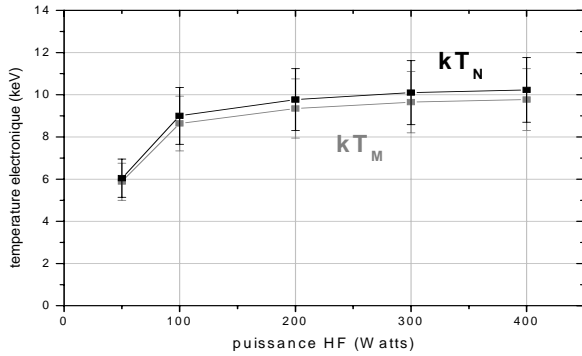


Figure (11) : températures électroniques du plasma en fonction de la puissance HF

D'autres études semblables ont été effectuées sur différentes sources ECR afin de déterminer la température électronique du plasma. Nous comparons (fig.12) nos résultats à ceux déterminés par d'autres travaux. Pour caractériser chaque source ECR, nous donnerons sa fréquence HF de fonctionnement ainsi que le rapport miroir ( $R = B_{\max}/B_{\min}$ ) de sa configuration magnétique. Bien que ces deux paramètres soient parmi les plus significatifs, ils ne suffisent pas cependant à identifier complètement le plasma d'une source ECR, celui-ci dépend également entre autres de l'élément constituant le plasma, de la pression d'injection et de la longueur du plasma.

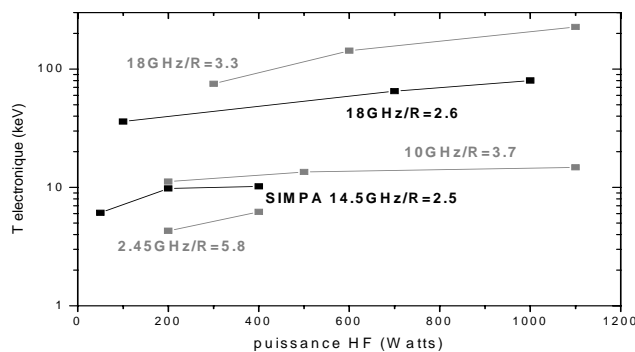


Figure (12) : températures électroniques d'autres sources ECR et comparaison

La source de (2,45 GHz) est un prototype d'étude de type compact avec des aimants permanents [ref.27] comme la source SIMPA. Notons que les sources de (18 GHz) [ref.24] [ref.25] ont des températures électroniques supérieures d'un ordre de grandeur par rapport aux autres sources. Les températures électroniques de la source Caprice (10 GHz) [ref.28] ont été déterminées par une méthode autre que celle que nous avons décrite dans ce chapitre.

### III. Fonction de distribution et densités

#### 1. Fonction de distribution électronique

Connaissant les températures électroniques du plasma, on peut déterminer les fonctions de distribution énergétiques des électrons. Dans un plasma d'une source ECR coexistent deux populations électroniques, l'une est dite froide (1 eV à 100 eV) et l'autre est dite chaude [ref.29], sa gamme d'énergie s'étalant entre 1 keV et 100 keV et parfois plus. La distribution électronique que nous traitons dans ce paragraphe est celle des électrons chauds. Nous avons vu précédemment que cette distribution est non-Maxwellienne [ $f_{nMw}(E)$ ]. Nous présentons (fig.13) une comparaison entre les deux distributions, Maxwellienne et non-Maxwellienne, pour illustrer la différence que cela implique sur la population électronique.



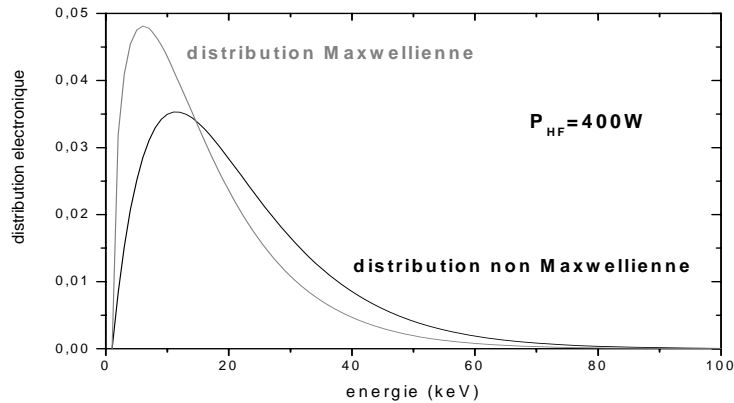


Figure (13) : comparaison entre les distributions  $f_{Mw}(E)$  et  $f_{nMw}(E)$  à une puissance HF donnée

Pour la comparaison, nous avons pris le cas le plus significatif, celui correspondant à une température électronique ( $kT_N = 10.23$  keV) déterminée dans le cas d'une puissance HF de 400 Watts et nous avons utilisé les équations (12) et (13) pour tracer respectivement les fonctions de distribution  $[f_{Mw}(E)]$  et  $[f_{nMw}(E)]$ . On constate que la distribution Maxwellienne sous-estime la population électronique au-delà de 20 keV et surestime nettement la population des électrons de basse énergie.

On donne ci dessous (fig.14) l'évolution des fonctions de distribution énergétiques non-Maxwelliennes en fonction des puissances HF (50, 100 et 400 Watts). On utilisera ces fonctions  $[f_{nMw}(E)]$  dans le reste du chapitre pour déterminer les densités électroniques.

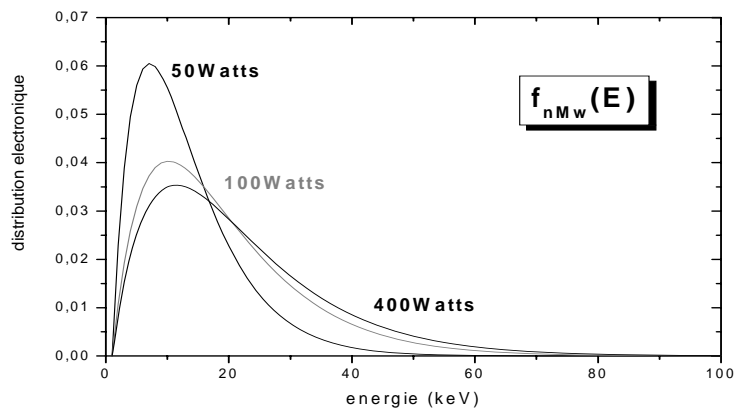


Figure (14) : distributions électroniques  $f_{nMw}(E)$  dans la source SIMPA pour différentes puissances HF

## 2. Charge moyenne du plasma

En utilisant les spectres d'états de charge de l'argon et du krypton, présentés dans le précédent chapitre, on tâchera de déterminer dans ce paragraphe la charge moyenne du plasma en fonction de la puissance HF injectée. La détermination de la charge moyenne  $\langle q \rangle$  dans le plasma à travers la distribution des états de charge en extraction, implique qu'on fait l'hypothèse d'une existence d'une corrélation entre les courants extraits de la source ECR et les espèces d'ions présents dans le plasma. Hypothèse que nous confirmerons dans la paragraphe VII de ce chapitre. Néanmoins dans une première approche, on peut justifier cette hypothèse comme suit. Un courant ( $I_q$ ) extrait d'une source ECR, correspondant à un ion d'état de charge ( $q$ ) donné, est relié à son abondance dans le plasma par la relation de l'équation (17) [ref.30]. Le courant ( $I_q$ ) dépend donc non seulement de la densité ( $N_q$ ) de l'ion dans le plasma (son abondance) mais aussi du temps de confinement ( $\tau_q$ ) de cet ion.

$$I_q \approx \frac{1}{2} \cdot (N_q / \tau_q) \cdot q \cdot e \cdot V_{ex} \quad (\text{eq.17})$$

Le terme ( $V_{ex}$ ) désigne le volume du plasma observé et ( $e$ ) la charge élémentaire. L'hypothèse que nous faisons dans ce paragraphe pour déterminer la charge moyenne dans le plasma revient donc à considérer que les temps de confinement des différentes espèces ioniques dans le plasma sont proches. Dans le cas d'un plasma d'argon, le temps de confinement de l'état de charge ( $q_1$ ) le plus élevé peut être en réalité cinq fois plus grand que celui de l'état de charge le plus abondant ( $q_2$ ) [ref.31], [ref.32]. Cependant le rapport des courants correspondant à ces deux états de charges  $I(q_2)/I(q_1)$  est très grand, par exemple dans notre cas  $I(\text{Ar}^{9+})/I(\text{Ar}^{16+}) \approx 360$ . L'erreur induite par l'hypothèse d'un temps de confinement constant dans le plasma reste donc acceptable lorsque l'on veut simplement déterminer la charge moyenne du plasma en utilisant les intensités de courants extraits.

On pondérera donc chaque état de charge ( $q$ ) d'un ion par l'intensité de son courant extrait ( $I_q$ ) (eq.18, 19). On se limitera dans le cas de l'argon à l'état de charge ( $q = 16$ ), les courants d' $\text{Ar}^{17+}$  étant tout à fait négligeables dans ce contexte. Dans le cas du krypton on se limitera de même au courant du  $\text{Kr}^{20+}$ . Enfin, on déterminera les courants non connus pour raison de superposition (cas de l' $\text{Ar}^{10+}$  et de l' $\text{O}^{4+}$  par exemple) en moyennant les courants des états de charge voisins ( $\text{Ar}^{9+}$  et  $\text{Ar}^{11+}$  dans ce cas).

$$\langle q(\text{Ar}) \rangle = \frac{[\sum_{i=1}^{16} I_{qi}]^{\text{Ar}} + [\sum_{i=1}^8 I_{qi}]^{\text{O}_2}}{[\sum_{i=1}^{16} I_{qi}/q_i]^{\text{Ar}} + [\sum_{i=1}^8 I_{qi}/q_i]^{\text{O}_2}} \quad (\text{eq.18})$$

$$\langle q(\text{Kr}) \rangle = \frac{[\sum_{i=1}^{20} I_{qi}]^{\text{Kr}} + [\sum_{i=1}^8 I_{qi}]^{\text{O}_2}}{[\sum_{i=1}^{20} I_{qi}/q_i]^{\text{Kr}} + [\sum_{i=1}^8 I_{qi}/q_i]^{\text{O}_2}} \quad (\text{eq.19})$$

Le  $\langle q(\text{Ar}) \rangle$  désigne la charge moyenne du plasma ( $\text{Ar}/\text{O}_2$ ) et  $\langle q(\text{Kr}) \rangle$  désigne la charge moyenne du plasma ( $\text{Kr}/\text{O}_2$ ). La figure (15) donne la charge moyenne des deux plasmas en fonction des puissances HF. Pour le plasma d'argon la charge moyenne avoisine ( $\langle q \rangle \approx 3,3$  à  $4,1$ ) alors que pour le plasma de krypton, la charge moyenne avoisine ( $\langle q \rangle \approx 2,9$  à  $3,6$ ). La charge moyenne  $\langle q \rangle$  dans les plasmas d'argon et de krypton est fortement influencée par les différents états de charge de l'oxygène présents également dans le plasma et de leurs abondances.

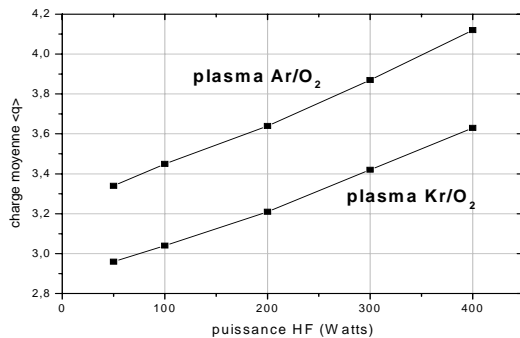


Figure (15) : charge moyenne des plasmas d'Ar et de Kr en fonction de la puissance HF et avec  $\text{O}_2$  comme gaz porteur

Le plasma étant globalement neutre, on peut déterminer une première relation entre la densité électronique  $N_e$  et la densité ionique  $N_i$ , tel que  $N_e = \langle q \rangle \cdot N_i$ . Nous reviendrons sur cette relation dans la suite du chapitre.

### 3. Nombre de photons émis par le plasma ou Produit des densités

Nous appelons produit des densités, le produit de la densité électronique ( $N_e$ ) et de la densité ionique ( $N_i$ ). Théoriquement, le nombre de photons  $N^*(h\nu_0)$  émis par le plasma à une énergie donnée ( $h\nu_0$ ) par unité de temps et par unité de volume du plasma dépend de ce produit des densités ainsi que le montre l'équation (20).

$$N^*(h\nu_0) = N_e \cdot N_i \cdot \left\langle \frac{d\sigma^*(h\nu_0)}{d(h\nu_0)} \cdot v_e \right\rangle = N_e \cdot N_i \cdot G(h\nu_0) \quad (\text{eq.20})$$

$$G(h\nu_0) = \int_{E=h\nu_0}^{\infty} \frac{d\sigma^*(h\nu_0, E)}{d(h\nu_0)} \cdot v_e(E) \cdot f(E) \cdot d(E) \quad (\text{eq.21})$$

$$N^*(h\nu_0) = \frac{N(h\nu_0)}{V} \quad (\text{eq.22})$$

$N^*(h\nu_0)$  sera déterminé à partir des fonctions spectrales  $N(h\nu)$ , ( $V$ ) étant le volume du plasma. Pour pouvoir calculer  $G(h\nu_0)$ , on prendra la section efficace de Kramers [ $d\sigma_K(h\nu)$ ]. L'équation (21) devient dans ce cas :

$$G(h\nu_0) = \frac{Cst}{\sqrt{2}} \cdot \frac{c \cdot \sqrt{mc^2} \cdot Z^2}{h\nu_0} \cdot \int_{E=h\nu_0}^{\infty} \frac{f(E)}{\sqrt{E}} \cdot d(E) \quad (\text{eq.23})$$

La constante ( $Cst$ ) est celle de la section efficace de Kramers (eq.9) et vaut ( $5,61 \cdot 10^{-31} \text{ m}^2$ ), le terme ( $Z$ ) représente la charge du noyau effectif dans le plasma. Comme les plasmas étudiés sont un mélange d'argon ou de krypton avec de l'oxygène, il faudra approximer ( $Z$ ) en pondérant par les quantités de gaz injectés dans la source ECR en faisant l'hypothèse que le rapport des gaz injectés se retrouve dans le plasma.

En se référant au rapport des pressions entre l'oxygène et l'argon présenté dans le chapitre précédent ( $P_{O_2} = 8,75 P_{Ar}$ ), la charge du noyau effectif dans le cas du plasma d'argon est de ( $Z = 9,52$ ). Ne connaissant pas avec exactitude le rapport entre gaz porteur et gaz principal dans le cas du plasma de krypton, les calculs et les résultats qui suivront concerneront le plasma d'argon.

Pour chaque énergie ( $h\nu_0$ ), on peut retrouver le produit des densités ( $N^2 = N_e \cdot N_i$ ) par l'équation (20) et ce après avoir calculé  $G(h\nu_0)$  par l'équation (23). Dans notre cas, on déterminera le produit des densités en plusieurs points ( $h\nu_0$ ) dans une gamme d'énergie allant de (3 keV à 30 keV) et on prendra la moyenne des produits de densités ainsi déterminés à partir du spectre expérimental. Le tableau (3) donne cette moyenne en fonction des puissances HF de fonctionnement.

Dans le calcul de ( $N^2$ ), nous avons utilisé pour la densité électronique  $f(E)$  les deux cas Maxwellien [ $f_{Mw}(E)$ ] et non-Maxwellien [ $f_{nMw}(E)$ ]. Le tableau (3) contient donc le produit des densités ( $N^2_{nMw} = N_e \cdot N_i$ ) dans le cas d'une distribution électronique non-Maxwellienne et le produit des densités ( $N^2_{Mw} = N_e \cdot N_i$ ) dans le cas d'une distribution électronique Maxwellienne.

<b>Puissance HF (Watts)</b>	50	100	200	300	400
$N^2_{nMw} = N_e \cdot N_i$ ( $\text{cm}^{-6}$ )	<b>0,70.10<sup>22</sup></b>	<b>2,11.10<sup>22</sup></b>	<b>4,54.10<sup>22</sup></b>	<b>4,95.10<sup>22</sup></b>	<b>5,39.10<sup>22</sup></b>
$N^2_{Mw} = N_e \cdot N_i$ ( $\text{cm}^{-6}$ )	1,11.10 <sup>22</sup>	2,94.10 <sup>22</sup>	6,17.10 <sup>22</sup>	6,69.10 <sup>22</sup>	7,24.10 <sup>22</sup>
<b>Charge moyenne &lt;q&gt;</b>	<b>3,34</b>	<b>3,45</b>	<b>3,64</b>	<b>3,87</b>	<b>4,12</b>

Tableau (3) : produit des densités  $N_e \cdot N_i$  en fonction de la puissance HF

#### 4. Densités électronique et ionique

Connaissant la charge moyenne dans le plasma  $\langle q \rangle$ , qui représente le rapport entre la densité électronique et la densité ionique et le produit de ces deux densités, on peut retrouver aisément la densité électronique ( $N_e$ ) et la densité ionique ( $N_i$ ) (eq.24).

$$\begin{cases} N_e = \langle q \rangle \cdot N_i \\ N_e \cdot N_i = N^2 \end{cases} \Rightarrow N_i = [(N^2 / \langle q \rangle)]^{1/2} \quad (\text{eq.24})$$

On mettra sous forme de tableaux (4 et 5) et de graphiques (figures 16 et 17) les résultats déterminés pour les densités ( $N_e$ ) et ( $N_i$ ) et ce pour les deux cas, Maxwellien et non-Maxwellien. Nous rappelons que ces résultats correspondent au plasma d'argon.

<b>Puissance HF (Watts)</b>	50	100	200	300	400
$N_i$ ( $\text{cm}^{-3}$ ) non Maxwellien	<b>0,46.10<sup>11</sup></b>	<b>0,78.10<sup>11</sup></b>	<b>1,12.10<sup>11</sup></b>	<b>1,13.10<sup>11</sup></b>	<b>1,14.10<sup>11</sup></b>
$N_e$ ( $\text{cm}^{-3}$ ) non Maxwellien	<b>1,53.10<sup>11</sup></b>	<b>2,70.10<sup>11</sup></b>	<b>4,07.10<sup>11</sup></b>	<b>4,38.10<sup>11</sup></b>	<b>4,71 .10<sup>11</sup></b>

Tableau (4) : densités électroniques et ioniques du plasma (Ar) (cas non-Maxwellien)

<b>Puissance HF (Watts)</b>	50	100	200	300	400
$N_i$ ( $\text{cm}^{-3}$ ) Maxwellien	0,58.10 <sup>11</sup>	0,92.10 <sup>11</sup>	1,30.10 <sup>11</sup>	1,31.10 <sup>11</sup>	1,33.10 <sup>11</sup>
$N_e$ ( $\text{cm}^{-3}$ ) Maxwellien	1,93.10 <sup>11</sup>	3,18.10 <sup>11</sup>	4,74.10 <sup>11</sup>	5,09.10 <sup>11</sup>	5,46 .10 <sup>11</sup>

Tableau (5) : densités électroniques et ioniques du plasma (Ar) (cas Maxwellien)

Nous trouvons des densités ioniques allant de ( $10^{10}$  à  $10^{11} \text{ cm}^{-3}$ ) et des densités électroniques allant de ( $10^{11}$  à quelques  $10^{11} \text{ cm}^{-3}$ ). Ceci correspond aux densités d'un plasma peu dense relatif aux sources ECR. Les observations faites sur le plasma des sources ECR indiquent que la densité ionique est typiquement de l'ordre de  $10^{11} \text{ cm}^{-3}$  et que la densité électronique est de l'ordre de  $10^{12} \text{ cm}^{-3}$  [ref.12, 24, 30, 33] et ce pour un fonctionnement optimal de la source ECR. Dans notre cas, pour un fonctionnement optimal de la source SIMPA (400 Watts), nous atteignons la densité ionique observée dans d'autres sources, mais la densité électronique reste en dessous des  $10^{12} \text{ cm}^{-3}$ , ce qui peut expliquer a priori la limitation des performances de la source SIMPA de type compact par rapport à d'autres sources.

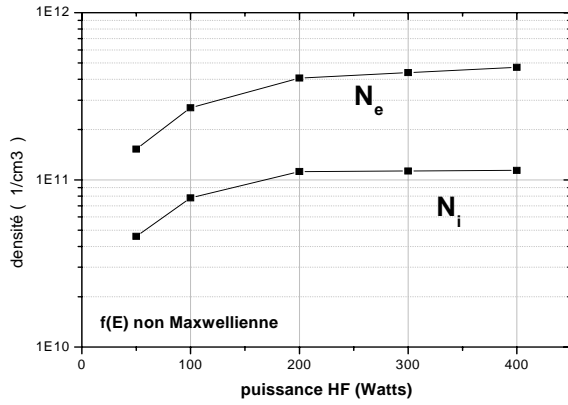


Figure (16) : évolution de  $N_e$  et  $N_i$  en fonction de la puissance HF

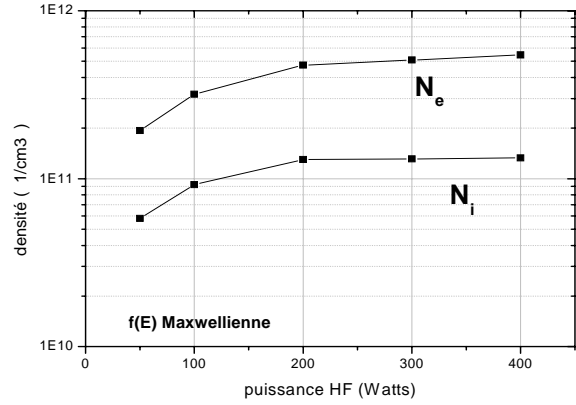


Figure (17) : évolution de  $N_e$  et  $N_i$  en fonction de la puissance HF

Dans la détermination des densités électronique et ionique, nous faisons une approximation en prenant la section efficace de Bremsstrahlung de Kramers, ce qui induit une erreur certaine sur les résultats présentés dans les tableaux (4 et 5). En supposant cependant que les valeurs des sections efficaces données par Kramers sont exactes dans la gamme en énergie d'étude des spectres Bremsstrahlung (4 keV–12 keV), l'incertitude sur les valeurs des densités  $N_e$  et  $N_i$  dépend de tous les paramètres entrant dans le calcul de ces densités.

Dans une approche d'estimation de l'incertitude faite sur les densités ( $N$ ) dans le cadre du calcul effectué plus haut, on peut négliger les erreurs statistiques sur la détermination du nombre de coups à partir des spectres bruts de Bremsstrahlung [ $N_{brut}(h\nu)$ ] ainsi que sur la détermination du temps d'acquisition ( $t_{acq}$ ) des spectres (eq.16), dont les incertitudes relatives sont de l'ordre du millièème. En simplifiant les termes entrant dans la détermination de l'incertitude relative de ( $N$ ) à partir des équations (16 et 20), on peut estimer l'erreur faite sur les densités électronique et ionique en utilisant l'équation (25) ci dessous.

$$\frac{\delta N}{N} \approx \frac{\delta \eta}{\eta} + \frac{\delta V_{obs}}{V_{obs}} + \frac{\delta(\Delta k)}{(\Delta k)} + \frac{\delta(\Omega/4\pi)}{(\Omega/4\pi)} + \frac{\delta Z^2}{Z^2} + 2 \frac{\delta(kT)}{(kT)} + \frac{\delta \langle q \rangle}{\langle q \rangle} \quad (\text{eq.25})$$

Le terme ( $V_{obs}$ ) désigne le volume du plasma observé dont l'incertitude relative est de l'ordre de (5 %) comme celle de l'incertitude relative de l'efficacité ( $\eta$ ) du détecteur. Les erreurs les plus importantes sont dues à la température électronique ( $kT$ ), à la charge moyenne  $\langle q \rangle$  des ions dans le plasma et à l'angle solide du (DSi)<sup>1</sup> dont les incertitudes relatives sont évaluées respectivement à (15 %), (10%) et (20 %). A partir de ces données, on estime l'incertitude relative sur les densités ( $\delta N/N$ ) à 75 %, ce qui est considérable et dont il faut tenir compte.

En comparant les densités électroniques déterminées à partir d'une distribution Maxwellienne  $f_{Mw}(E)$  des énergies des électrons avec les densités électroniques déterminées à partir d'une distribution non-Maxwellienne  $f_{nMw}(E)$ , on remarque que les densités  $N_e$  dans le cas Maxwellien sont supérieures de (15 à 20 %) par rapport aux densités  $N_e$  dans le cas non-Maxwellien (par conséquent de même pour les densités  $N_i$ ). Cette différence entre ces deux cas, provient du fait que la distribution  $f_{Mw}(E)$  sous estime le nombre d'électrons de hautes énergies et tend à considérer que les électrons sont plus nombreux dans le plasma pour effectuer les collisions suffisantes à leur thermalisation, principe sous-jacent à une distribution énergétique Maxwellienne.

#### IV. Spectres de haute résolution

Nous discuterons dans cette partie du chapitre des spectres enregistrés avec le spectromètre cristallin qu'on désignera par (SpC). Nous avons enregistré des spectres haute résolution dans deux cas, le plasma d'argon et le plasma de krypton. Pour le plasma d'argon, on s'est intéressé aux raies  $K_\alpha$  et dans le cas du krypton, on s'est intéressé aux raies  $K_\alpha$  et aux raies  $K_\beta$ . Nous désignons par  $K_\alpha$  le rayonnement X émis pour des transitions électroniques de la couche L vers la couche K de l'atome neutre et de ces ions, de même pour  $K_\beta$ , qui désigne les X émis pour des transitions entre la couche M et la couche K de l'atome neutre et de ces ions.

##### 1. Présentation des spectres d'argon

Nous avons enregistré des spectres de haute résolution du plasma d'argon  $N_{Ar}(\text{brut})$  pour différentes puissances HF (de 100 Watts à 400 Watts). On s'est limité à 400 Watts de puissance HF pour les mêmes raisons que dans l'étude des spectres de Bremsstrahlung, à savoir que le fonctionnement optimal de la source SIMPA se trouve aux puissances voisines de 400 Watts et qu'au-delà de cette puissance, on observe une baisse de ses performances.

Pour déterminer le nombre de photons par seconde et par unité de volume, nous avons appliqué aux spectres bruts  $N_{Ar}(\text{brut})$  l'étalonnage en énergie du (SpC), déterminé au début du chapitre (eq.8) ainsi qu'une normalisation par rapport aux temps d'acquisitions ( $t_{acq}$ ), à la transmission du (SpC) (eq.4) et à la proportion du volume ( $\Delta V^*$ ) du plasma observé. L'observation du plasma se faisant à travers un diaphragme de 0,5 mm et le volume du plasma étant égal à  $(21,8 \text{ cm}^3)$ , ( $\Delta V^*$ ) est égal à  $3,06 \cdot 10^{-4}$ . On obtient donc, des spectres normalisés  $N_{Ar}(h\nu)$  en appliquant l'équation 26.

$$N_{Ar}(h\nu) = \frac{N_{Ar}(\text{brut})}{(t_{acq}) \cdot T_S \cdot \Delta V^*} \quad (\text{eq.26})$$

Rappelons que la transmission ( $T_S$ ) du (SpC) inclut l'efficacité ( $\epsilon_d$ ) du détecteur à localisation, la réflectivité ( $R_\theta$ ) du cristal de graphite et l'angle solide de détection qui dépend de la hauteur de détection ( $H$ ) (eq.4). Dans le cas présent, la hauteur de détection est déterminée par la largeur de la fente (0,5 mm) mise devant le cristal, à une distance faisant approximativement 105 mm. La figure (18) donne la transmission du (SpC) dans la gamme d'énergie des  $K_\alpha$  de l'argon. L'évolution de ( $T_S$ ) dans cette gamme d'énergie est quasi linéaire et reflète principalement l'évolution de ( $\epsilon_d$ ), car ( $R_\theta$ ) et ( $H$ ) sont quasiment constants dans cette gamme d'énergie.

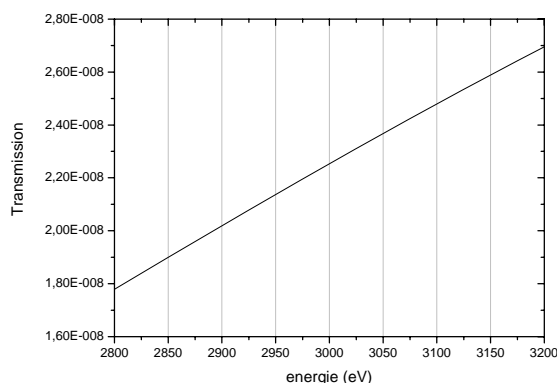


Figure (18) : transmission du SpC en fonction de l'énergie des photons dans le cas de l'observation du plasma d'Ar

Les figures (19, 20, 21) représentent les spectres normalisés  $N_{Ar}(h\nu)$  du plasma d'argon pour trois puissances HF (100, 200, 400 Watts). On observe sur les spectres les raies  $K_\alpha$  des différentes espèces ioniques présentes dans le plasma. La large raie au début des spectres représente l'ensemble des raies  $K_\alpha$  de l'argon neutre jusqu'à l' $Ar^{9+}$ , la résolution du (SpC) n'étant pas suffisante pour les séparer. Notons que la résolution expérimentale correspond aux calculs de résolution (tableau.2) effectués plus haut et est de l'ordre de 3 eV.

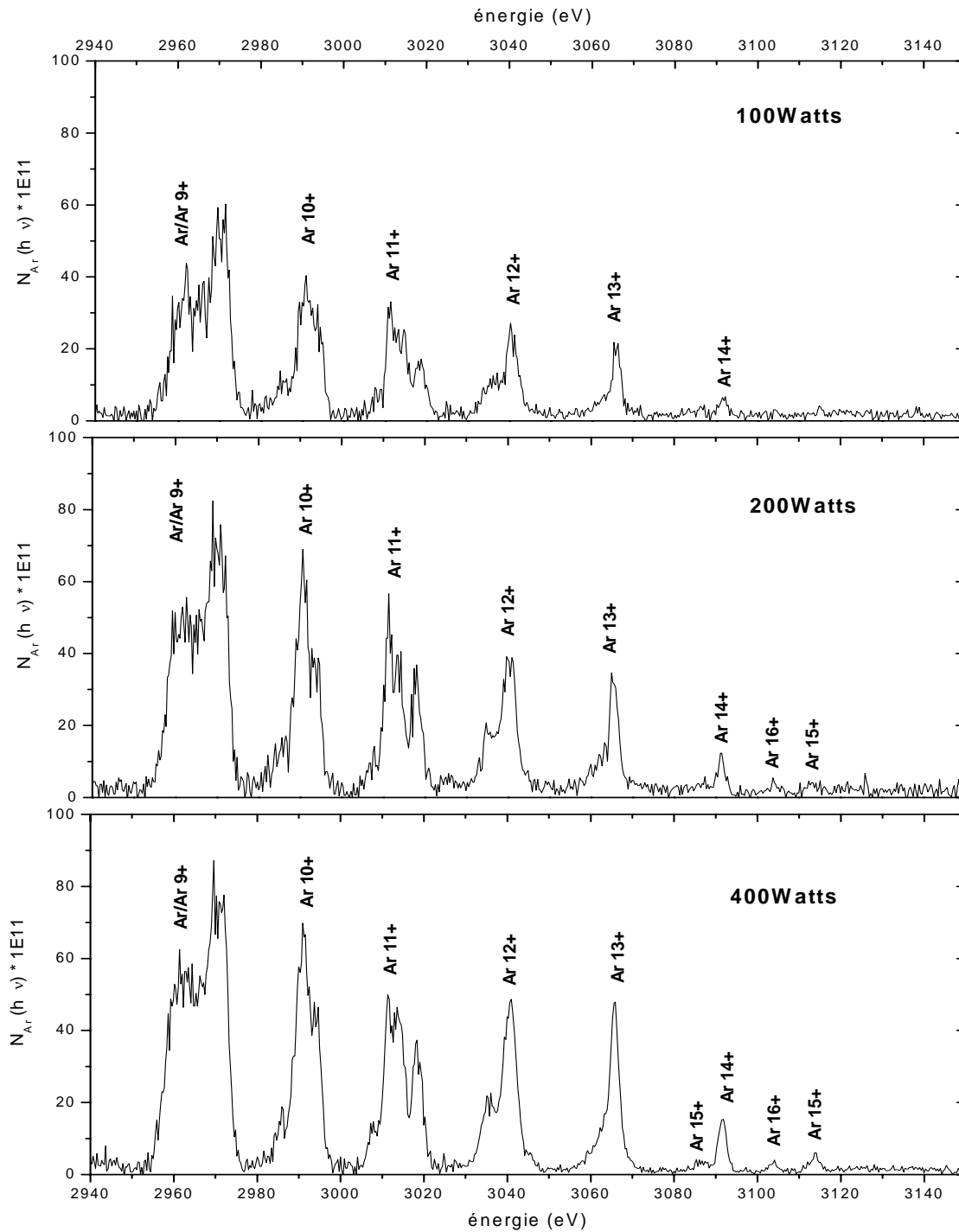


Figure (19), (20), (21) : spectres normalisés  $N_{Ar}(h\nu)$  du plasma d'argon

Au point de fonctionnement optimal de la source SIMPA (400 Watts), on observe les raies  $K_{\alpha}$ , de l'argon neutre jusqu'à  $L'Ar^{16+}$ , correspondant aux transitions électroniques de la couche L (2p et 2s) vers la couche K (1s). On reviendra plus précisément sur ces transitions dans la suite du chapitre afin de les identifier au mieux. Notons par ailleurs que nous n'avons pas observé la  $K_{\alpha}$  de l'argon hydrogéné (Ar<sup>17+</sup>) bien que nous ayons extrait de la source un courant de cet état de charge.

## 2. Présentation des spectres de krypton

Pour le plasma de krypton, nous avons enregistré deux séries de spectres à différentes puissances HF, la première série est celle des raies  $K_{\alpha}$  et la deuxième série est celle des raies  $K_{\beta}$ . Comme dans le cas de l'argon, nous avons normalisé les spectres bruts du krypton en suivant la même procédure, sauf que la transmission du (SpC) est différente. La figure (22) représente la transmission du (SpC) dans la gamme d'énergie des raies du krypton, nous rappelons que nous avons observé les raies du krypton au troisième ordre de diffraction.

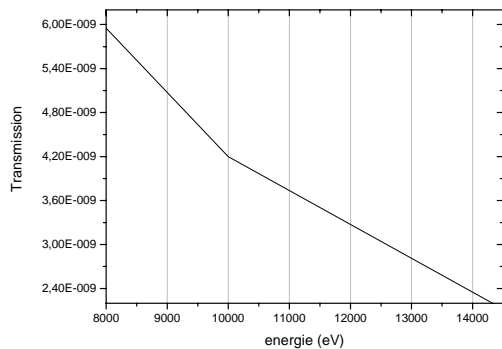


Figure (22) : transmission du SpC dans le cas de l'observation du plasma de Kr

La figure (23) représente les spectres normalisés  $N_{Kr} \alpha$  (hv) pour trois puissances HF (5, 100 et 400 Watts). On observe les deux raies  $K_{\alpha 2}$  et  $K_{\alpha 1}$  correspondant aux transitions électronique de la couche L (2p) vers la couche K (1s), des différents états de charge du krypton présents dans le plasma et donc de plusieurs configurations possibles.

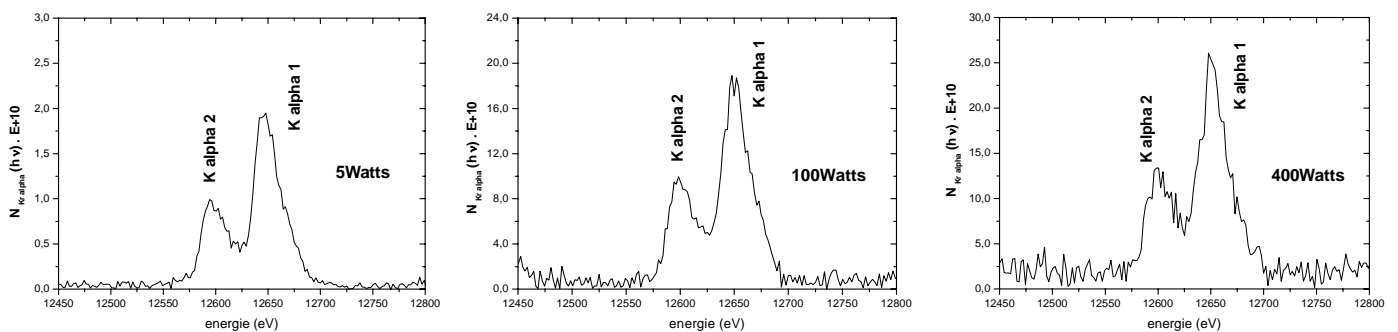


Figure (23) : spectres normalisés  $N_{Kr} \alpha$  (hv) des raies  $K_{\alpha}$  du plasma de krypton

La résolution du (SpC) ne permet pas de séparer les raies relatives à chaque état de charge comme dans le cas de l'argon, on observe donc deux larges raies ( $K_{\alpha 2}$  et  $K_{\alpha 1}$ ) qui renferment les différentes raies  $K_{\alpha}$  de chaque état de charge du krypton. Notons que le spectre  $K_{\alpha}$  à 5 Watts de puissance HF est pratiquement identique au spectre  $K_{\alpha}$  à 400 Watts.



Pour observer un déplacement significatif des raies  $K_{\alpha}$  du krypton, il faut que les ions dans le plasma aient des lacunes dans la sous couche (2p), ce qui signifie l'existence dans le plasma du  $Kr^{27+}$  et des ions d'état de charge plus élevés. Nous rappelons que l'état de charge le plus élevé en krypton extrait de la source SIMPA est le  $Kr^{24+}$ , ceci indique que si l'ionisation en sous couche (2p) se fait dans le plasma, elle est très minime. En conclusion, l'observation de spectres  $K_{\alpha}$  quasiment identiques quelque soit la puissance HF injectée (5, 10, 400 Watts) signifie a priori que les ions de krypton dans le plasma ont une sous couche (2p) fermée.

Par ailleurs, la résolution expérimentale pour les spectres de la  $K_{\alpha}$  du krypton est de l'ordre de 30 eV, elle est deux fois plus grande que la résolution attendue, (tableau.2). L'écart important entre ces deux résolutions, provient du fait que nous n'avons pas tenu compte dans nos calculs de la pénétration des rayons X de grande énergie dans le cristal. Pour des rayons X de 13,63 keV ( $K_{\alpha}$  du krypton), 50% du rayonnement seulement est absorbé dans 2,6 mm de graphite (épaisseur du cristal = 2 mm). A cause de ce phénomène, la diffraction ne se fait pas que sur les plans réticulaires de surface du cristal, elle se fait également sur des plans réticulaires en profondeur, élargissant ainsi la tache de diffraction sur le détecteur (eq.3), avec pour conséquence une détérioration de la résolution. Dans le cas des raies  $K_{\alpha}$  du krypton, le déplacement et l'élargissement des raies (quelques eV) n'étant pas significatif devant la largeur des raies, il est difficile d'extraire une information sur l'évolution de la distribution en état de charge des ions dans le plasma en fonction de la puissance HF.

La deuxième série de spectres du plasma de krypton enregistrée est celle de la  $K_{\beta}$ . La figure ci dessous (fig.24) représente six spectres normalisés  $N_{Kr}$  beta (hv) enregistrés pour des puissances HF allant de (5 à 400 Watts), où on observe à chaque fois qu'une seule raie, plus au moins large, qui correspond aux transitions électroniques de la couche M vers la couche K des différentes espèces ioniques du krypton dans le plasma.

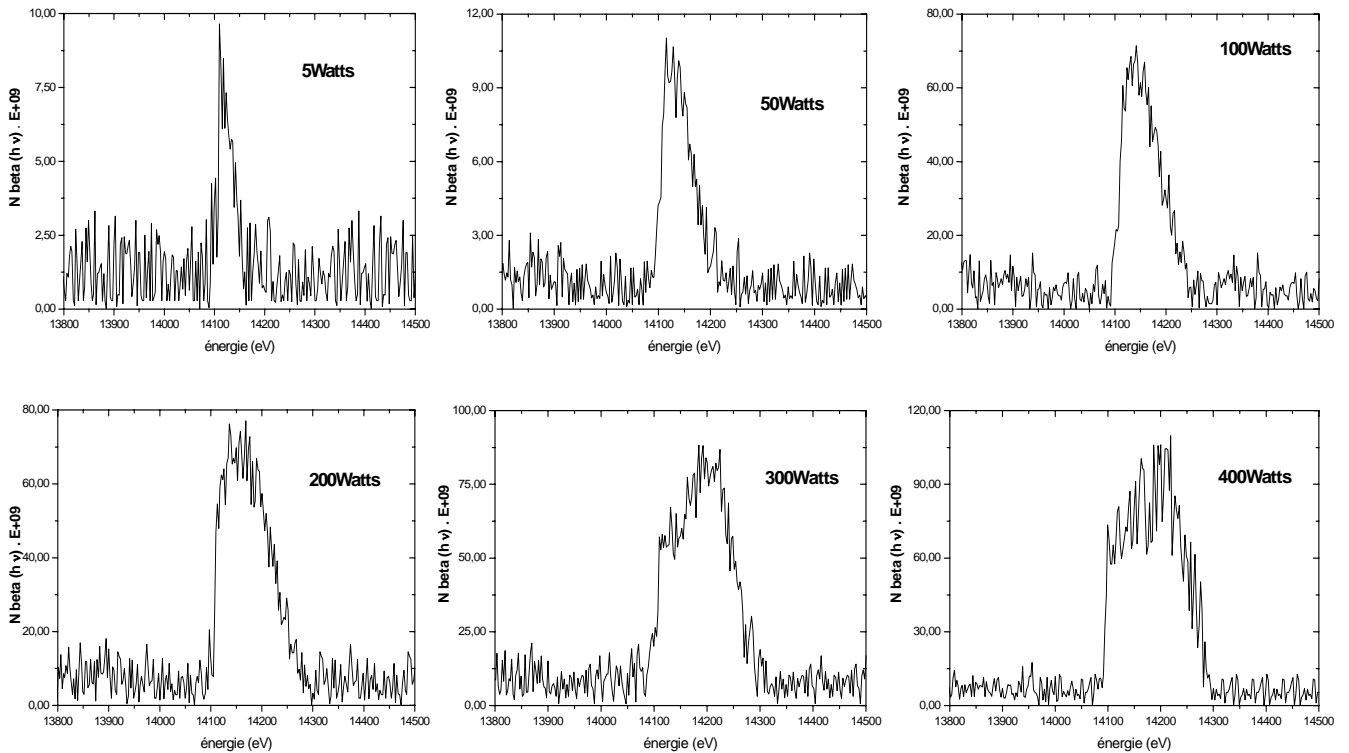


Figure (24) : spectres normalisés  $N_{Kr}$  beta (hv) des raies Kbeta du plasma de krypton

En dépit d'une résolution moyenne ( $\approx 30$  eV), on observe dans le cas des raies  $K_\beta$  du krypton un déplacement vers les hautes énergies et un élargissement des raies en fonction de la puissance HF injectée. Cela indique un changement dans la distribution des états de charge du krypton dans le plasma. Plus la puissance HF augmente, plus la proportion des états de charge élevés du krypton augmente également. Nous reviendrons sur ce point au paragraphe VII de ce chapitre. Dans la suite du chapitre, afin d'extraire une information sur la distribution en état de charge (DEC) des ions de krypton dans le plasma, nous limiterons notre étude aux spectres de la  $K_\beta$ .

## V. Production de lacunes en couche K

L'observation des raies  $K_\alpha$  et  $K_\beta$  des ions et des atomes dans le plasma est liée à l'existence dans ces ions et atomes d'une lacune en couche K, qui est comblée par une transition électronique. Celles qu'on observe dans les spectres d'argon et de krypton sont essentiellement des transitions (2p vers 1s) et (3p vers 1s). Afin d'interpréter les spectres de plasma enregistrés (fig 19, 20, 21, 24), il est indispensable de comprendre les mécanismes induisant dans les ions et les atomes une lacune dans la couche (1s) pour qu'elle passe d'une configuration électronique ( $1s^2$  vers 1s).

Les mécanismes pouvant induire une lacune en couche K des ions dans le plasma (le terme ion inclut les atomes neutres) sont nombreux et ont été recensés notamment par Zschornack et al [ref.34], mais nombre de ces mécanismes sont négligeables (recombinaison diélectronique, recombinaison radiative et l'échange de charge). Les trois plus importants mécanismes créant une lacune en couche K des ions dans un plasma d'une ECR sont respectivement la simple ionisation, l'excitation électronique et la double ionisation. En détaillant ces mécanismes dans la suite du paragraphe, on se référera à l'étude faite par Martins, Indelicato et al [ref.35]. Cette étude théorique a permis de reproduire fidèlement l'émission des rayons X d'un plasma d'une source ECR.

### 1. La simple ionisation

L'ionisation interne en couche K par impact électronique se produit si dans le plasma un électron incident possède une énergie cinétique supérieure au potentiel d'ionisation en couche K de l'ion. La section efficace ( $\sigma_K$ ) prise pour rendre compte de ce phénomène est celle qui découle du modèle (BEB) (Binary Encounter Bethe) de Kim et al [ref.36] dont l'expression est donnée par l'équation (27).

$$\sigma_K = \frac{8 \cdot \pi \cdot a^2}{t+u+1} \cdot (I_H/B)^2 \cdot \left[ 1 - \frac{1}{t} + \frac{\ln t}{2} \cdot \left( 1 - \frac{1}{t^2} \right) - \frac{\ln t}{t+1} \right] \quad (\text{eq.27})$$

Le terme (a) désigne le rayon de Bohr (0,529 Å), ( $I_H$ ) l'énergie d'ionisation de l'atome d'hydrogène (13,6 eV) et le terme (B) désigne l'énergie de liaison de l'électron en couche K à arracher. La section efficace ( $\sigma_K$ ) dépend également des deux paramètres (t et u),  $t = T/B$  et  $u = U/B$ . (T) étant l'énergie cinétique de l'électron incident et (U) l'énergie cinétique de l'électron lié dans son orbite (l'électron en couche K). Les paramètres (B et U) ont été déterminés par Martins, Indelicato et al pour différents ions de l'argon en prenant des fonctions d'ondes Dirac-Fock. En utilisant ces paramètres calculés, nous présentons les sections efficaces d'ionisation de l' $\text{Ar}^{15+}$ ,  $\text{Ar}^{14+}$  et de l' $\text{Ar}^{13+}$  ainsi déterminées dans la figure (25).

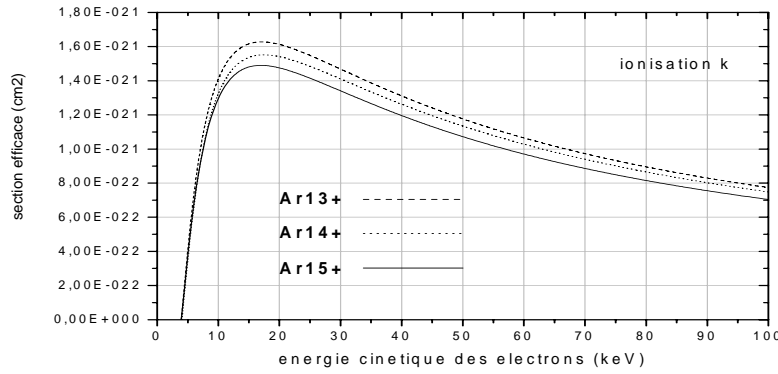


Figure (25) : sections efficaces d'ionisation en couche K

## 2. L'excitation électronique

Le deuxième mécanisme menant à la création d'une lacune en couche K est l'excitation interne par impact électronique. Dans ce cas, l'électron incident ne parvient pas à ioniser l'ion mais déplace un électron en couche K vers une couche supérieure. Le seuil énergétique de la réaction est donc inférieur à celui de l'ionisation et dépend de l'écart énergétique entre le niveau initial et le niveau final. La section efficace dépend donc ici des niveaux de départ et d'arrivée. La section efficace prise pour l'excitation ( $\sigma^*$ ) en couche K est celle que développe Kim et al [ref.37] à partir de la section efficace de Bethe [ref.38]. L'expression de la section efficace de Kim est donnée par l'équation (28).

$$\sigma^* = 4 \pi a^2 \cdot (I_H/T) \cdot [M^2 \cdot \ln(4c \cdot T/I_H) + \gamma \cdot (I_H/T)] \quad (\text{eq.28})$$

Les paramètres ( $M$ ,  $c$  et  $\gamma$ ) dépendent de la nature de l'ion, de son état de charge et du niveau initial et final de l'électron à exciter. En se référant aux calculs (MCDF) faits par Martins, Indelicato et al, on peut retrouver ces paramètres dans le cas des ions argon. Les figures (26 et 27) représentent les sections efficaces d'excitation de l'Ar<sup>15+</sup> et de l'Ar<sup>14+</sup> à partir de leur niveaux fondamentaux  $1s^2 2s$  ( $^2S_{1/2}$ ) pour l'Ar<sup>15+</sup> et  $1s^2 2s^2$  ( $^1S_0$ ) pour l'Ar<sup>14+</sup> vers les différents niveaux possibles de la sous couche (2p).

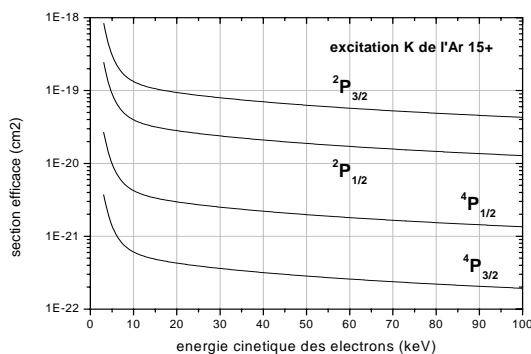


Figure 26 : sections efficaces d'excitation de l'Ar15+ par impact électronique

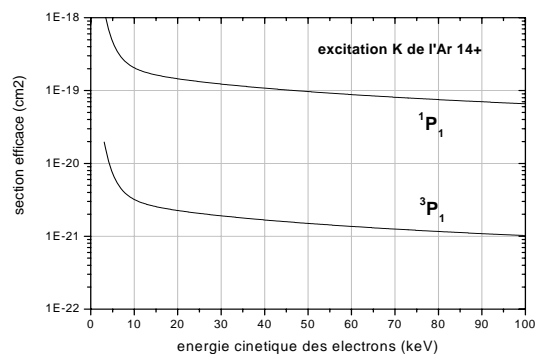


Figure 27 : sections efficaces d'excitation de l'Ar14+ par impact électronique

Afin d'expliciter les courbes de sections efficaces dans les figures (26 et 27), nous présentons ci dessous sous forme de tableau les transitions d'excitation de l'Ar<sup>15+</sup> et de l'Ar<sup>14+</sup> avec les niveaux initiaux et finaux et les énergies de transition (E.T) [ref.39].

Notation dans les figures 26 et 27	Niveau initial	Niveau final	E.T (eV)
Ar 15+ : ${}^2P_{3/2}$	$1s^2 2s ({}^2S_{1/2})$	$1s 2s 2p ({}^2P_{3/2})$	3114,15
Ar 15+ : ${}^2P_{1/2}$	$1s^2 2s ({}^2S_{1/2})$	$1s 2s 2p ({}^2P_{1/2})$	3112,40
Ar 15+ : ${}^4P_{3/2}$	$1s^2 2s ({}^2S_{1/2})$	$1s 2s 2p ({}^4P_{3/2})$	3087,55
Ar 15+ : ${}^4P_{1/2}$	$1s^2 2s ({}^2S_{1/2})$	$1s 2s 2p ({}^4P_{1/2})$	3086,69
Ar 14+ : ${}^1P_1$	$1s^2 2s^2 ({}^1S_0)$	$1s 2s^2 2p ({}^1P_1)$	3091,95
Ar 14+ : ${}^3P_1$	$1s^2 2s^2 ({}^1S_0)$	$1s 2s^2 2p ({}^3P_1)$	3076,94

 Tableau (6) : voies d'excitation en couche K de l'Ar<sup>15+</sup> et de l'Ar<sup>14+</sup>

### 3. La double ionisation

Un électron avec une énergie suffisante, peut créer par impact une lacune en couche K et arracher un deuxième électron périphérique en même temps. Une section efficace semi-empirique ( $\sigma_{Kn}$ ) rendant compte de ce phénomène a été développée par Shevelko et al [ref.40, 41] en prenant en compte les conditions de Bethe et Born. L'équation (29) donne l'expression de cette section efficace.

$$\sigma_{Kn} = \frac{14 \cdot N^{(1+\epsilon)}}{(I_{Kn}/I_H)^2} \cdot \left[ \frac{s}{s+1} \right]^{3/4} \cdot \frac{\ln(s+1)}{s+1} \cdot 10^{-18} \text{ [cm}^2\text{]} \quad (\text{eq.29})$$

(N) est le nombre d'électrons dans l'ion, le paramètre ( $\epsilon$ ) étant égal à 8/100. ( $I_{Kn}$ ) est l'énergie minimum pour éjecter deux électrons (dont un en couche K) de la cible et le paramètre (s) dépend de l'énergie cinétique (T) des électrons incidents tel que ( $s+1 = T/I_{Kn}$ ). Nous présentons dans la figure (28) les sections efficaces de double ionisation pour l'Ar<sup>12+</sup>, l'Ar<sup>13+</sup>, et l'Ar<sup>14+</sup>, telles que le deuxième électron éjecté est l'électron le plus périphérique. Les sections efficaces de double ionisation (K, n) avec un deuxième électron éjecté en couche interne étant négligeable devant les premières.

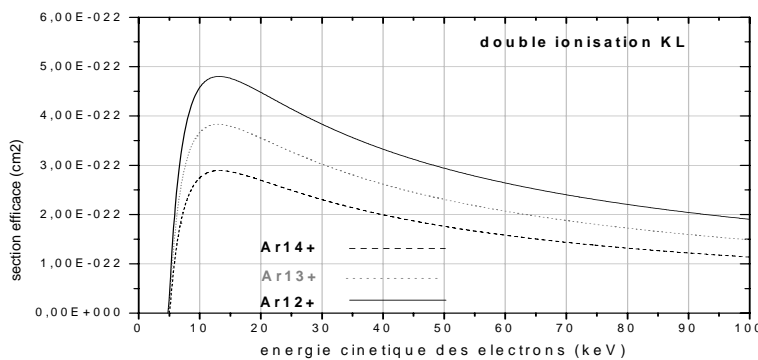


Figure (28) : sections efficaces de double ionisation par impact électronique

Dans le cas de l'Ar<sup>12+</sup>, de l'Ar<sup>13+</sup> et de l'Ar<sup>14+</sup>, l'électron le plus extérieur se trouve dans la couche (L). Les sections efficaces de double ionisation sont donc relatives à une ionisation en couches (K) et (L).

## VI. Identification et comparaison

Dans ce paragraphe nous tacherons d'identifier les raies  $K_\alpha$  observées dans le cas du plasma d'argon et de présenter des données permettant par la suite d'interpréter les raies  $K_\beta$  du plasma de krypton. Nous comparerons également nos spectres à d'autres spectres d'argon et de krypton obtenus par d'autres équipes dans le cadre d'études sur les sources ECR.

### 1. Cas des spectres d'argon

Dans les spectres du plasma d'argon, plus particulièrement celui enregistré avec 400 Watts de puissance HF (fig.21), nous observons les transitions (2p) vers (1s) de l'argon neutre jusqu'à l'Ar<sup>15+</sup>, pour le cas de l'Ar<sup>16+</sup> la raie que nous observons est une transition (2s) vers (1s). En se référant aux calculs (MCDF) effectués par Costa, Indelicato et al [ref.39] dans la détermination des énergies de transitions des ions d'argon et des rendements de fluorescence de ces transitions ainsi qu'aux sections efficaces d'ionisation et d'excitation des ions d'argon et sachant que le peuplement des états initiaux par ionisation se fait statistiquement en (2J+1), nous avons identifié les pics les plus marquants de l'Ar<sup>12+</sup> jusqu'à l'Ar<sup>16+</sup> (fig.29). En raison de la résolution du (SpC) et de la multitude des transitions possibles, l'identification des raies des états de charges plus bas est dans notre cas quasiment impossible.

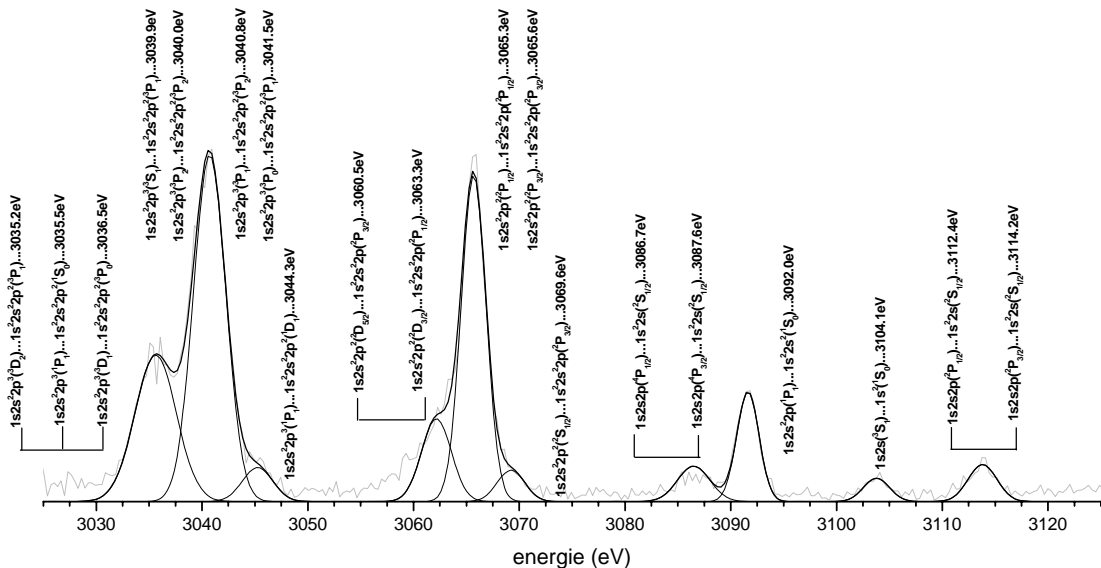


Figure (29) : identification des raies de l'Ar<sup>12+</sup> à l'Ar<sup>16+</sup> (voir annexe)

Les énergies reportées dans la figure (29) à côté de chaque transition sont celles calculées théoriquement par Costa, Indelicato et al. Notons que l'écart maximum entre ces énergies et les énergies expérimentales est de l'ordre de (0,6 eV). Toutes les raies observées sont composées au moins de deux transitions, sauf celle de l'Ar<sup>16+</sup> [1s2s (3S<sub>1</sub>) vers 1s<sup>2</sup> (1S<sub>0</sub>)] et de l'Ar<sup>14+</sup> [(1s2s<sup>2</sup>2p (1P<sub>1</sub>) vers 1s<sup>2</sup>2s<sup>2</sup> (1S<sub>0</sub>)] que l'on sépare nettement avec le (SpC).

Les raies de désexcitation que nous observons dépendent du peuplement des niveaux initiaux avant désexcitation. Ce peuplement se fait essentiellement par ionisation, excitation et double ionisation. Nous présentons dans la figure (30) les différentes voies de peuplement des niveaux excités des ions d'Ar<sup>14+</sup>, d'Ar<sup>15+</sup> et d'Ar<sup>16+</sup> à partir des niveaux fondamentaux des différentes espèces ioniques et qui mènent aux raies observées.

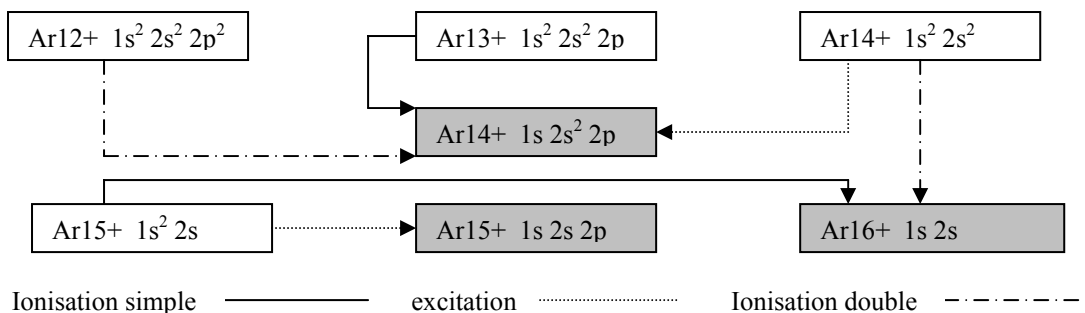


Figure (30) : schéma des voies de peuplement de l'Ar (14+, 15+ et 16+)

D'autres spectres de haute résolution du plasma d'argon ont été obtenus par Trassinelli, Indelicato et al [ref.42] et par Douysset et al [ref.28] que nous présentons respectivement dans les figures (31 et 32). Le spectre de Trassinelli a été obtenu sur une ECRIT (electron cyclotron ion trap) fonctionnant avec une HF de 6,4 GHz à une puissance de 400 Watts et avec une pression d'injection des gaz de l'ordre de  $10^{-7}$  mbar. Le spectre de Douysset a été obtenu sur une ECR conventionnelle (Caprice) fonctionnant avec une HF de 10 GHz à une puissance de 1100 Watts et avec une pression d'injection des gaz de l'ordre de  $10^{-5}$  mbar.

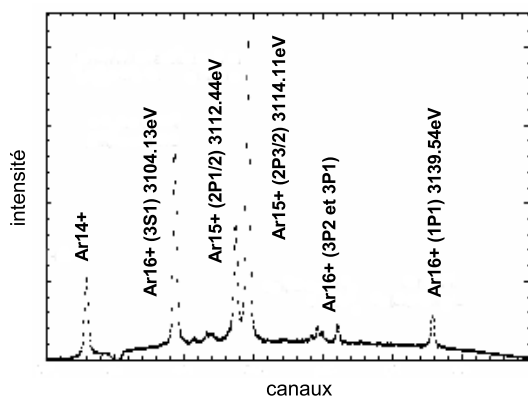


Figure (31) : spectre du plasma d'argon obtenu par Trassinelli

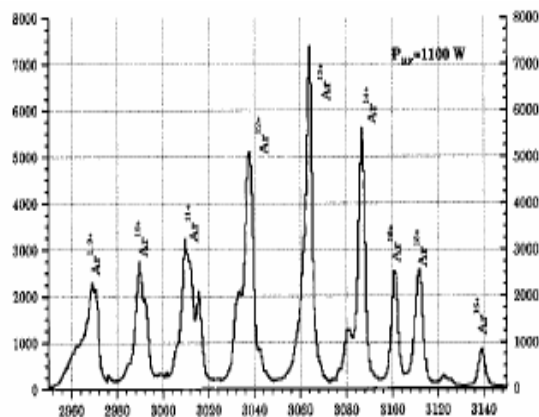


Figure (32) : spectre du plasma d'argon obtenu par Douysset

Le spectre de Trassinelli a été enregistré avec un spectromètre de haute résolution. On observe sur le spectre les raies des états de charge de l'Ar<sup>14+</sup> à l'Ar<sup>16+</sup>, et on distingue clairement les deux composantes (<sup>2</sup>P<sub>3/2</sub> et <sup>2</sup>P<sub>1/2</sub>) de l'Ar<sup>15+</sup>, la résolution atteinte pendant l'enregistrement du spectre étant de l'ordre de (0,2 eV). La résolution expérimentale dans le cas du spectre pris par Douysset est du même ordre que la notre (3 eV) et l'allure générale du spectre (entre 2950 eV et 3150 eV) est la même que la notre mais avec des intensités relatives différentes. Par contre dans les deux cas, les transitions (2p vers 1s) de l'Ar<sup>16+</sup> sont observées, alors qu'elles n'apparaissent pas sur nos spectres. L'observation de ses transitions dépend principalement de la section efficace d'excitation de l'Ar<sup>16+</sup> dans son état fondamental et de l'abondance de cet état de charge dans le plasma. A priori, la conjugaison de ces deux paramètres n'est pas suffisante dans notre cas pour produire de l'Ar<sup>16+</sup> dans la configuration (1s 2p) au point d'observer la transition (2p vers 1s) de l'Ar<sup>16+</sup>.

## 2. Cas des spectres de krypton

La résolution du (SpC) et le grand nombre de raies entrant en jeu, nous a pas permis de séparer les différentes configurations contribuant aux raies  $K_\alpha$  et  $K_\beta$  du krypton. On observe dans les deux cas des raies qui comportent toutes les transitions des différents états de charge du krypton présents dans le plasma. Néanmoins, pour le spectre de la  $K_\beta$  du krypton (transitions 3p vers 1s), on peut extraire l'information de l'évolution de l'état de charge du krypton le plus présent dans le plasma en suivant le déplacement de la raie vers les hautes énergies en fonction de la puissance HF injectée. Pour extraire cette information dans la suite du chapitre, nous utiliserons les énergies des transitions de la couche M vers la couche K calculés spécifiquement par Indelicato en utilisant un code (MCDF) pour des états de charge du krypton allant du  $Kr^{6+}$  au  $Kr^{20+}$ . Nous donnons ci dessous sous forme de tableau, les énergies moyennes des pics les plus intenses ainsi déterminées théoriquement.

ions	$Kr^{6+}$	$Kr^{8+}$	$Kr^{9+}$	$Kr^{10+}$	$Kr^{12+}$	$Kr^{14+}$
énergie (eV)	14113	14121	14128	14140	14164	14191

ions	$Kr^{15+}$	$Kr^{16+}$	$Kr^{17+}$	$Kr^{18+}$	$Kr^{19+}$	$Kr^{20+}$
énergie (eV)	14202	14217	14232	14238	14272	14296

Tableau (7) : énergies théoriques des raies  $K_\beta$  du krypton en fonction de l'état de charge

A notre connaissance, aucune observation de la raie  $K_\beta$  du krypton à partir d'une source ECR n'a fait l'objet d'une publication scientifique. Par contre la raie  $K_\alpha$  du krypton a été étudiée par l'équipe de Zschornack [ref.29, 43] en utilisant une source ECR de 14,5 GHz. Le spectre enregistré par Zschornack et al (fig.33) correspond à une puissance HF injectée de 500 Watts avec une pression totale des gaz en injection de l'ordre de  $10^{-4}$  mbar. La résolution expérimentale lors de la prise du spectre était de l'ordre de (17eV), ce qui a permis à Zschornack et al d'observer un élargissement des raies  $K_{\alpha 1}$  et  $K_{\alpha 2}$ . A partir de ces données et en élaborant un modèle du plasma [ref.34], ils ont déterminé la distribution en états de charge des ions du krypton dans le plasma (fig.34).

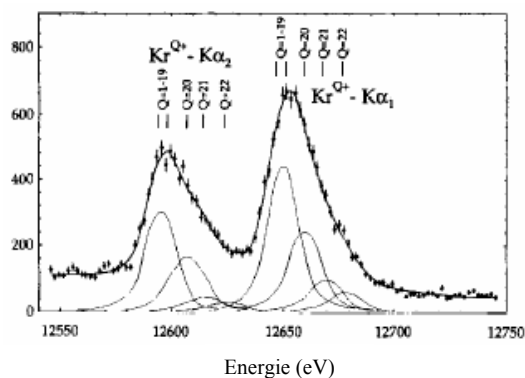


Figure (33) : spectre du plasma de krypton obtenu par Zschornack

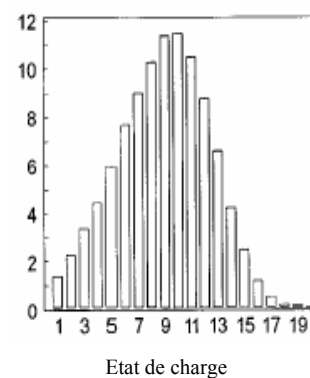


Figure (34) : distribution en % des états de charge du krypton

## VII. Distribution en état de charge (DEC)

Les spectres normalisés du plasma d'argon  $N_{Ar}(h\nu)$  et du plasma de krypton  $N_{Kr} \beta(h\nu)$  sont issus de la désexcitation des différentes espèces ioniques dans leurs états excités. Les raies et les pics que nous observons sur ces spectres sont directement liés à la population des états excités dont le point commun est une lacune en couche K. Ces états excités sont produits comme nous l'avons vu par ionisation et double ionisation ainsi que par excitation directe des populations des états de charge se trouvant dans leurs états fondamentaux. Dans ce paragraphe, nous tacherons de remonter à l'information sur ces populations ioniques dans leurs états fondamentaux, ce qui nous permettra d'avoir des indications sur la (DEC) dans le plasma.

### 1. Les ions dans le plasma d'argon

A partir des spectres normalisés  $N_{Ar}(h\nu)$ , on peut retrouver l'abondance des états excités de chaque état de charge dans le plasma en corrigeant l'intensité des pics par le rendement de fluorescence ( $\omega_f$ ) de la transition considérée. Les rendements de fluorescence des différentes configurations excitées de l'argon ont été calculés théoriquement par Bhalla [ref.44] et par Zou [ref.45] en utilisant un modèle atomique Hartree-Fock. Le tableau (8) en donne les valeurs. Le rapport de branchement de l' $Ar^{16+}$  a été déterminé statistiquement en  $(2J+1)$  entre les configurations  $^3S_1$  et  $^1S_0$ .

état de charge	$Ar^{9+}$	$Ar^{10+}$	$Ar^{11+}$	$Ar^{12+}$	$Ar^{13+}$	$Ar^{14+}$	$Ar^{15+}$	$Ar^{16+}$
état initial	$1s2s^22p^6$	$1s2s^22p^5$	$1s2s^22p^4$	$1s2s^22p^3$	$1s2s^22p^2$	$1s2s^22p$	$1s2s2p$	$1s2s$
$(\omega_f)$	0,128	0,139	0,153	0,167	0,178	0,158	0,505	0,750

Tableau (8) : rendements de fluorescence des différents états de charge de l'argon

Nous utiliserons le rendement de fluorescence de l' $Ar^{9+}$  pour effectuer une correction globale sur le pic contenant les émissions  $K_\alpha$  des états de charges allant de l'argon neutre à l' $Ar^{9+}$  (fig.19, 20, 21), l'influence des électrons en couche M étant minime sur le rendement de fluorescence d'une transition (2p vers 1s). La figure (35) donne l'abondance (%) des états excités dans le plasma responsables des émissions  $K_\alpha$  que nous observons et ce pour deux puissances HF différentes (400 et 200 Watts).

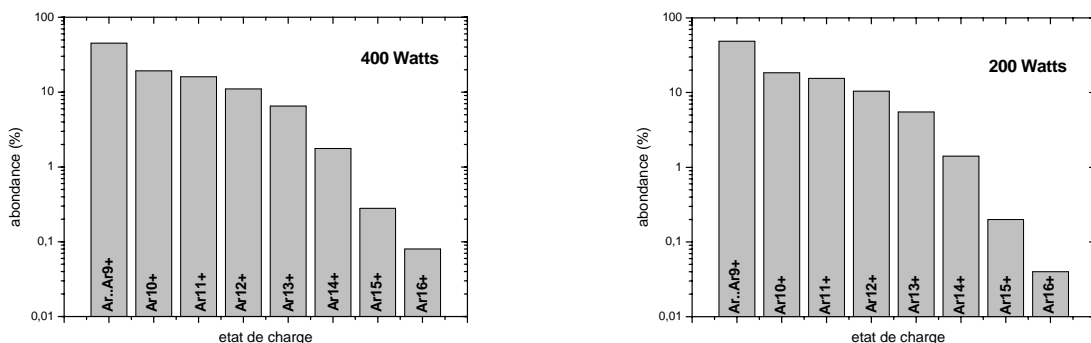


Figure (35) : abondance des états excités dans un plasma d'argon de la source SIMPA

De façon générale, un état excité de charge (q) est lié aux populations de charge (q), (q-1) et (q-2) dans leur états fondamentaux, ce à travers les sections efficaces d'excitation ( $\sigma^*$ ), d'ionisation ( $\sigma_K$ ) et de double ionisation ( $\sigma_{KL}$ ) comme le montre l'équation (30).



$$\frac{I_K(q)}{V \cdot \omega_f} = N_e \cdot [N_q \langle \sigma^* \cdot v \rangle + N_{q-1} \langle \sigma_K \cdot v \rangle + N_{q-2} \langle \sigma_{KL} \cdot v \rangle] \quad (\text{eq.30})$$

$I_K(q)$  désigne l'intensité du pic relatif à l'état excité (q), (V) et ( $\omega_f$ ) étant respectivement le volume du plasma dans la source ECR SIMPA et le rendement de fluorescence (tableau 8).  $N_e$  étant la densité électronique déterminée plus haut (tableau 4),  $N_q$  représente la densité ionique dans le plasma de l'état de charge (q) et (v) la vitesse des électrons. En se référant au schéma des voies de peuplement des états excités (fig.30), on peut réécrire l'équation (30) dans les cas particuliers de l'Ar<sup>16+</sup>, l'Ar<sup>15+</sup> et de l'Ar<sup>14+</sup>. Pour des raisons d'intensité et de séparation des pics, on prendra pour le cas de l'Ar<sup>15+</sup> le pic des transitions (<sup>2</sup>P<sub>1/2</sub> et <sup>2</sup>P<sub>3/2</sub>) se trouvant à 3113,7 eV (fig.29).

$$\frac{I_K(16)}{V \cdot \omega_f} = N_e \cdot [N_{15} \langle \sigma_{K15} \cdot v \rangle + N_{14} \langle \sigma_{KL14} \cdot v \rangle] \quad (\text{eq.31})$$

$$\frac{I_K(15)}{V \cdot \omega_f} = N_e \cdot [N_{15} \langle \sigma^*_{2P1/2} \cdot v \rangle + N_{15} \langle \sigma^*_{2P3/2} \cdot v \rangle] \quad (\text{eq.32})$$

$$\frac{I_K(14)}{V \cdot \omega_f} = N_e \cdot [N_{14} \langle \sigma^*_{1P1} \cdot v \rangle + N_{13} \langle \sigma_{K13} \cdot v \rangle + N_{12} \langle \sigma_{KL12} \cdot v \rangle] \quad (\text{eq.33})$$

Connaissant les sections efficaces entrant dans les équations (31, 32 et 33) et que nous avons présentées plus haut dans ce chapitre, on peut déterminer directement à partir de l'équation (32) la densité ionique de l'Ar<sup>15+</sup> ( $N_{15}$ ). Les termes  $\langle \sigma \cdot v \rangle$  seront calculés à partir de la distribution non Maxwellienne  $f_{nMw}(E)$  des énergies électroniques. On prendra comme seuil d'intégration ( $E_s$ ) l'énergie d'ionisation en couche K par impact électronique de l'argon neutre (3,2 keV) [ref.45].

$$\langle \sigma \cdot v \rangle = \int_{E_s}^{\infty} f_{nMw}(E) \cdot \sigma(E) \cdot v(E) \cdot dE \quad (\text{eq.34})$$

Pour l'intensité du pic  $I_K(15)$  dans le cas d'une puissance HF de 400 Watts, la densité ionique ( $N_{15}$ ) trouvée est égale à  $(3,90 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3})$ . En remplaçant cette valeur dans l'équation (31), on peut retrouver la densité ionique de l'Ar<sup>14+</sup> ( $N_{14}$ ) dont la valeur est égale à  $(1,07 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-3})$ . Notons que si on néglige la double ionisation dans l'équation (31), on peut retrouver à partir de  $I_K(16)$  la densité ionique de l'Ar<sup>15+</sup> ( $N_{15}$ ), qui est égale dans ce cas de figure à  $(4,23 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3})$ . En comparant les deux valeurs des densités ioniques ( $N_{15}$ ), on voit clairement que la double ionisation joue un rôle mineur par rapport à l'excitation et à la simple ionisation dans le peuplement des états excités. En négligeant ainsi la double ionisation dans l'équation (33), on peut déterminer la densité ionique de l'Ar<sup>13+</sup> ( $N_{13}$ ) et on trouve  $(3,49 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-3})$ . Nous mettrons sous forme de graphique (fig.36) les résultats présentés ci dessus qui correspondent à 400 Watts de puissance HF ainsi que les densités ioniques trouvées dans le cas d'une puissance HF de 200 Watts. Dans les deux cas, nous comparerons les densités ioniques des états de charge de l'Ar<sup>13+</sup>, de l'Ar<sup>14+</sup> et de l'Ar<sup>15+</sup>, aux flux des ions extraits de la source ECR de ces mêmes états de charge. Le flux d'un état de charge ( $n_q$ ) correspond au nombre d'ions extrait par unité de temps, il est directement relié à l'intensité du courant ( $I_q$ ) d'un état de charge (q) par l'équation (35), le terme (e) désignant la charge élémentaire.

$$I_q = q \cdot e \cdot n_q \quad (\text{eq.35})$$

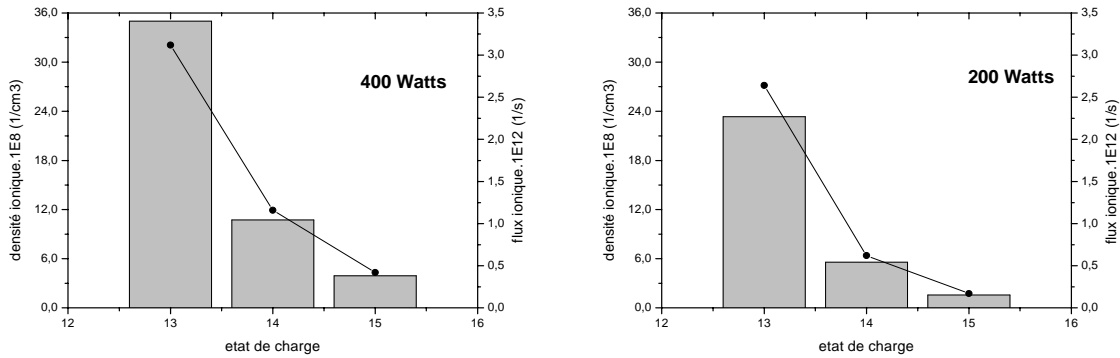


Figure (36) : densités ioniques dans le plasma et flux ioniques en extraction

Les densités ioniques trouvées sont de l'ordre de  $10^9 \text{ cm}^{-3}$ , si nous comparons ces densités à la densité ionique totale, qui est de l'ordre de  $1,1 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$  à ces puissances HF (tableau 4), nous remarquons que les densités ioniques des états de charge (13, 14 et 15) de l'argon dans le plasma ne représentent que quelques centièmes de la densité ionique totale ( $N_i$ ). Par ailleurs, en nous référant à l'équation (17), on peut estimer le temps de confinement des ions dans le plasma. Il est de l'ordre de (0,8 ms) et ce pour les deux puissances HF (200 et 400 Watts). Dans les sources ECR conventionnelles, le temps de confinement des ions est de l'ordre de quelques millisecondes [ref.46] et peut atteindre dans les sources ECR les plus performantes quelques dizaines de millisecondes [ref.47].

La comparaison des densités ioniques ( $N_{13}$ ,  $N_{14}$ ,  $N_{15}$ ) dans le plasma avec les flux ioniques ( $n_{13}$ ,  $n_{14}$ ,  $n_{15}$ ) en extraction, montre l'existence d'une corrélation entre ces deux grandeurs. Les courants extraits de la source pour les états de charge de l'Ar<sup>13+</sup>, de l'Ar<sup>14+</sup> et de l'Ar<sup>15+</sup> reflètent donc les densités ioniques de ces mêmes états de charge. En généralisant ce résultat sur le reste des états de charge, on peut dire que la (DEC) en extraction est une image de la (DEC) dans le plasma. Cette conclusion concerne dans le cas présent le plasma d'argon de la source ECR SIMPA.

Une étude similaire a été effectuée par Douysset et al dont nous avons présenté le spectre du plasma d'argon (fig.32). Les densités ioniques de l'Ar<sup>9+</sup> jusqu'à l'Ar<sup>16+</sup> ont été déterminées et comparées aux intensités de courants extraits. Cette étude conclue également à une corrélation entre la (DEC) dans le plasma et la (DEC) dans le faisceau extrait de la source ECR. Nous présentons ci dessous (fig.37) deux graphiques de cette étude correspondant à 1100 Watts et 700 Watts de puissance HF injectée dans le plasma. Notons que les densités ioniques trouvées par Douysset et al dans le cas des états de charge de l'Ar<sup>13+</sup>, de l'Ar<sup>14+</sup> et de l'Ar<sup>15+</sup> sont approximativement du même ordre de grandeur que les valeurs que nous avons déterminées dans ce paragraphe.

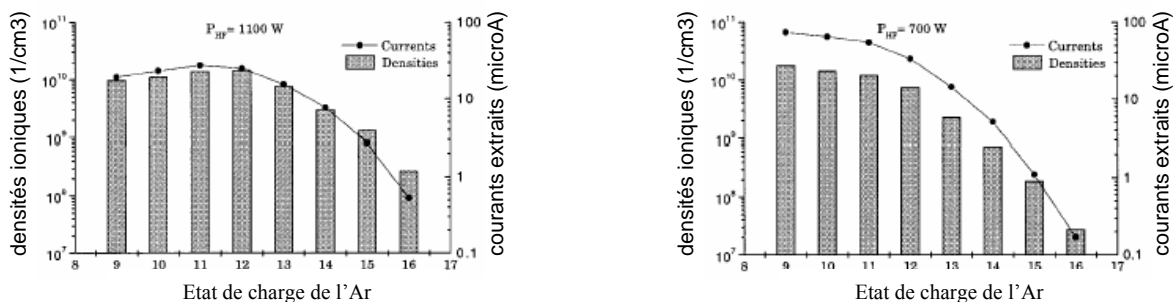


Figure (37) : densités ioniques et courants extraits trouvés par Douysset et al

Dans l'hypothèse où les sections efficaces ainsi que les rendements de fluorescence utilisés dans le calcul des valeurs des densités ioniques sont exacts, l'incertitude relative faite sur la détermination de ces densités ioniques (eq.36) dépend globalement des incertitudes faites sur la densité électronique, le volume du plasma observé et sur la transmission du (SpC). Les erreurs statistiques sur l'intensité des pics et sur les temps d'acquisition étant faibles devant ces trois premières.

$$\frac{\delta N_q}{N_q} \approx \frac{\delta N_e}{N_e} + \frac{\delta T_s}{T_s} + \frac{\delta V_{obs}}{V_{obs}} \quad (\text{eq.36})$$

Dans ce cadre d'estimation de l'incertitude relative faite sur la détermination des densités ioniques, la plus grande erreur est faite sur la valeur de la densité électronique ( $N_e$ ) que nous avons estimé dans le paragraphe (III) de ce chapitre à 75%. L'incertitude relative sur la transmission du (SpC) dépend des incertitudes relatives de l'efficacité ( $\epsilon_d$ ) du détecteur à localisation, de la réflectivité du cristal ( $R_\theta$ ) et de l'angle solide du (SpC) qu'on estime respectivement à (5%), (10%) et (10%). L'erreur faite sur la détermination du volume du plasma observé est de l'ordre de (5%). Cela nous amène à une incertitude relative totale sur les valeurs des densités ioniques de l'ordre de (105%), ce qui est considérable. Les valeurs de ( $N_q$ ) peuvent donc être supérieures au double des valeurs que nous avons présenté dans ce paragraphe (fig.36).

## 2. Les ions dans le plasma de krypton

En suivant le déplacement vers les hautes énergies des raies  $K_\beta$  du krypton en fonction de la puissance HF, nous pouvons déterminer l'état de charge excité le plus présent dans le plasma à partir du barycentre des pics  $K_\beta$  et avoir ainsi une idée de l'état de charge le plus présent dans le plasma. A cause de la pénétration en profondeur des rayons X du krypton lors de la diffraction sur le cristal de graphite, les raies des  $K_\beta$  observées ont une forte composante exponentielle décroissante du côté des hautes énergies (sur le flanc droit) des pics. Nous utiliserons pour l'ajustement des pics  $K_\beta$  une convolution entre une distribution gaussienne et une exponentielle décroissante (ex-gaussienne). Pour prendre en considération l'élargissement des raies, nous utiliserons la somme de plusieurs distributions ex-gaussienne. La figure (38) montre l'ajustement fait sur quelques raies de la  $K_\beta$  du krypton afin de déterminer le barycentre ( $X_c$ ) des pics.

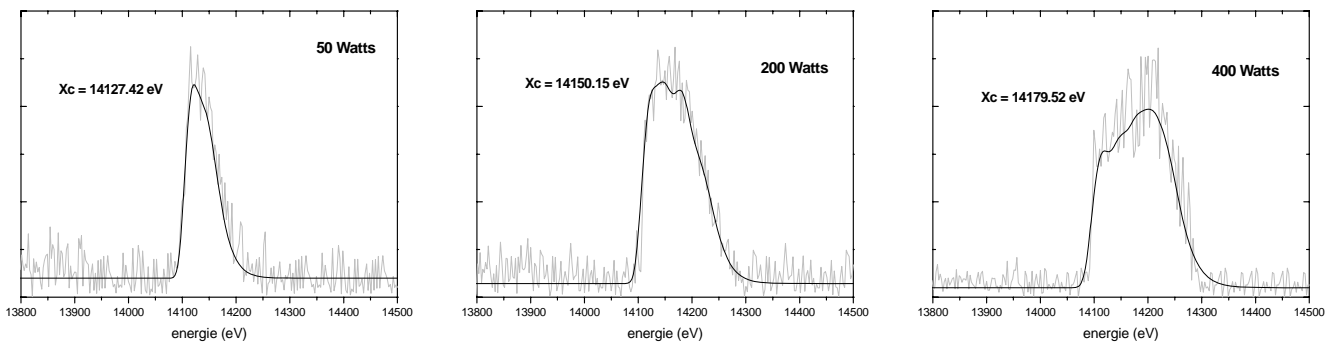


Figure (38) : analyse des pics des raies  $K_\beta$  du krypton

La détermination des barycentres ( $X_c$ ) pour chaque puissance HF, nous permet de connaître l'écart entre les énergies moyennes des  $K_\beta$  observées dans chaque spectre avec l'énergie  $K_\beta$  du krypton neutre (14120,20 eV). Cet écart est de (8,06 eV) à 5 Watts de puissance HF et l'écart maximum est à 400 Watts et vaut (69,32 eV). On comparera les énergies moyennes des  $K_\beta$  ainsi déterminées avec les énergies théoriques relatives aux transitions (3p vers 1s) (tableau.7) pour déterminer l'état de charge excité (lacune en couche K) le plus présent dans le plasma. Nous présentons cette comparaison sous forme de graphique dans la figure (39).

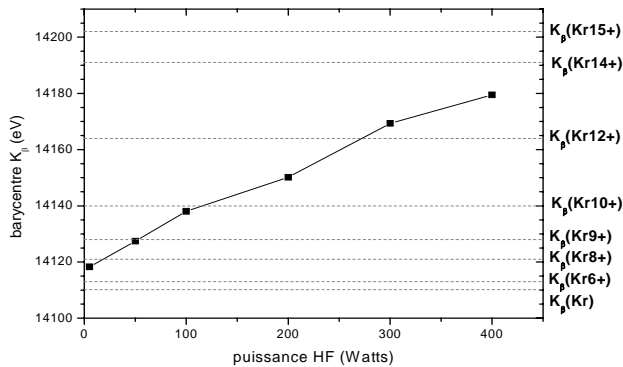


Figure (39) : barycentre des raies  $K_\beta$  en fonction de la fréquence HF

Les énergies théoriques des raies  $K_\beta$  du krypton données dans le tableau (7) sont des énergies moyennées des transitions possibles les plus intenses. La complexité des transitions (3p) vers (1s) dans les ions de krypton donne lieu à un enchevêtrement des pics d'émissions relatifs aux différents états excités. Une transition donnée  $K_\beta$  du  $Kr^{12+}$  peut être inférieure en énergie à une transition donnée  $K_\beta$  du  $Kr^{11+}$  avec un écart en énergie assez important. Il est donc possible que l'erreur que nous faisons sur la détermination de l'état de charge excité le plus présent dans le plasma soit de l'ordre d'un état de charge.

La figure (39) montre que l'état de charge excité le plus présent dans le plasma à 50 Watts est vers le  $Kr^{9+}$  et cela augmente avec la puissance HF pour atteindre le  $Kr^{13+}$  à 400 Watts. Si on considère uniquement l'excitation électronique et la simple ionisation pour produire les états excités du krypton, on pourrait dire que l'état de charge du krypton le plus abondant dans le plasma se trouverait entre le  $Kr^{8+}$  et le  $Kr^{9+}$  à 50 Watts et que l'état de charge le plus abondant à 400 Watts se trouverait entre le  $Kr^{12+}$  et le  $Kr^{13+}$ . En extraction, l'état de charge du krypton le plus abondant varie entre le  $Kr^{12+}$  à 50 Watts et le  $Kr^{14+}$  à 400 Watts, mais en regardant de plus près les intensités des courants extraits dans le cas du krypton, on remarque que les intensités des courants du  $Kr^{12+}$  jusqu'au  $Kr^{16+}$  (fig.17, chap I) ont sensiblement les mêmes valeurs.

Les raies  $K_\beta$  n'étant pas suffisamment résolues, il est difficile de tirer une conclusion sur la (DEC) dans le plasma de krypton. Nous avons une idée sur l'état de charge le plus abondant dans le plasma qui est du même ordre que l'état de charge de krypton le plus extrait de la source ECR. Le résultat auquel nous aboutissons ne nous permet pas de confirmer ce qui a été observé dans le cas du plasma d'argon, à savoir que la (DEC) pendant l'extraction des courants ioniques est le reflet de la (DEC) dans le plasma, mais ne le contredit pas.

### VIII. Conclusion et perspectives

Nous avons déterminé dans ce chapitre le maximum de paramètres possibles afin de caractériser au mieux la source ECR SIMPA en plus de ses performances d'un point de vue des courants extraits présentés dans le premier chapitre.

Globalement s'agissant de la source ECR SIMPA, la température électronique dans le plasma est de l'ordre de 10 keV, la densité électronique reste inférieure à  $10^{12} \text{ cm}^{-3}$ , les densités ioniques des états de charge élevés représentent quelques centièmes de la densité ionique totale et le temps de confinement des ions dans le plasma est de l'ordre de 0,8 ms. Les courants extraits de la source ECR SIMPA sont dans la gamme de la dizaine de micro Ampères pour les états de charge moyens mais pour des états de charge élevés les courants extraits sont de l'ordre de quelques micro Ampères, voire moins. En conclusion, la source ECR SIMPA qui est de type compact et dont les aimants sont de type permanents, peut être qualifiée de modeste bien qu'on arrive à extraire des ions hydrogénéoides d'éléments légers.

Néanmoins, une amélioration des performances de la source SIMPA est possible, d'une part en modifiant le mode d'injection des micro-ondes, pour qu'il soit axial, ce qui permettra une meilleure absorption de la puissance HF par le plasma. Notons que les valeurs des puissances HF données dans l'étude faite sur la source SIMPA sont des valeurs lues, débitées par le klystron et la puissance HF injectée peut ne pas être totalement absorbée par le plasma. D'autre part, on peut améliorer les performances de la source en changeant la chambre plasma, actuellement en cuivre par une autre en aluminium, ce qui permettra de fournir plus d'électrons au plasma et d'augmenter la densité électronique.

Du point de vue de la spectroscopie X, la source ECR SIMPA offre la possibilité d'étudier par observation directe ses plasmas. L'étude que nous avons entreprise n'est qu'un préambule à une étude plus large qui viendra enrichir les observations faites dans ce chapitre. Effectivement l'équipe de Paul Indelicato a conçu un spectromètre à deux cristaux plans pour la diffraction des rayons X émis par le plasma et qui sera mis à la place du (SpC) que nous avons utilisé. Ce spectromètre à double cristaux est en voie de montage, il permettra d'atteindre une résolution de 1 ppm, et permettra de séparer individuellement les différentes composantes des raies d'émission du plasma d'argon. On pourra aussi faire l'investigation d'autres types de plasmas tel que le plasma du chlore avec la même résolution instrumentale.

L'obtention de ces spectres à très haute résolution permettra de mesurer avec précision et en absolu les énergies des transitions électroniques des ions, et de les confronter notamment à des calculs d'électrodynamique quantique. A partir de ces spectres de haute résolution, on pourra également déterminer la largeur des raies et donc leur durées de vie et le cas échéant retrouver la température ionique dans le plasma. Enfin, ces spectres de haute précision permettront une meilleure compréhension des plasmas froids des ECR en apportant des éléments permettant leur modélisation en vérifiant les sections efficaces théoriques d'ionisation et d'excitation par impact électronique.

## **Chapitre III :**

### **Aspects théoriques sur la collision d'un ion lent multichargé avec un agrégat.**

### **Vue d'ensemble sur les différentes expériences menées sur le sujet**

#### **Plan du chapitre :**

#### **I. Aspects théoriques**

1. Collisions périphériques
  - 1.1. Processus de capture
  - 1.2. Charge finale du projectile
  - 1.3. Gain en énergie du projectile
2. Collisions frontales
  - 2.1. Processus de capture
  - 2.2. Charge finale du projectile
  - 2.3. Perte en énergie du projectile

#### **II. Etudes expérimentales**

1. Scénario de la collision
2. Ionisation de la cible
3. Fragmentation et fission
4. Capture électronique et énergie du projectile
5. Emission électronique et photonique

#### **III. Application à l'expérience $\text{Ne}^{9+}$ - agrégats d'argon**

1. Processus séquentiel d'une collision périphérique
2. Processus séquentiel d'une collision frontale
3. Evolution des populations moyennes en collision frontale
4. Conclusion

## **Introduction**

Ce chapitre sera consacré à la présentation d'une vue d'ensemble des études expérimentales effectuées à ce jour dans le cadre de l'interaction d'ions multichargés à basse vitesse avec différents types d'agrégats, et qui concernent essentiellement des fullerènes et des agrégats métalliques de sodium. Cependant dans une première étape, nous présenterons quelques éléments théoriques permettant la description des différents phénomènes se produisant au cours d'une collision d'un ion avec un agrégat.

### **I. Aspects théoriques**

Dans ce paragraphe, nous présenterons quelques aspects théoriques décrivant le processus de collision entre un ion lent multichargé et un agrégat, en particulier ceux constitués d'atomes d'argon et ce selon le point de vue du projectile. D'un point de vue théorique, la description du devenir de l'agrégat en post-collision et la détermination de ses voies de relaxation et de fragmentation possibles est plus complexe et demanderait à faire appel à la dynamique moléculaire pour prendre en compte un ensemble complexe de phénomènes induits par les effets collectifs qu'engendre l'ensemble que constituent les atomes. Néanmoins, il est possible d'appliquer le modèle de la goutte liquide pour avoir une estimation de l'état de charge limite de l'agrégat avant l'explosion Coulombienne.

Nous nous intéresserons dans ce paragraphe, uniquement au devenir de l'ion projectile, en l'occurrence aux prédictions théoriques concernant l'évolution de l'état de charge de l'ion pendant la collision (capture électronique) et en post collision (relaxation). Le paragraphe sera structuré suivant deux parties, la première consacrée au cas des collisions périphériques et la deuxième au cas des collisions frontales. Nous utiliserons dans ce paragraphe les unités atomiques dans la formulation des différentes relations et équations.

#### **1. Collisions périphériques**

Le terme de collisions périphériques désigne une interaction de l'ion avec l'agrégat dans le cas où le paramètre d'impact est supérieur au rayon ( $R$ ) de l'agrégat. Le projectile ayant une charge ( $q$ ) élevée, il possède une importante énergie potentielle qui correspond à la somme des énergies d'ionisation nécessaires initialement à sa production. En s'approchant de la cible, il provoque une ionisation de cette dernière et les électrons ainsi arrachés (actifs) passent de l'agrégat vers l'ion projectile. Pour décrire ce processus de capture, il est fait souvent référence dans la littérature au modèle COB (classical over barrier) pour l'interprétation des données expérimentales, et celles ci sont généralement assez bien reproduites par ce modèle.

##### **1.1. Processus de capture**

Le modèle COB ayant fait ses preuves dans l'interprétation des données expérimentales relatives à la capture électronique par un ion multichargé en collision avec un agrégat, nous présenterons ci-dessous son principe général. Le modèle COB a été développé initialement entre autres par Ryufuku et al [ref.46], Barany et al [ref.47] et par Niehaus [ref.48] dans le cas d'une collision d'un ion lent avec un atome. Par la suite, Burgdorfer et al [ref.49] en a fait l'extension pour l'appliquer à l'interaction d'ions lents avec des surfaces. Enfin Cederquist et al [ref.50] ainsi que Thumm [ref.51], ont appliqué les principes de ce modèle à l'interaction d'un ion lent avec un agrégat.

Durant une collision d'un ion multichargé avec un agrégat, ce dernier sera affecté par le champ coulombien apporté par l'ion, faisant ainsi baisser la barrière de potentiel que ressentent les électrons dans la cible. Si l'énergie de liaison d'un électron se trouve au-dessus de la barrière de potentiel ainsi modifiée entre l'ion et l'agrégat, l'électron peut être capturé par résonance et être transféré vers l'ion en gardant sensiblement la même énergie de liaison (fig.1).

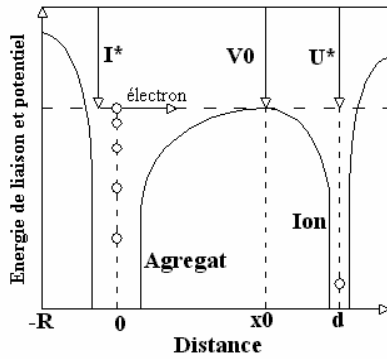


Figure (1) : capture par résonance d'un électron au-dessus de la barrière de potentiel

Lorsque l'ion multichargé s'approche de l'agrégat à une distance ( $d$ ), la barrière de potentiel entre l'ion et l'agrégat possède une valeur maximum ( $V_0$ ) à une position ( $x_0$ ). Si l'énergie de liaison ( $I^*$ ) d'un électron dans l'agrégat est inférieure ou égale à ( $V_0$ ), alors, il peut être capturé par l'ion sur le même niveau énergétique et possédera dans l'ion une énergie de liaison ( $U^*$ ) égale à ( $I^*$ ). La capture par résonance de l'électron se fera pour les électrons les moins liés et donc dans des états énergétiques élevés du projectile (états de Rydberg) laissant les niveaux intermédiaires vides et créant ainsi un ion creux.

Le potentiel agissant sur un électron quittant un atome et se dirigeant vers l'ion est la somme du potentiel créé par l'ion et la charge positive créée par l'électron en quittant l'atome (eq.1). Dans le cas où la cible est un agrégat, le cas est similaire à une interaction avec une surface, il faut donc ajouter au potentiel la contribution de la charge image que crée l'ion dans l'agrégat et la charge image induite par l'électron. L'équation (2) donne le potentiel vu par un électron quittant un agrégat, déterminé par Barany et al [ref.52] dans le cas d'une sphère diélectrique dont le rayon est très grand devant les distances de capture électronique.

$$V(x) = -\frac{q}{d-x} - \frac{1}{x} \quad (\text{eq.1})$$

$$V(x) = -\frac{q}{d-x} - \frac{2}{(\epsilon+1).x} + \frac{q.(\epsilon-1)}{(\epsilon+1).(d+x)} - \frac{1}{2} \frac{(\epsilon-1)}{(\epsilon+1).2x} \quad (\text{eq.2})$$

Pour déterminer le potentiel agissant sur l'électron à capturer, on associe l'agrégat à une sphère dont le caractère diélectrique est pris en compte dans le terme  $(\epsilon-1)/(\epsilon+1)$  dans l'équation (2). Le terme ( $\epsilon$ ) désigne dans notre cas, la permittivité relative d'un solide d'argon. Pour rappel, ( $d$ ) est la distance entre la surface de l'agrégat et le centre de l'ion. L'équation (2) est valable pour la première ionisation, dans le cas où l'agrégat est initialement neutre. Si l'ion a préalablement arraché ( $r$ ) électrons de l'agrégat, alors la charge de l'ion est ( $q-r$ ). Par ailleurs, les données expérimentales montrent que durant la collision l'ion peut éjecter par effet Auger un certain nombre d'électron ( $n_e$ ), auquel cas, la charge de l'ion devient ( $q-r+n_e$ ). L'équation (3) donne l'expression générale du potentiel d'interaction entre l'ion et l'agrégat, à un temps donné, au cours de la collision.



$$V(x,t) = - \frac{q-r+n_e}{d-x} - \frac{2}{(\varepsilon+1).x} + \frac{(q-r+n).(\varepsilon-1)}{(\varepsilon+1).(d+x)} - \frac{1}{2} \frac{(\varepsilon-1)}{(\varepsilon+1).2x} \quad (\text{eq.3})$$

En plus d'abaisser la barrière de potentiel de l'agrégat, l'ion multichargé en s'approchant de la cible modifie les énergies de liaison (I) des électrons pour devenir (I<sup>\*</sup>). De même l'agrégat après ionisation modifie les niveaux énergétiques (U) de l'ion pour devenir (U<sup>\*</sup>). Les énergies (I<sup>\*</sup>, U<sup>\*</sup>) sont données par les équations (4, 5), dans le cas de la première capture électronique.

$$-I^* = -I - \frac{q}{d} \quad (\text{eq.4})$$

$$-U^* = -U - \frac{1}{d} \quad (\text{eq.5})$$

La condition du transfert d'un électron de l'agrégat vers l'ion est I<sup>\*</sup> ≥ V<sub>0</sub>. D'un point de vue dynamique, dès que le maximum de la barrière de potentiel (V<sub>0</sub>) est égal à (I<sup>\*</sup>), le model COB fait transférer l'électron vers l'ion dans le niveau énergétique (U<sup>\*</sup>). Pour illustrer les conditions de capture et ses conséquences, nous appliquerons ci dessous, le model COB au cas simple d'une collision d'un ion multichargé avec un atome. Dans ce dernier cas de figure, le potentiel V(x) (eq.1) est maximum pour (dV(x)/dx = 0).

$$\frac{dV(x)}{dx} = - \frac{q}{(d-x)^2} + \frac{1}{x^2} \text{ alors } \frac{dV(x)}{dx} = 0 \Rightarrow x_0 = \frac{d}{1+\sqrt{q}}$$

$$V(x_0) = V_0 = -I^* \Rightarrow V_0 = -I - \frac{q}{d} \Rightarrow d = d_1 = \frac{1+2\sqrt{q}}{I} \quad (\text{eq.6})$$

La capture du premier électron se produit donc à une distance (d<sub>1</sub>). A partir des équations (4) et (5), on peut retrouver l'énergie de liaison (U) de l'électron dans l'ion quand ce dernier est à une distance infinie par rapport à l'agrégat.

$$I^* = U^* \Rightarrow I + \frac{q}{d_1} = U + \frac{1}{d_1} \Rightarrow$$

$$-U = - \frac{I(q+2\sqrt{q})}{1+2\sqrt{q}} \quad (\text{eq.8})$$

Si on prend comme niveaux énergétiques de l'ion ceux d'un ion hydrogénoïde de nombre atomique (q) (eq.9), alors on peut retrouver à partir de l'équation (8) sur quel niveau excité (n) se fera la capture (eq.10) et ce en fonction de la charge (q) et de l'énergie d'ionisation de l'électron capturé (I). Le modèle COB permet donc de déterminer les distances de capture électronique (d) ainsi que les niveaux de peuplement (n) des électrons dans l'ion.

$$-U = - \frac{q^2}{2.n^2} \quad (\text{eq.9})$$

$$\frac{I(q+2\sqrt{q})}{1+2\sqrt{q}} = \frac{q^2}{2.n^2} \Rightarrow n^2 \leq \frac{q^2 + 2q^{5/2}}{2I.(q+2\sqrt{q})} \quad (\text{eq.10})$$

A partir des distances de capture, le model COB permet d'évaluer classiquement la section efficace totale de capture ( $\sigma_t$ ) ainsi que les sections efficaces de capture du ième électron ( $\sigma_i$ ) [ref.53]. Les sections efficaces ainsi déterminées sont indépendantes de la vitesse initiale de l'ion projectile. Notons que Cederquist a montré que le modèle COB est applicable dans le cas d'un ion lent dont la vitesse limite est ( $v_{lim} = q^{1/4} \cdot \sqrt{I}$ ) [ref.50].

$$\sigma_t = \pi \cdot (d_1 + R)^2 \quad (\text{eq.11})$$

$$\sigma_i = \pi \cdot [ (d_n + R)^2 - (d_{n+1} + R)^2 ] \quad (\text{eq.12})$$

La section efficace totale de capture dans le cas d'une collision d'un ion avec un agrégat, dépend de la taille de ce dernier et plus exactement de son rayon (R). La quantité ( $\pi \cdot R^2$ ) représente la section efficace d'une collision frontale.

### 1.2. Charge finale du projectile

Durant la collision, l'ion capture donc des électrons dans des états excités, formant un ion creux ou un atome creux. Par effet Auger, le projectile éjecte un certain nombre d'électrons pendant la collision ou en post collision. Loin de la cible, l'ion aura donc une charge qui dépend du nombre d'électrons capturés et du nombre d'électrons éjectés. Pour déterminer le nombre d'électrons restés sur l'ion et donc stabilisés, différents modèles ont été proposés dans la continuité du modèle COB. Ces modèles se partagent en deux catégories, ceux qui déterminent la distribution des probabilités de présence des électrons dans les niveaux énergétiques de l'ion, ils sont dits (configuration model) [ref.54] [ref.55] et ceux qui déterminent le nombre moyen d'électrons dans les différents niveaux de l'ion, ils sont dit (mean charge model) [ref.49] [ref.51].

L'émission électronique de l'ion fait partie du processus de relaxation de ce dernier. Une partie des électrons capturés dans les états élevés de l'ion rejoignent les états plus bas essentiellement par cascade Auger. Il est admis que la relaxation par désexcitation radiative n'intervient efficacement que lorsque les électrons atteignent les niveaux L et M [ref.56] [ref.57] entrant en concurrence avec la désexcitation par effet Auger. Dans un schéma simple de relaxation de l'ion, les électrons se trouvant dans des niveaux (n) élevés rejoignent la couche M uniquement par auto-ionisation. Une description qualitative et simple de la cascade Auger amenant donc les électrons des couches (n) vers la couche M a été donnée par Ali et al [ref.56], nous présentons ci dessous les principales règles de cette cascade Auger.

Le ré-arrangement électronique intervient en premier lieu pour les électrons se trouvant le plus proche du continuum en impliquant à chaque fois deux électrons. La transition Auger de deux électrons se trouvant dans un même niveau excité intervient prioritairement par rapport à deux électrons se trouvant dans deux niveaux différents. Les transitions dans un même niveau (Coster-Kronig) sont négligeables tant que (n) reste supérieur à 2. La cascade Auger se fait pas à pas en faisant passer l'électron restant dans l'ion principalement vers la couche se trouvant juste en dessous de la couche initiale.

Ces règles décrivant la relaxation Auger ont été transcrites en équations dans les différents modèles de relaxation de l'ion-atome creux. Nous présenterons ci dessous le modèle (mean charge) proposé par Thumm [ref.51, 58] dans le cas d'une interaction d'un ion lent avec un agrégat de  $C_{60}$ .

Le modèle consiste à écrire un système d'équations (eq.13) décrivant en fonction du temps (t) l'évolution du nombre d'électron ( $A_n$ ) dans un niveau donné (n) en fonction du taux de capture électronique ( $\Gamma^C$ ), du taux de perte électronique ( $\Gamma^P$ ) et des taux de transition Auger ( $\Gamma^A$ ).

$$\frac{d}{dt} A_n = \Gamma_n^C - \Gamma_n^P + \sum \Gamma_n^{A+} - \sum \Gamma_n^{A-} \quad (\text{eq.13})$$

$$\frac{d}{dt} A_n = \Gamma_n^{\text{COB}} + \sum \Gamma_n^{A+} - \sum \Gamma_n^{A-} \quad (\text{eq.14})$$

Les taux de capture électronique et de perte électronique (retour d'un électron vers l'agrégat) peuvent être déterminés à partir du modèle COB, ils représentent dans ce cas, le taux de transfert électronique de l'agrégat vers une couche (n) de l'ion ( $\Gamma_n^{\text{COB}}$ ) selon le modèle COB (eq.14). Les taux de transition Auger ( $\Gamma_n^{A+}$ ) correspondent aux transitions qui peuplent la couche (n) et les taux de transition Auger ( $\Gamma_n^{A-}$ ) correspondent aux transitions qui dépeuplent la couche (n). Pour illustrer ce phénomène de peuplement et de dépeuplement d'une couche donnée, nous nous proposons d'écrire l'équation régissant l'évolution de la charge se trouvant dans la couche N ( $n = 4$ ) (eq.15) en ne prenant en compte que les transitions Auger faisant intervenir au maximum trois couches successives  $\Gamma_{(n)(n+1)(n+2)}$ .

$$\frac{d}{dt} A_N = \Gamma_N^{\text{COB}} + \Gamma_{\text{NOO}} + \Gamma_{\text{NOP}} - 2\Gamma_{\text{MNN}} - \Gamma_{\text{MNO}} - \Gamma_{\text{LMN}} \quad (\text{eq.15})$$

Pour les couches inférieures (M, L, K), il faut rajouter les taux de transitions radiatives ( $\Gamma^X$ ) qui deviennent non négligeables et qui sont au nombre de trois ( $\Gamma_{\text{KL}}^X$ ), ( $\Gamma_{\text{KM}}^X$ ), ( $\Gamma_{\text{LM}}^X$ ), correspondant respectivement aux émissions photoniques des raies  $K_\alpha$ ,  $K_\beta$  et  $L_\alpha$ .

Les taux de transition Auger et radiatifs sont affectés de coefficients ( $\omega$ ) pour prendre en compte le nombre d'électrons dans les niveaux de départ et le nombre d'électrons dans le niveau d'arrivée, auxquels il faut rajouter un facteur multiplicatif (2) quand les deux électrons intervenant dans la transition Auger se trouvent dans la même couche (n). Dans les modèles établis pour expliquer la relaxation des ions-atomes creux produits après une interaction avec une surface ou un agrégat, les coefficients d'occupation des niveaux ( $\omega$ ) utilisés se ressemblent globalement à quelques nuances près [ref.49] [ref.51] [ref.59]. Nous présentons ci dessous, les coefficients multiplicatifs ( $\omega$ ) établis par Larkins [ref.60] pour les taux de transitions Auger et radiatifs en fonction de la dégénérescence ( $B_n$ ) d'un niveau donné (n) (eq.16, 17, 18).

$$\Gamma_{(n)(n')(n'')} = \Gamma_{(n)(n')(n'')}^* \cdot \omega = \Gamma_{(n)(n')(n'')}^* \cdot (B_n - A_n) \cdot A_{n'} \cdot A_{n''} \quad (\text{eq.16})$$

$$\Gamma_{(n)(n')(n')} = \Gamma_{(n)(n')(n')}^* \cdot \omega = \Gamma_{(n)(n')(n')}^* \cdot (B_n - A_n) \cdot A_{n'} \cdot (A_n - 1) \quad (\text{eq.17})$$

$$\Gamma_{(n)(n')}^X = \Gamma_{(n)(n')}^{*X} \cdot \omega = \Gamma_{(n)(n')}^{*X} \cdot (B_n - A_n) \cdot A_{n'} \quad (\text{eq.18})$$

Les taux de transitions ( $\Gamma^*$ ) sont appelés des taux par état de spin [ref.55] et sont dans le cas des transitions dans les couches internes pour la plus parts tabulés et ont fait l'objet de calculs théoriques [ref.61] ou ont été déterminés expérimentalement [ref.54].

Par contre, lorsqu'il s'agit des couches externes ( $n$  très grand), les taux de transitions ( $\Gamma^*$ ) notamment pour les transitions Auger ne sont pas exactement connus. Les différents modèles de relaxation des ions-atomes creux utilisent une formule empirique pour déterminer les taux de transitions Auger pour les couches externes et ce lorsque les deux électrons sont initialement dans la même couche. Cette formule a été proposée par Burgdorfer et al [ref.49] par un ajustement à partir de calculs théoriques (eq.19).

$$\Gamma^*_{(n)(n')(n')} = \frac{5,06.10^{-3}}{(n-n')^{3,46}} \quad (\text{eq.19})$$

Lorsque les deux électrons intervenant dans une transition Auger ne se trouvent pas dans un même niveau, d'autres relations ont été établies notamment par Huang, Stolterfoht et al [ref.62] pour déterminer les taux de transitions ( $\Gamma^*$ ) en fonction de ceux donnés par l'équation (19). Les taux de transitions ( $\Gamma^*$ ) sont alors déterminés en divisant le taux de transition  $\Gamma^*_{(n)(n+1)(n+1)}$  donné par l'équation (19) par des facteurs correctifs (eq.20, 21).

$$\Gamma^*_{(n)(n+1)(n+1)} = 5,06.10^{-3} = 3 \cdot \Gamma^*_{(n)(n+1)(n+2)} \quad (\text{eq.20})$$

$$\Gamma^*_{(n)(n+1)(n+1)} = 5,06.10^{-3} = 9 \cdot \Gamma^*_{(n)(n+1)(n+3)} \quad (\text{eq.21})$$

En définitive, si on connaît sur quels niveaux de l'ion se font les captures successives des électrons arrachés à l'agrégat ainsi que les taux de transitions Auger et radiatifs de toutes les étapes amenant les électrons se trouvant dans des états excités vers l'état fondamental de l'ion ou de l'atome, il est possible avec les équations des taux (eq.14) de suivre en fonction du temps la charge de l'ion et d'en déterminer la charge finale. On détermine ainsi le nombre d'électrons stabilisés et le nombre d'électrons éjectés.

### 1.3. Gain en énergie du projectile

Durant une collision périphérique, l'ion projectile gagne de l'énergie cinétique. Ce gain en énergie peut s'expliquer de deux façons, la première par répulsion coulombienne entre l'ion et l'agrégat et la deuxième par transfert des électrons de l'agrégat vers l'ion en résonances imparfaites [ref.63]. En s'approchant de l'agrégat l'ion de charge ( $q$ ) ionise l'agrégat initialement neutre pour devenir mono-chargé, il se crée alors une force de répulsion coulombienne ( $F_c$ ) entre l'agrégat et l'ion. La masse de l'agrégat étant beaucoup plus grande que celle du projectile, l'énergie qui découle de la répulsion coulombienne est donc essentiellement prise par l'ion sous forme d'énergie cinétique ( $\Delta E_g$ ).

Pour déterminer l'énergie cinétique gagnée par l'ion durant tout le temps de la collision, il faut calculer la force de répulsion coulombienne en prenant en compte le changement de la charge du projectile  $q(t)$  dû à la capture et à l'émission électronique ainsi que le changement de la charge de l'agrégat  $r(t)$  dû aux ionisations successives. On peut alors calculer l'énergie gagnée par le projectile en fin de collision (eq.23), où le terme ( $d$ ) représente la distance séparant les charges ( $q$ ) et ( $r$ ), celle de la cible étant supposée être sur la surface de l'agrégat et ( $\bar{x}$ ) est le vecteur déplacement du projectile.

$$\mathbf{F}_c(\mathbf{t}) = \frac{\mathbf{q}(\mathbf{t}) \cdot \mathbf{r}(\mathbf{t})}{d^2} \quad (\text{eq.22})$$

$$\Delta E_g = \int \frac{\mathbf{q}(\mathbf{t}) \cdot \mathbf{r}(\mathbf{t})}{d^2} \cdot \frac{d\mathbf{x}}{dt} \cdot d\mathbf{x} \quad (\text{eq.23})$$

Le gain en énergie cinétique par l'ion peut être vu autrement. Lors du transfert d'un électron dont l'énergie de liaison est  $I^*$  dans l'agrégat pour se retrouver dans l'ion avec une énergie de liaison  $U^*$ , il se peut que la capture ne soit pas parfaitement résonante et que ( $I^*$ ) ne soit qu'approximativement égale à ( $U^*$ ), ce qui est souvent le cas. Alors l'infime différence en énergie entre ( $U^*$ ) et ( $I^*$ ) est transférée à l'ion sous forme d'énergie cinétique et l'énergie totale gagnée par l'ion est la somme de toutes ces différences d'énergies ( $U^* - I^*$ ) dues au transfert de tous les électrons capturés ( $r$ ) (eq.24).

$$\Delta E_g = \sum_r (U_r^* - I_r^*) \quad (\text{eq.24})$$

Cette dernière méthode de détermination du gain en énergie par le projectile, demande de connaître les niveaux et sous niveaux énergétiques de l'ion durant la collision. Par ailleurs, en toute rigueur, le gain en énergie de l'ion déterminé par la méthode de la répulsion coulombienne doit être égal au gain en énergie déterminé par la méthode du transfert résonant imparfait.

Les deux méthodes de calcul du gain en énergie ( $\Delta E_g$ ) relèvent d'un même phénomène qui peut être décrit en considérant le projectile et la cible comme un seul système possédant une énergie potentielle propre durant la collision. Pour expliciter ce phénomène, prenons comme exemple le système formé par un ion  $\text{Ne}^{9+}$  et un atome d'Ar pour construire les courbes d'énergie potentielle du système. L'énergie potentielle du système en voie d'entrée ( $E_{P1}$ ) est l'énergie d'ionisation ( $I$ ) de l'électron le moins lié de l'atome d'argon et l'énergie potentielle en voie de sortie ( $E_{P2}$ ) est l'énergie de liaison ( $U$ ) de l'électron sur le projectile corrigée de la répulsion coulombienne entre les deux éléments formant le système en question.

Energie potentielle de la voie d'entrée :  $E_{P1} = -I$

Energie potentielle de la voie de sortie :  $E_{P2} = -U + \frac{q-1}{d}$

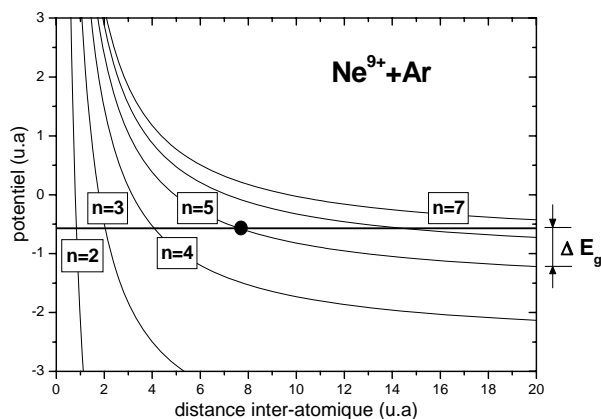


Figure (2) : Diagramme des courbes d'énergie potentielle du système  $\text{Ne}^{9+} - \text{Ar}$

La construction du diagramme des courbes d'énergie potentielle du système (fig.2), permet donc de déterminer sur quel niveau énergétique se fera la capture de l'électron dans le projectile en établissant l'égalité entre les énergies potentielles en voie d'entrée et en voie de sortie. Notons que cette égalité est identique à celle entre l'équation (4) et l'équation (5) et constitue l'une des conditions du passage de l'électron de la cible vers le projectile selon le modèle COB. Si on fait l'hypothèse dans le cadre de cet exemple que l'électron est capturé dans le niveau ( $n = 5$ ) du projectile (fig.2), alors à l'infini, lorsque le système se sépare, la différence en énergie ( $\Delta E_g$ ) est gagnée par le projectile sous forme d'énergie cinétique. Cette énergie cinétique ( $q-1/d$ ) est exactement égale à la répulsion coulombienne entre les deux éléments ayant constitué le système durant la collision.

## 2. Collisions frontales

Lorsque le paramètre d'impact de la collision entre l'ion lent multichargé et l'agrégat est plus petit que le rayon de ce dernier, la collision est dite frontale. A longue distance par rapport à la surface de l'agrégat, l'ion se comporte comme dans le cas d'une collision périphérique. En d'autres termes le processus de capture des électrons et le processus de relaxation de l'ion-atome creux y est le même. Cependant lorsque l'ion se trouve très proche de la surface ou à l'intérieur de l'agrégat, le processus de capture est assimilé à l'interaction d'un ion avec une surface-solide et le model COB ne peut plus être directement appliqué [ref.54].

Après avoir capturé les premiers électrons par résonance, l'ion-atome creux continue à s'approcher de l'agrégat. Les électrons initialement capturés dans des couches ( $n$ ) élevées possèdent des orbitales dont le rayon classique varie en ( $n^2$ ). Si une orbitale entre en contact avec la surface, l'électron en question est éjecté. Il est admis qu'en collision ion-surface, les électrons se trouvant dans le projectile et dont l'énergie de liaison n'est pas importante seront éjectés, au plus tard, quand le projectile entre en contact avec la surface [ref.54] [ref.64] [ref.65]. Ce phénomène est appelé (peeling off), tous les électrons (sauf ceux se trouvant en couche K et éventuellement en couche L) seront éjectés du projectile pour reformer un ion qui peut être à nouveau multichargé.

### 2.1. Processus de capture

Lorsque l'ion pénètre à l'intérieur de l'agrégat et se retrouve donc sous la surface, l'ion recapture des électrons dans des états peu élevés pour former un ion-atome creux dit de deuxième génération, plus compact que celui formé au-dessus de la surface de l'agrégat [ref.59] [ref.66]. La capture électronique se fait en quasi-résonance et les électrons de l'agrégat viennent occuper la couche M ou N de l'ion projectile. Ce mode de capture électronique vers les couches internes de l'ion quand ce dernier est sous la surface est appelé side feeding [ref.55] [ref.65].

A ce processus de capture direct en quasi-résonance dans les couches internes de l'ion, Stolterfoht et al [ref.67] proposent un mécanisme alternatif. Le principe de ce mécanisme est que l'ion sous la surface est entouré d'un nuage électronique correspondant à la polarisation du milieu et occupant les niveaux élevés de l'ion et dont la densité dépend de la nature du matériau constituant la surface ou, dans le cas présent, l'agrégat. Des électrons du nuage électronique sont alors susceptibles de remplir directement les couches internes de l'ion par des transitions similaires à l'effet Auger.

Dans ce paragraphe, nous décrirons le mécanisme de capture électronique (side feeding) de l'ion tel qu'il a été présenté par Winecki et al [ref.66]. Le remplissage des couches internes (M, N) se fait suivant le taux de capture side feeding  $\Gamma_{SF}$ . Ce taux de capture dépend de la charge de l'ion sous la surface (q) et de sa vitesse (v), de la densité atomique de l'agrégat ( $N_{agr}$ ), et de la section efficace de capture ( $\sigma_{SF}$ ) par side feeding (eq.25).

$$\Gamma_{SF} = q \cdot \Gamma_{SF}^* \approx v \cdot N_{agr} \cdot \sigma_{SF} \quad (\text{eq.25})$$

$$\sigma_{SF} = \pi \cdot r^2 \quad (\text{eq.26})$$

La section efficace de capture par side feeding ( $\sigma_{SF}$ ) a été déterminée par Winecki et al en utilisant des données expérimentales. En comparant la section efficace ( $\sigma_{SF}$ ) déterminée, à son expression classique (eq.26), il a été trouvé que la distance (r) de l'équation (26) est de 3 u.a. Cette distance est de l'ordre de la distance inter-atomique dans le solide (2,6 u.a et 6,3 u.a), selon la direction dans le cristal, plus précisément dans un cristal de graphite, puisque l'expérience a été effectuée avec une surface de ce matériau.

On considère dans les modèles de capture électronique que le processus du side feeding commence à apparaître lorsque l'ion est juste au-dessus de la surface, après le mécanisme du peeling off, pour croître exponentiellement vers celle ci (eq.27). Le taux de capture  $\Gamma'_{SF}$  au-dessus de la surface, dépend alors directement de la distance inter-atomique ( $r_0$ ) dans la cible et du rayon classique de l'orbitale ( $r_n$ ) de l'ion, où s'effectue la capture électronique (eq.28).

$$\Gamma'_{SF} = \Gamma_{SF} \cdot \exp(-d/d_0) \quad (\text{eq.27})$$

$$d_0 = \frac{r_0}{2} + r_n \quad (\text{eq.28})$$

Le processus de capture électronique par side feeding continuera à se produire tant que l'ion est à l'intérieur de l'agrégat. Avec les mécanismes de capture et de relaxation par effet Auger dans l'agrégat, le taux de capture  $\Gamma_{SF}$  ne sera pas constant et évoluera en fonction du temps. A la sortie de l'agrégat et de la zone de capture par side feeding, si le projectile possède toujours une charge (q), il aura la possibilité de capturer de nouveau des électrons suivant le mécanisme décrit par le modèle COB.

## 2.2. Charge finale du projectile

Un ion entrant en collision frontale avec un agrégat peut être vu comme un ion traversant une couche mince d'un solide constitué des mêmes atomes que l'agrégat. Un ion lent de charge (q) traversant un solide, y atteint à l'intérieur une charge d'équilibre ( $q_e$ ). Cette charge d'équilibre est donnée classiquement par l'équation (29) [ref.68].

Les travaux de Hatass et al ainsi que ceux de Schenkel et al [ref.69] montrent que la charge finale ( $q_f$ ) d'un ion lent traversant une couche mince évolue exponentiellement par rapport à la différence entre la charge initiale de l'ion ( $q_i$ ) et sa charge d'équilibre ( $q_e$ ) (eq.30).

$$q_e = Z^{1/3} \cdot v \quad (\text{eq.29})$$

$$q_f = q_e + (q_i - q_e) \cdot \exp(-\alpha \cdot x / v) \quad (\text{eq.30})$$

Le terme ( $Z$ ) désigne le nombre atomique de l'ion et ( $v$ ) sa vitesse. Le paramètre ( $\alpha$ ) a la dimension inverse du temps, il est déterminé expérimentalement et dépend de la charge initiale de l'ion ( $q_i$ ) et du milieu que l'ion traverse. Les études expérimentales menées sur les couches minces de carbone [ref.68] donnent une valeur de ( $\alpha$ ) de l'ordre de ( $\approx 0,012$ ). Par ailleurs, Bernard, Martin et al [ref.70], dans le cadre des collisions frontales avec des agrégats de  $C_{60}$ , ont appliqué l'équation (30) à leurs résultats expérimentaux. Il en ressort que le paramètre ( $\alpha$ ) dépend également de la nature du projectile et varie entre ( $\approx 0,01$ ) pour l' $Ar^{16+}$  et ( $\approx 0,02$ ) pour le  $Xe^{16+}$ . La loi empirique proposée par Hatass et al (eq.30) peut être un moyen d'avoir une idée sur la charge finale du projectile, lorsque ce dernier traverse l'agrégat.

Néanmoins pour déterminer la charge finale du projectile avec plus d'exactitude, il faut suivre sa relaxation en fonction du temps. Dans l'hypothèse ou l'ion-atome creux de première génération créé au-dessus de la surface n'a pas eu le temps de se relaxer pour que les électrons commencent à remplir les couches K et L, tous les électrons capturés pendant cette phase seront éjectés par peeling off et le projectile pénétrera dans l'agrégat avec sa charge initiale ( $q$ ). L'ion projectile dans notre cas est le  $Ne^{9+}$ .

Les études expérimentales effectuées par Stolterfoht et al [ref.54] [ref.67] sur l'interaction d'ions  $Ne^{9+}$  avec des surfaces de carbone et d'aluminium et l'interprétation de ces résultats indique que l'ion projectile capture par side feeding des électrons sous la surface en couche M, selon le taux de capture ( $\Gamma_{SF}$ ) laissant la couche L complètement vide. Il se forme alors un ion-atome creux compact de deuxième génération, impliquant 3 couches (M, L et K). En appliquant ce résultat à notre cas particulier d'une collision frontale d'un ion  $Ne^{9+}$  avec un agrégat d'argon, on peut écrire les équations des taux (eq.31, 32, 33), données par le modèle mean charge pour suivre l'évolution du nombre d'électrons dans chaque couche en fonction de la capture en couche M et du remplissage des couches L et K.

$$\frac{d}{dt} A_M = \Gamma_{SF} - 2\Gamma_{KMM} - 2\Gamma_{LMM} - \Gamma_{KLM} - \Gamma_{K\beta} - \Gamma_{L\alpha} \quad (\text{eq.31})$$

$$\frac{d}{dt} A_L = \Gamma_{LMM} + \Gamma_{L\alpha} - 2\Gamma_{KLL} - \Gamma_{KLM} - \Gamma_{K\alpha} \quad (\text{eq.32})$$

$$\frac{d}{dt} A_K = \Gamma_{KLL} + \Gamma_{KLM} + \Gamma_{KMM} + \Gamma_{K\alpha} + \Gamma_{K\beta} \quad (\text{eq.33})$$

Le système d'équations ci-dessus comporte tous les taux de transition Auger et radiatif impliquant les trois couches (M, L, K) et pour résoudre ce système, il faut connaître tous les taux de transitions par état de spin ( $\Gamma^*$ ) et appliquer à ces derniers les coefficients d'occupation (eq.16, 17, 18) pour retrouver les taux de transition ( $\Gamma$ ). Nous donnons ci-dessous les taux ( $\Gamma^*$ ) entrants dans l'écriture du système d'équations (31, 32, 33) sous forme d'un tableau.

Taux	$\Gamma^*_{K\alpha}$	$\Gamma^*_{K\beta}$	$\Gamma^*_{KMM}$	$\Gamma^*_{KLL}$	$\Gamma^*_{LMM}$	$\Gamma^*_{KLM}$
Valeur	$0,51.10^{-4}$	$1,52.10^{-5}$	$3,27.10^{-5}$	$3,60.10^{-4}$	$0,67.10^{-3}$	$1,20.10^{-4}$
Référence	[ref.61]	[ref.71]	[eq.21]	[ref.61]	[ref.54]	[eq.22]

Tableau (1) : taux de transitions par état de spin pour le néon



Le taux de transition radiatif  $\Gamma_{L\alpha}^*$  correspondant à la transition d'un électron de la couche M vers la couche L peut être négligé [ref.66] devant les autres taux de transitions.

### 2.3. Perte en énergie du projectile

En traversant l'agrégat, l'ion perd de l'énergie. Cette perte en énergie peut être assimilée à celle que perdrait le projectile en traversant un solide d'épaisseur (x) égale au diamètre de l'agrégat (2R). La perte en énergie est due au pouvoir d'arrêt électronique et nucléaire du matériau traversé (eq.34). Pour des ions de nombre atomique ( $Z_1$ ) traversant un solide à basse vitesse ( $v < Z_1^{2/3}$ ) [ref.72], la perte en énergie due au pouvoir d'arrêt électronique est donnée entre autre par le modèle de Firsov-Lindhard-Scharff dont l'expression de perte en énergie (eq.35) dépend de la vitesse du projectile, de la masse atomique de la cible ( $Z_2$ ) et de la densité atomique du milieu traversé. Pour ce qui est de la perte en énergie due au pouvoir d'arrêt nucléaire, Nastasi-Mayer-Hirvonen [ref.72] proposent en première approximation une expression indépendante de la vitesse du projectile et qui dépend des masses atomiques (M) du projectile et de la cible (eq.36).

$$\frac{dE}{dx} = \frac{dE}{dx}_e + \frac{dE}{dx}_n \quad (\text{eq.34})$$

$$\frac{dE}{dx}_e \text{ (eV/nm)} = 0,383 \cdot N_{\text{agr}} \text{ (at/nm}^3) \cdot \frac{Z_1^{1/6}}{M_1^{1/2}} \cdot \frac{Z_1 \cdot Z_2}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}} \cdot E^{1/2} \text{ (keV)} \quad (\text{eq.35})$$

$$\frac{dE}{dx}_n \text{ (eV/nm)} = 0,280 \cdot N_{\text{agr}} \text{ (at/nm}^3) \cdot \frac{Z_1 \cdot Z_2}{(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{2/3}} \cdot \frac{M_1}{M_1 + M_2} \quad (\text{eq.36})$$

Les expressions de perte d'énergies électroniques et nucléaires données ci dessus ne sont que des approximations. Une meilleure approximation est sans doute donnée par le code TRIM développé par Ziegler et al [ref.73], basé sur une simulation Monte Carlo et prenant en considération plusieurs théories et modèles relatifs à la perte d'énergie dans un solide, notamment ceux utilisant le potentiel universel inter-atomique de type ZBL (Ziegler, Biersack, Littmarck). Nous avons utilisé le code TRIM 2003 pour évaluer la perte en énergie d'un ion  $\text{Ne}^{9+}$  dont l'énergie cinétique est de 126 keV traversant des agrégats de différents diamètres (2R). L'énergie cinétique de l'ion correspond à une tension d'extraction de 14 kV au niveau de la source ECR, la vitesse correspondante est de (0,504 u.a).

La figure (3) représente la trajectoire d'un faisceau d'ions de néon traversant un solide d'argon, donnée par le code TRIM dans le cas où la cible possède une épaisseur de 5,7 nm, ce qui correspond à un agrégat d'argon de 2,85 nm (54 u.a) de rayon et contenant donc approximativement 2600 atomes. La figure (4) représente la distribution en énergie cinétique des ions de néon en sortie de la cible pour le cas que nous venons de décrire, la perte moyenne en énergie est de 606 eV, ce qui représente 0,48 % de l'énergie initiale.

Dans cet exemple, la vitesse moyenne des ions reste pratiquement inchangée, puisqu'elle passe de (0,504 u.a) à (0,503 u.a). Notons que le code TRIM considère la perte en énergie des ions indépendante de leur charge d'entrée ( $q_i$ ) et considère que le projectile atteint sa charge d'équilibre ( $q_e$ ) dès qu'il pénètre dans le solide et donne donc une valeur identique quelle que soit la charge initiale ( $q_i$ ) de l'ion.

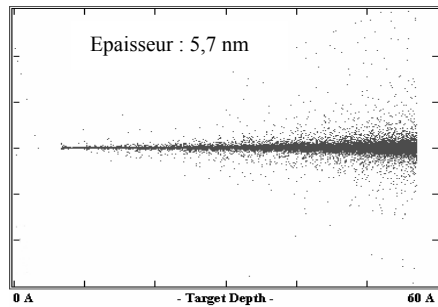


Figure (3) : trajectoire d'un faisceau d'ion de néon dans une cible solide d'argon (TRIM)

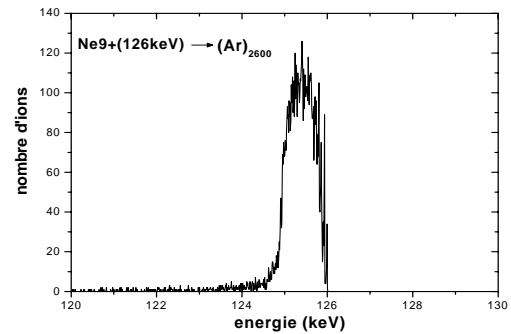


Figure (4) : distribution en énergie cinétique d'ions de néon traversant 5,7 nm d'un solide d'argon (TRIM)

Dans une deuxième étape, nous avons utilisé le code TRIM pour évaluer la perte en énergie des ions néon lorsque ces derniers traversent différentes épaisseurs d'un solide d'argon, allant de 2 nm jusqu'à 16 nm, correspondant à des agrégats d'argon de même diamètre et contenant donc approximativement de 110 atomes ( $2R = 2$  nm) jusqu'à 57000 atomes ( $2R = 16$  nm). La figure (5) donne la perte moyenne en énergie d'après le code TRIM pour un ion de  $\text{Ne}^{9+}$  entrant en collision avec des agrégats d'argon de différents diamètres en ayant un paramètre d'impact nul.

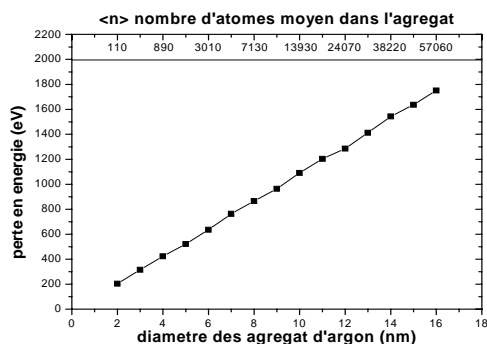


Figure (5) : énergie moyenne perdue par un ion de néon traversant des agrégats d'argon (TRIM)

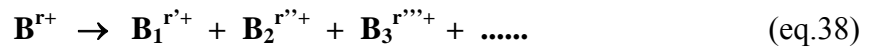
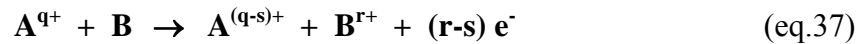
D'après la figure (5), le code TRIM prédit une perte d'énergie des ions de néon qui augmente quasi linéairement par rapport aux diamètres des agrégats et qui correspond à 110 eV/nm. Dans le cas d'une collision des ions  $\text{Ne}^{10+}$  (100 keV) avec des agrégats de  $\text{C}_{60}$ , les études expérimentales ont montré que la perte d'énergie est de l'ordre de 850 eV/nm [ref.74], alors que le code TRIM prédit une perte d'énergie de 600 eV/nm. Ceci montre malgré le bon ordre de grandeur de la perte en énergie que donne le code TRIM, ses limites à donner des valeurs exactes.

## II. Etudes expérimentales

Avant de présenter les différentes études expérimentales menées ces dernières années dont le sujet commun est la collision d'un faisceau d'ions avec des agrégats, nous rappelons ci dessous le scénario simplifié décrivant le processus d'une collision entre un ion (A) et un agrégat (B).

## 1. Scénario de la collision

Un ion de charge positive ( $q$ ) se dirigeant à une vitesse ( $v$ ) vers un agrégat, capturera des électrons en ionisant l'agrégat avant même d'entrer en collision directe avec la cible [ref.50]. Cette capture électronique se fait à une distance relativement importante par rapport à la taille de l'agrégat [ref.75]. Après ionisation, la cible agrégat peut rester stable comme il peut se fragmenter en deux ou plusieurs éléments suivant l'énergie qui a été déposée par l'ion projectile [ref.76]. De son côté l'ion ayant capturé un certain nombre d'électrons dans des états énergétiques ( $n$ ) élevés formera un atome creux, s'il a capturé assez d'électrons pour se neutraliser [ref.57]. L'étape suivante pour l'atome creux est sa relaxation par auto-ionisation ou par désexcitation radiative pour atteindre le niveau fondamental [ref.77].



Les deux réactions présentées ci-dessus (eq.37) et (eq.38) rendent compte d'une manière simple du processus collisionnel et post-collisionnel, et dépendent fortement du paramètre d'impact de la collision. Pendant l'interaction d'un ion avec un agrégat, on distingue deux types de collisions, celles à grand paramètre d'impact et celles à petit paramètre d'impact.

Les études expérimentales menées par différents groupes sur l'interaction d'ions lents multichargés, dont la vitesse reste largement inférieure à l'unité atomique ( $2,188 \cdot 10^6$  m/s), avec des agrégats, ont été effectuées essentiellement en prenant comme cible le fullerène  $C_{60}$  et en moindre mesure des agrégats de sodium. Le  $C_{60}$  est un agrégat formé de 60 atomes de carbone en structure sphérique creuse dont le diamètre est égal approximativement à 7 Å [ref.78]. A notre connaissance, les études expérimentales de collision entre ions et agrégats de gaz rares ayant fait l'objet de publications sont au nombre de deux. La première [ref.79] a été effectuée entre des ions multichargés de xénon avec de petits agrégats d'argon contenant en moyenne 10 atomes, la seconde [ref.80] a été effectuée avec de l'argon mono-chargé comme projectile et des agrégats d'argon de  $10^4$  atomes en moyenne par agrégat comme cible.

Nous présenterons dans la suite de ce chapitre une sélection représentative de toutes ces études de collisions entre des ions multichargés avec des agrégats de différentes natures.

## 2. Ionisation de la cible

La première expérience de collision entre des ions lents multichargés et un agrégat, en l'occurrence le  $C_{60}$ , a été effectuée par Walch et al [ref.81], le projectile utilisé étant l' $\text{Ar}^{8+}$  avec une vitesse ( $v \approx 0,28$  u.a). La figure (6) montre le spectre des agrégats restés stables après la collision en coïncidence avec la détection de l' $\text{Ar}^{7+}$ , le projectile ayant donc stabilisé un électron. Cette expérience a permis d'observer des agrégats de  $C_{60}$  quatre fois ionisés en utilisant un spectromètre à temps de vol (TOF). Des états de charge du  $C_{60}$  plus élevés ont été observés, notamment le  $C_{60}^{9+}$  obtenu pour la première fois par Jin et al [ref.82] en utilisant du  $\text{Bi}^{44+}$  comme projectile avec une vitesse ( $v \approx 0,3$  u.a) (fig.7). Ce résultat a été confirmé par la suite par d'autres études, notamment celle de Martin et al [ref.83] et celle de Jensen et al [ref.84] (fig.8).

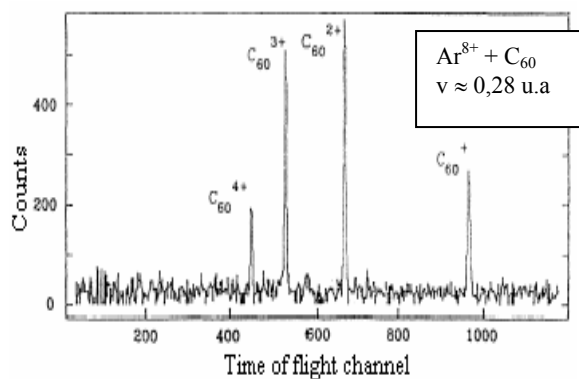


Figure (6) : états de charge du  $C_{60}$  après collision (Walch et al) [ref.81]

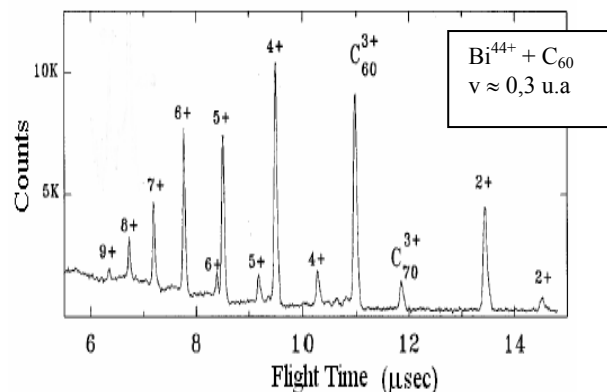


Figure (7) : états de charge du  $C_{60}$  après collision (Jin et al) [ref.82]

Lors de la collision d'un ion lent multichargé avec un  $C_{60}$ , il a été également observé, en plus des  $C_{60}$  ionisés, des fragments plus petits également ionisés. Nous donnons en exemple (fig.8) le spectre enregistré par Jensen et al [ref.84] en coïncidence avec la détection du  $Xe^{20+}$  (le projectile a stabilisé 3 électrons), le projectile étant du  $Xe^{23+}$  avec une vitesse ( $v \approx 0,15$  u.a.). La figure (9) présente le spectre enregistré par Martin et al [ref.74] en utilisant du  $Ne^{10+}$  à une vitesse ( $v \approx 0,42$  u.a) comme projectile, en coïncidence avec la détection du  $Ne^{8+}$  (stabilisation de 2 électrons). On observe sur les deux spectres, des pics moins intenses que ceux des pics  $C_{60}^{n+}$  et qui correspondent essentiellement à des fragments de type  $C_m$  une fois ionisés.

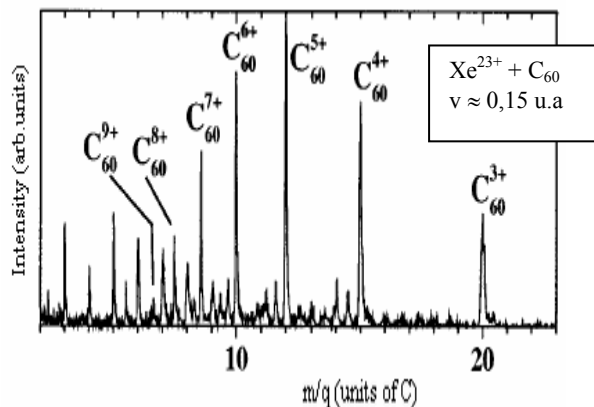


Figure (8) : spectre  $C_{60}^{n+}$  et ions  $C_m$  après collision (Jensen et al) [ref.84]

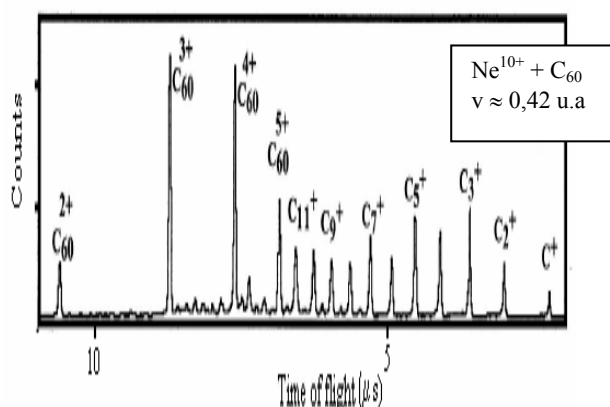


Figure (9) : spectre  $C_{60}^{n+}$  et ions  $C_m$  après collision (Martin et al) [ref.74]

La majorité des expériences menées sur l'interaction d'ions lents multichargés avec des agrégats, ont été effectuées en mode coïncidence pour l'enregistrement des spectres. Les spectres sont enregistrés sous condition qu'un événement donné survienne. Par exemple, on enregistre l'état de charge de l'agrégat ou de ses fragments simultanément avec la détection d'un état de charge donné de l'ion projectile, ou bien, on enregistre le nombre d'électrons éjectés lors de la collision simultanément avec l'état de charge de l'ion projectile après collision. Ce mode d'acquisition en coïncidence permet de corréler les événements et donc de distinguer plus précisément les processus collisionnels et post-collisionnels.

Des expériences similaires à celles présentées précédemment ont été effectuées en prenant comme cible des agrégats de sodium. Nous présentons comme exemple, le spectre des états de charge (fig.10) de l'agrégat après collision enregistré par Chandezon et al [ref.85]. Le spectre montre une multitude de pics correspondant à des agrégats de sodium de différentes tailles et différemment ionisés  $\text{Na}_m^{r+}$ , dont l'identification n'est pas facile. Cela est dû en partie, aux voies de fragmentation d'un agrégat de sodium  $\text{Na}_n$ , mais surtout à la distribution (très large) en taille des agrégats. Le mode de production des agrégats de sodium ne permet pas d'avoir une taille précise. Pour cette expérience le nombre d'atomes par agrégat varie entre 20 et 600 atomes par agrégat [ref.86]. Le projectile utilisé est le  $\text{Xe}^{28+}$  dont la vitesse est ( $v \approx 0,4$  u.a).

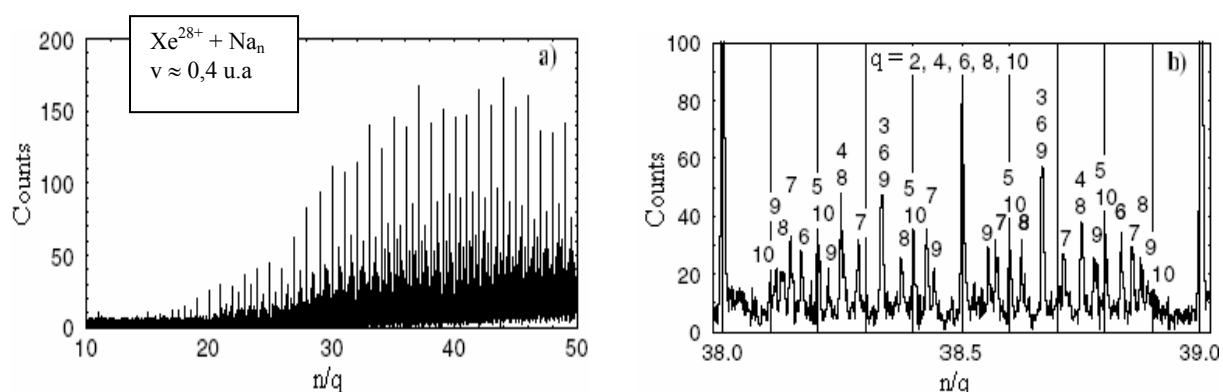


Figure (10) : spectre  $n/q$  des agrégats  $\text{Na}_n$  après collision (Chandezon et al) [ref.85]

Une seule étude expérimentale d'interaction avec des ions multichargés a eu comme cible des agrégats de gaz rare [ref.79] en l'occurrence des agrégats d'argon dont la taille moyenne est de 10 atomes par agrégat ( $\langle n \rangle = 10$ ). Le spectre que nous présentons (fig.11) a été effectué avec le  $\text{Xe}^{5+}$  comme projectile avec une vitesse ( $v \approx 0,14$  u.a).

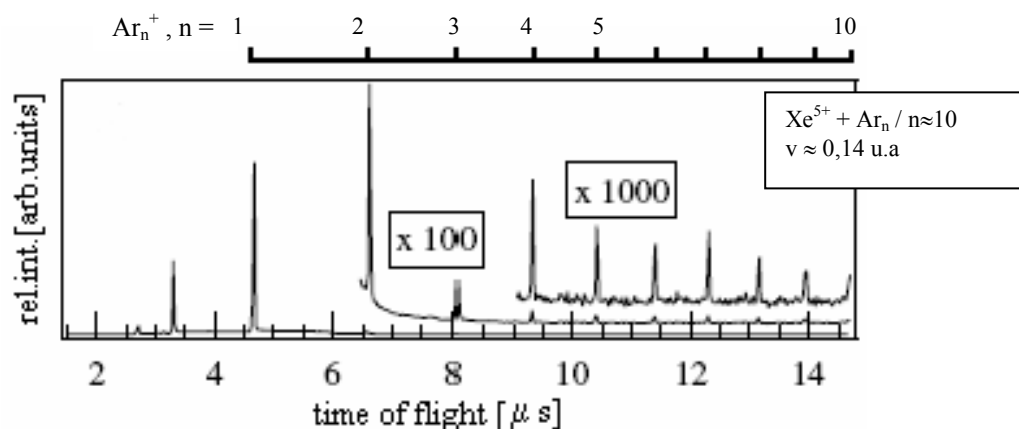


Figure (11) : spectre d'agrégats d'argon après collision (Tappe et al) [ref.79]

L'étude menée par Tappe et al [ref.79] sur l'agrégat d'argon met en évidence, comme dans le cas des agrégats de  $\text{C}_{60}$  et des agrégats de  $\text{Na}$ , une ionisation forte de la cible, l'ion projectile capture donc un certain nombre d'électrons laissant l'agrégat ionisé. Ce dernier peut ne pas se fragmenter et rester stable en gardant l'état de charge dû à la capture électronique de l'ion projectile, ou se fragmenter donnant naissance à des agrégats plus petits ou à des atomes, qui peuvent être neutres ou ionisés.

Pour déterminer le degré d'ionisation des agrégats cibles, des expériences en multi-coïncidences ont été réalisées en mesurant le nombre d'électrons éjectés durant la collision, le nombre d'électrons stabilisés par le projectile après la collision et les fragments ionisés de l'agrégat après collision. La réaction donnée par l'équation (37) montre qu'on peut retrouver le nombre d'électrons arrachés ( $r$ ) à l'agrégat (électrons actifs) en connaissant le nombre d'électrons stabilisés ( $s$ ) et le nombre d'électrons éjectés ( $n_e = r-s$ ). Nous présentons en exemple les données déterminées par Bernard et al [ref.70] pour illustrer le degré d'ionisation de l'agrégat lors d'une collision avec un ion multichargé.

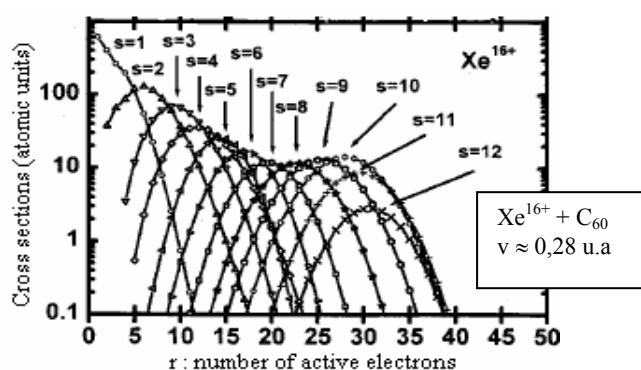


Figure (12) : sections efficaces de capture électronique (Bernard et al) [ref.70]

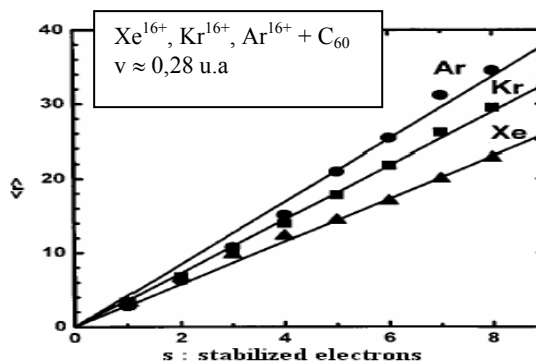


Figure (13) : nombre d' $e^-$  actifs / nombre d' $e^-$  stabilisés (Bernard et al) [ref.70]

L'expérience réalisée par Bernard et al avait comme partenaire de collision l'agrégat de  $C_{60}$  et des ions d'argon, de krypton et de xénon de même charge initiale (+16), les trois types d'ions ayant la même vitesse durant la collision ( $v \approx 0,28$  u.a). La figure (12) montre que le nombre maximum d'électrons actifs dépasse les 35 électrons dans le cas du  $Xe^{16+}$  comme projectile et la figure (13) donne le nombre d'électrons actifs moyen  $\langle r \rangle$  en fonction du nombre d'électrons stabilisés par les projectiles  $Ar^{16+}$ ,  $Kr^{16+}$  et  $Xe^{16+}$ . Cette étude montre que le nombre d'électrons arrachés à l'agrégat peut dépasser largement la charge initiale ( $q$ ) de l'ion projectile. Dans une expérience similaire, Chen et al [ref.87] ont montré que le  $Xe^{30+}$  ayant une vitesse ( $v \approx 0,39$  u.a) peut arracher jusqu'à 80 électrons de l'agrégat  $C_{60}$ , soit plus de 20% des électrons se trouvant dans la cible.

En conclusion, un ion lent multichargé entrant en collision avec un agrégat, ionisera ce dernier suivant différents degrés d'ionisation. Le nombre d'électrons actifs (arrachés) dépend de la charge initiale et de la vitesse du projectile mais surtout du paramètre d'impact. Pour les grands paramètres d'impact, le nombre d'électrons actifs est inférieur, ou de l'ordre de la charge initiale ( $q$ ) du projectile. Pour les paramètres d'impacts petits, le nombre d'électrons actifs dépasse largement la charge initiale ( $q$ ) du projectile [ref.75]. La réponse de l'agrégat à la forte ionisation provoquée par l'ion projectile se traduit schématiquement par deux voies, une stabilisation avec un état de charge ( $r$ ) ou une fragmentation.

### 3. Fragmentation et fission

Suivant le paramètre d'impact, un ion de charge ( $q$ ) et de vitesse ( $v$ ) dépose une certaine quantité d'énergie dans l'agrégat, les niveaux électroniques et vibrationnels dans l'agrégat sont alors dans des états excités [ref.88]. La quantité d'énergie déposée par l'ion projectile est d'autant plus grande que le paramètre d'impact ( $b$ ) est petit.

Lorsque (b) est grand devant le rayon de l'agrégat, ce dernier est ionisé mais reste stable, lorsque (b) est de l'ordre du rayon de l'agrégat, ce dernier se relaxe en émettant de petits fragments neutres ou ionisés et lorsque (b) est inférieur au rayon de l'agrégat (cas d'une collision frontale), il se produit une multi-fragmentation de l'agrégat [ref.89].

Dans le cadre d'une étude sur la fragmentation des agrégats d'argon par des ions d'argon mono-chargés, Kagawa et al [ref.80] ont effectué une simulation d'une multi-fragmentation d'un agrégat d'argon d'une taille de 1415 atomes en collision frontale avec un ion d' $\text{Ar}^+$  ( $v \approx 0,05$  u.a) (fig.14). Cette simulation montre, malgré la vitesse lente de l'ion projectile une multi-fragmentation intense (quasi atomisation) de l'agrégat. Par ailleurs Tappe et al [ref.79] dans une étude expérimentale, ont montré que les fragments de l'agrégat d'argon ( $\langle n \rangle = 10$ ) pouvaient être très chargés (fig.15). L'expérience a été effectuée en prenant le  $\text{Xe}^{25+}$  ( $v \approx 0,3$  u.a) comme projectile, la détection des fragments après collision montre l'existence, parmi les fragments, d'ions d'argons  $\text{Ar}^{r+}$  jusqu'à sept fois ionisés lors d'une seule collision.

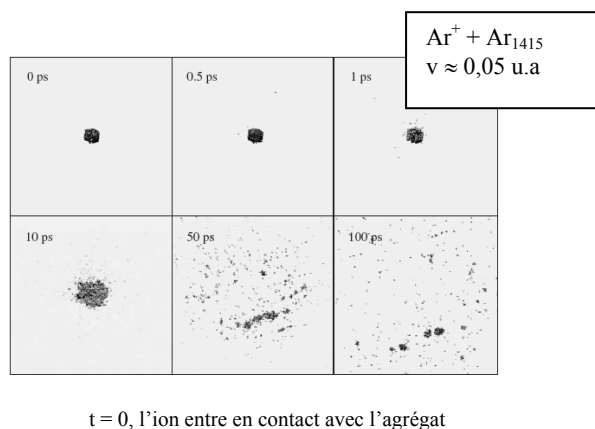


Figure (14) : simulation de la multi-fragmentation d'un agrégat d'argon (Kagawa et al) [ref.80]

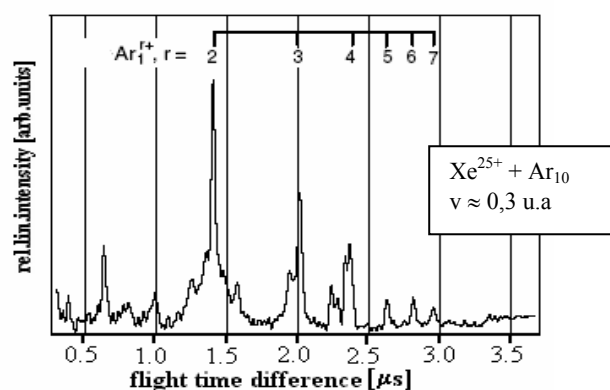


Figure (15) : détection de fragments  $\text{Ar}^{r+}$  après collision (Tappe et al) [ref.79]

Les agrégats de  $\text{C}_{60}$  ont fait l'objet d'études plus approfondies concernant leur fragmentation. Les spectres de fragments enregistrés après la collision montrent essentiellement, en plus des  $\text{C}_{60}^{r+}$  restés stables, des fragments de grande taille  $\text{C}_{60-2n}^{r+}$  et des fragments de petite taille  $\text{C}_m^+$ . Nous présentons pour illustrer le mode de fragmentation des agrégats de  $\text{C}_{60}$ , deux spectres, le premier (fig.16) enregistré par Martin et al [ref.90] avec des ions de  $\text{Xe}^{8+}$  ( $v \approx 0,2$  u.a) comme projectiles et le deuxième spectre (fig.17), enregistré par Reinkoster et al [ref.134] avec des ions  $\text{Ar}^+$  ( $v \approx 0,05$  u.a) comme projectiles.

Le mode de fragmentation d'un agrégat de  $\text{C}_{60}$  dépend de l'énergie déposée par l'ion projectile. Si l'agrégat ne peut rester stable, une évaporation a lieu, le  $\text{C}_{60}^{r+}$  émet alors une molécule  $\text{C}_2$ . Si l'énergie à l'intérieur du  $\text{C}_{60}^{r+}$  est plus importante, une fission asymétrique se produit, conduisant à deux fragments ionisés. Dans le cas d'une énergie déposée très grande, le  $\text{C}_{60}^{r+}$  se fragmente en plusieurs éléments, essentiellement ionisés une fois.

A petit paramètre d'impact, quand l'ion projectile dépose une énergie importante ( $> 200$  eV) dans l'agrégat de  $\text{C}_{60}$  et ionise fortement ce dernier, il se produit une fragmentation induisant une destruction de la structure du fullerène [ref.88]. Pour des énergies plus petites, l'agrégat  $\text{C}_{60}$  ionisé favorise la fission asymétrique pour se relaxer.

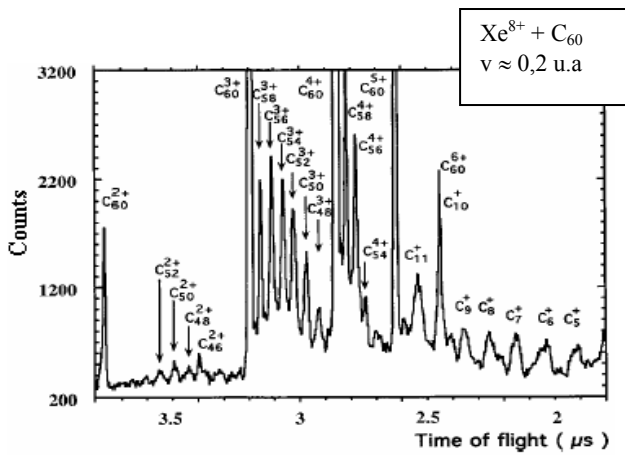


Figure (16) : mode de fragmentation du  $C_{60}$  (Martin et al) [ref.90]

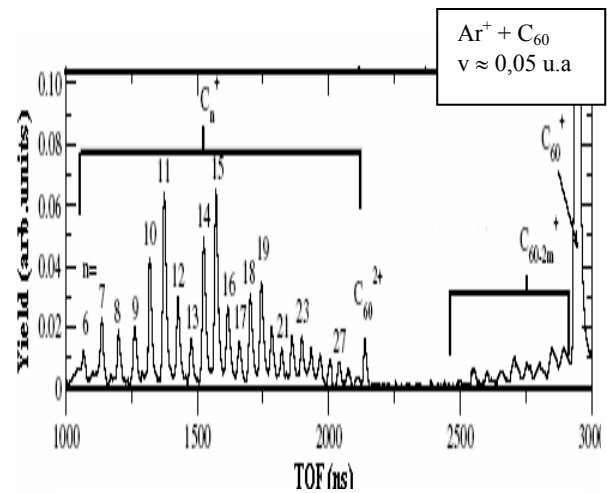


Figure (17) : mode de fragmentation du  $C_{60}$  (Reinkoster et al) [ref.134]

La fission asymétrique est l'éjection d'un petit agrégat  $C_m^+$  et la structure fullerène est modifiée en  $C_{60-2n}^{r+}$ . La figure (18) illustre le mode de relaxation du  $C_{60}^{4+}$  par évaporation ou fission, donnant lieu à des composés carboniques de type  $C_{60-2n}^{4+}$  ou  $C_{60-2n}^{3+}$  [ref.91]. La figure (19) illustre la compétition entre stabilité, évaporation, fission et multi-fragmentation dans un agrégat de  $C_{60}^{r+}$  après collision avec des ions lents [ref.83].

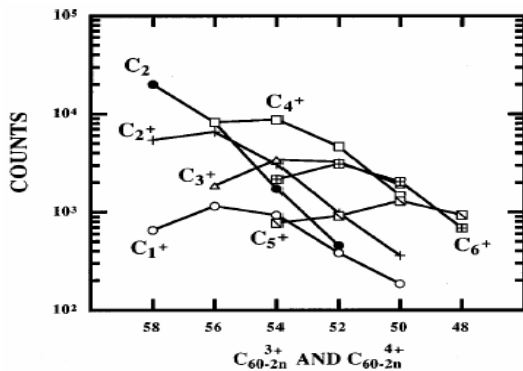


Figure (18) : évaporation et fission du  $C_{60}^{4+}$  lors de la collision [ref.91]

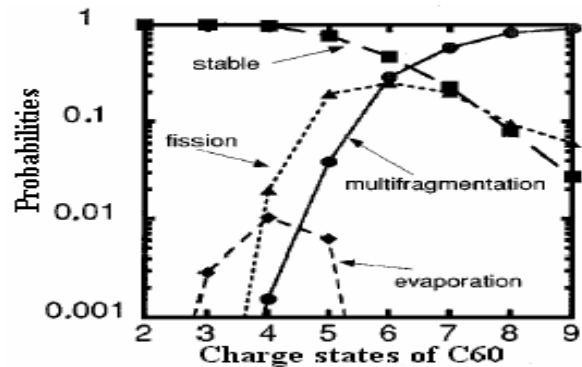


Figure (19) : processus de relaxation du  $C_{60}^{r+}$  [ref.83]

Dans le cas d'une émission par l'agrégat  $C_{60}^{r+}$  engendré par collision d'un ion multichargé, de petits fragments  $C_m^+$ , ces derniers sont éjectés avec une certaine énergie cinétique, qui dépend de la quantité d'énergie déposée par l'ion projectile. Dans une étude expérimentale Tomita et al [ref.92] ont mesuré l'énergie cinétique des  $C_m^+$  issues de la fragmentation du  $C_{60}^{r+}$  en utilisant des ions  $Xe^{25+}$  ( $v \approx 0,3$  u.a) comme projectiles (fig.20). Les fragments sont éjectés avec une énergie cinétique qui varie approximativement entre 5 et 20 eV selon la taille du fragment, les plus légers ayant la plus grande énergie cinétique.

Dans le cas des agrégats de sodium  $Na_n$ , le dépôt d'énergie induit une fragmentation essentiellement par voies de fission, donnant lieu à des fragments  $Na_m^{q+}$  dont la charge ( $q$ ) dépend de la taille ( $m$ ) du fragment [ref.93].



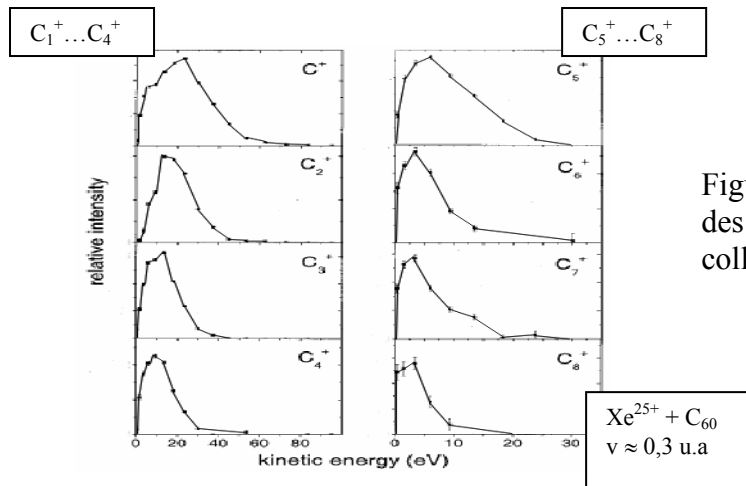


Figure (20) : énergie cinétique des petits fragments  $C_m^+$  après collision (Tomita et al) [ref.92]

Les études menées sur la fragmentation par fission des agrégats de sodium après collision, notamment par Chandezon et al [ref.93] et par Ntamack et al [ref.94], montrent que l'agrégat de sodium peut se fragmenter suivant un grand nombre de voies possibles avec une large distribution en tailles (fig.21). Afin de trouver une relation entre la taille de l'agrégat après collision et sa charge ( $q$ ), ces études ont comparé les résultats expérimentaux avec le modèle de la goutte chargée [ref.94], qui considère l'agrégat de sodium comme une goutte liquide chargée et sphérique dont la stabilité dépend de la compétition entre les forces Coulombiennes répulsives et les forces de surfaces attractives.

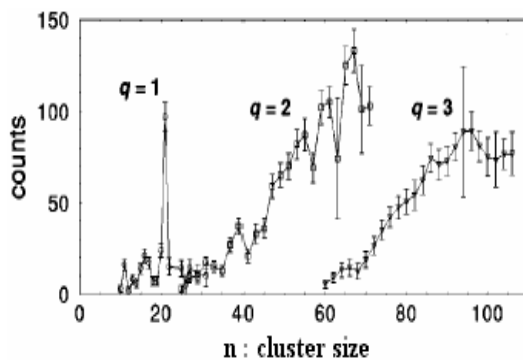


Figure (21) : charge et taille des fragments de sodium [ref.68]

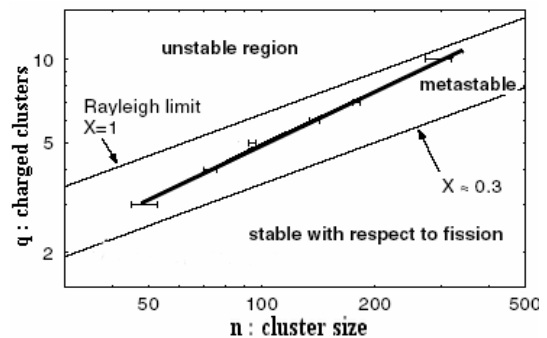


Figure (22) : fissilité des agrégats de sodium [ref.69]

Dans le modèle de la goutte liquide, on définit la fissilité ( $X$ ) comme étant le rapport entre l'énergie Coulombienne ( $E_C$ ) et deux fois l'énergie de surface ( $E_S$ ), [ $X = E_C / 2 \cdot E_S$ ], dans le cas où ( $X \geq 1$ ), la goutte explose. Les études expérimentales citées ci dessus, ont montré que la fissilité des agrégats de sodium de taille moyenne est inférieure à la limite théorique de la goutte chargée (limite de Rayleigh) (fig.22). Ceci illustre la forte tendance des agrégats de sodium à la fission dès qu'une certaine quantité d'énergie y est déposée.

Les études menées sur la fragmentation des agrégats de sodium et des agrégats de  $C_{60}$  montrent en définitive que les ions issus de cette fragmentation sont essentiellement mono-chargés lorsqu'ils sont de petite taille. Dans le cas des agrégats de sodium, pour que l'ion produit lors de la fragmentation soit doublement ou triplement chargé, il faut que l'agrégat contienne un grand nombre d'atomes. Ce mode de fragmentation s'explique par la grande mobilité de charge dans les agrégats de sodium et de  $C_{60}$  après ionisation [ref.79], la charge étant répartie sur tout l'agrégat.

Comme on pouvait s'y attendre, les agrégats de sodium sont conducteurs, et la mobilité de charge sur la structure sphérique du  $C_{60}$  montre que les électrons sont délocalisés et que l'agrégat de  $C_{60}$  est de nature conductrice [ref.78].

Par contre l'observation de fragments très chargés, notamment l' $Ar^{7+}$  lors d'une collision d'un ion avec un agrégat d'argon [ref.79], montre que les électrons de l'agrégat n'ont pas équilibré la densité de charge créée par l'ionisation de l'ion projectile sur une zone limitée de l'agrégat. Cette observation indique que les électrons ne sont pas mobiles, ou du moins très peu mobiles dans un agrégat d'argon. En conséquence l'agrégat d'argon et les agrégats de gaz rare en général ont une nature diélectrique.

#### 4. Capture électronique et énergie du projectile

Les études expérimentales qui se sont intéressées au devenir de l'ion projectile après une collision avec un agrégat, ont été réalisées à notre connaissance exclusivement avec des cibles d'agrégat de  $C_{60}$ . En conséquence, dans la suite de cette section de chapitre, les données expérimentales que nous présenterons, relatives aux travaux des différentes équipes, avaient comme cible l'agrégat de  $C_{60}$ .

En s'approchant d'un agrégat, un ion lent multichargé arrache ( $r$ ) électrons de la cible, ces électrons sont dits actifs. L'ion projectile ne garde pas la totalité de ces électrons, mais il en perd un certain nombre par auto-ionisation (effet Auger) et en garde un certain nombre ( $s$ ), ces derniers sont appelés des électrons stabilisés par le projectile. Avec un spectromètre ionique, récoltant et mesurant l'état de charge final des ions en sortie de collision, Chen et al [ref.87] (fig.23) ont enregistré un spectre d'états de charge après collision des ions  $Xe^{30+}$  ( $v \approx 0,39$  u.a). Dans une expérience similaire, Martin et al [ref.95] (fig.24) ont enregistré un autre spectre d'états de charge en prenant le  $Xe^{15+}$  ( $v \approx 0,28$  u.a) comme projectile. Les deux spectres montrent que l'ion en sortie de collision peut stabiliser un grand nombre d'électrons mais ne se neutralise pas complètement en post-collision, conséquence de l'effet Auger.

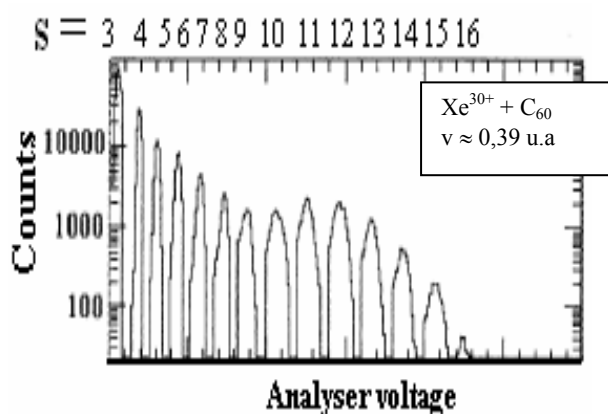


Figure (23) : stabilisation des électrons par du  $Xe^{30+}$  (Chen et al) [ref.87]

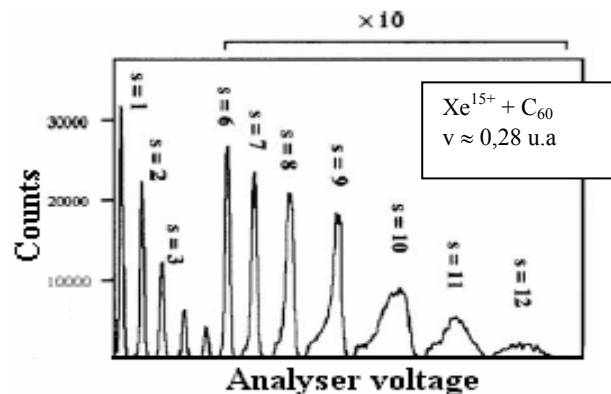


Figure (24) : stabilisation des électrons par du  $Xe^{15+}$  (Martin et al) [ref.95]

Le nombre d'électrons stabilisés ( $s$ ) par l'ion dépend du nombre d'électrons qu'il a initialement capturé ( $r$ ) et donc du paramètre d'impact. A grand paramètre d'impact, l'ion incident capture un petit nombre d'électrons ( $r$ ) et en conséquence stabilise un nombre encore plus petit d'électrons.

Dans le cas de l'expérience réalisée par Chen et al [ref.87] (fig.23), il a été observé que les ions ayant stabilisé 7 électrons et moins correspondaient à des ions passant à grand paramètre d'impact et que les ions ayant stabilisé 10 électrons et plus correspondaient à des ions passant à petit paramètre d'impact par rapport à l'agrégat.

Nous reprenons ici la classification en paramètre d'impact utilisée notamment par Martin et al [ref.70]. Le paramètre d'impact est dit petit s'il est inférieur ou égal au rayon de l'agrégat (collision solid-like), dans ce cas le nombre d'électrons actifs excède la charge de l'ion projectile. Si le paramètre d'impact est compris entre le rayon de l'agrégat et une distance permettant à l'ion d'arracher un nombre d'électrons égal à sa charge initiale ( $q$ ), le paramètre d'impact est dit intermédiaire (collision surface-like). Enfin lorsque le nombre d'électrons actif est inférieur à la charge ( $q$ ) de l'ion projectile, le paramètre d'impact correspondant est dit grand (collision atom-like).

Le nombre d'électrons capturés par l'ion projectile dépend donc du paramètre d'impact ( $b$ ), en conséquence le nombre d'électrons stabilisés également. Les sections efficaces dépendent elles aussi du paramètre d'impact ( $b$ ) et donc du nombre d'électrons stabilisés. La figure (25) montre les sections efficaces expérimentales pour qu'un ion  $\text{Ar}^{8+}$  stabilise ( $s$ ) électrons. Les données ont été enregistrées à différentes vitesses de l'ion projectile, ( $v \approx 0,16$  u.a) [ref.75], ( $v \approx 0,24$  u.a) [ref.81] et ( $v \approx 0,28$  u.a) [ref.96]. La bosse observée pour des ( $s$ ) grands sur les trois spectres a été attribuée à des cas où l'ion passe à l'intérieur de l'agrégat (petit paramètre d'impact). Par ailleurs d'autres études expérimentales ont été réalisées pour mesurer la charge finale des ions en collision frontale (solid-like).

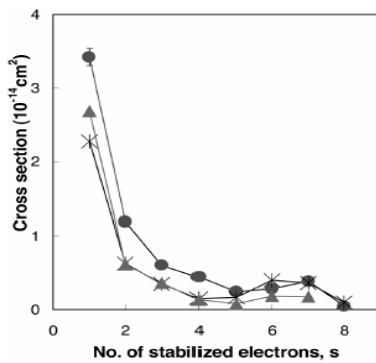


Fig 25 : section efficace et électrons stabilisés [ref.75]

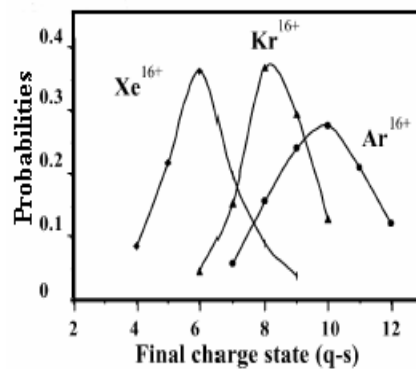


Fig 26 : charge finale et nature du projectile [ref.97]

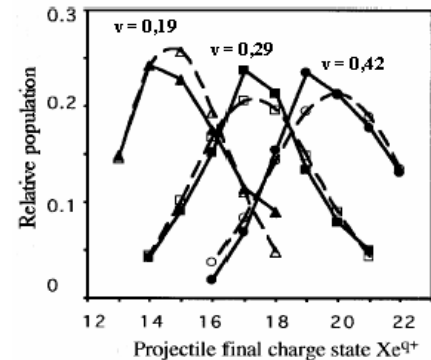


Fig 27 : charge finale et vitesse du projectile [ref.77]

Ces études ont montré en utilisant comme projectile l'Ar, le Kr et la Xe avec une même charge initiale ( $q = 16$ ) et possédant la même vitesse ( $v \approx 0,28$  u.a), que la charge finale ( $q-s$ ) dépend aussi de la nature du projectile (fig.26) [ref.97]. La charge finale dépend également de la vitesse du projectile [ref.77], comme le montre la figure (27), (le projectile utilisé pour cette dernière expérience est le  $\text{Xe}^{30+}$ ). Par ailleurs, dans une expérience réalisée par Martin et al [ref.95] utilisant différents états de charge de xénon comme projectiles et possédant la même vitesse initiale ( $v \approx 0,28$  u.a), il a été observé que ces ions stabilisent un nombre moyen d'électrons ( $s$ ) qui dépend de leur charge initiale ( $q$ ). Le nombre d'électrons stabilisés varie alors entre 10 électrons pour le  $\text{Xe}^{15+}$  et 16 électrons pour le  $\text{Xe}^{30+}$ .

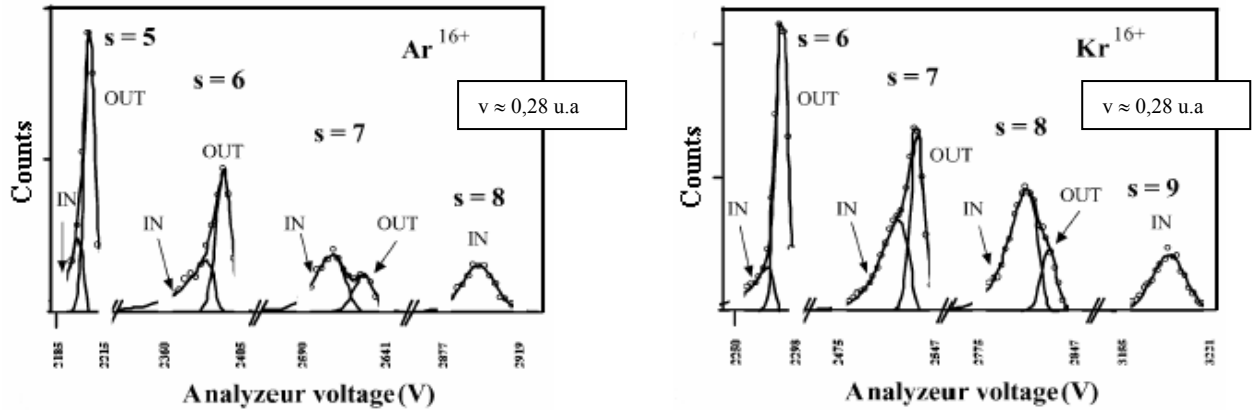


Figure (28) : dédoublement des pics d'état de charge des ions en sortie de collision [Bredy et al] [ref.97]

Une observation détaillée des spectres d'états de charge des ions en sortie de collision, notamment ceux enregistrés par Bredy et al [ref.97], montrent (fig.28) un dédoublement des pics intermédiaires (nombre d'électrons stabilisés intermédiaire). Ce dédoublement des pics est attribué d'une part aux ions qui sont passés à l'extérieur de l'agrégat (ions OUT) et aux ions qui d'autre part sont passés à l'intérieur de l'agrégat (ions IN). En considérant qu'en collision périphérique (grand paramètre d'impact), les ions gardent approximativement leur énergie cinétique, il a été déterminé à partir de cette expérience la perte en énergie des ions en collision frontale.

Les mesures de pertes d'énergie en collision frontale déterminées à partir des spectres de la figure (28), ont montré que l'énergie cédée ( $\Delta E$ ) pendant la collision dans cette gamme de vitesse ( $v \approx 0,28$  u.a) dans un agrégat de  $C_{60}$  est de l'ordre de plusieurs centaines d'eV. Elle est approximativement de 1200 eV pour l' $Ar^{16+}$  ayant stabilisé 6 électrons ( $Ar^{10+}$  en sortie de collision) et de 950 eV pour le  $Kr^{16+}$  ayant stabilisé 8 électrons ( $Kr^{8+}$  en sortie de collision).

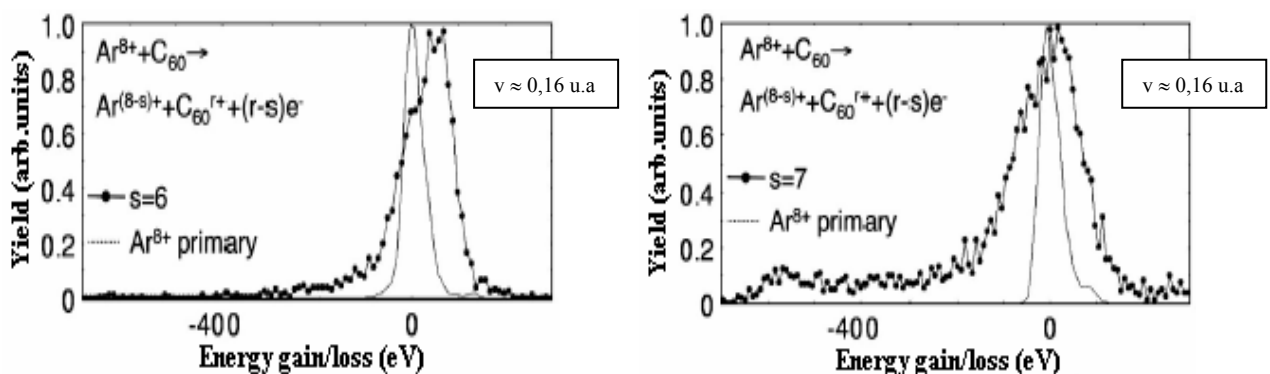


Figure (29) : perte et gain en énergie de l' $Ar^{8+}$  ayant stabilisé 6 et 7 électrons [Cederquist et al] [ref.75]

D'autres études expérimentales, notamment celle effectuées par Cederquist et al [ref.75], où le projectile était de l' $Ar^{8+}$  ( $v \approx 0,16$  u.a), ont montré que l'ion peut perdre de son énergie cinétique mais qu'il peut aussi en gagner (fig.29). Le gain en énergie d'un ion est du au transfert des électrons de la cible vers le projectile.

Les électrons sont transférés de l'agrégat vers l'ion en résonance en gardant approximativement la même énergie de liaison. Dans le cas où l'énergie de liaison dans l'agrégat est plus grande de ( $\Delta E$ ) par rapport à l'énergie de liaison dans l'ion après la capture, l'excédent en énergie ( $\Delta E$ ) est transmis à l'ion sous forme d'énergie cinétique.

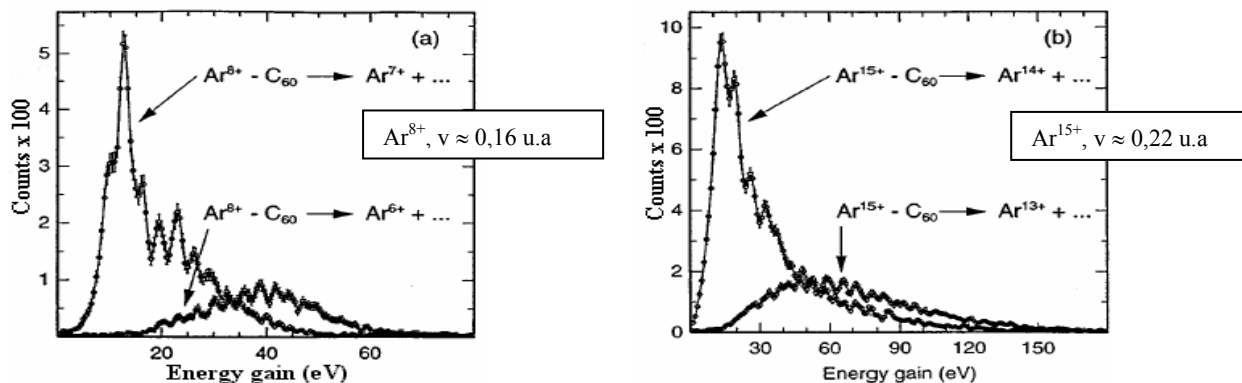


Figure (30) : gain en énergie des ions d'argon ayant stabilisé 1 et 2 électrons [Selberg et al] [ref.98]

Le gain en énergie d'un ion en collision avec un agrégat  $C_{60}$  est en moyenne de l'ordre de quelques dizaines d'eV. Celui-ci dépend du nombre d'électrons stabilisé par le projectile et de la charge initiale ( $q$ ) de ce dernier, comme le montre l'étude réalisée par Selberg et al [ref.98]. Les spectres que nous présentons (fig.30) en exemple, ont été enregistrés avec des ions d'argon comme projectile ( $Ar^{8+}$  et  $Ar^{15+}$ ) et pour une stabilisation d'un et deux électrons dans les deux cas (collisions à grand paramètre d'impact). La vitesse initiale des ions d' $Ar^{8+}$  et d' $Ar^{15+}$  était respectivement de (0,16 u.a.) et de (0,22 u.a.).

Les différentes études expérimentales présentées ci-dessus, semblent montrer que la perte en énergie, ou le gain en énergie d'un ion dépend du nombre d'électrons qu'il stabilise et donc de sa variation de charge durant la collision et en conséquence de sa charge initiale. Pour résumer cet aspect, nous présentons deux graphiques, le premier (fig.31) donnant la perte en énergie par collision frontale des ions de  $Xe^{q+}$ , ( $q$ , charge initiale) variant entre 15 et 30 [ref.95] et le deuxième (fig.32) donnant le gain en énergie des ions d' $Ar^{8+}$  ayant stabilisés après collision de 1 à 6 électrons [ref.99].

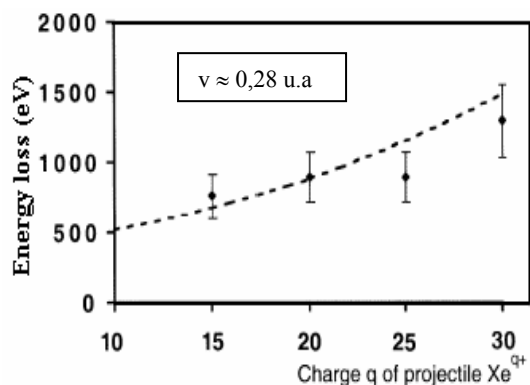


Fig (31) : perte en énergie du  $Xe^{q+}$  en collision frontale [ref.95]

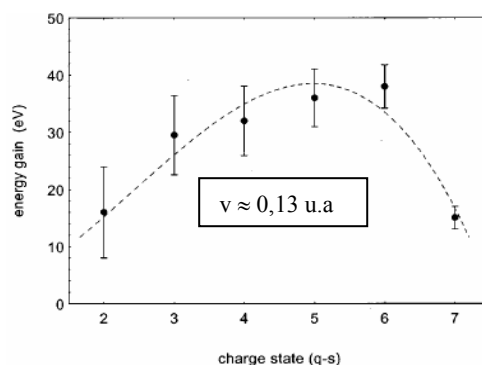


Fig (32) : gain en énergie de  $Ar^{8+}$  en collision avec le  $C_{60}$  [ref.99]

## 5. Emission électronique et photonique

Un ion lent multichargé en interaction avec un agrégat capture un certain nombre d'électrons qui peut être important par rapport à la charge initiale de l'ion. Cela s'explique en considérant l'agrégat comme un réservoir d'électrons, bien plus nombreux que dans le cas d'un atome isolé. En conséquence d'un nombre d'électrons plus nombreux capturés, le nombre d'électrons stabilisé par l'ion sera plus grand dans le cas d'une collision avec un agrégat par rapport à une collision avec un atome.

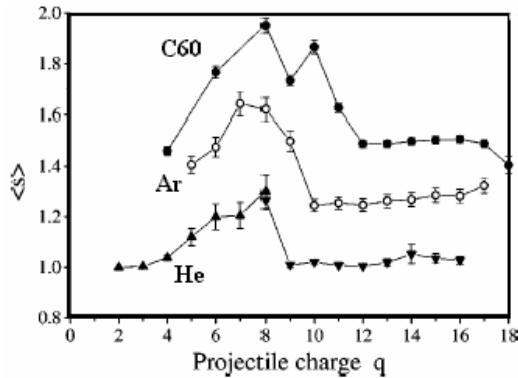


Figure (33) : comparaison entre le nombre d'électrons stabilisés par l' $\text{Ar}^{q+}$  en collisions avec différentes cibles. Les vitesses des projectiles sont de 0,2 / 0,6 et 0,2 u.a pour les cibles  $\text{C}_{60}$ , l'Ar et l'He [Langereis et al] [ref.100]

Langereis et al [ref.100] ont mesuré le nombre moyen d'électrons stabilisé  $\langle s \rangle$  en fonction de la charge ( $q$ ) du projectile, pour des ions argon en collision avec des  $\text{C}_{60}$  et ont fait une comparaison avec d'autres études expérimentales [ref.56] [ref.101] ayant utilisé le même projectile mais en prenant comme cible des atomes d'argon et d'hélium (fig.33). La comparaison semble montrer que plus la cible contient un grand nombre d'électrons, plus l'ion projectile en stabilisera. Cette observation, va donc dans le sens prévu et appuie l'image qu'un agrégat est un réservoir d'électrons.

En capturant un nombre ( $r$ ) d'électrons, l'ion multichargé n'en garde qu'une partie ( $s$ ) et la différence ( $r-s$ ) est donc éjectée. L'émission de ( $r-s$ ) électrons par l'ion durant ou après la collision est un moyen pour ce dernier de se relaxer et de retrouver son état fondamental. L'interaction d'un ion lent avec un agrégat donne lieu à un transfert d'électrons de la cible vers le projectile, ce transfert (capture) se fait en résonance, l'électron garde ainsi approximativement la même énergie de liaison. Les électrons se retrouvent donc durant le transfert dans des niveaux excités de l'ion projectile et donnent lieu à une cascade de transitions Auger (auto-ionisation) et donc à une émission d'électrons.

Quelques études expérimentales se sont intéressées à l'émission électronique des ions projectile en collision avec un agrégat de  $\text{C}_{60}$ , notamment celles effectuées par le groupe de Martin et al [ref.87], [ref.102]. Dans ces études, il s'agit d'extraire de la zone de collision, en appliquant un potentiel positif, les électrons émis par les ions et d'en faire le comptage avec un détecteur, l'acquisition se faisant en coïncidence avec un état de charge donné de l'ion après collision. Les expériences ont été réalisées respectivement avec du  $\text{Xe}^{30+}$  ( $v \approx 0,39$  u.a) et du  $\text{Xe}^{25+}$  ( $v \approx 0,38$  u.a) comme projectile, en coïncidence dans le premier cas avec l'ion  $\text{Xe}^{27+}$  (3 électrons stabilisés) et dans le deuxième cas en coïncidence avec le  $\text{Xe}^{23+}$  (2 électrons stabilisés).

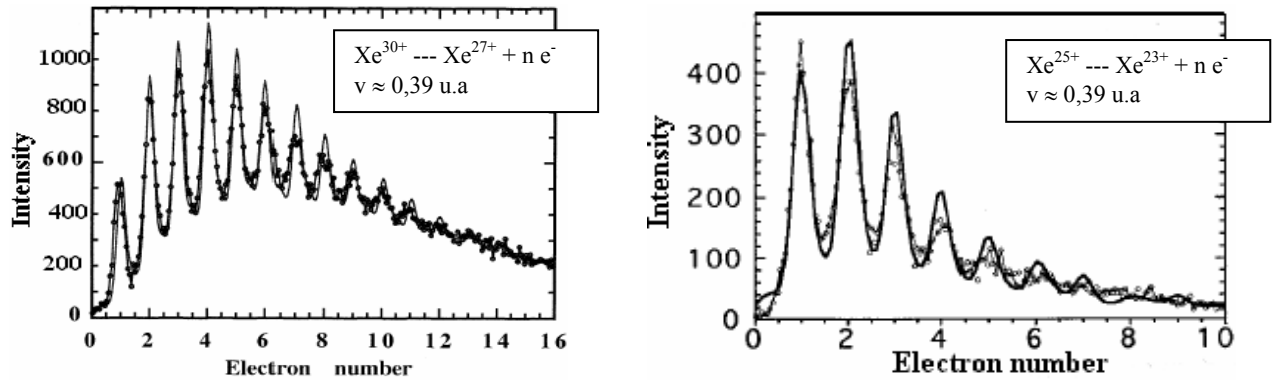


Figure (34) : émission électronique,  $\text{Xe}^{30+}$  et  $\text{Xe}^{25+}$  comme projectiles [ref.87] [ref.102]

La figure (34) représente les spectres de multiplicité électronique obtenus par Martin, Chen et al. En stabilisant 3 électrons, un ion  $\text{Xe}^{30+}$  émet de 1 à 12 électrons, le nombre d'électrons actifs (arrachés à l'agrégat) varie donc de 4 à 15 électrons. La distribution des électrons émis dans le cas du  $\text{Xe}^{25+}$  varie entre 1 et 8 électrons en stabilisant 2 électrons. Chen et al [ref.87] ont également observé que dans le cas extrême, lorsque l'ion  $\text{Xe}^{30+}$  stabilise 12 électrons, il peut émettre jusqu'à 68 électrons. Ce type d'expériences a montré que le nombre d'électrons stabilisés ( $s$ ) est largement inférieur au nombre moyen d'électrons éjectés  $\langle r-s \rangle$ , la moyenne étant extraite à partir de l'intensité des pics.

A partir des spectres de multiplicité électronique (fig.34) (nombre d'électrons émis), il est possible d'extraire la distribution en nombre d'électrons émis et donc d'avoir l'information sur la moyenne d'électrons éjectés par effet Auger (auto-ionisation) durant la collision et en post collision. La figure (35) montre la distribution des électrons éjectés par des ions projectiles d' $\text{Ar}^{16+}$  ( $v \approx 0,28$  u.a) ayant stabilisé 2 et 7 électrons ( $\text{Ar}^{14+}$  et  $\text{Ar}^{9+}$  en sortie) déterminée par Bernard et al [ref.70]. Le nombre moyen d'électrons éjectés pour 2 électrons stabilisés est de 3 électrons, alors que le nombre moyen d'électrons éjectés pour 7 électrons stabilisés est de 24 électrons. Dans ce dernier cas 31 électrons sont arrachés à la cible alors que la charge initiale du projectile était de ( $q = 16$ ).

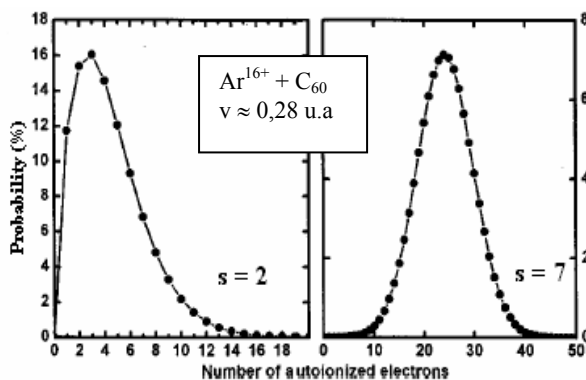


Figure (35) : distribution du nombre d'électrons éjectés [Bernard et al] [ref.70]

D'autres études similaires et du même ordre que celles présentées précédemment (fig.34, 35), ont été effectuées de façon systématique pour déterminer le nombre moyen d'électrons éjectés par les ions [ $\langle r-s \rangle = \langle n_e \rangle$ ] en fonction de la charge initiale ( $q$ ) du projectile, du nombre d'électrons stabilisés ( $s$ ) et du nombre d'électrons actifs ( $r$ ) (arrachés à la cible).

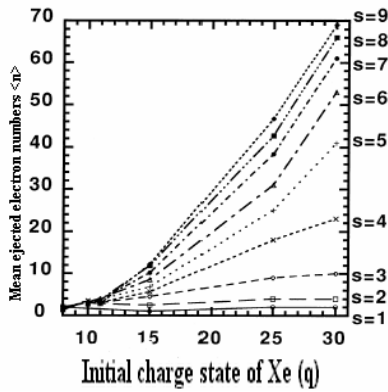


Fig (36) :  $\langle n_e \rangle$  en fonction de (q) et (s) [ref.87]

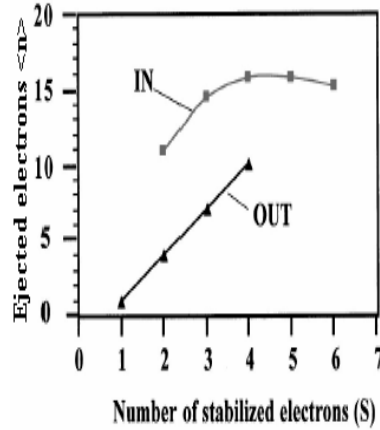


Fig (37) :  $\langle n_e \rangle$  en fonction de (s) [ref.74]

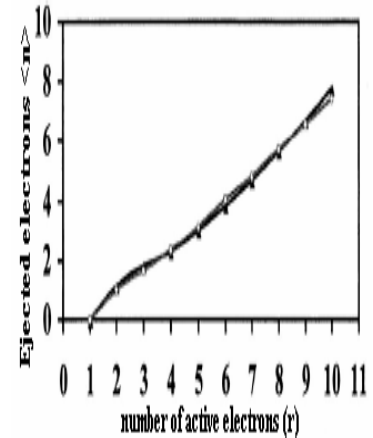


Fig (38) :  $\langle n_e \rangle$  en fonction de (r) [ref.74]

La figure (36) représente le nombre d'électrons éjectés en fonction de la charge initiale ( $q = 8, 10, 11, 15, 25, 30$ ) d'ions xénon utilisés comme projectile [ref.87], montrant que  $\langle n_e \rangle$  augmente avec la charge initiale du projectile et avec le nombre d'électrons stabilisés par les ions. Les figures (37) et (38) ont été déterminées dans le cas du  $\text{Ne}^{10+}$ , utilisé comme projectile ( $v \approx 0,42$  u.a) [ref.74]. Là aussi, le nombre moyen d'électrons éjectés  $\langle n_e \rangle$  dépend du nombre d'électrons stabilisés par les ions, mais est différent suivant que l'ion est en collision frontale ou périphérique par rapport à la cible (IN et OUT), le nombre d'électrons éjectés étant plus grand dans le premier cas. Ceci indique une nouvelle fois une dépendance du nombre d'électrons émis  $\langle n_e \rangle$  et en conséquence du nombre d'électrons actifs (r) (fig.38) en fonction du paramètre d'impact de la collision.

L'émission électronique des ions projectiles est due à leur relaxation par effet Auger. Les niveaux dans lesquels l'ion projectile capture les électrons sont de grand nombre quantique, peuplant ainsi des niveaux élevés (états de Rydberg) et laissant les niveaux bas vides, créant ainsi un ion ou un atome dit creux (hollow atom). La désexcitation intervient dès que l'ion a capturé deux électrons et plus, il s'en suit une cascade de transitions Auger amenant les électrons vers des niveaux plus bas. Le nombre d'électrons éjectés durant la relaxation dépend du nombre d'étapes dans la cascade Auger. Plus les électrons sont initialement dans des niveaux élevés, plus le nombre d'étapes dans la cascade Auger sera important et donc le nombre d'électrons éjectés sera élevé.

L'émission électronique des ions peut être un moyen intéressant pour étudier la formation des atomes creux et leur relaxation durant des collisions avec des agrégats. A notre connaissance, aucune étude expérimentale ayant fait l'objet de publication n'a directement étudié ce phénomène, qui nécessite l'utilisation d'une spectroscopie Auger. Néanmoins, des études expérimentales, notamment celle effectuée par Bredy, Martin et al [ref.103], ont permis d'obtenir indirectement une information sur l'énergie des électrons éjectés en faisant varier le potentiel d'extraction des électrons dans la zone de collision. La figure (39) donne l'énergie des électrons ainsi déterminée lorsque l'ion projectile  $\text{Xe}^{30+}$  ( $v \approx 0,2$  u.a) émet en collision avec un agrégat de  $\text{C}_{60}$  de 1 à 4 électrons. Il a été trouvé durant cette étude que 80% des électrons possèdent une énergie cinétique inférieure à 100 eV et que 50% des électrons possèdent une énergie inférieure à 20 eV.



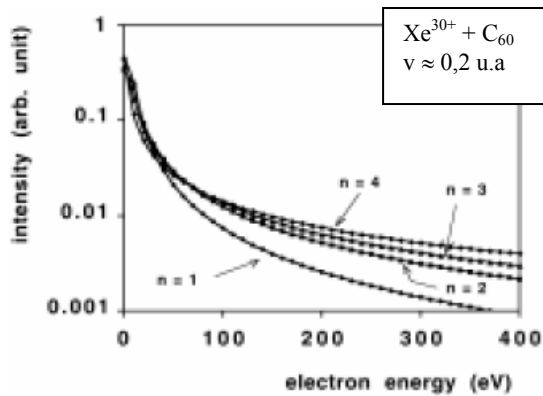


Figure (39) : énergie des électrons éjectés par le  $\text{Xe}^{30+}$ , (n) électrons éjectés [Bredy et al] [ref.103]

Durant la relaxation de l'atome ou de l'ion creux après la capture électronique, en plus du processus de désexcitation par effet Auger, l'autre moyen de désexcitation de l'atome creux est la transition radiative. Les électrons émettent un photon en passant d'un niveau (n1) vers un deuxième niveau (n2) plus bas. Ce mode de relaxation devient de plus en plus important quand les électrons se retrouvent dans les premiers niveaux énergétiques de l'atome, en l'occurrence les niveaux (L, M, N). L'étude de l'émission photonique par les ions en sortie de collision nous renseigne donc également sur le mode de relaxation des atomes creux et de leur formation. A notre connaissance, il n'existe qu'une seule étude expérimentale ayant fait l'objet d'une investigation relative à l'émission photonique d'un ion lent multichargé en interaction avec un agrégat (le  $\text{C}_{60}$ ) [ref.104].

Cette étude a été effectuée par Briand et al [ref.104] en utilisant l' $\text{Ar}^{17+}$  et l' $\text{Ar}^{18+}$  comme projectile ( $v \approx 0,42$  u.a) et ce par observation des photons X émis lors de la transition des électrons d'un niveau (n1) vers le niveau (K). Il a été utilisé pour cette expérience un détecteur à basse résolution de type silicium pour détecter les photons X. Les figures (40, 41) montrent les spectres enregistrés dans le cas de l' $\text{Ar}^{17+}$  et de l' $\text{Ar}^{18+}$ .

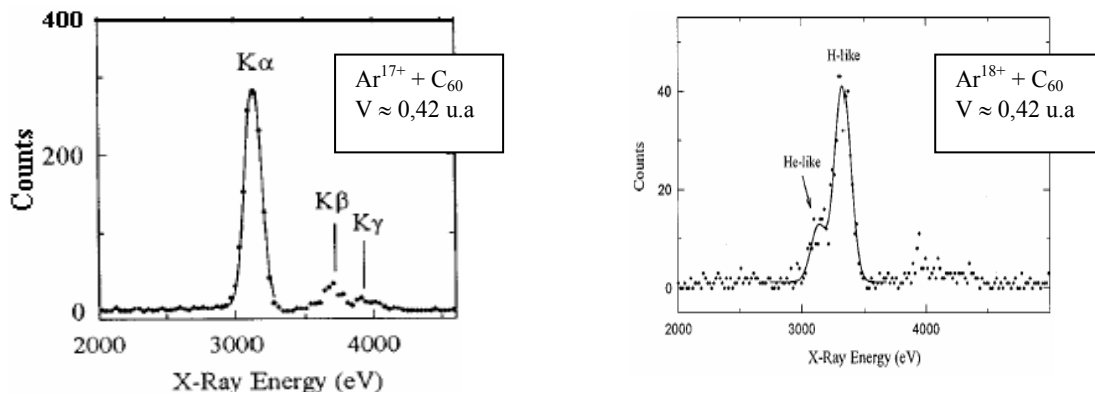


Figure (40), (41) : émission de photons X par les ions projectiles  $\text{Ar}^{17+}$  et  $\text{Ar}^{18+}$  [Briand et al] [ref.104]

Dans le cas de l' $\text{Ar}^{17+}$ , il a été observé des photons X correspondant à des transitions électroniques des niveaux (L, M et N) vers le niveau (K) de l'argon héliumoisé, notées dans la figure (40), ( $K_\alpha$ ,  $K_\beta$ , et  $K_\gamma$ ) et dans le cas de l' $\text{Ar}^{18+}$ , le spectre enregistré comprend deux pics, le plus intense correspond approximativement à la  $K_\alpha$  de l'argon hydrogénoïde (2 trous en couche K) et le deuxième à la  $K_\alpha$  de l'argon héliumoisé (1 trou en couche K), le premier trou étant occupé préalablement par une première transition probablement due à des collisions avec le gaz résiduel. La détection des photons X nous renseigne donc sur la dernière étape de la relaxation d'un atome creux et le retour de ce dernier à son état fondamental.

### III. Application à l'expérience $\text{Ne}^{9+}$ -agrégats d'argon

Dans cette dernière partie de chapitre, nous appliquerons les données théoriques présentées précédemment au cas particulier d'une collision d'un ion  $\text{Ne}^{9+}$  dont la vitesse initiale est de ( $v \approx 0,5$  u.a) correspondant à une énergie de 126 keV avec un agrégat d'argon dont le rayon est 2,85 nm (54 u.a) correspondant à un agrégat contenant 2600 atomes, qu'on peut produire avec le jet d'agrégat avec une pression amont  $P_0 = 3,2$  bar. Cette application est faite dans le but d'avoir une idée de la dynamique d'interaction de l'ion avec l'agrégat en se positionnant du côté du projectile et savoir ainsi à quoi nous pouvons nous attendre lors de la prise des données expérimentales.

Nous avons choisi pour cette application un agrégat d'argon de 2600 atomes, pour que la cible ait le caractère d'un solide d'argon (structure cristallographique en CFC) et pour que cela corresponde à un agrégat qui se trouve dans la gamme des tailles qui feront l'objet des premières investigations, qui se feront sur plusieurs centaines à quelques milliers d'atomes par agrégat. L'application que nous présentons se scinde en deux, selon le paramètre d'impact, le premier légèrement plus grand que le rayon de l'agrégat ( $10/9 R = 60$  u.a) et le deuxième, avec un paramètre d'impact nul.

Nous avons utilisé lors de cette application le potentiel donné par l'équation (3) de ce chapitre pour la détermination des distances de capture quand le projectile est au-dessus de la surface de l'agrégat, en prenant une permittivité relative de l'argon égale à 1,67 [ref.105]. Quand le projectile est dans l'agrégat (au-dessous de la surface), nous avons fait l'hypothèse d'un transfert d'électrons uniquement vers la couche M du projectile en utilisant le taux de transfert par side feeding ( $\Gamma_{\text{SF}} = q \cdot 0,0175$ ) déterminé à partir de l'équation (25). Nous avons déterminé ce taux de capture ( $\Gamma_{\text{SF}}$ ) en nous référant à l'étude effectuée par Winecki et al [ref.66], en prenant comme distance de capture  $r = 3,55$  u.a, soit la moitié de la distance inter-atomique dans l'argon solide. La densité atomique de l'agrégat ( $N_{\text{agr}}$ ) est de  $3,94 \cdot 10^{-3}$  atomes/u.a. Afin de suivre l'évolution du peuplement des différents niveaux du projectile, nous avons pris en considération à chaque fois et entre chaque séquence le taux de transition le plus grand entre le taux de capture par side feeding et les différents taux de désexcitation. De même, les événements sont supposés avoir lieu à des instants fixes correspondant à l'inverse de ces taux. Cela nous permet d'établir un scénario probable de capture et de désexcitation du projectile, qui ne reflète cependant qu'une éventualité parmi d'autres et ignore en tout cas les fluctuations statistiques qu'il faut bien sur prendre en compte dans un modèle réaliste.

#### 1. **Processus séquentiel d'une collision périphérique ( $b = 10/9 R$ )**

En s'approchant de la surface de l'agrégat d'argon, un ion  $\text{Ne}^{9+}$  avec un électron en couche (K), capturera le premier électron à ( $t = 0, x = 0$ ). L'électron ainsi capturé selon le modèle COB sera l'électron le moins lié de l'atome d'argon et se retrouvera sur le projectile en couche (O). En négligeant la multi-capture sur un atome, le paramètre d'impact du projectile ne permet pas à ce dernier de capturer le deuxième électron le moins lié du même atome d'argon, il s'avancera jusqu'à l'atome d'argon voisin pour effectuer une deuxième capture (fig.42), toujours en couche (O). L'ion creux ainsi formé avec 2 électrons en couche (O) se désexcitera alors par effet Auger ( $\Gamma_{\text{NOO}}$ ) juste après la deuxième capture (fig.42), pour se retrouver dans une configuration avec un électron en couche (K) et un électron en couche (N).

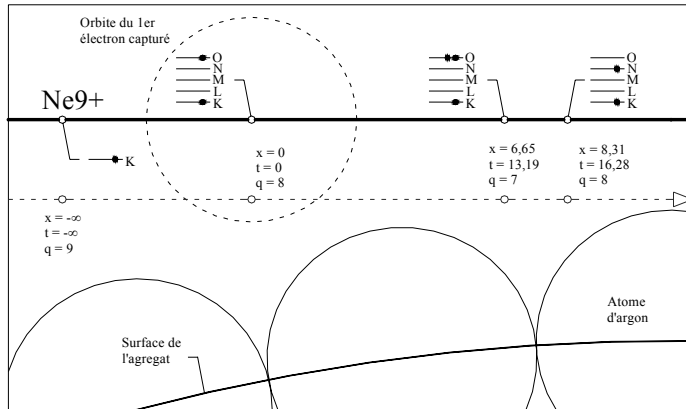


Figure (42) : première étape d'une collision d'un ion  $\text{Ne}^{9+}$  avec un agrégat d'argon, paramètre d'impact  $10/9 R$

En supposant que la trajectoire du projectile n'est pas trop affectée par sa charge image et par la répulsion Coulombienne des atomes ionisés et reste donc globalement rectiligne, une troisième capture électronique s'opèrera à ( $t \approx 28.7$ ,  $x \approx 14.5$ ) (fig.43), la capture du troisième électron se fera également en couche (O) selon le modèle COB. A partir de ce point, aucune autre capture électronique ne sera possible, l'ion étant en dehors de la zone de capture. Une deuxième désexcitation Auger de type ( $\Gamma_{MNO}$ ) se produira à ( $t \approx 31.6$ ,  $x \approx 31.1$ ) modifiant la configuration électronique de l'ion, qui devient, un électron en couche (K) et un électron en couche (M) (fig.43).

En dernière étape post-collisionnelle, l'ion  $\text{Ne}^{8+}$  ainsi formé retournera à son état fondamental ( $1s^2$ ) par désexcitation radiative, par émission d'une raie  $K_\beta$  (transition M vers K), ou bien par émission successive d'une raie  $L_\alpha$  (transition M vers L) et d'une raie  $K_\alpha$  (transition L vers K). En conclusion, le scénario de collision d'un ion  $\text{Ne}^{9+}$  avec un paramètre d'impact égal à  $10/9.R$  donne un nombre d'électrons actifs égal à 3, deux sont éjectés du projectile et un électron est stabilisé.

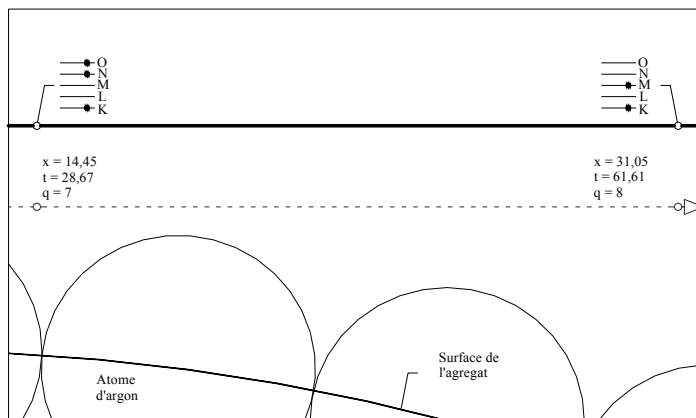


Figure (43) : deuxième étape d'une collision d'un ion  $\text{Ne}^{9+}$  avec un agrégat d'argon, paramètre d'impact  $10/9 R$

## 2. Processus séquentiel d'une collision frontale ( $b = 0$ )

Dans le cas d'un paramètre d'impact nul, l'ion  $\text{Ne}^{9+}$  capture également le premier électron (à  $t = 0$ ) et le deuxième électron en couche (O), les deux électrons proviennent d'un même atome d'argon supposé être en face du projectile.

Le rayon des orbitales des électrons capturés étant important, en s'approchant de la surface, il existe une très grande probabilité pour que l'ion creux perde les deux électrons capturés en couche (O) par peeling off (fig.44). En définitive, à une distance de la surface de l'agrégat de l'ordre du rayon atomique d'un atome d'argon, le projectile redevient hydrogénoïde ( $\text{Ne}^{9+}$ ). Dans ce scénario de capture électronique en collision frontale, nous supposons que le mécanisme du side feeding intervient lorsque l'ion pénètre dans l'agrégat et se retrouve au-dessous de la surface.

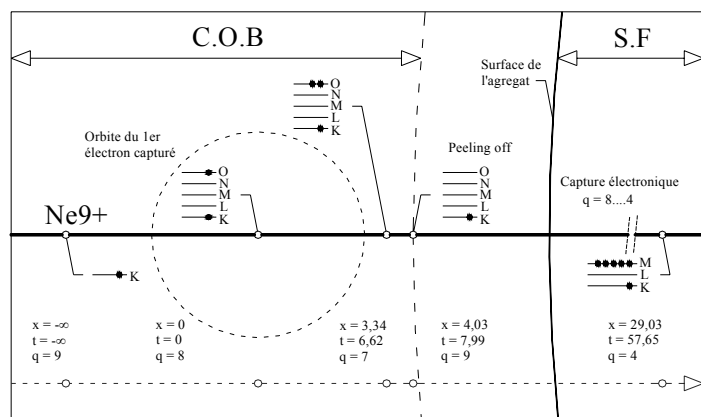


Figure (44) : première étape d'une collision d'un ion  $\text{Ne}^{9+}$  avec un agrégat d'argon, paramètre d'impact nul

En pénétrant dans l'agrégat, le projectile capturera des électrons en couches internes par side feeding. Nous avons fait l'hypothèse d'un remplissage exclusif de la couche (M), en rapport avec les études expérimentales faites en interaction ions lents-surfaces décrites plus haut dans le chapitre. Le taux de capture ( $\Gamma_{\text{SF}}$ ) étant grand, le projectile capturera successivement 5 électrons très rapidement et à ( $t \approx 57.7$ ,  $x \approx 29.0$ ) l'ion aura une charge ( $q = 4$ ), avec 5 électrons en couche (M) et 1 électron en couche (K) (fig.44) formant ainsi un ion creux compact de deuxième génération.

Plus le nombre d'électrons en couche (M) augmente, plus le taux de transition Auger ( $\Gamma_{\text{LMM}}$ ) augmente également. Dans notre scénario simplifié, au voisinage de l'instant où le nombre d'électrons en couche (M) atteint le nombre cinq, il se produit une désexcitation Auger ( $\Gamma_{\text{LMM}}$ ) ( $t \approx 61.8$ ,  $x \approx 31.1$ ). Une deuxième désexcitation par effet Auger survient après la première ( $t \approx 72.2$ ,  $x \approx 36.4$ ) et ce avant la capture d'un sixième électron par le projectile (fig.45). Le nombre d'électrons en couche (M) est alors de 1 électron et la couche (L) contient 2 électrons (fig.45).

A partir de ce dernier point, le projectile re-capture successivement 4 électrons en couche (M), à ( $t \approx 126.5$ ,  $x \approx 63.7$ ) le projectile se retrouve alors avec 5 électrons en couche (M), 2 électrons en couche (L) et 1 électron en couche (K). Avec ces 5 électrons en couche (M), le taux de transition Auger ( $\Gamma_{\text{LMM}}$ ) devient plus grand que le taux de capture ( $\Gamma_{\text{SF}}$ ) par side feeding, il se produit alors deux transitions Auger successives de type LMM, à ( $t \approx 142.9$ ,  $x \approx 72.0$ ), la charge du projectile se voit alors augmenter ( $q = 4$ ) et le nombre d'électrons dans les différentes couches est de 1 électron en couche (M), 4 électrons en couche (L) et 1 électron en couche (K).

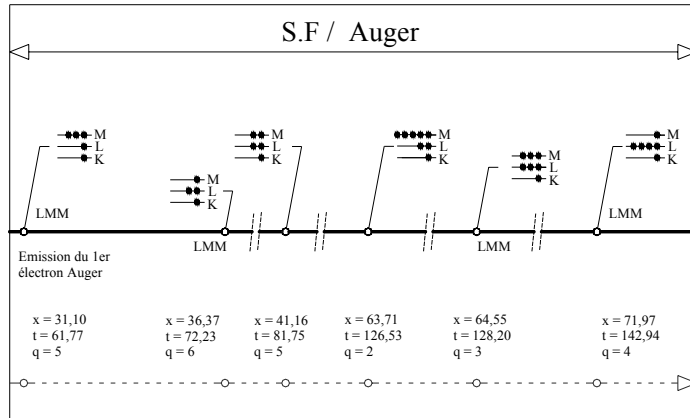


Figure (45) : deuxième étape d'une collision d'un ion  $\text{Ne}^{9+}$  avec un agrégat d'argon, paramètre d'impact nul

Avec l'augmentation de la charge de l'ion creux après une ou plusieurs transitions Auger, le taux de capture par side feeding augmente de nouveau. En conséquence, le projectile entre dans une nouvelle phase de capture et la couche (M) est à nouveau alimentée par side feeding. Au point ( $t \approx 204,9$ ,  $x \approx 103,1$ ), la charge du projectile est au plus bas depuis qu'il a commencé son parcours à l'intérieur de l'agrégat ( $q = 1$ ) (fig. 46) (fig. 47). En ce dernier point le nombre d'électrons dans les couches (M) et (L) est de 4 électrons. Une cinquième transition Auger de type LMM se produit avant que le projectile ne sorte de l'agrégat. En se retrouvant à nouveau au-dessus de la surface, l'ion creux est dans une configuration où la couche (K) contient 1 électron, la couche (L), 5 électrons et la couche (M), 2 électrons. Le projectile sort donc de l'agrégat avec une charge ( $q = 2$ ).

Le projectile  $\text{Ne}^{2+}$  en sortie de l'agrégat, ne pourra pas capturer d'électrons par transfert résonnant, la barrière de potentiel entre le projectile et les atomes de l'agrégat n'étant pas assez basse pour permettre le passage des électrons. Le projectile continuera donc à se relaxer sans autres captures électroniques. Nous rappelons que le scénario de capture et de relaxation que nous venons de décrire n'est qu'une possibilité parmi d'autres. Si à la sortie de l'agrégat, on fait l'hypothèse, qui demeure être la plus probable, que l'ion retrouve son état fondamental en émettant en dernier lieu soit un électron Auger de type KLL soit un photon X d'une transition KL (raie  $K_\alpha$ ), on peut suivant le processus décrit plus haut, avoir une idée de la charge finale du projectile, du nombre d'électrons actifs pendant le temps de la collision et du nombre total d'électrons éjectés par le projectile. Prenant en compte pour le dernier cas, les électrons éjectés par effet Auger et ceux éjectés lors de la pénétration de l'ion dans l'agrégat par peeling off.

Dans le cas où la dernière étape de la relaxation du projectile serait une émission d'un électron Auger LMM suivie d'une deuxième émission électronique Auger de type KLL, la charge finale du projectile serait alors ( $q = 4$ ). Le nombre d'électrons stabilisés serait de 5 électrons et le nombre d'électrons éjectés par effet Auger serait de 7 électrons. Le nombre d'électrons actifs serait alors de 14 électrons (fig.46). La deuxième possibilité est semblable à la première, le projectile se relaxe d'abord par une transition Auger (LMM) et en dernière étape la lacune en couche (K) est comblée par une transition radiative (KL) (fig.47), cette dernière transition aura comme signature l'émission d'un photon X correspondant à la raie  $K_\alpha$  du  $\text{Ne}^{3+}$ . Le nombre d'électrons dans la couche (L) durant la transition radiative étant de 6 électrons, l'énergie de la raie  $K_\alpha$  sera décalée par rapport à la raie  $K_\alpha$  d'un atome de néon neutre. Dans cette deuxième possibilité, le nombre d'électrons actifs reste le même, mais le projectile aura stabilisé au final 6 électrons et éjecté par effet Auger 6 électrons.

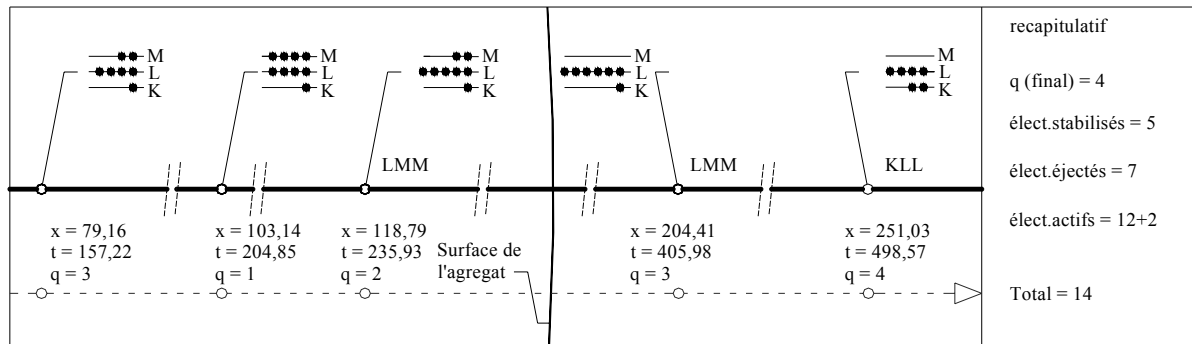


Figure (46) : dernière étape d'une collision d'un ion  $Ne^{9+}$  avec un agrégat d'argon  
Première possibilité

Dans le cas où le projectile reviendrait à son état fondamental dans une dernière étape par une transition radiative (KL), le nombre d'électrons observateur en couche (L) peut varier. En effet, si le paramètre d'impact n'est pas nul et reste inférieur au rayon de l'agregat, un faisceau d'ions projectile traversera différentes épaisseurs de matière que constitue l'agregat d'argon selon leurs paramètres d'impact, et peuvent donc se retrouver à la sortie de l'agregat avec différentes configurations électroniques possibles.

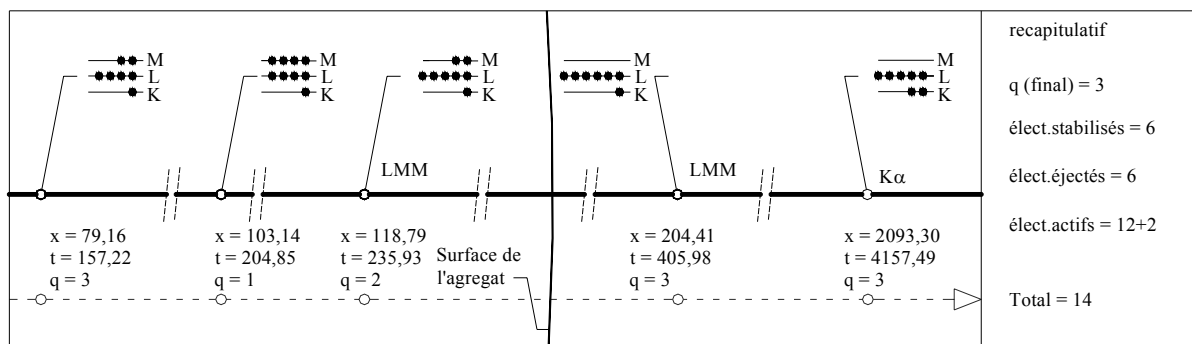


Figure (47) : dernière étape d'une collision d'un ion  $Ne^{9+}$  avec un agrégat d'argon  
Deuxième possibilité

Le projectile aura donc la possibilité de se relaxer par voie radiative de type (KL) en ayant de 1 jusqu'à 8 électrons observateurs en couche (L). D'un point de vue expérimental, on pourra donc observer les raies  $K_{\alpha}$  correspondant aux transitions (KL8) jusqu'à (KL1) du néon. La notation (KL8) correspond à une transition radiative (KL) avec 8 électrons initialement en couche (L). L'énergie de la raie  $K_{\alpha}$  pour une transition (KL8) est proche de l'énergie de la raie  $K_{\alpha}$  d'un atome de néon neutre (846,6 eV), alors que l'énergie de la raie  $K_{\alpha}$  pour une transition (KL1) sera proche de l'énergie de la raie  $K_{\alpha}$  du néon héliumoïde (918,4 eV). Durant l'enregistrement des spectres d'émission X à haute résolution avec le (SpC), on peut s'attendre donc à l'observation de plusieurs pics correspondant aux transitions (KL) avec différents nombres d'électrons observateurs en couche (L).

### 3. Evolution des populations moyennes en collision frontale

Le scénario décrit dans le paragraphe précédent ne tient compte dans la relaxation du projectile que du taux de transition le plus grand parmi les différentes possibilités de relaxation. La capture électronique ainsi que les processus de transition non-radiative et radiative sont traités dans l'évolution du projectile d'un point de vue séquentiel. Pour prendre en compte toutes les transitions possibles permettant au projectile de se relaxer durant son parcours, il faut résoudre le système d'équations des taux de transition présentés plus haut dans le chapitre (eq.31, 32, 33).

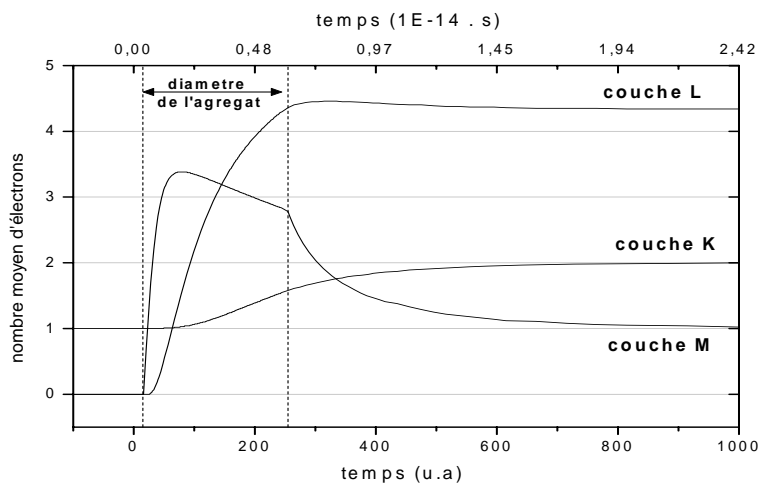


Figure (48) : évolution des populations moyennes en collision frontale

La résolution du système d'équations, nous permet d'obtenir une évolution en fonction du temps, du nombre d'électrons moyens se trouvant dans les couches (K, L et M). Cette méthode prend en compte évidemment toutes les possibilités de relaxation du projectile, mais elle ne peut nous renseigner directement sur le nombre d'électrons actifs durant la collision.

L'évolution du nombre d'électrons dans les trois premières couches dans le cas d'une collision d'un ion  $\text{Ne}^{9+}$  avec un agrégat d'argon de 5,7 nm de diamètre en collision frontale est donnée par la figure (48). Avant la pénétration de l'ion dans l'agrégat, les couches (L) et (M) sont vides et la couche (K) contient un seul électron. La figure (48) montre que la couche (M) se remplit rapidement jusqu'à contenir en moyenne plus de 3 électrons. A partir de ce point, les couches (L) et (K) commencent à se remplir faisant décroître le nombre d'électrons en couche (M).

A la sortie du projectile de l'agrégat, le nombre d'électrons moyen en couche (L) dépasse 4 électrons et la couche (K) continue à se remplir sans que la lacune initiale ne soit totalement comblée. L'arrêt du remplissage de la couche (M) par side feeding fait changer l'allure de la courbe d'évolution du nombre d'électrons moyens dans cette couche, quand le projectile se retrouve en dehors de l'agrégat. Enfin les courbes d'évolutions semblent montrer que la lacune en couche (K) est complètement comblée après un temps de l'ordre de 1000 u.a. ( $2,4 \cdot 10^{-14}$  s) après la première capture électronique (fig.44), qui a été prise comme référence de temps.

#### 4. Conclusion

Un ion lent multichargé en interaction avec un agrégat d'argon, capturera plusieurs électrons au cours de multi-collisions contrairement au cas où la cible serait un atome isolé. Dans ce dernier cas, l'ion capture préférentiellement un seul électron dans un état énergétique élevé. Lors de la désexcitation de l'ion, on observe des transitions radiatives incluant le niveau de capture et tous les niveaux plus bas en énergie. Dans le cas où la cible est un agrégat d'argon, la multi-capture électronique fait intervenir des transitions Auger, qui sont principalement responsables du dépeuplement des niveaux excités. Dans le cas d'une lacune en couche (K) dans le projectile, le mécanisme d'auto-ionisation abaisse la probabilité des transitions radiatives des niveaux énergétiques élevés vers la couche (K) et modifie alors l'émission photonique X du projectile.

Dans un agrégat de  $C_{60}$ , les électrons sont délocalisés du fait que le  $C_{60}$  est aussi une molécule. Les électrons sont dans des états moléculaires, dont les niveaux énergétiques sont discrets. Un ion lent multichargé capture des électrons dont les énergies de liaison sont de plus en plus grandes en collision avec un agrégat de  $C_{60}$ . Ce qui n'est pas le cas dans un agrégat d'argon, puisqu'il existe un grand nombre d'électrons dans l'agrégat ayant la même énergie de liaison. Cette donnée modifie les conditions de la capture électronique et la formation des ions creux.

Pour les agrégats d'argon de grande taille, l'application faite dans ce chapitre semble montrer que la cible, durant une collision avec un ion lent multichargé, se comportera d'autant plus comme une surface lorsque l'ion passe à travers l'agrégat. Néanmoins, il existe deux différences du point de vue du projectile. La première est que, contrairement à une surface, le projectile ne s'y implante pas et ressort de l'agrégat pour terminer sa relaxation sans être entouré comme dans le cas d'un solide d'atomes et d'électrons. La deuxième différence concerne le paramètre d'impact, dans le cas d'une surface celui-ci est sélectionné en choisissant un angle d'incidence de l'ion par rapport à la surface. Alors que dans le cas d'un agrégat, les ions incidents, entrant en collision avec la cible, auront des paramètres d'impacts variables. Pour un faisceau d'ion donné, le rapport entre les ions passant en incidence rasante et les ions traversant l'agrégat peut être contrôlé en augmentant ou en diminuant la taille de l'agrégat.





## **Chapitre IV :**

### **Dispositif expérimental et moyens de détection**

#### **Plan du chapitre :**

- I. La chambre de collision et montage**
- II. Caractérisation du faisceau d'ions**
- III. Les agrégats, production et propriétés**
  - 1. Propriétés physiques
  - 2. Production des agrégats
  - 3. Estimation de la taille des agrégats
- IV. Le spectromètre ionique**
  - 1. Trajectoire des ions
  - 2. Principe du montage
- V. Détection des photons X**
  - 1. Le spectromètre cristallin
  - 2. Les détecteurs silicium

## Introduction

Afin d'étudier expérimentalement l'interaction des ions multichargés avec des agrégats, nous avons mis en place un dispositif expérimental en bout de la ligne de transport (fig.11, chap.I). Ce dispositif comprend une chambre d'interaction, un dispositif pour la production des agrégats et différents moyens de détection et de contrôle. Nous décrirons dans ce chapitre le montage global de l'expérience ainsi que les éléments la constituant.

### I. La chambre de collision et montage

Nous avons utilisé une chambre de collision de forme dodécagonale, permettant la connexion de tous les éléments nécessaires à l'expérience (fig.1). Le diamètre intérieur de la chambre de collision est de 340 mm et le vide y est assuré par une pompe turbo moléculaire de 2000 l/s, la pression résiduelle dans la chambre de collision est de l'ordre de  $10^{-7}$  mbar. Dans la chambre se trouve une cage de Faraday amovible pour la mesure des courants ioniques du faisceau incident et un porte-cibles également amovible. Nous avons utilisé différentes cibles pour calibrer les détecteurs et pour visualiser le faisceau incident. Nous reviendrons plus en détail sur ce point plus loin dans le chapitre.

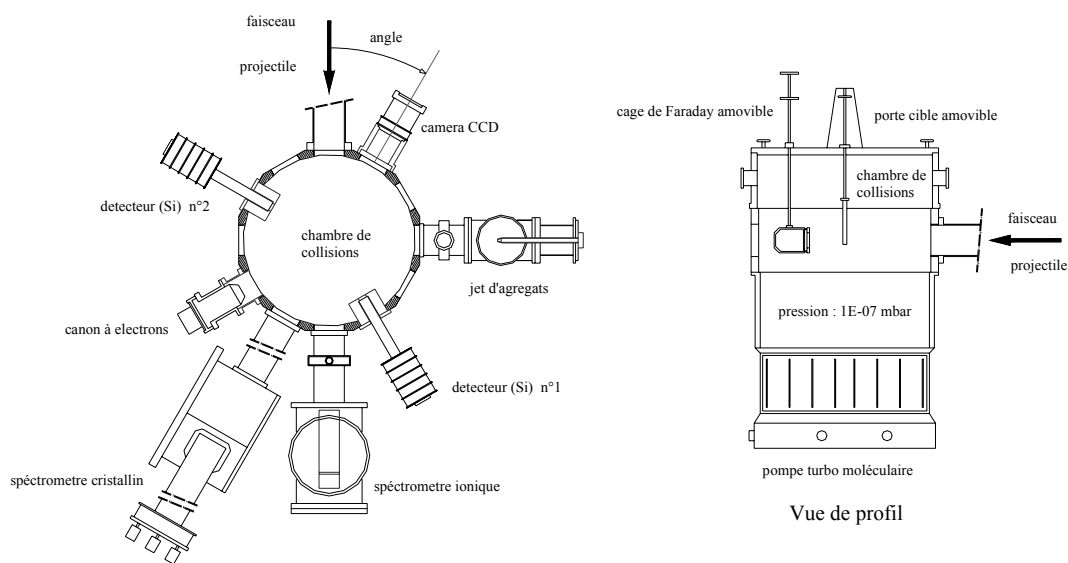


Figure (1) : montage global et chambre de collision

Les éléments connectés à la chambre de collision sont respectivement, dans le sens des aiguilles d'une montre (fig.1), une caméra CCD (charged coupled device) pour la visualisation du faisceau incident, un jet d'agrégat pour la production des agrégats cibles de la collision ions-agrégats, un premier détecteur silicium, un spectromètre ionique électrostatique, un spectromètre cristallin, un canon à électrons et enfin un deuxième détecteur silicium. Nous donnerons la description de ces éléments individuellement dans la suite du chapitre.

Le montage expérimental décrit plus haut a été réalisé afin d'étudier dans un cadre large des collisions d'ions multichargés avec des agrégats. Pour entamer cette étude, nous devons faire le choix d'un premier couple (projectile, cible).

Pour avoir l'information sur la capture électronique du projectile, nous utilisons dans cette expérience notamment des détecteurs de rayons X, il faut donc un ion ayant une lacune en couche K comme projectile. Nous avons choisi le  $\text{Ne}^{9+}$  comme projectile, en raison de l'intensité du courant extrait de la source ECR SIMPA pour cet ion (fig.22, chap.I) et en raison du mode d'injection dans la source ECR pour sa production. L'injection d'un gaz évite d'avoir recours à un four si l'élément était solide.

Nous avons fait le choix de prendre comme cible des agrégats d'argon pour le savoir faire acquis au sein de l'équipe pour leur production et parce que ces agrégats ont fait l'objet de très peu d'études en interaction avec des ions multichargés. Le dispositif de production des agrégats se fait par un jet supersonique utilisant un gaz à haute pression en amont du jet. La contrainte d'utiliser un gaz, associé au fait que les agrégats d'argon peuvent être produits dans une large gamme de taille en utilisant une pression amont relativement basse et donc une pression résiduelle pas trop grande, a fait que notre choix définitif s'est porté sur ces derniers agrégats. En définitive, le couple (projectile, cible) de notre étude est le  $\text{Ne}^{9+}$  et des agrégats d'argon de différentes tailles.

## II. Caractérisation du faisceau d'ions

En premier lieu, nous avons entrepris d'étudier la distribution spatiale du faisceau d'ions  $\text{Ne}^{9+}$  arrivant au centre de la chambre de collision dans le plan transverse. Le plan transverse étant le plan perpendiculaire à l'axe du faisceau d'ions. Nous avons mis des diaphragmes de différents diamètres au centre de la chambre de collision et mesuré les courants arrivant dans la cage de faraday. Cela nous a permis de remonter à la densité de courant du faisceau d'ions  $\text{Ne}^{9+}$ . La figure (2) montre les densités de courant du faisceau  $\text{Ne}^{9+}$  en fonction du diamètre du faisceau au centre de la chambre de collision.

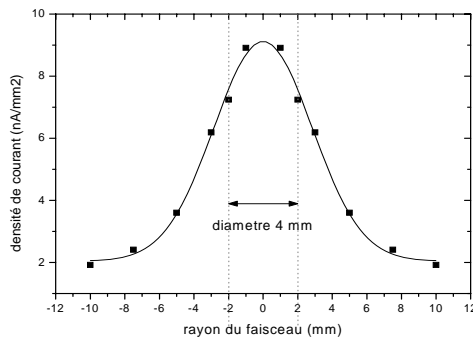


Figure (2) : profil du faisceau de  $\text{Ne}^{9+}$  au centre de la chambre de collision accéléré avec une tension de 14 kV

Nous rappelons que le faisceau d'ions de  $\text{Ne}^{9+}$  est extrait avec une tension de 14 kV et à 400 Watts de puissance HF. Dans ces conditions, l'intensité du courant du  $\text{Ne}^{9+}$  au centre de la chambre de collision est de (0,6  $\mu\text{A}$ ) et la dimension transverse du faisceau s'inscrit dans un cercle de (20 mm) de diamètre. Les mesures de densités de courant du faisceau de  $\text{Ne}^{9+}$  (fig.2) montrent que le profil du faisceau dans le plan transverse est gaussien. A partir de ce profil, il apparaît raisonnable de définir une taille transverse de faisceau de (4 mm) de diamètre, ce qui permet de garder approximativement 20% de l'intensité totale du courant du faisceau en réduisant la surface du faisceau d'un facteur 25.

En utilisant les 3 jeux de fentes se trouvant sur la ligne de faisceau (fig11, chap.I), on définit au centre de la chambre de collision un faisceau de  $\text{Ne}^{9+}$  ayant une dimension de (4 mm) de diamètre.

Sur la chambre de collision, nous avons mis une caméra CCD à un angle de  $30^\circ$  par rapport au faisceau incident (fig.1). Cette caméra dont les pixels sont des puces de semi-conducteurs transforment les photons arrivant sur la caméra en électrons avec une grande efficacité. Le dispositif est très sensible dans le domaine de l'ultraviolet jusqu'à l'infrarouge. En disposant une cible en inox graduée au centre de la chambre de collision, nous pouvons observer par le biais de la caméra CCD la taille du faisceau par collision de ce dernier sur la cible. En ajustant les 3 jeux de fentes, (avant le dipôle magnétique, après le dipôle magnétique et avant la chambre de collision) on arrive à inscrire largement la taille du faisceau de  $\text{Ne}^{9+}$  dans un carré de 4mm x 4mm. La figure (3) montre la taille du faisceau ainsi définie et observée avec la caméra CCD.

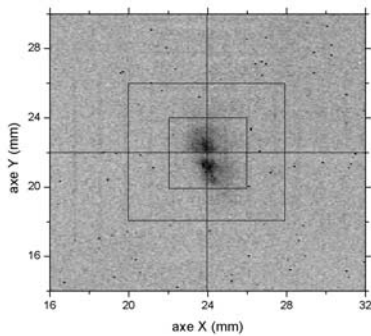


Figure (3) : taille transverse du faisceau  $\text{Ne}^{9+}$  après ajustement des 3 jeux de fentes de la ligne de transport

Le rayonnement lumineux émis lors de la collision du faisceau de  $\text{Ne}^{9+}$  sur la cible d'inox graduée, nous permet d'observer la taille du faisceau. En supposant que cette intensité lumineuse de la tache observée reflète l'intensité du courant du faisceau incident, une projection sur les axes (X et Y) (fig.3) de la tache du faisceau sur la cible peut nous renseigner sur l'homogénéité du faisceau au centre de la chambre de collision. La figure (4) montre la projection selon les deux axes (X et Y) de l'intensité lumineuse de la tache du faisceau de  $\text{Ne}^{9+}$  sur la cible d'inox. Les profils de chacune des projections (X et Y) sont bien reproduits par une distribution gaussienne, mais la largeur est plus grande pour la projection sur l'axe (Y). En définitive, les deux projections (X et Y) montrent que l'intensité du faisceau est maximum au centre de la cible et donc au centre de la chambre de collision et que cette intensité décroît vers les limites externes du faisceau suivant une distribution gaussienne à 2 dimensions.

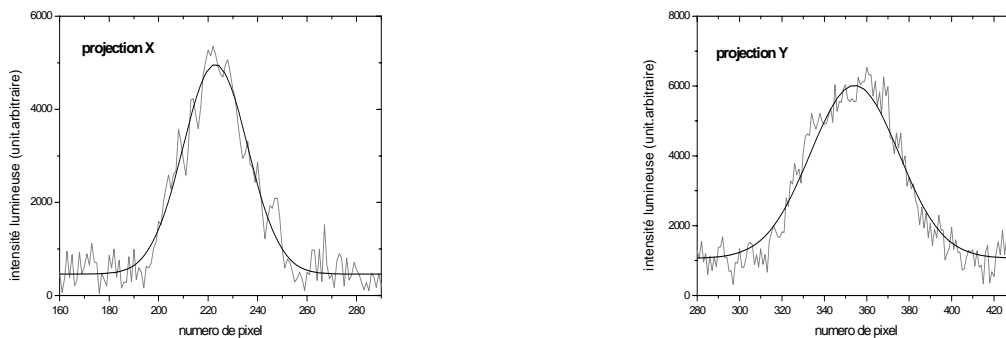


Figure (4) : Projection de la tache lumineuse du faisceau

En définissant une taille de faisceau de 4mm x 4mm au centre de la chambre de collision, nous avons plus ou moins fermé les fentes se trouvant sur la ligne de transport. Cela implique une diminution de l'intensité initiale ( $0,6 \mu\text{A}$ ) du courant du faisceau de  $\text{Ne}^{9+}$ .

Nous reproduisons ci dessous (fig.5), un agrandissement du spectre d'états de charge du néon (fig.20, chap.I) pris à 400 Watts de puissance HF avec les fentes complètement ouvertes ainsi qu'un deuxième spectre d'états de charge pris dans les mêmes conditions de fonctionnement de la source ECR avec les fentes fermées définissant une taille de faisceau de 4mm x 4mm pour le  $\text{Ne}^{9+}$ . La fermeture des fentes permet une séparation complète des différents états de charge de l'oxygène et du néon, notamment le  $\text{Ne}^{9+}$  et l' $\text{O}^{7+}$ , car la largeur des pics diminue, ce qui correspond à une distribution en vitesse moins large des ions dans le faisceau.

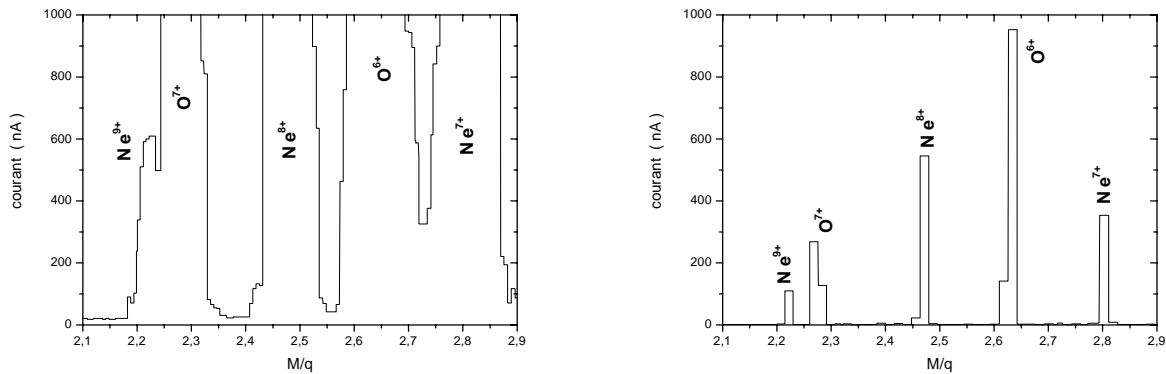


Figure (5) : spectres d'états de charge, fentes ouvertes (à gauche) et fentes fermées (à droite)

En conclusion, pour l'expérience de collision des ions de  $\text{Ne}^{9+}$  avec les agrégats d'argon, le faisceau d'ions est réglé à une taille transverse au centre de la chambre de collision qui s'inscrit dans un carré de 4 mm de côté et dont le profil est gaussien. L'intensité du faisceau étant de l'ordre de 100 nano-Ampères et les différents états de charge sont bien séparés.

### III. Les agrégats, production et propriétés

Pour la production des agrégats d'argon, nous avons utilisé dans cette expérience un jet supersonique semblable à celui utilisé par l'équipe pour la série d'expérience laser intense – agrégats. Une description détaillée sur la production et les propriétés des agrégats a été effectuée par C.Prigent dans sa thèse [ref.16]. Nous nous limiterons dans ce paragraphe à quelques rappels sur les propriétés physiques des agrégats d'argon et des gaz rares en général, leur mode de production et d'agrégation dans un jet. Nous terminerons par une présentation sommaire du jet d'agrégat utilisé dans cette expérience et une estimation en taille des agrégats de gaz rares et plus particulièrement des agrégats d'argon.

#### 1. Propriétés physiques

Un ensemble d'atomes de gaz rares forme un agrégat du même type et cet agrégat est désigné par agrégat de Van der Waals en relation avec les forces liant les atomes le constituant. L'interaction entre deux atomes d'un gaz rare peut être décrit par le potentiel de Lennard-Jones  $V(r)$  (eq.1) qui comporte une partie répulsive à courte distance et une partie attractive à grande distance. Les énergies de liaison entre les atomes d'un agrégat de gaz rare sont de l'ordre du centième d'eV, ce qui rend leur formation impossible si les atomes possèdent une énergie thermique supérieure à cette valeur.

$$V(r) = 4\epsilon \cdot [ (\sigma/r)^{12} - (\sigma/r)^6 ] \quad (\text{eq.1})$$

L'équation (1) donnant l'énergie de liaison entre deux atomes de gaz rare dépend de deux paramètres ( $\sigma$ ) et ( $\varepsilon$ ) qui dépendent de la nature du gaz rare en question. Dans le cas de l'argon, ( $\sigma$ ) est égal à 3,40 Å et ( $\varepsilon$ ) est égal à  $1,0423 \cdot 10^{-2}$  eV [ref.106]. Dans une configuration d'un solide d'argon où la distance minimale entre deux atomes d'argon est de  $r_0 = 3,76$  Å, l'énergie liant ces deux atomes est de  $1,03 \cdot 10^{-2}$  eV. Cette énergie diffère de l'énergie de liaison de l'atome dans le solide, qu'on peut retrouver en appliquant le potentiel de Lennard-Jones entre un atome et tous les autres atomes du solide. Dans ce dernier cas de figure, l'énergie de liaison d'un atome est un ordre de grandeur supérieure à l'énergie de liaison entre deux atomes.

Les agrégats sont des objets intermédiaires entre l'atome et le solide. Dans le cas des gaz rares, si un agrégat comporte plus de 1000 à 2000 atomes, il peut être considéré comme un solide nanométrique puisqu'il se met dans la même structure cristalline qu'un solide, en l'occurrence en cubique faces centrées. La densité atomique au sein de l'agrégat dans ce cas est la même que celle du solide. Elle est de  $2,66 \cdot 10^{22}$  atomes/cm<sup>3</sup> ( $1,8$  g/cm<sup>3</sup>) pour les agrégats d'argon de grande taille ( $\geq 2000$  atomes) [ref.107] [ref.108] [ref.109].

Les agrégats de gaz rare de petite taille, largement inférieure à 800 atomes, s'assemblent en couches successives formant des structures icosaédriques (20 faces) parfaites si la dernière couche est pleine. La stabilité de ces agrégats de petite taille est moins grande lorsque des atomes viennent s'agréger sur une couche déjà complète. On parle de nombres magiques (nombre d'atomes dans l'agrégat) pour les agrégats de gaz rare ayant une plus grande stabilité que les autres et formant des icosaèdres parfaits (13, 55, 147 atomes...etc). En augmentant en taille, la structure de l'agrégat ne passe pas directement de l'icosaédrique au cubique faces centrées, mais passe par des structures intermédiaires de type cuboctahédrique (16 faces) et decahédrique (15 faces) (fig6). Dans tous ces cas de figure, la forme des agrégats de gaz rare s'inscrit dans une sphère et cela est d'autant plus vrai pour les agrégats de grande taille dont la forme est quasi sphérique [ref.110][ref.111].

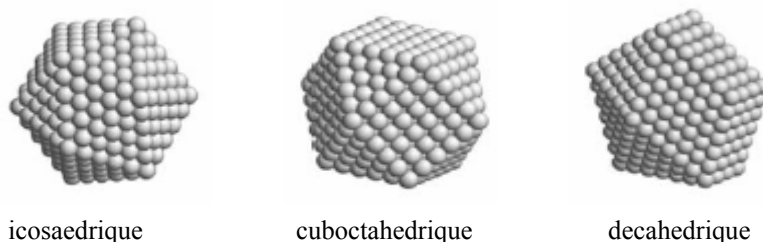


Figure (6) : structure des agrégats de petite et moyenne taille

La formation des agrégats induit au niveau des électrons de chaque atome un déplacement des niveaux énergétiques, ce déplacement est de l'ordre de un eV. Les énergies de liaison des électrons sont donc inférieures, au maximum d'un eV, par rapport à un électron dans un atome libre et la valeur de ces énergies de liaison se situe entre celle d'un électron dans un atome et celle d'un électron dans un solide. Le déplacement des niveaux énergétiques des électrons entraîne une modification des potentiels d'ionisation des atomes se trouvant dans l'agrégat. Cette modification place les valeurs des potentiels d'ionisation dans un agrégat entre les potentiels d'ionisation d'un atome libre et le travail d'extraction électronique dans un solide [ref.112] [ref.113]. Ces dernières données illustrent le caractère intermédiaire entre l'atome et le solide des agrégats de gaz rare.

## 2. Production des agrégats

La production des agrégats de gaz rare pour notre expérience se fait par une détente adiabatique d'un gaz à travers un orifice, ce qui conduit à son refroidissement et permet aux atomes de s'agréger. La figure (7) montre notre dispositif de production des agrégats. Il est constitué d'un réservoir en amont contenant un gaz, notamment l'argon, à une pression ( $P_0$ ) et à une température ( $T_0$ ). Le gaz passe à travers un orifice de 0,3 mm de diamètre, se détend, se refroidit et se condense. A la sortie de l'orifice les atomes commencent à s'agréger dans une buse conique ouverte avec un angle ( $2\alpha = 15^\circ$ ) permettant l'expansion des agrégats. Entre le réservoir de gaz et l'orifice de détente, nous avons mis une vanne pulsée pour maîtriser le débit du gaz et donc des agrégats. Le temps d'ouverture de la vanne est ajustable, il est de l'ordre de quelques centaines de microsecondes, le taux de répétition de l'ouverture de la vanne est également ajustable et il est de quelques (Hz).

Après être sortis de la buse conique, les agrégats se retrouvent dans une chambre d'expansion (fig.7). Pendant la production des agrégats, la pression dans cette chambre est de l'ordre de  $10^{-3}$  mbar, le vide est assuré par deux pompes en série à grand débit, une pompe à palettes et une pompe Roots. La chambre d'expansion est connectée à la chambre de collision à travers un écorceur de 1mm de diamètre et dont l'angle d'ouverture est de ( $48^\circ$ ). Ce dernier est utilisé pour délimiter la taille du faisceau d'agrégat au centre de la chambre de collision et sélectionner spatialement les agrégats dans le mélange gaz-agrégats à la sortie de la buse. Il permet aussi de réduire la conductance en direction de la chambre de collision, et d'avoir un vide de l'ordre de  $10^{-5}$  mbar dans la chambre pendant le fonctionnement du jet d'agrégats.

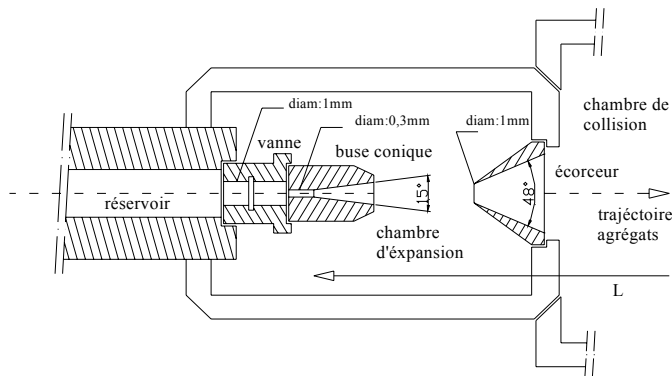


Figure (7) : schéma du jet d'agrégat utilisé

L'orifice de condensation se trouve à une distance ( $L$ ), égale à ( $377 \pm 2$  mm) du centre de la chambre de collision quand l'écorceur est à une distance de (6) millimètres de la buse conique (la distance buse-écorceur étant réglable). Dans l'hypothèse où l'expansion du faisceau d'agrégat est géométrique et qu'elle suit les ouvertures de la buse conique et de l'écorceur, la hauteur du faisceau d'agrégat au centre de la chambre de collision est approximativement égale à (9 mm). Nous rappelons que la hauteur du faisceau d'ion de  $Ne^{9+}$  est égale à (4mm), ce qui nous assure un chevauchement certain des deux faisceaux au centre de la chambre de collision.

Pour illustrer le mode de condensation des atomes et de leur agrégation, on peut considérer le gaz passant à travers l'orifice de condensation comme étant parfait et Laplacien. La loi du même nom peut alors être appliquée à ce gaz (eq.2) qui se trouve initialement dans le réservoir avec une pression et une température ( $P_0, T_0$ ).



$$\left(\frac{T_1}{T_0}\right) = \left(\frac{P_1}{P_0}\right)^{\frac{\gamma-1}{\gamma}} \quad (\text{eq.2})$$

A la sortie de la buse conique, le gaz se retrouve à une pression et à une température ( $P_1, T_1$ ), ( $\gamma$ ) est le rapport des capacités calorifiques, il est égal à (5/3) pour les gaz monoatomiques. Si le gaz dans le réservoir est à une pression de (10 bar) et à une température de (300 K) et sachant qu'à la sortie de la buse conique, la pression est inférieure au mbar, la température ( $T_1$ ) du gaz est alors inférieure à (8 K). Le refroidissement du gaz en dessous de sa température de condensation fait agréger les atomes pour former des agrégats.

$$\left(\frac{T_1}{T_0}\right) = \left(1 + \frac{1}{2}(\gamma-1)M^2\right)^{-1} \quad (\text{eq.3})$$

Par ailleurs, le rapport des températures en amont et en aval de la buse conique ( $T_1/T_0$ ) est lié à la vitesse des atomes en sortie de la buse par l'équation (3) [ref.114] [ref.115], ( $M$ ) est le nombre de Mach défini comme le rapport entre la vitesse d'entraînement et la vitesse du son dans le milieu. En gardant les températures de l'exemple précédent, ( $T_0 = 300$  K,  $T_1 = 8$  K), le nombre de Mach serait supérieur à (10). La vitesse des agrégats en sortie de la buse conique est donc supérieure à la vitesse du son dans le milieu, et on parle alors de jet d'agrégats supersonique.

### 3. Estimation de la taille des agrégats

Pour estimer la taille moyenne des agrégats d'argon et des gaz rares en général, nous ferons référence essentiellement aux travaux d'Hagena [refs.117, 118, 119, 120, 121] effectués sur des jets d'agrégats supersoniques semblables à celui que nous utilisons. Hagena a établi une loi d'échelle empirique pour déterminer la taille moyenne des agrégats, que nous présentons succinctement dans ce paragraphe. La taille moyenne des agrégats dépend de la nature du gaz, de la pression ( $P_0$ ) et de la température ( $T_0$ ) du gaz dans le réservoir. Elle dépend également des caractéristiques de la buse conique, comme le diamètre de son orifice ( $d$ ) et son angle d'ouverture ( $2\alpha$ ). Pour décrire la condensation des atomes, Hagena a défini un paramètre de condensation ( $\Gamma$ ) (eq.4).

$$\Gamma = N_0 \cdot (d_{\text{eff}})^q \cdot (T_0)^{q/4-3/2} = 1/kT_0 \cdot P_0 \cdot (d_{\text{eff}})^q \cdot (T_0)^{q/4-5/2} \quad (\text{eq.4})$$

( $N_0$ ) étant la densité atomique du gaz dans le réservoir, ( $k$ ) la constante de Boltzmann et ( $q$ ) est appelée l'exposant de la condensation, ce dernier paramètre a été déterminé expérimentalement par Hagena et vaut dans le cas des gaz rares (0,85). Le terme ( $d_{\text{eff}}$ ) désigne le diamètre effectif de condensation de la buse conique. Il dépend du diamètre de l'orifice de condensation ( $d$ ) et de l'angle d'ouverture de la buse ( $2\alpha$ ), tel que le montre l'équation (5) dans laquelle ( $K_d$ ) est une constante introduite par Hagena, et qui vaut (0,736) pour les gaz rares.

$$d_{\text{eff}} (\mu\text{m}) = K_d \cdot \frac{d(\mu\text{m})}{\tan(\alpha)} \quad (\text{eq.5})$$

Pour généraliser le paramètre de condensation ( $\Gamma$ ) et le rendre applicable à tous les jets d'agrégats, Hagena a défini dans une seconde étape, un paramètre de condensation réduit ( $\Gamma^*$ ) sans dimensions.

Le paramètre ( $\Gamma^*$ ) prend en compte les spécificités physiques des atomes constituant l'agrégat, en l'occurrence la masse atomique, la densité atomique, le potentiel d'interaction atomique, la distance inter-atomique et l'enthalpie de sublimation. L'équation (6) dont la forme est semblable à l'équation (4), donne l'expression du paramètre réduit de condensation.

$$\Gamma^* = K_{ch} \cdot P_0 \text{ (mbar)} \cdot [d_{eff} \text{ (\mu m)}]^q \cdot [T_0 \text{ (K)}]^{q/4 - 5/2} \quad (\text{eq.6})$$

Le paramètre ( $K_{ch}$ ) renferme toutes les spécificités physiques d'agrégation des atomes constituant l'agrégat. Nous donnons sous forme de tableau les valeurs de ( $K_{ch}$ ) pour le néon, l'argon, le krypton et le xénon, généralement admises dans la littérature [refs.122, 123, 124].

Eléments	Ne	Ar	Kr	Xe
$K_{ch}$	185	<b>1650</b>	2890	5500

Tableau (1) : valeurs de la constante ( $K_{ch}$ )

D'après de multiples études expérimentales, Hagena établit une classification de l'agrégation des atomes en sortie du jet d'agrégat en fonction du paramètre réduit ( $\Gamma^*$ ). Si ce dernier est inférieur à 200 ( $\Gamma^* < 200$ ), la formation des agrégats ne se fait pas, si ( $200 < \Gamma^* < 1800$ ), la condensation des atomes est partielle et des agrégats de petite taille sont formés et si le paramètre réduit ( $\Gamma^*$ ) est supérieur à 1800 ( $\Gamma^* > 1800$ ) la condensation des atomes est massive et des agrégats de plusieurs centaines d'atomes par agrégat sont formés.

La taille moyenne  $\langle n \rangle$  des agrégats dépend du paramètre réduit ( $\Gamma^*$ ), au travers des lois empiriques établies et améliorées à partir d'études expérimentales [ref.125]. Les équations (7) et (8) donnent l'expression de ces lois.

$$\Gamma^* < 1800 \quad \langle n \rangle = 38,4 \cdot [\Gamma^*/1000]^{1,64} \quad (\text{eq.7})$$

$$\Gamma^* > 1800 \quad \langle n \rangle = 33,0 \cdot [\Gamma^*/1000]^{2,35} \quad (\text{eq.8})$$

En appliquant les données présentées ci dessus à notre jet d'agrégats, on peut déterminer dans notre cas le paramètre réduit ( $\Gamma^*$ ) pour chaque gaz rare. Nous rappelons que les caractéristiques de la buse conique utilisée sont ( $d = 0,3 \text{ mm}$ ) et ( $2\alpha = 15^\circ$ ). Par ailleurs, le gaz se trouvant dans le réservoir est à température ambiante ( $T_0 = 296 \pm 2 \text{ K}$ ), le paramètre réduit ( $\Gamma^*$ ) ne dépend donc que de la pression du gaz ( $P_0$ ) dans le réservoir. Les équations (9) jusqu'à (12) donnent l'expression numérique du paramètre réduit ( $\Gamma^*$ ) appliqué à notre jet d'agrégats pour différents gaz.

$$\text{agrégats de néon} \quad \Gamma^* = 226,45 \cdot P_0 \text{ (bar)} \quad (\text{eq.9})$$

$$\text{agrégats d'argon} \quad \Gamma^* = 2019,71 \cdot P_0 \text{ (bar)} \quad (\text{eq.10})$$

$$\text{agrégats de krypton} \quad \Gamma^* = 3537,55 \cdot P_0 \text{ (bar)} \quad (\text{eq.11})$$

$$\text{agrégats de xénon} \quad \Gamma^* = 6732,36 \cdot P_0 \text{ (bar)} \quad (\text{eq.12})$$

A partir des équations (7, 8 et 10), nous pouvons tracer la courbe d'évolution (fig.8) de la taille moyenne des agrégats d'argon en fonction de la pression ( $P_0$ ) en amont de la buse. Notons que la pression seuil pour former des agrégats d'argon ( $\Gamma^* > 200$ ) est dans notre cas de (0,1 bar). A cette pression les agrégats d'argon ont une taille de 2 à 4 atomes par agrégat.

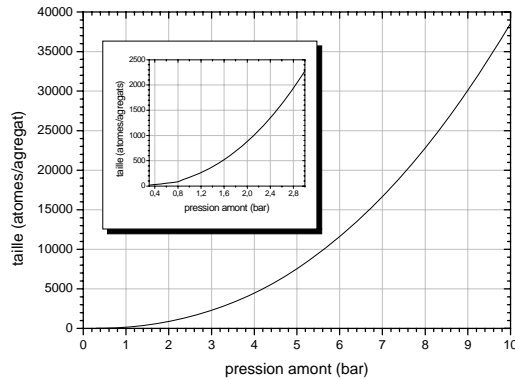


Figure (8) : évolution de la taille des agrégats d'argon en fonction de la pression amont  $P_0$

En sortant de la buse conique, les atomes s'agrègent pour former des agrégats ayant une distribution autour d'une taille moyenne  $\langle n \rangle$ . Cette distribution en taille des agrégats a été étudiée par Schutte et al [ref.116] dans deux cas particuliers d'agrégats de gaz rare, le krypton et le xénon. L'étude montre que la distribution en taille des agrégats suit une loi log-normale (fig.9) et que la largeur de la distribution grandit avec la taille moyenne  $\langle n \rangle$  des agrégats. Dans le cas des agrégats de krypton et des agrégats de xénon, la largeur à mi-hauteur (en nombre d'atomes) des distributions log-normales est de l'ordre de la taille moyenne  $\langle n \rangle$  des agrégats, sans dépasser cette moyenne. Cette étude montre a priori que l'erreur que l'on fait en déterminant la taille moyenne des agrégats est de l'ordre de 50%.

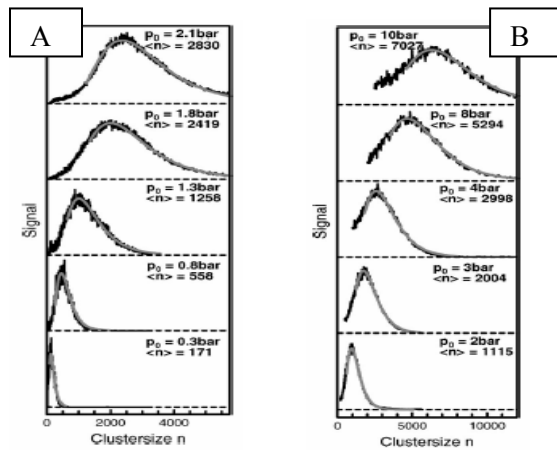


Figure (9) : distribution en taille des agrégats de krypton [A] et des agrégats de xénon [B], [ref.116]

Si on considère que les agrégats ont une forme sphérique, leur volume et donc leur rayon ( $R$ ) peut être exprimé en fonction de la taille moyenne des agrégats et de leurs densités atomiques (eq.13). Dans le cas des agrégats d'argon, la densité atomique au sein de l'agrégat ( $N_{agr}$ ) vaut  $2,66 \cdot 10^{22}$  atomes/cm<sup>3</sup>, et le rayon des agrégats d'argon s'exprime donc directement en fonction de la taille moyenne  $\langle n \rangle$  des agrégats. Pour une pression  $P_0 = 1$  bar, la taille moyenne des agrégats est d'environ (170 atomes/agrégat) et le rayon de l'agrégat est d'environ 1,15 nm. Pour une pression  $P_0 = 10$  bars, la taille moyenne des agrégats est d'environ (38500 atomes/agrégat) et le rayon de l'agrégat est d'environ 7,02 nm. Cet exemple illustre le caractère nanométrique des agrégats d'argon même pour les plus gros agrégats.

$$\frac{\langle n \rangle}{N_{agr}} = \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot R^3 \quad \Rightarrow \quad R \text{ (nm)} = 0,2078 \cdot [\langle n \rangle]^{1/3} \quad (\text{eq.13})$$

On peut aussi calculer la densité atomique globale au sein du jet d'agrégats ( $N_{jet}$ ). Cette densité dépend d'une part des paramètres initiaux du gaz dans le réservoir ( $P_0$ ,  $T_0$ ) et d'autre part des caractéristiques de la buse conique ( $d$ ,  $2\alpha$ ).

Enfin, la densité atomique dans le jet d'agrégat dépend d'un cinquième paramètre, la distance (z) par rapport à l'entrée de la buse conique (eq.14). Pour retrouver dans notre cas la densité ( $N_{\text{jet}}$ ) au centre de la chambre de collision, on prendra ( $z = L$ ), avec (L) égal à (377 mm).

$$N_{\text{jet}} \text{ (atomes/cm}^3\text{)} = 5,885 \cdot 10^{20} \cdot \frac{P_0 \text{ (bar)}}{T_0 \text{ (K)}} \cdot \left[ \frac{d}{z \cdot \tan(\alpha)} \right]^2 \quad (\text{eq.14})$$

$$N_{\text{jet}} \text{ (atomes/cm}^3\text{)} = 7,26 \cdot 10^{13} \cdot P_0 \text{ (bar)} \quad (\text{eq.15})$$

En remplaçant dans l'équation (14) les paramètres relatifs à notre cas de figure, on obtient une expression de la densité atomique dans le jet d'agrégat au centre de la chambre de collision qui ne dépend que de la pression ( $P_0$ ) en amont de la buse conique. La densité ( $N_{\text{jet}}$ ) dans ce cas évolue linéairement par rapport à la pression amont ( $P_0$ ), et elle vaut  $7,26 \cdot 10^{13}$  atomes/cm<sup>3</sup> pour une pression ( $P_0 = 1$  bar).

#### IV. Le spectromètre ionique

Afin d'analyser la charge des ions projectiles après leurs interactions avec les agrégats, nous avons conçu au sein de l'équipe un spectromètre ionique fonctionnant sur le principe d'une déflexion des particules chargées dans un champ électrostatique. Nous présenterons dans ce paragraphe son principe de fonctionnement et sa description.

##### 1. Trajectoire des ions

Soit deux plaques cylindriques concentriques de rayons ( $R_1$  et  $R_2$ ), et entre les deux plaques, une différence de potentiel électrique ( $\Delta V$ ). Un ion incident de charge ( $q \cdot e$ ) entrant suivant un angle ( $\varphi = 0^\circ$ ) et centré par rapport aux deux plaques [ $r_0 = (R_1 + R_2)/2$ ] (fig.10), aura une trajectoire à l'intérieur du spectromètre perpendiculaire aux lignes de champs électriques. L'ion décrit donc un arc de cercle concentrique avec les plaques du spectromètre, tel que la force dérivant du champ électrique soit égale à la force centrifuge de l'ion (eq.16).

$$q \cdot e \cdot \varepsilon(r_0) = m \cdot [(v_0)^2 / r_0] \quad (\text{eq.16})$$

$$\varepsilon(r) = \frac{\Delta V}{r \cdot \ln(R_2/R_1)} \quad (\text{eq.17})$$

$\varepsilon(r)$  étant l'expression du champ électrique entre les deux plaques cylindriques [ref.126], (m) la masse de l'ion incident et ( $v_0$ ) sa vitesse à l'entrée du spectromètre. Si par contre un ion possède un angle ( $\varphi \neq 0$ ), sa trajectoire décrira un arc de cercle de rayon (r) différent de ( $r_0$ ) (fig.10). Dans ce cas de figure, l'équation de la trajectoire de l'ion en coordonnées cylindriques planes (r,  $\theta$ ) est fonction de l'angle d'entrée ( $\varphi$ ).

$$E = q \cdot e \cdot \frac{\Delta V}{2 \cdot \ln(R_2/R_1)} = q \cdot e \cdot \frac{\Delta V}{A} \quad (\text{e.q.18})$$

$$\frac{d^2 r^*}{d\theta^2} + r^* = \frac{1}{\cos^2(\varphi)} \quad \text{et} \quad r^* = \frac{r}{m} \quad (\text{eq.19})$$

Le paramètre (A) dans l'expression de l'énergie (E) de l'ion (eq.18) est appelé constante du spectromètre et dépend uniquement des rayons ( $R_1$ ) et ( $R_2$ ) des plaques cylindriques. L'équation (19) représente la trajectoire de l'ion entrant dans le spectromètre. C'est une équation différentielle, dont la solution approchée est donnée par l'équation (20) [ref.126],[ref.127].

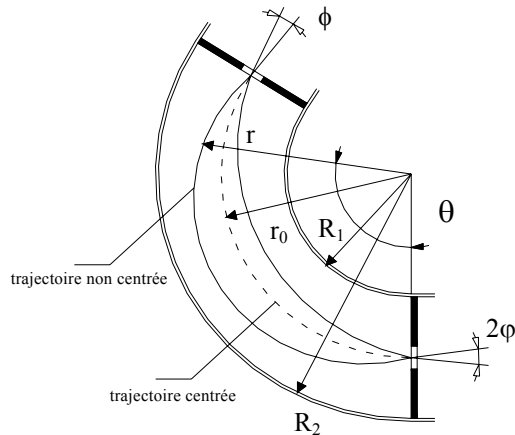


Figure (10) : trajectoires des ions dans le spectromètre ionique

L'expression de la trajectoire d'un ion non centrée (eq.20), montre que ( $r^*$ ) possède un minimum pour ( $\theta = \pi/\sqrt{2}$ ), ce qui correspond à ( $127,28^\circ$ ). Dans ce cas de figure ( $r^*$ ) ne dépend que de l'angle d'entrée ( $\phi$ ) et si ce dernier est petit, alors ( $r^* \approx 1$ ) est donc ( $r \approx r_0$ ). En résumé, si les plaques cylindriques ont un angle ( $\theta = 127,28^\circ$ ), les ions incidents sont focalisés à la sortie du spectromètre ce qui permet d'optimiser sa résolution.

$$r^* = \frac{1}{\cos(\phi)} + \left(1 - \frac{1}{\cos(\phi)}\right) \cdot \cos(\sqrt{2}\theta) - \frac{\sqrt{2}}{2} \cdot \tan(\phi) \cdot \sin(\sqrt{2}\theta) \quad (\text{eq.20})$$

$$r^* = \frac{2}{\cos(\phi)} - 1 \quad \text{si} \quad \theta = \frac{\pi}{\sqrt{2}} \quad (\text{eq.21})$$

En se referant aux données présentées ci dessus, le spectromètre ionique que nous avons conçu est donc un (CDA) (cylindrical deflector analyser) dont l'angle de courbure est de ( $127^\circ$ ).

## 2. Principe du montage

Les plaques composant le (CDA) ont un rayon de ( $R_2 = 199 \text{ mm}$ ) et ( $R_1 = 185 \text{ mm}$ ). La constante (A) du spectromètre est donc égale à (0,146). La figure (11) montre le principe de montage du (CDA) qui comporte deux channeltrons, l'un à ( $127^\circ$ ) et le second à ( $0^\circ$ ).

Les deux plaques du (CDA) sont portées respectivement à des tensions (+V) et (-V), créant une différence de potentiel ( $\Delta V = 2V$ ) de l'ordre de quelques kV. Entre les deux plaques se trouve une série de plaques minces pour uniformiser le champ électrique à l'intérieur du (CDA). A chaque ion incident de charge (q) correspond une différence de potentiel ( $\Delta V$ ) (eq.18), l'énergie cinétique des ions étant approximativement la même (elle est définie par la tension d'extraction au niveau de la source ECR). En effectuant un balayage en ( $\Delta V$ ), on obtient donc un spectre des états de charge des ions arrivant sur le channeltron positionné à ( $127^\circ$ ) en mesurant directement leurs courants.

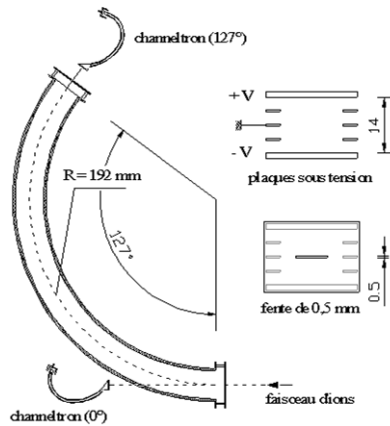


Figure (11) : schéma du spectromètre ionique, (CDA)

Dans le cadre de notre expérience, ce spectre d'état de charge correspond à la distribution en charge des ions  $\text{Ne}^{9+}$  après collision avec les agrégats d'argon. Le deuxième channeltron à ( $0^\circ$ ) permet une mesure directe du courant total du faisceau d'ions après collision avec les agrégats. Le (CDA) comporte également une fente à l'entrée et à la sortie pour optimiser sa résolution en énergie, la dimension des fentes est de 0,5 mm de haut par 8 mm de large.

Des travaux ayant pour but d'estimer la résolution en énergie des (CDA) [ref.128] [ref.129] ont montré que cette résolution ( $\Delta E/E$ ), dépendait essentiellement de la hauteur des fentes ( $a$ ) et de l'angle d'entrée ( $\varphi$ ) du faisceau d'ions, et peut être exprimée par (eq.22), si on néglige la charge d'espace à l'intérieur du (CDA).

$$\frac{\Delta E}{E} = \frac{2 \cdot a_1}{r_0} + \frac{2 \cdot a_2}{r_0} + \frac{8}{3} \cdot \varphi^2 \quad (\text{eq.22})$$

Dans notre cas, la fente d'entrée du (CDA) se trouve à (320 mm) du centre de la chambre de collision, le terme en ( $\varphi^2$ ) est donc négligeable devant ceux correspondant à la hauteur des fentes ( $a_1 = a_2 = 0,5$  mm), nous rappelons que le rayon moyen ( $r_0$ ) du (CDA) vaut (192 mm). Dans ces conditions la résolution en énergie prévue est de l'ordre de (1%), ce qui nous permettra de séparer aisément les différents états de charge des ions incidents et de mesurer le cas échéant leur perte en énergie après collision avec les agrégats.

## V. Détection des photons X

Pour détecter les photons X émis lors de la collision du faisceau d'ions de  $\text{Ne}^{9+}$  avec les agrégats d'argon, nous avons placé un spectromètre cristallin (SpC), du même type que celui utilisé pour l'observation directe du plasma de la source ECR SIMPA (chap.II), ainsi que deux détecteurs silicium (DSi)<sup>1</sup> et (DSi)<sup>2</sup> semblables. Une description du (SpC) et du (DSi)<sup>1</sup> ayant été donnée dans le (chap.II), nous ne présenterons dans ce paragraphe que leurs spécificités lors de leur utilisation pour l'expérience de collision entre les ions de  $\text{Ne}^{9+}$  et les agrégats d'argon. La disposition du (SpC) et des deux (DSi) sur la chambre de collision est donnée par la figure (1).

### 1. Le spectromètre cristallin (SpC)

Le (SpC) utilisé pour cette expérience est du même type que celui décrit dans le (chap.II), mais certaines modifications ont été apportées pour l'optimiser à l'observation des photons X d'une collision d'ion  $\text{Ne}^{9+}$  avec des agrégats d'argon.

Lors d'une collision d'un ion  $\text{Ne}^{9+}$  avec un agrégat d'argon, l'ion capturera des électrons et on devrait observer par relaxation de l'ion, l'émission d'un rayonnement X dû à la transition des électrons vers la couche K qui présente au départ une lacune. L'énergie du rayonnement X dans ce cas est de l'ordre de 900 eV, l'énergie de la  $K_{\alpha}$  du néon neutre (l'ion  $\text{Ne}^{9+}$  ayant été neutralisé) étant à (848,6 eV) et l'énergie  $K_{\alpha}$  du  $\text{Ne}^{8+}$  (l'ion  $\text{Ne}^{9+}$  ne capturant qu'un seul électron) étant égale à 918,4 eV. Pour observer cette gamme d'énergie avec le (SpC), il nous fallait choisir le cristal adéquat permettant la diffraction des photons X dans des conditions optimales.

Après avoir testé quelques cristaux permettant l'observation des rayons X dans la gamme de 900 eV, notre choix s'est porté sur le cristal de phtalate de thallium (TlAp) en raison de ses caractéristiques intrinsèques (résolution et réflectivité). Les phtalates sont des composés organiques dont la structure moléculaire est  $(\text{COOH}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{COOH})$ , le cristal (TlAp) s'obtient en remplaçant un atome d'hydrogène par le Thallium pour obtenir la structure suivante  $(\text{COOH}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{COOTl})$ . Pour un cristal de (TlAp) coupé selon le plan (001), le double de la distance entre deux plans réticulaires est égale à ( $2d = 25,76 \text{ \AA}$ ). La dimension du cristal que nous avons monté est de 34 mm x 30 mm.

Pour déterminer la réflectivité intégrée du cristal de (TlAp) au premier ordre de diffraction, nous avons comparé deux spectres d'émission de rayonnement X à partir d'une cible de sodium ( $\text{NaNO}_3$ ) placée au centre de la chambre de collision, l'un enregistré par le (SpC) et le second par un détecteur silicium dont on connaît parfaitement l'efficacité. Le rayonnement X de la cible de sodium est produit par impact électronique, d'électrons produits par un canon monté sur la chambre de collision (fig.1). Les figures (12) et (13) montrent les deux spectres enregistrés, par le (SpC) et par le détecteur silicium.

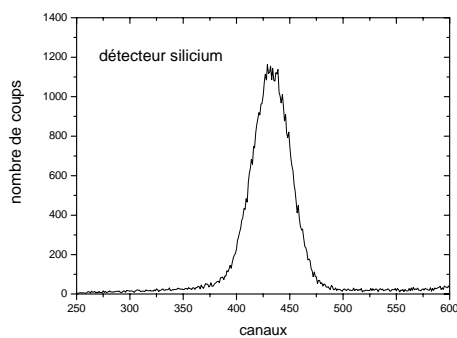


Figure (12) : spectre  $K_{\alpha}$  du sodium avec un (DSi)

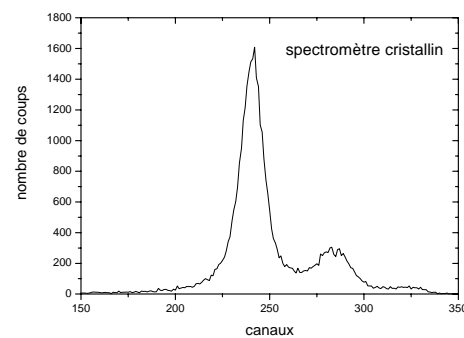


Figure (13) : spectre  $K_{\alpha}$  du sodium avec le (SpC)

On observe sur le (DSi), sous une même raie, la  $K_{\alpha}$  du (Na) dont l'énergie est de (1040,98 eV) et les satellites de la raie. A haute résolution, avec le (SpC) au premier ordre de diffraction, on sépare la raie  $K_{\alpha}$  du (Na) de ses satellites qui se trouvent à plus hautes énergies. Connaissant les angles solides des deux détecteurs, on a déterminé la réflectivité intégrée du cristal de (TlAp), qui vaut ( $2,77 \cdot 10^{-4}$ ). Un calcul théorique de la réflectivité intégrée par la méthode de Darwin et Prins du cristal (TlAp) (001) a été effectué par Burek [ref.130] [ref.131], la figure (14) en donne les valeurs, dans la gamme d'énergie entre (800 eV) et (1800 eV). Notons par ailleurs, que la réflectivité intégrée que nous avons déterminée est du même ordre de grandeur que la valeur théorique ( $2,56 \cdot 10^{-4}$ ) donnée par Burek.

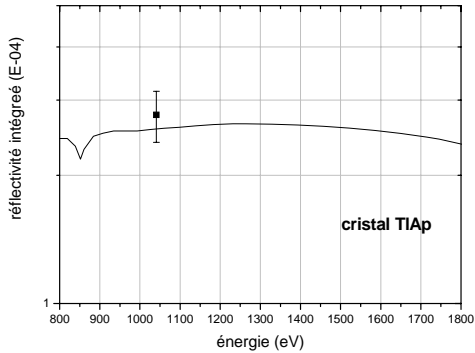


Figure (14) : réflectivité intégrée théorique du cristal (TIAP) sur la gamme d'énergie qui nous intéresse

L'autre modification apportée au (SpC) concerne le détecteur à localisation. Nous avons utilisé pour assurer l'étanchéité du détecteur, une feuille de mylar aluminisée de 3  $\mu\text{m}$  d'épaisseur au lieu de 12  $\mu\text{m}$ , pour absorber le moins possible les rayons X du néon. Nous avons utilisé un mélange gazeux (Ar 90% , CH<sub>4</sub> 10%) à une pression de 1000 mbar comme gaz détecteur à l'intérieur du détecteur à localisation. Avec ces nouveaux paramètres, l'efficacité de détection est améliorée dans la gamme d'énergie qui nous intéresse. La figure (15) représente la courbe d'efficacité du détecteur à localisation. Notons que l'efficacité ( $\epsilon_d$ ) à 1 keV est de (0,27).

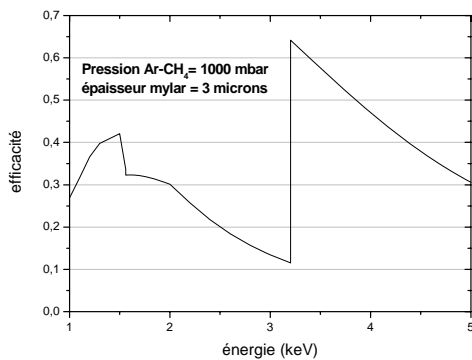


Figure (15) : efficacité du détecteur à localisation, pression gaz détecteur 1000 mbar, fenêtre mylar de 3  $\mu\text{m}$

Nous rappelons que la transmission ( $T_s$ ) du (SpC) dépend de la réflectivité ( $R_\theta$ ) du cristal, de l'efficacité ( $\epsilon_d$ ) du détecteur à localisation et de l'angle solide de détection ( $H/4\pi.2L$ ) (eq.4, chap.II). La longueur des bras du spectromètre ( $2L$ ) pour cette expérience, a été prise égale à (1764 mm) pour optimiser la résolution et la transmission du (SpC). l'angle solide vaut donc ( $2,71 \cdot 10^{-3}$ ).

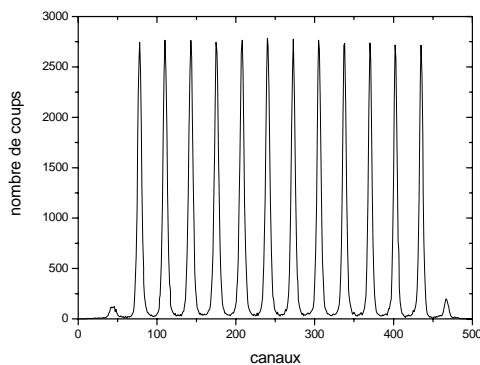


Figure (16) : spectre détecteur à localisation avec fentes

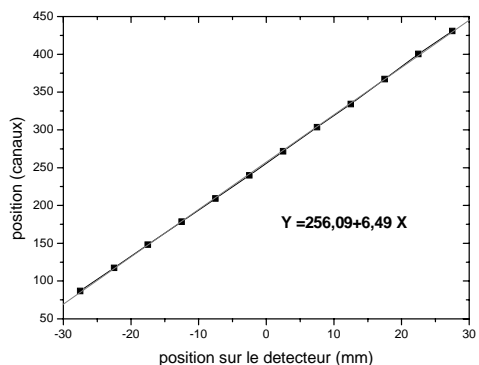


Figure (17) : droite d'étalonnage du détecteur à localisation



Pour étalonner en énergie le (SpC), nous avons procédé de la même manière que dans le chapitre II. Nous avons utilisé la cible de ( $\text{NaNO}_3$ ) et le canon à électron pour produire une source de rayonnement X, en l'occurrence la raie  $K_\alpha$  du sodium. Le spectre enregistré dans ce cas, en utilisant la plaque en cuivre en forme de peigne (chap.II), nous permet de construire une droite d'étalonnage donnant la position spatiale sur le détecteur à localisation en fonction du numéro de canal. Les figures (16) et (17) représentent le spectre obtenu avec la raie  $K_\alpha$  du sodium et la droite d'étalonnage, dont la pente (P) vaut (6,49 canaux / mm). La différence en numéro de canal entre deux raies en fonction de leurs angles de diffraction ( $\theta_B$ ) sur le cristal est donnée par l'équation (8) au chapitre (II).

## 2. Les détecteurs silicium

Les deux détecteurs silicium, ( $\text{DSi}^1$ ) et ( $\text{DSi}^2$ ) sont du même type, et diffèrent l'un de l'autre du point de vue de leur efficacité et de leur étalonnage en énergie. Le ( $\text{DSi}^1$ ) est celui utilisé lors de l'étude du plasma de la source ECR SIMPA, il a été placé à ( $150^\circ$ ) par rapport au faisceau (fig.1) pour être symétrique par rapport au (SpC) et pouvoir donc servir de monitoring pendant la prise de données. Le ( $\text{DSi}^2$ ) a pour rôle d'enregistrer les spectres X à basse résolution, il a été placé à ( $-60^\circ$ ) pour s'affranchir au mieux de la polarisation des photons X [ref.15] émis lors de la collision des ions de  $\text{Ne}^{9+}$  avec les agrégats d'argon.

L'efficacité de détection ( $\eta$ ) du ( $\text{DSi}^2$ ) a été déterminée précisément lors d'une étude antérieure, au sein de l'équipe. L'efficacité du ( $\text{DSi}^1$ ) a été déterminée par comparaison par rapport au ( $\text{DSi}^2$ ). Cette étude comparative a été effectuée en enregistrant simultanément sur les deux détecteurs des spectres d'émission X de différentes raies. Les raies étant produites par impact électronique en utilisant un canon à électron, sur différentes cibles tel que ( $\text{NaNO}_3$ ), ( $\text{MgF}_2$ ) et ( $\text{KClAl}$ ). L'angle solide des deux détecteurs silicium montés sur la chambre de collision est le même ( $\Omega/4\pi = 14,35 \cdot 10^{-6}$ ). Les figures (18) et (19) représentent l'efficacité de détection ( $\eta$ ) pour les deux ( $\text{DSi}$ ), elles sont très voisines. L'épaisseur des fenêtres de Béryllium des deux ( $\text{DSi}$ ) est respectivement égale à  $18,5 \mu\text{m}$  pour le ( $\text{DSi}^1$ ) et à  $15,0 \mu\text{m}$  pour le ( $\text{DSi}^2$ ).

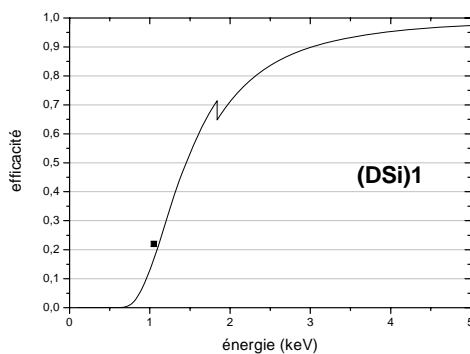


Figure (18) : efficacité du ( $\text{DSi}^1$ )

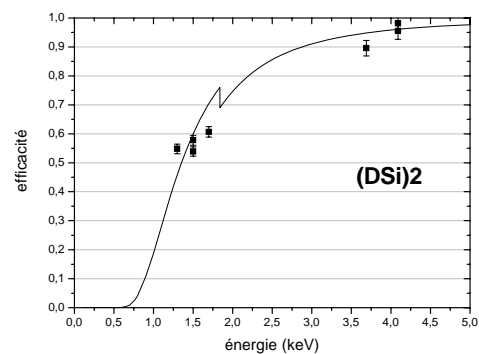


Figure (19) : efficacité du ( $\text{DSi}^2$ )

Pour étalonner en énergie les deux ( $\text{DSi}$ ), nous avons procédé de la même façon que précédemment. Nous avons utilisé les raies d'émission X de différentes cibles pour obtenir la droite d'étalonnage donnant l'énergie en fonction du numéro de canal. Les raies que nous avons utilisées sont les  $K_\alpha$  et  $K_\beta$  de plusieurs éléments, et nous donnons ci dessous sous forme de tableau les énergies tabulées de ces raies [ref.135].

Raies	$K_{\alpha}$ F	$K_{\alpha}$ Na	$K_{\alpha}$ Mg	$K_{\alpha}$ Al	$K_{\alpha}$ Si	$K_{\alpha}$ Cl	$K_{\alpha}$ K
Energies (eV)	676,80	1040,98	1253,60	1486,56	1739,98	2621,85	3312,90

Raies	$K_{\alpha}$ K	$K_{\beta}$ K	$K_{\alpha}$ Cr	$K_{\beta}$ Cr	$K_{\alpha}$ Fe	$K_{\beta}$ Fe	$K_{\alpha}$ Ni
Energies (eV)	3312,90	3589,60	5411,65	5946,51	6399,51	7057,98	7472,40

Tableau (2) : les énergies des raies utilisées pour l'étalonnage des (DSi) [ref.135]

Les figures (20) et (21) représentent respectivement les droites d'étalonnage du (DSi)<sup>1</sup> et du (DSi)<sup>2</sup>. Nous avons fait en sorte d'avoir approximativement les mêmes pentes pour les deux droites d'étalonnage et ce en ajustant les gains des deux (DSi).

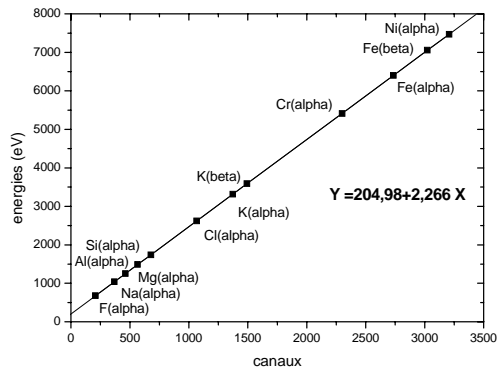


Figure (20) : droite d'étalonnage du (DSi)<sup>1</sup>

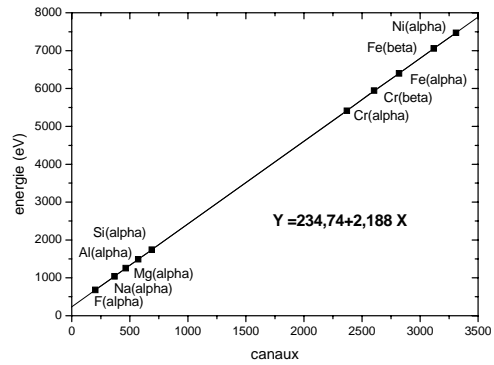


Figure (21) : droite d'étalonnage du (DSi)<sup>2</sup>



## **Chapitre V :**

# **Premiers résultats de collision entre des ions $\text{Ne}^{9+}$ avec des agrégats d'argon et discussion**

### **Plan du chapitre :**

#### **I. Mode d'acquisition**

#### **II. Spectres type et intensité des raies**

1. Présentation des spectres Gen et Van
2. Calcul du rapport des intensité des raies
3. Comparaison entre l'expérience et le calcul

#### **III. Variation de l'intensité des raies**

1. Variation avec la pression amont
2. Variation avec la distance buse-écorceur
3. Variation avec la fréquence d'ouverture de la vanne

#### **IV. Variation de l'énergie des raies**

## Introduction

Nous présenterons et discuterons dans ce chapitre, les premiers résultats obtenus en collision d'un faisceau d'ions lents de  $\text{Ne}^{9+}$  avec des agrégats d'argon, dont la taille moyenne est de l'ordre de quelques centaines à plusieurs centaines d'atomes par agrégat. Ces premiers résultats ont été obtenus avec le détecteur silicium (DSi)<sup>2</sup>, avec lequel nous avons enregistré une série de spectres d'émission de photons X à basse résolution provenant de la désexcitation du projectile. Nous avons enregistré avec ce détecteur deux types de spectres, les premiers sans fenêtre temporelle durant la prise de donnée et les seconds en sélectionnant une fenêtre temporelle qui correspond au temps d'ouverture de la vanne pulsée du jet d'agrégat.

### I. Mode d'acquisition

Nous rappelons que la production des agrégats d'argon est contrôlée par une vanne pulsée dont le temps d'ouverture a été fixé à 500  $\mu\text{s}$ . La répétition du temps d'ouverture est variable, elle est de l'ordre de quelques Hertz. Le choix d'utiliser une vanne pulsée avec un temps d'ouverture court, permet de limiter et de contrôler la pression dans la chambre de collision. Les deux types de spectres enregistrés, correspondent pour les premiers à une prise de donnée aussi bien pendant le temps d'ouverture que celui de fermeture de la vanne pulsée. Les événements enregistrés sont donc ceux de la collision du faisceau d'ions avec les agrégats pendant l'ouverture de la vanne pulsée mais aussi avec les atomes constituant le gaz résiduel dans la chambre de collision, le reste du temps. Ces spectres seront appelés dans la suite du chapitre (Gen). Les deuxièmes types de spectres, qu'on appellera spectres (Van), sont enregistrés uniquement pendant l'ouverture de la vanne et donc pendant la production des agrégats.

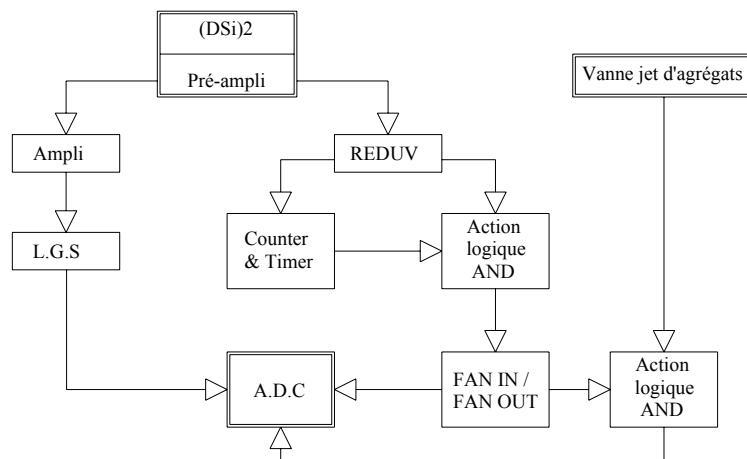


Figure (1) : Schéma de l'électronique associée au détecteur silicium (DSi)<sup>2</sup>

Pour enregistrer simultanément les deux types de spectres décrits plus hauts, l'électronique associée au (DSi)<sup>2</sup> intègre le signal d'ouverture de la vanne pulsée donné par le boîtier de commande de cette dernière (fig.1). Les voies électroniques associées au (DSi)<sup>2</sup> sont au nombre de trois, une voie électronique linéaire qui renferme l'information énergie des photons X, et deux voies logiques qui servent au déclenchement de l'acquisition de données.

La voie électronique linéaire est constituée en plus du préamplificateur intégré au détecteur, d'un amplificateur, d'un module de mise en forme du signal (L.G.S) et d'un codeur analogique numérique (A.D.C). La première voie logique pour l'enregistrement des spectres (Gen) utilise la sortie déclenchement du préamplificateur du (DSi)<sup>2</sup>, elle est constituée d'un module retardateur de signal (REDUV), d'un compteur de temps, d'un module d'action logique (AND), d'un module distributeur de signal (FAN IN / FAN OUT) et déclenche le codeur analogique numérique (A.D.C) (fig.1). La deuxième voie logique pour l'enregistrement des spectres (Van) est constituée des mêmes éléments que la première voie logique, à laquelle, nous avons rajouté la condition de l'ouverture de la vanne pulsée à travers un module d'action logique (AND).

## II. Spectres type et intensité des raies

### 1. Présentation des spectres Gen et Van

Nous présentons ci dessous, deux spectres type de la série des spectres enregistrés avec le (DSi)<sup>2</sup>, en l'occurrence un spectre Gen et un spectre Van. Ces deux spectres ont été enregistrés avec une pression amont ( $P_0$ ) égale à 2,0 bars, ce qui correspond à une production d'agrégats d'argon dont la taille moyenne est de 880 atomes par agrégat et dont le rayon est approximativement de 2,0 nm. Le nombre de coups enregistrés sur le spectre Gen correspond à la totalité des coups arrivant sur le (DSi)<sup>2</sup> pendant le temps d'acquisition ( $t_G = 10^4$  s). Alors que le nombre de coups enregistré sur le spectre Van correspond au nombre de coups arrivant sur le (DSi)<sup>2</sup> pendant 1/400 ème du temps d'acquisition ( $t_V = 1/400 \cdot t_G$ ). Ceci est dû au temps d'ouverture et à la fréquence d'ouverture de la vanne pulsée du jet d'agrégats. Durant l'enregistrement des spectres (fig.2 et 3), la fréquence d'ouverture de la vanne était de 5 Hz.

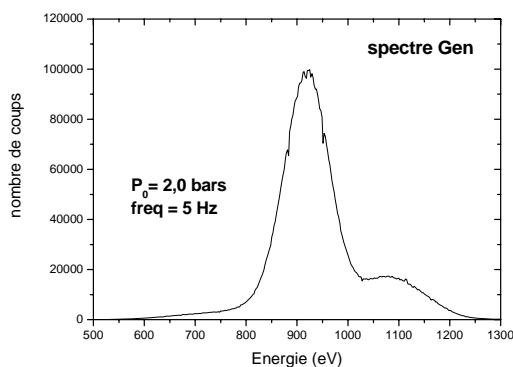


Fig (2) : spectre de type Gen  
Ne<sup>9+</sup> (126 keV)- agrégats Ar<sub>880</sub>

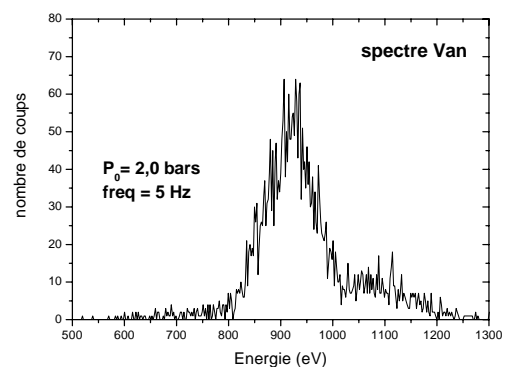


Fig (3) : spectre de type Van Ne<sup>9+</sup>  
(126 keV)- agrégats Ar<sub>880</sub>

On observe sur le spectre Gen, deux pics, le premier correspond à la raie  $K_\alpha$  des ions de néon et un deuxième pic à plus haute énergie, plus large, correspondant aux raies  $K_\beta$ ,  $K_\gamma$  et autres raies d'énergies plus grandes. Le spectre Gen est principalement dû à des collisions entre le faisceau d'ions et les atomes constituant le gaz résiduel. En conséquence, si on considère que les ions Ne<sup>9+</sup> effectuent uniquement une simple capture électronique en collision avec ces atomes, la raie  $K_\alpha$  doit avoir une énergie qui est celle du néon héliumoïde, dont la valeur est de 922,02 eV pour la transition  $1s\ 2p\ ^1P_1$  vers  $1s^2$  et de 914,82 eV pour la transition  $1s\ 2p\ ^3P_1$  vers  $1s^2$ . L'énergie de la raie  $K_\alpha$  du spectre Gen est de 918,5 eV, ce qui confirme, que le spectre Gen correspond principalement à des collisions ions-atomes.

La présence des agrégats dans la zone d'interaction pendant l'ouverture de la vanne pulsée peut être mise en évidence en comparant l'intensité (nombre de coups) du spectre Gen avec l'intensité du spectre Van. S'il n'y avait que des cibles atomiques du gaz résiduel dans la zone d'interaction, pendant l'enregistrement du spectre Van, le rapport des intensités entre le spectre Gen ( $I_G$ ) et le spectre Van ( $I_V$ ), correspondrait au rapport entre les temps d'acquisitions. L'intensité ( $I_G$ ) serait alors 400 fois plus grande que ( $I_V$ ). Expérimentalement, le spectre Gen présenté plus haut est approximativement, 1840 fois plus intense que le spectre Van. Ce rapport ( $I_G/I_V \approx 1840$ ), ne peut être expliqué que si on considère l'existence d'agrégats dans la zone d'interaction.

## 2. Calcul du rapport des intensités des raies

L'intensité du spectre Gen, donnée par l'équation (1), peut être exprimée en fonction de l'angle solide du  $(DSi)^2$ , de l'efficacité ( $\eta$ ) du détecteur, du flux ionique arrivant sur les cibles ( $I_i$ ), de la densité atomique ( $N_{at}$ ), de la section efficace de capture ( $\sigma_{at}$ ), de la longueur de la zone d'interaction ( $x_G$ ) vue par le  $(DSi)^2$  et du temps d'acquisition ( $t_G$ ). Pendant l'enregistrement des spectres, nous avons mis un collimateur sur le  $(DSi)^2$  définissant une zone d'interaction observée par le détecteur  $x_G = 30$  mm, au centre de la chambre de collision.

$$\frac{I_G}{\Omega/4\pi \cdot \eta} = I_i \cdot N_{at} \cdot \sigma_{at} \cdot x_G \cdot \omega_{at} \cdot t_G \quad (\text{eq.1})$$

Le terme ( $\omega_{at}$ ) représente le rapport de branchement de la raie  $K_\alpha$  du néon héliumoisé. Vu que les transitions  $1s\ 2p$  ( $^3P_0$  et  $^3P_2$ ) vers  $1s^2$  ont une probabilité de transition négligeable devant les transitions  $1s\ 2p$  ( $^3P_1$  et  $^1P_1$ ) vers  $1s^2$ , le rapport de branchement ( $\omega_{at}$ ) est pris égal à 0,5.

Durant l'ouverture de la vanne pulsée, la zone d'interaction ( $x_G$ ) observée par le  $(DSi)^2$  est en partie occupée par les agrégats et en partie occupée par les atomes qui constituent le gaz résiduel. La longueur de la zone d'interaction occupée par les agrégats ( $x_A$ ) est inférieure à ( $x_G$ ). Elle est fonction de la largeur du faisceau d'agrégat au centre de la chambre de collision, qui est elle-même définie géométriquement par la position de la buse conique et de l'écorceur par rapport au centre de la chambre de collision (fig.4). La longueur de la zone d'interaction avec les agrégats ( $x_A$ ) au centre de la chambre est déterminée géométriquement en prenant en compte la distance totale ( $z$ ) entre la buse conique et le centre de la chambre de collision ainsi que la distance ( $z_0$ ) entre la buse conique et l'écorceur, ce dernier a une position fixe.

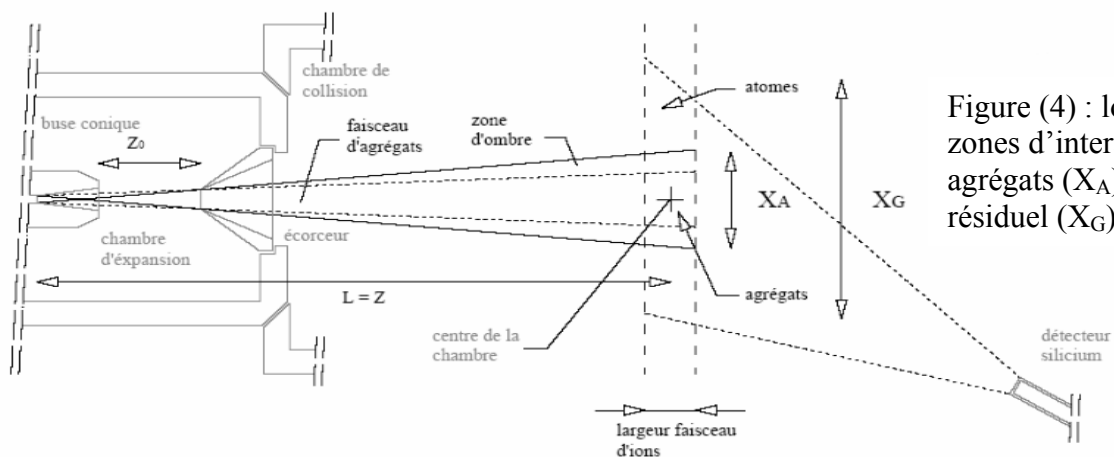


Figure (4) : longueur des zones d'interaction avec les agrégats ( $x_A$ ) et le gaz résiduel ( $x_G$ )

L'intensité du spectre Van ( $I_V$ ) est donc la somme des intensités issues de l'interaction du faisceau d'ions, d'une part avec les agrégats d'argon et d'autre part avec les atomes du gaz résiduel. L'équation (2) en donne l'expression, où ( $x_A$ ) et ( $x_V$ ) sont respectivement les longueurs des zones d'interaction occupées par les agrégats et les atomes ( $x_A + x_V = x_G$ ). ( $N_{ag}$ ) est la densité d'agrégats (nombre d'agrégats par unité de volume), ( $\sigma_{ag}$ ) représente la section efficace de capture électronique par les ions  $Ne^{9+}$  dans le cas où les cibles sont des agrégats et enfin le terme ( $\omega_{ag}$ ) représente le rendement de fluorescence pour une transition (KL) d'un ion de néon, avec plus d'un électron en couche (L).

Les rendements de fluorescence des ions de néon ont été calculés par Bhalla et al [ref.61] pour différentes configurations électroniques. Pour le cas d'un ion de néon possédant une lacune en couche (K), le rendement de fluorescence ( $\omega_{ag}$ ) est égal à 1,6 % lorsque la couche (L) contient 8 électrons. Le rendement de fluorescence augmente quand le nombre d'électrons en couche (L) diminue et lorsque cette dernière contient deux électrons, la valeur de ( $\omega_{ag}$ ) est de 8,2 %. Pour effectuer le calcul du rapport d'intensité entre ( $I_G$ ) et ( $I_V$ ) (eq.3), nous prendrons une valeur moyenne pour le rendement de fluorescence ( $\omega_{ag}$ ) égale à 3%.

$$\frac{I_V}{\Omega/4\pi \cdot \eta} = I_i \cdot t_V \cdot [ N_{ag} \cdot \sigma_{ag} \cdot x_A \cdot \omega_{ag} + N_{at} \cdot \sigma_{at} \cdot x_V \cdot \omega_{at} ] \quad (eq.2)$$

Le rapport des intensités ( $I_G/I_V$ ) entre les deux spectres Gen et Van peut alors être obtenu directement à partir des équations (1 et 2). En explicitant les termes entrant dans l'expression de l'équation (3), notamment la densité atomique ( $N_{at}$ ), la densité d'agrégats ( $N_{ag}$ ) et les sections efficaces ( $\sigma_{at}$ ) et ( $\sigma_{ag}$ ), on peut comparer le rapport des intensités ( $I_G/I_V$ ) calculé avec celui trouvé expérimentalement ( $\approx 1840$ ).

$$\frac{I_G}{I_V} = \frac{N_{at} \cdot \sigma_{at} \cdot x_G \cdot \omega_{at}}{N_{ag} \cdot \sigma_{ag} \cdot x_A \cdot \omega_{ag} + N_{at} \cdot \sigma_{at} \cdot x_V \cdot \omega_{at}} \cdot \frac{t_G}{t_V} \quad (eq.3)$$

En considérant le gaz résiduel dans la chambre d'interaction comme un gaz parfait, on peut exprimer la densité atomique en fonction de la pression du gaz résiduel ( $P_{res}$ ). L'expression de ( $N_{at}$ ) est donnée par (eq.4) en considérant que la température dans la chambre de collision est celle de la température ambiante (296 K). Par ailleurs, en supposant que le gaz résiduel est composé d'atomes d'argon pendant le fonctionnement du jet d'agrégat, on peut déterminer la section efficace de la capture électronique pour un ion  $Ne^{9+}$  suivant le modèle COB. Un ion  $Ne^{9+}$  en collision avec un atome d'argon, capture selon le modèle COB un électron à une distance de l'ordre de 12,1 u.a = 6,4 Å, la section efficace classique ( $\pi \cdot d^2$ ) de capture électronique est donc de l'ordre de  $1,28 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2$  (eq.5).

$$N_{at} \text{ (atomes/cm}^3\text{)} = 2,62 \cdot 10^{16} \cdot P_{res} \text{ (mbar)} \quad (eq.4)$$

$$\sigma_{at} = \pi \cdot d^2 \approx 1,28 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2 \quad (eq.5)$$

La section efficace que nous prenons est une estimation basée sur le modèle de la sphère absorbante ( $\pi \cdot d^2$ ). Cependant différents auteurs notamment Ryufuku [ref.46], expriment la section efficace de capture ( $\sigma_{at}$ ) sous la forme de ( $A \cdot \pi \cdot d^2$ ), où (A) est un facteur inférieur à un, généralement pris égal à 0,5 dans la littérature.



La densité des agrégats au centre de la chambre de collision peut être retrouvée en faisant le rapport entre la densité atomique dans le jet ( $N_{\text{jet}}$ ) donnée par (eq.14, chap.IV) et la taille moyenne des agrégats  $\langle n \rangle$  donnée par (eq.7 et 8, chap.IV). L'équation (6) donne l'expression de ( $N_{\text{ag}}$ ) en fonction de la pression ( $P_0$ ) dans le réservoir de gaz du jet d'agrégat et en fonction de la distance ( $z_0$ ) en mm, entre la buse conique et l'écorceur (fig.7, chap.IV).

$$N_{\text{ag}} (\text{agrégats/cm}^3) = 1,03 \cdot 10^{19} \cdot \frac{1}{(371+z_0)^2} \cdot \frac{P_0(\text{bar})}{\langle n \rangle} \quad (\text{eq.6})$$

Pour évaluer la section efficace de capture électronique des ions  $\text{Ne}^{9+}$  en collision avec des agrégats d'argon, nous ferons référence au modèle COB et aux calculs effectués dans le chapitre III. La distance de la première capture électronique pour un ion  $\text{Ne}^{9+}$  en collision avec un agrégat d'argon de grande taille est de l'ordre de  $7,6 \text{ u.a} = 4,0 \text{ \AA}$  par rapport à la surface de l'agrégat. Elle est inférieure à la distance de capture électronique dans le cas d'un atome isolé à cause de la charge image du projectile, dont l'effet est de faire augmenter la barrière de potentiel entre le projectile et la cible (eq.4, chap.III). La section efficace de capture électronique s'exprime donc en fonction de la première distance de capture électronique et en fonction du rayon ( $R$ ) de l'agrégat.

$$\sigma_{\text{ag}} = \pi \cdot (d_1 + R)^2 = \pi \cdot (7,6 + R)^2 \quad (\text{eq.7})$$

### 3. Comparaison entre l'expérience et le calcul

Dans les conditions d'enregistrement des spectres Gen et Van présentés dans ce paragraphe, où la pression amont est égale à ( $P_0 = 2,0 \text{ bars}$ ) et la fréquence d'ouverture de la vanne est égale à ( $f_v = 5 \text{ Hz}$ ), la distance entre la buse conique et l'écorceur a été fixée à ( $z_0 = 3 \text{ mm}$ ). La distance entre la buse conique et le centre de la chambre de collision est alors égale à ( $z = 371 + z_0 = 374 \text{ mm}$ ). Dans ce cas de figure, la largeur du faisceau d'agrégat au centre de la chambre de collision est de l'ordre de  $10 \text{ mm}$ . En considérant la zone d'ombre du jet d'agrégat (fig.4), qui contient également des agrégats, on peut estimer approximativement la longueur ( $x_A$ ) au double de la largeur du faisceau, soit  $20 \text{ mm}$ .

La distance ( $z_0$ ) étant de  $3 \text{ mm}$  et la taille moyenne des agrégats de  $880$  atomes à une pression amont de  $2,0 \text{ bars}$ , la densité d'agrégats ( $N_{\text{ag}}$ ) est donc de l'ordre de  $1,68 \cdot 10^{11} \text{ agrégats/cm}^3$  (eq.6). En comparant cette densité à la densité atomique ( $N_{\text{at}}$ ) lors de l'enregistrement des spectres, qui était de l'ordre de  $3,01 \cdot 10^{11} \text{ atomes/cm}^3$  avec une pression du gaz résiduel de  $1,15 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$  (eq.4), on constate que les deux densités sont du même ordre de grandeur.

Dans le cas présent, le rayon de l'agrégat est de l'ordre de  $2,0 \text{ nm}$ . La section efficace de capture correspondante ( $\sigma_{\text{ag}}$ ) (eq.7) est donc, approximativement égale à  $1,81 \cdot 10^{-13} \text{ cm}^2$ , soit plus d'un ordre de grandeur supérieure à la section efficace de capture électronique dans le cas où la cible est un atome d'argon isolé.

En ayant tous les paramètres entrant dans l'expression de l'équation (3), le calcul de ( $I_G/I_V$ ) donne une valeur de  $620$ , alors que la valeur expérimentale est de  $1840$ . Bien que cette valeur calculée de ( $I_G/I_V$ ) diffère de la valeur expérimentale, on trouve par ce calcul un ordre de grandeur semblable à celui trouvé expérimentalement. Mais le plus important, dans le calcul effectué est la prise en compte de la contribution des collisions ions-agrégats pour retrouver un rapport d'intensité ( $I_G/I_V$ ) du même ordre de grandeur que la valeur expérimentale.

Si la zone d'interaction n'était occupée que par des atomes non agrégés et les atomes du gaz résiduel, le calcul de  $(I_G/I_V)$  donne 1,22. Ceci démontre de la présence d'agrégats dans la zone d'interaction et en conséquence, le spectre Van renferme assurément l'information de l'interaction des ions  $Ne^{9+}$  avec les agrégats d'argon.

L'autre information qu'on peut déduire du rapport des intensités  $(I_G/I_V)$  est celle relative au taux d'agrégation ( $\eta_g$ ) des atomes dans le jet d'agrégats. Dans l'équation (3), nous avons supposé qu'à l'intérieur du jet d'agrégats ne se trouvent que des agrégats, le taux d'agrégation supposé est donc de 100 %. Si on avait supposé un taux d'agrégation inférieur, on aurait trouvé un rapport d'intensité  $(I_G/I_V)$  calculé inférieur à 620 (1,22 si  $\eta_g = 0$  %) et donc une valeur plus éloignée de la valeur expérimentale (1840). Ceci est dû au fait que la densité atomique dans le jet d'agrégats ( $N_{jet} = N_{ag} \cdot \langle n \rangle$ ) est de l'ordre de  $10^{14}$  atomes/cm<sup>3</sup>, soit trois ordres de grandeur supérieur à la densité d'agrégats ( $N_{ag}$ ).

Si on introduit le paramètre du taux d'agrégation ( $\eta_g$ ) dans l'équation (3) pour tenir compte des atomes non agrégés dans le jet d'agrégats, le rapport des intensités  $(I_G/I_V)$  aura pour expression, celle donnée par l'équation (8). En supposant que l'intensité  $(I_V)$  du spectre Van n'est due qu'à la contribution des atomes non agrégés dans le jet et des atomes du gaz résiduel, et que les ions en collision avec les agrégats n'émettent pas de photons X, ce qui revient à supposer que le rendement de fluorescence ( $\omega_{ag}$ ) est nul. On trouve un taux d'agrégation approximativement égal à 99,98 % pour que le rapport des intensités  $(I_G/I_V)$  soit celui déterminé expérimentalement.

$$\frac{I_G}{I_V} = \frac{N_{at} \cdot \sigma_{at} \cdot X_G \cdot \omega_{at}}{N_{ag} \cdot \sigma_{ag} \cdot X_A \cdot \omega_{ag} \cdot \eta_g + N_{jet} \cdot \sigma_{at} \cdot X_A \cdot (1 - \eta_g) \cdot \omega_{at} + N_{at} \cdot \sigma_{at} \cdot X_V \cdot \omega_{at}} \cdot \frac{t_G}{t_V} \quad (\text{eq.8})$$

$$\text{si } \omega_{ag} = 0 \Rightarrow \frac{I_G}{I_V} = \frac{N_{at} \cdot \sigma_{at} \cdot X_G \cdot \omega_{at}}{N_{jet} \cdot \sigma_{at} \cdot X_A \cdot (1 - \eta_g) \cdot \omega_{at} + N_{at} \cdot \sigma_{at} \cdot X_V \cdot \omega_{at}} \cdot \frac{t_G}{t_V}$$

$$\frac{I_G}{I_V} (\text{exp}) = 1840 \Rightarrow \eta_g = 99,98 \%$$

La limite inférieure ainsi trouvée du taux d'agrégation confirme a priori l'hypothèse que nous avons faite, à savoir une agrégation complète des atomes dans le jet d'agrégats. Néanmoins, ce résultat ne s'accorde pas avec les études faites par Blasco et al [ref.132] et Dorchie et al [ref.133], concernant le taux d'agrégation des atomes dans un jet d'agrégats produit par une buse conique. En effet, ces études ont associé des expériences de diffusion Rayleigh et d'interférométrie Mach-Zehnder sur un jet d'agrégat d'argon en utilisant une source laser. Ces expériences ont été couplées à un code de simulation d'agrégation des atomes pour retrouver la taille des agrégats et le taux d'agrégation ( $\eta_g$ ). Les valeurs trouvées pour ce dernier paramètre sont de l'ordre de 20 à 30 %. Si le taux d'agrégation était de 30 %, le rapport des intensités  $(I_G/I_V)$  serait dans notre cas de (1,74), ce qui est en totale contradiction avec la valeur expérimentale trouvée (1840). Néanmoins, les mesures expérimentales de Blasco, Dorchie et al ont été effectuées sans écorceur et à une distance de quelques millimètres par rapport à la buse conique, donc dans une géométrie complètement différente de la notre.

### III. Variation de l'intensité des raies

Nous présenterons dans ce paragraphe, des spectres Gen et Van enregistrés en faisant varier les différents paramètres de production des agrégats, en l'occurrence, la pression ( $P_0$ ) en amont de la buse conique, la distance ( $z_0$ ) entre la buse conique et l'écorceur et enfin la fréquence ( $f_V$ ) d'ouverture de la vanne pulsée. Nous discuterons dans les trois cas, de l'intensité des raies sur les deux spectres et plus particulièrement du rapport d'intensité entre le spectre Gen et le spectre Van ( $I_G/I_V$ ).

#### 1. Variation avec la pression amont

En faisant varier la pression ( $P_0$ ) dans le réservoir de gaz en amont de la buse, on fait varier la taille moyenne  $\langle n \rangle$  des agrégats. Nous avons enregistré des spectres Gen et Van avec des pressions ( $P_0$ ) allant de 0,6 bars à 3,0 bars et regardé comment évoluait le rapport ( $I_G/I_V$ ) en fonction de la taille des agrégats. Les deux autres paramètres de contrôle du jet d'agrégat, ( $z_0$ ) et ( $f_V$ ), ont été fixés respectivement à 9,5 mm et 5 Hz. Les figures (5 et 6) représentent les différents spectres Gen et Van obtenus avec des pressions ( $P_0$ ), de 0,6 / 1,0 / 2,0 et 3,0 bars. La taille moyenne des agrégats pour ces pressions est respectivement de 50, 170, 880 et 2280 atomes par agrégat avec des rayons ( $R$ ) de 0,8 / 1,2 / 2,0 et 2,7 nm.

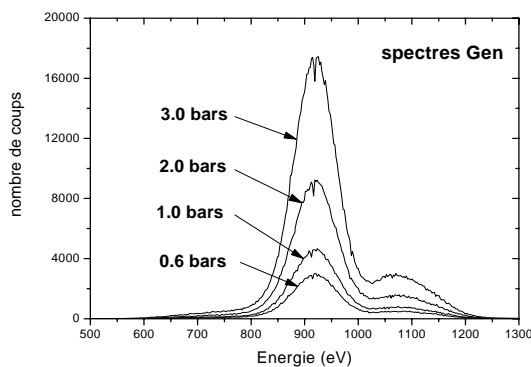


Figure (5) : spectres Gen pour différentes pressions  $P_0$

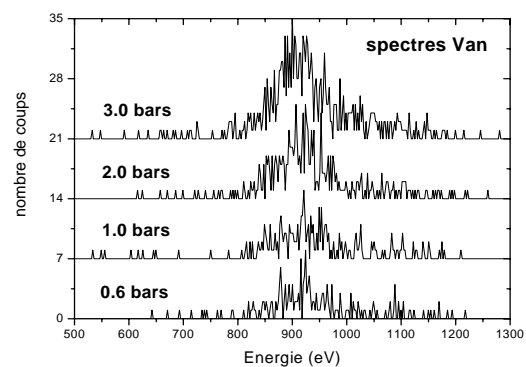


Figure (6) : spectres Van pour différentes pressions  $P_0$

L'intensité des raies des spectres Gen augmente avec la pression amont ( $P_0$ ), et de même pour l'intensité des raies des spectres Van. Cette augmentation des intensités des raies se fait différemment selon les deux types de spectre et le rapport ( $I_G/I_V$ ) n'est donc pas constant mais augmente avec la pression ( $P_0$ ). L'évolution du rapport ( $I_G/I_V$ ) en fonction de la pression ( $P_0$ ) est donnée sous forme d'un diagramme par la figure (7).

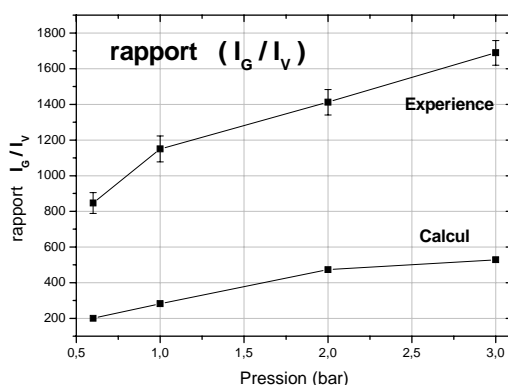


Figure (7) : évolution de  $I_G/I_V$  en fonction de la pression  $P_0$

L'évolution du rapport ( $I_G/I_V$ ) obtenu expérimentalement, possède globalement la même forme que celui calculé par l'équation (3). En faisant varier la pression amont ( $P_0$ ), on fait varier la taille moyenne des agrégats et la pression résiduelle ( $P_{res}$ ) dans la chambre de collision. Ceci a pour conséquence de faire varier trois paramètres dans l'équation (3), la densité atomique ( $N_{at}$ ), la densité d'agrégats ( $N_{ag}$ ) et la section efficace ( $\sigma_{ag}$ ). En reproduisant par le calcul la forme de l'évolution du rapport ( $I_G/I_V$ ), on peut supposer a priori que l'expression de l'équation (3) décrit dans l'ensemble ce qui se passe dans la zone d'interaction. En conséquence, les spectres Van correspondent bien à la contribution de deux types de collisions, la première avec des atomes et la seconde avec des agrégats.

## 2. Variation avec la distance buse-écorceur

Pour cette série de spectres Gen et Van enregistrés en variant la distance ( $z_0$ ), nous avons fixé la pression amont ( $P_0$ ) à 2,0 bars et la fréquence d'ouverture de la vanne pulsée dans un premier temps à 5 Hz et dans un deuxième temps à 10 Hz. Avec la première fréquence, nous avons utilisé des distances ( $z_0$ ), entre la buse conique et l'écorceur, de 25, 12 et 6 mm. Avec la deuxième fréquence, les distances ( $z_0$ ) utilisés étaient de 15, 10 et 6 mm.

Nous avons regardé dans les deux cas, comment évolue le rapport des intensités ( $I_G/I_V$ ) et si l'équation (3) établie plus haut, reproduisait la forme d'évolution du rapport ( $I_G/I_V$ ) obtenu expérimentalement. Cela nous permet de vérifier si le calcul effectué précédemment dans la détermination du rapport ( $I_G/I_V$ ) rend bien compte de ce qui se passe réellement dans la zone d'interaction.

En faisant varier la distance entre la buse et l'écorceur, nous modifions la pression résiduelle ( $P_{res}$ ) dans la chambre de collision, la densité atomique au sein du jet d'agrégat ( $N_{jet}$ ) et la taille du faisceau d'agrégats. En conséquence les paramètres, que nous modifions dans l'équation (3) sont, la densité atomique ( $N_{at}$ ), la densité d'agrégat ( $N_{ag}$ ) et les longueurs des zones d'interaction ( $x_A$ ) et ( $x_V$ ) des ions projectiles, d'une part avec les agrégats et d'autre part avec les atomes du gaz résiduel, la somme des deux longueurs étant la longueur de détection ( $x_G$ ) observée par le (DSi)<sup>2</sup>.

En modifiant la distance ( $z_0$ ) entre la buse et l'écorceur, on modifie aussi un autre paramètre, que nous n'avons pas considéré dans le calcul du rapport des intensités ( $I_G/I_V$ ). La distribution en taille des agrégats dans le jet suit une loi log-normale (fig.9, chap.IV) et les agrégats les plus gros se trouvent probablement au centre du faisceau d'agrégat. En changeant la distance entre la buse conique et l'écorceur, on sélectionne donc aussi des faisceaux d'agrégats de différents diamètres et sans doute des agrégats dont la taille moyenne n'est pas la même. La variation de la distance ( $z_0$ ) pourrait avoir une influence sur la taille moyenne des agrégats et donc sur la densité d'agrégats ( $N_{ag}$ ).

Les figures (8) et (9) montrent les spectres Gen et Van enregistrés dans le cas où la pression amont était fixée à 2,0 bars et la fréquence d'ouverture de la vanne pulsée était fixée à 5 Hz. L'intensité des raies dans les spectres Gen diminue quand on augmente la distance buse-écorceur et de même pour les spectres Van, mais dans des proportions différentes comme dans le cas de la variation de la pression amont ( $P_0$ ). La diminution en intensité des raies dans les spectres Gen étant plus importante que celle dans les spectres Van, le rapport entre les deux intensités ( $I_G/I_V$ ) décroît inversement avec la distance ( $z_0$ ).

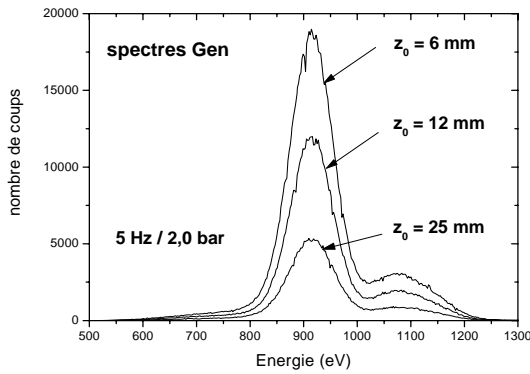


Figure (8) : spectres Gen fonction de  $z_0$

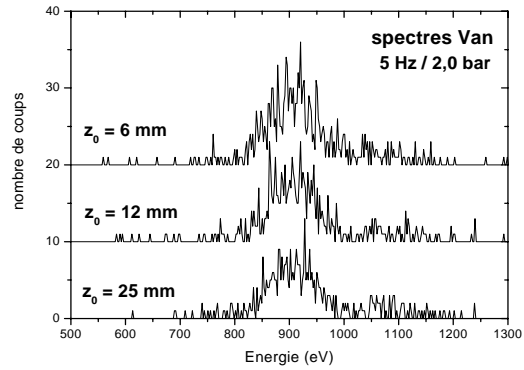
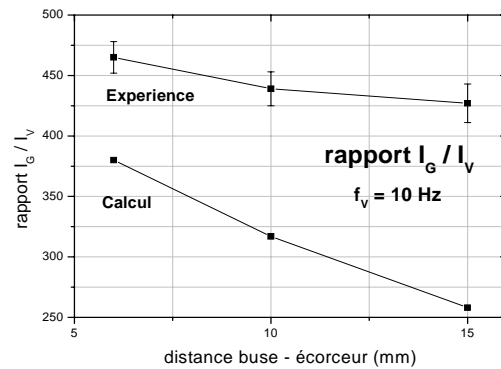
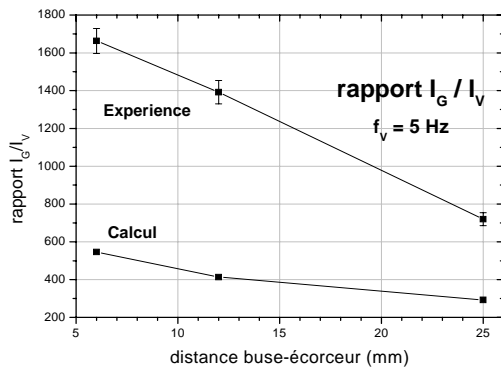


Figure (9) : spectres Van fonction de  $z_0$

En traçant l'évolution du rapport ( $I_G/I_V$ ) obtenu expérimentalement (fig.10, 10'), on constate qu'on retrouve par le calcul (eq.3), l'ordre de grandeur du rapport ( $I_G/I_V$ ) en question et que la forme des diagrammes d'évolution dans les deux cas, expérience et calcul sont plus ou moins similaires. Néanmoins, on constate un rapprochement entre les diagrammes expérience et calcul lorsque l'on passe, d'une fréquence d'ouverture de la vanne pulsée de 5 Hz à 10 Hz. Ceci indique a priori un effet supplémentaire de la fréquence ( $f_V$ ) autre que ceux pris en compte dans l'expression de l'équation (3), sur l'intensité des spectres.



Figures (10 et 10') : évolution de  $I_G/I_V$  en fonction de  $z_0$

### 3. Variation avec la fréquence d'ouverture de la vanne

En faisant varier la fréquence ( $f_V$ ) d'ouverture de la vanne pulsée, on ne modifie a priori que la pression résiduelle dans la chambre de collision et le rapport entre les temps d'acquisition des spectres Gen et Van ( $t_G/t_V$ ). Tous les autres paramètres entrant dans l'expression de l'équation (3) devraient rester constants. Nous avons enregistré une série de spectre en fixant la pression amont ( $P_0$ ) à 2,0 bars et la distance buse-écorceur ( $z_0$ ) à 7 mm, les fréquences ( $f_V$ ) utilisées lors de l'enregistrement des spectres étaient 5, 7, 10 et 15 Hz.

On constate sur les spectres Gen (fig.11) une augmentation de l'intensité des raies, principalement due à l'augmentation de la pression résiduelle dans la chambre de collision, qui passe de  $0,8 \cdot 10^{-5}$  mbar à 5 Hz à  $3,0 \cdot 10^{-5}$  mbar à 15 Hz et dont l'effet direct est l'augmentation de la densité atomique ( $N_{at}$ ). Sur les spectres Van (fig.12), on constate également une augmentation de l'intensité des raies en fonction de la fréquence ( $f_V$ ) d'ouverture de la vanne pulsée, mais cette augmentation est principalement due à la baisse du rapport des temps d'acquisition ( $t_G/t_V$ ), qui passe de 400 à 5 Hz à 133 à 15 Hz.

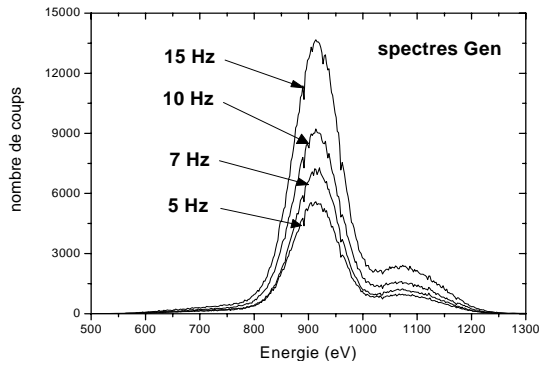


Figure (11) : spectres Gen pour différentes fréquences  $f_v$

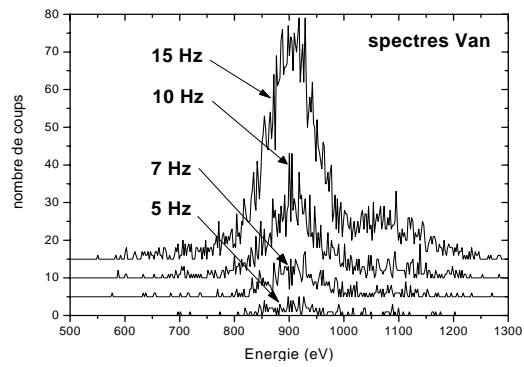


Figure (12) : spectres Van pour différentes fréquences  $f_v$

La première constatation qu'on peut faire sur l'intensité des spectres Van, est que l'augmentation du temps d'acquisition avec la fréquence ( $f_v$ ) pour ces spectres n'explique pas à elle seule l'augmentation de l'intensité des raies. La deuxième constatation, est que l'intensité des spectres Van augmente plus rapidement que l'intensité des spectres Gen, en conséquence le rapport entre les deux intensités ( $I_G/I_V$ ) décroît en fonction de la fréquence d'ouverture de la vanne pulsée. En traçant les deux diagrammes, expérimental et calculé du rapport ( $I_G/I_V$ ) sur la figure (13), on constate un désaccord entre les deux formes d'évolution du rapport des intensités, confirmant un effet de la fréquence ( $f_v$ ) sur l'intensité des raies autre que ceux pris en compte dans la détermination de ( $I_G/I_V$ ) par le calcul.

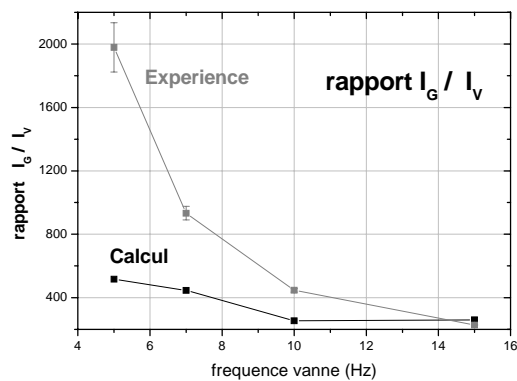


Figure (13) : évolution de  $I_G/I_V$  en fonction de la fréquence d'ouverture ( $f_v$ ) de la vanne

Cette dernière série de spectres Gen et Van montre que la fréquence d'ouverture de la vanne pulsée a une influence sur l'intensité des spectres, mais la totalité de cette influence reste à élucider. En conséquence, il nous est impossible pour le moment d'extraire avec certitude des spectres Van la contribution seule des collisions des projectiles  $Ne^{9+}$  avec les agrégats d'argon.

Nous avons vu qu'en faisant varier les paramètres de production des agrégats ( $P_0, z_0, f_v$ ), nous modifions à la fois plusieurs grandeurs entrant dans l'expression de l'équation (3) tous ayant une influence sur l'intensité des raies. Pour une meilleure compréhension des intensités des spectres enregistrés, il faudrait utiliser des collimateurs sur les détecteurs, le  $(DSi)^2$  en particulier, pour définir une zone observée par le détecteur au maximum égale à la largeur du faisceau d'agrégat, la largeur de cette zone est de 10 mm lorsque  $z_0 = 3$  mm et elle est de 6 mm lorsque  $z_0 = 25$  mm. En choisissant par exemple d'observer avec le  $(DSi)^2$  seulement 5 mm du total de la zone d'interaction, on s'affranchirait de la contribution des collisions ions-atomes sur les spectres Van et l'équation (3) se simplifierait, devenant indépendante des longueurs des zones d'interaction (eq.9).

$$\frac{I_G}{I_v} = \frac{N_{at} \cdot \sigma_{at} \cdot \omega_{at}}{N_{ag} \cdot \sigma_{ag} \cdot \omega_{ag}} \cdot \frac{t_G}{t_v} \quad (\text{eq.9})$$

Dans ce cas de figure, si la fréquence d'ouverture de la vanne pulsée a toujours une influence sur l'intensité des spectres Gen ou Van ou bien les deux en même temps, on pourra sans doute en déterminer la cause.

#### IV. Variation de l'énergie des raies

Dans ce paragraphe, nous revenons sur la série des spectres enregistrés en faisant varier la pression amont ( $P_0$ ) et nous nous intéresserons plus particulièrement aux spectres Van et à l'énergie des raies observées sur ces spectres. Pour rappel, en augmentant la pression amont ( $P_0$ ), on augmente la taille moyenne des agrégats. La longueur d'interaction des ions avec la cible va donc augmenter, notamment lorsque les ions traversent l'agrégat. Cela induit en principe une capture par les projectiles d'un grand nombre d'électrons et la probabilité de présence de plusieurs électrons sur la couche (L) sera plus grande, durant la désexcitation radiative (KL). L'énergie de la raie qu'on observe sur les spectres Van doit alors être inférieure à l'énergie de la transition (KL1) correspondant au néon héliumuide. En augmentant la pression ( $P_0$ ), on devrait donc observer un déplacement de la raie  $K_\alpha$  vers les basses énergies. La figure (14) montre deux spectres Van enregistrés pour deux pressions ( $P_0$ ), 0,6 et 3,0 bars. La taille moyenne des agrégats correspondante est respectivement de 50 et de 2280 atomes par agrégat.

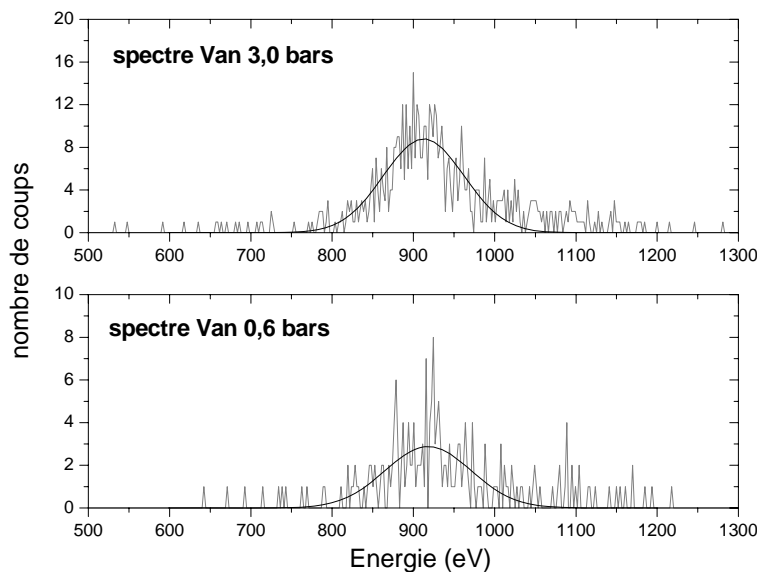


Figure (14) : spectres Van pour deux pressions amont  $P_0$  (0,6 et 3,0 bars) ajustés avec une distribution gaussienne

On observe sur la figure (14), un déplacement infime de la raie  $K_\alpha$  vers les basses énergies lorsque la pression ( $P_0$ ) passe de 0,6 à 3,0 bars. Il nous est impossible de quantifier avec précision ce déplacement vers les basses énergies des raies  $K_\alpha$  (transition KL), à cause d'une part de la faible statistique des spectres enregistrés et d'autre part à cause de la résolution du (DSi)<sup>2</sup>, qui est de l'ordre de la centaine d'eV à cette énergie ( $\approx 900$  eV). Néanmoins, nous estimons ce déplacement en énergie à quelques eV. Le calcul fait au chapitre III, pour une collision entre un ion  $Ne^{9+}$  avec un agrégat d'argon de 2600 atomes, montre que le nombre d'électrons observateurs en couche (L) durant la transition (KL) peut être important, induisant en principe un déplacement en énergie plus significatif que ce qui a été observé expérimentalement avec le (DSi)<sup>2</sup>.

Cela étant dit, la raie observée dans le spectre Van est la somme de toutes les raies  $K_\alpha$  dues aux différentes transitions (KL) éventuelles, ayant chacune un nombre d'électrons observateurs en couche (L) différent. Pour retrouver la contribution de chacune des transitions (KL) qui compose la raie  $K_\alpha$  totale, il faut distinguer en premier lieu les collisions périphériques des collisions frontales. En collisions périphériques, les ions  $Ne^{9+}$  capturent peu d'électrons (chap.III), on peut supposer dans ce cas de figure, qu'au maximum, un seul électron peut se retrouver en couche (L), donnant lieu à une transition (KL1). Donc plus la proportion des collisions périphériques est petite par rapport aux collisions totales, plus la contribution de la transition (KL1) est petite dans la composition de la raie  $K_\alpha$  totale.

En collisions frontales, les ions  $Ne^{9+}$  capturent beaucoup plus d'électrons qu'en collisions périphériques, et le projectile peut se retrouver durant la transition (KL) avec un nombre (A) d'électrons en couche (L) supérieur à un. Dans une première approximation, on peut supposer que la probabilité de présence d'un nombre (A) d'électrons en couche (L) suit une loi binomiale. En seconde étape, en prenant en compte les rendements de fluorescence des transitions (KL), qui varie entre 50 % pour la (KL1) et 1,6 % pour la (KL8), on peut estimer la contribution de chacune des transitions (KL) qui composent la raie  $K_\alpha$  totale dans le cas d'une collision frontale.

Soit  $P(A)$  la probabilité d'émission d'une raie satellite (KL) correspondant à la présence de (A) électrons en couche (L), et  $P_p(A)$  et  $P_f(A)$  les probabilités de présence de (A) électrons en couche (L) à la suite respectivement d'une collision périphérique ou frontale. Nous ferons l'hypothèse qu'en collisions périphériques, un seul électron au maximum peut se retrouver en couche (L), et qu'en collisions frontales, un nombre moyen ( $\bar{A}$ ) d'électrons se retrouve en couche (L).  $P_p(A)$  et  $P_f(A)$  sont alors données par les équations (10) et (11).

$$P_p(A) = 1/2 \cdot \delta_{A,0} + 1/2 \cdot \delta_{A,1} \quad (\text{eq.10})$$

$$P_f(A) = C_8^A \cdot \left[\frac{\bar{A}}{8}\right]^A \cdot \left[1 - \frac{\bar{A}}{8}\right]^{8-A} \quad (\text{eq.11})$$

Nous noterons (%P) et (%F), les proportions de collision périphériques et frontales, ces deux derniers paramètres étant déterminés théoriquement à partir de leurs sections efficaces partielles de collision ( $\sigma_p$ ) et ( $\sigma_f$ ), et de la section efficace totale ( $\sigma_t$ ) (eq.11, chap.III).

$$\sigma_t = \sigma_p + \sigma_f = \pi \cdot (d_1 + R)^2$$

$$\sigma_f = \pi \cdot R^2$$

$$\sigma_p = \pi \cdot [(R + d_1)^2 - R^2]$$

$$(\%P) = \frac{\sigma_p}{\sigma_t} \quad \text{et} \quad (\%F) = \frac{\sigma_f}{\sigma_t} \quad (\text{eq.12})$$

Les termes ( $d_1$ ) et ( $R$ ) sont respectivement, la distance de la première capture électronique et le rayon de l'agrégat. Les proportions (%P) et (%F) dépendent donc de la taille des agrégats d'argon. La proportion des collisions frontales étant par exemple de 43 % pour un agrégat de 50 atomes ( $P_0 = 0,6$  bars) et de 76 % pour un agrégat de 2280 atomes ( $P_0 = 3$  bars).



$$P(A) = [ \%P \cdot P_p(A) + \%F \cdot P_f(A) ] \cdot \omega(A) \quad (\text{eq.13})$$

On obtient finalement la probabilité P(A) (eq.13), où  $\omega(A)$  est le rendement de fluorescence des transitions (KL) en présence de (A) électrons en couche (L). Nous donnons sous forme de tableau, les énergies des transitions (KL) et leur rendement de fluorescence déterminés théoriquement par Bhalla et al [ref 61].

Transition	KL1	KL2	KL3	KL4	KL5	KL6	KL7	KL8
énergie (eV)	918,4	902,1	889,4	878,4	869,1	861,3	854,6	848,5
$\omega(A)$ (%)	50,00	8,28	4,25	3,08	2,50	2,15	1,88	1,60

Tableau (1) : énergie des raies  $K_\alpha$  et les rendements de fluorescence des ions de néon [ref.61]

En prenant les énergies du tableau (1) et en utilisant les équations (10, 11 et 13), on peut retrouver l'énergie moyenne  $\langle E \rangle$  des transitions (KL) pour un nombre moyen ( $\bar{A}$ ) d'électrons en couche (L) en appliquant l'équation (14). Cette énergie moyenne représente l'énergie de la  $K_\alpha$  totale composée de toutes les transitions (KL).

$$\langle E \rangle (\bar{A}) = \frac{\sum_{A=0}^8 P(A) \cdot E(A)}{\sum_{A=0}^8 P(A)} \quad (\text{eq.14})$$

Le terme E(A) est l'énergie de la transition (KL) avec (A) électrons en couche (L). L'équation (14) donne l'énergie moyenne de la  $K_\alpha$  pour un nombre moyen d'électrons ( $\bar{A}$ ) en couche (L) et des proportions données des collisions périphériques et frontales, (%P) et (%F). Nous traçons ci-dessous l'énergie moyenne  $\langle E \rangle$  de la raie  $K_\alpha$  des ions de néon pour un nombre moyen d'électrons allant de 1 jusqu'à 6, et ce pour différentes tailles d'agrégats. Nous rappelons que la taille moyenne des agrégats pour des pressions amont de 0,6 / 1,0 / 2,0 et 3,0 bars est respectivement de 50, 170, 880 et 2280 atomes par agrégat.

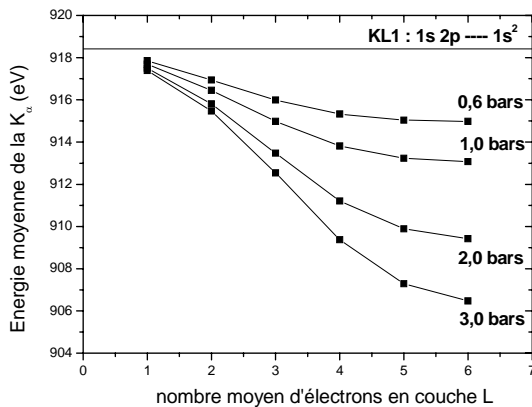


Figure (15) : énergie moyenne de la  $K_\alpha$  du néon en fonction du nombre moyen d'électrons en couche (L)

Les calculs effectués pour déterminer l'énergie moyenne  $\langle E \rangle$  de la raie  $K_\alpha$  de l'ensemble des transitions (KL) des ions de néon en collision avec des agrégats de différentes tailles, montre que les déplacements en énergie de la raie  $K_\alpha$  par rapport à l'énergie de la (KL1) sont de l'ordre de quelques eV. Ce déplacement en énergie atteint une valeur de l'ordre de 12 eV pour une collision d'ions  $\text{Ne}^{9+}$  avec des agrégats d'argon de 2280 atomes ( $P_0 = 3$  bars) et un nombre moyen de 6 électrons en couche (L).

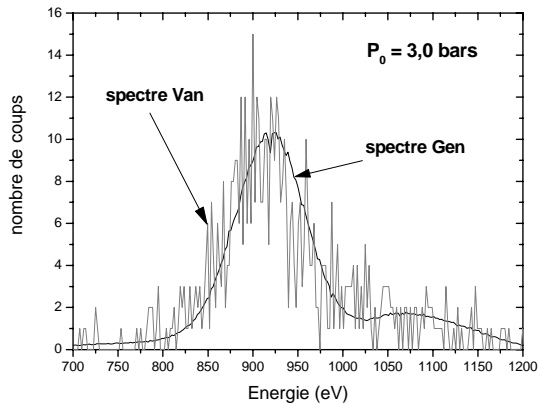


Figure (16) : superposition des spectres Van et Gen enregistrés pour une pression  $P_0 = 3$  bars

La figure (16) montre une superposition des spectres Van et Gen enregistrés avec une pression amont de 3,0 bars. Le spectre Gen rend compte principalement des collisions entre les ions  $\text{Ne}^{9+}$  avec le gaz résiduel et l'énergie de la  $K_\alpha$  est celle du néon héliumoisé (KL1). On observe sur la figure (16) un léger déplacement de la raie  $K_\alpha$  du spectre Van vers les basses énergies, que nous estimons à quelques eV, en accord qualitatif avec les calculs effectués ci dessus. Pour déterminer avec précision le faible déplacement en énergie de la raie  $K_\alpha$ , composée de toutes les transitions (KL), dues aux collisions des ions avec les agrégats, par rapport à la transition (KL1), il est en fait nécessaire d'utiliser un détecteur de haute résolution (quelques eV) tel que le spectromètre cristallin (SpC), et enregistrer des spectres avec des temps d'acquisition grands, de l'ordre de  $10^5$  secondes au moins.

En définitive, le déplacement des raies  $K_\alpha$  vers les basses énergies sur les spectres Van devrait être une manifestation de l'existence de plus d'un électron dans la couche (L) durant la transition radiative (KL) et donc d'une multi-capture électronique qu'effectuent les ions  $\text{Ne}^{9+}$  en collision avec les agrégats. Le déplacement en énergie des raies  $K_\alpha$  aurait été assurément plus important, s'il avait été possible de diminuer la contribution des collisions ions-atomes sur les spectres enregistrés. Une fois de plus une collimation plus importante au niveau des détecteurs est indispensable pour extraire une information exclusive à l'interaction ions-agrégats.

Les premiers résultats obtenus par spectroscopie X à basse résolution d'une collision de  $\text{Ne}^{9+}$  avec des agrégats d'argon, et leur analyse, nous ont permis d'une part de mettre en évidence l'existence de ces collisions par rapport aux collisions ions-atomes, et ce par l'intensité des raies et leurs énergies. D'autre part, cette première campagne nous a permis de révéler une insuffisance dans le dispositif expérimental, à savoir une zone observée par le détecteur trop grande. Cette insuffisance devra être corrigée lors des prochaines campagnes expérimentales.



## Conclusion

Durant la première partie de cette thèse, consacrée à la caractérisation de la source d'ions ECR SIMPA, nous avons d'abord exploré les performances de la source d'ions, en terme des courants extraits pour trois éléments, que sont l'argon, le krypton et le néon. Il apparaît que cette source produit des états de charges moyens avec une intensité de l'ordre de la dizaine de micro-Ampère. Elle produit également des états de charges relativement élevés avec des intensités de l'ordre du micro-Ampère, voir du nano-Ampère pour les états de charges les plus élevés.

En analysant les spectres Bremsstrahlung du plasma de la source ECR SIMPA, nous avons déterminé la température électronique dans le plasma, dont la valeur est de l'ordre de 10 keV au point optimal de fonctionnement de la source. L'application d'une fonction de distribution énergétique non-Maxwellienne des électrons, nous a permis d'avancer l'existence dans le plasma d'électrons dont l'énergie peut atteindre 80 keV. L'étude du rayonnement Bremsstrahlung émis par le plasma, nous a permis également de déterminer la densité électronique, qui est de l'ordre de  $4.10^{11}$  électrons/cm<sup>3</sup>, ainsi que la densité ionique au sein du plasma, qui est de l'ordre de  $1.10^{11}$  ions/cm<sup>3</sup> dans les conditions optimales de fonctionnement, soit à une puissance HF de 400 Watts.

Dans le cadre de cette première partie de la thèse, nous avons enregistré des spectres haute résolution du plasma d'argon et du plasma de krypton. L'analyse de ces spectres, notamment ceux de la  $K_{\beta}$  du krypton, nous ont permis de mettre en évidence un déplacement vers les hautes énergies et un élargissement des raies, lorsque la puissance des micro-ondes injectées dans la source augmente, signe d'une production d'états de charges plus élevés dans le plasma.

La résolution des spectres  $K_{\alpha}$  du plasma d'argon, nous a permis de séparer une grande partie des états de charges des différentes espèces ioniques présentes dans le plasma. En prenant en compte les principaux mécanismes de production d'une lacune en couche K des ions dans le plasma, nous avons pu déterminer la densité ionique de quelques états de charges élevés de l'argon, dont la valeur est de l'ordre de quelques centièmes par rapport à la densité ionique totale. Enfin, nous avons mis en évidence, une corrélation entre la densité de ces états de charges dans le plasma et leurs intensités de courants extraits correspondants.

La seconde partie de la thèse est consacrée à la collision des ions de  $Ne^{9+}$  avec des agrégats d'argon. Dans un premier temps, nous avons présenté des modèles théoriques simples mais efficaces dans l'interprétation des mécanismes intervenant au cours de la collision, du point de vue du projectile. Ces modèles mettent en avant notamment, la différence dans le mode de capture électronique entre des collisions périphériques et frontales. Dans un deuxième temps, nous avons présenté un état des lieux concernant les études expérimentales sur l'interaction d'ions lents multichargés avec des agrégats, menées ces dernières années, afin de mettre en avant tous les phénomènes survenant au cours de la collision, selon la cible d'une part et selon le projectile d'autre part.

Dans cette même partie de la thèse, nous avons effectué une application théorique simple pour les collisions d'un ion  $\text{Ne}^{9+}$  avec un agrégat d'argon d'une certaine taille, dans le but d'avoir une idée sur les niveaux énergétiques peuplés lors de la capture électronique et de suivre l'évolution du nombre d'électrons dans chaque couche du projectile. Cette application faite pour deux paramètres d'impact différents, donne une indication sur les spectres que nous devions obtenir durant les expériences à venir.

Dans la dernière partie de ce manuscrit, nous avons exposé le dispositif expérimental mis en place durant cette thèse pour étudier les collisions entre des ions et des agrégats. Cette partie inclut une caractérisation du faisceau d'ions, la description du mode de production des agrégats ainsi qu'une description de tous les moyens de détection mis en œuvre pour l'acquisition des données. Enfin, nous avons présenté à la fin de ce manuscrit les premiers résultats de collision entre un faisceau d'ion  $\text{Ne}^{9+}$  et des agrégats d'argon. Ces résultats, nous ont permis de révéler un point faible sur le dispositif expérimental, mais surtout de mettre en évidence d'une part, la signature de la présence des agrégats au sein du jet et d'autre part, la multi-capture électronique faite par les projectiles. Ce dernier résultat a été obtenu d'une part par l'analyse de l'intensité des raies et d'autre part en analysant l'énergie de ces mêmes raies.

---

- **Références bibliographiques**

1. Briand.P et al, High performance multiply charged ion source, Nuclear instruments and methods B, vol 131.407 (1975)
2. Geller.R, Electron cyclotron resonance ion sources and ECR plasmas, Institute of physics publishing (1996)
3. Thompson.W.R et al, Single ionization of atomic oxygen by electron impact, Journal of physics B, vol 28.1321 (1995)
4. Aichele.K et al, Electron impact ionization of the hydrogen-like ions, Journal of physics B, vol 31.2369 (1998)
5. Trassl.R, The physics of multiply and highly charged ions, Kluwer academic publishers (2003)
6. Donets.E.D et al, Electron beam method of multiple ionization of atoms, Soviet journal of particles and nuclei, vol 13.387 (1982)
7. Dupont.C et al, Results of a new octopus ECR ion source at 6,4 GHz, Review of scientific instruments, vol 61.265 (1990)
8. Girard.A et al, The quadrumafios ECRIS: presentation and analysis of results, Review of scientific instruments, vol 65.1714 (1996)
9. Golovanivsky.K.S et al, Study of the parallel energy distribution of lost electrons from the central plasma of an ECR, Review of scientific instruments, vol 63.2886 (1991)
10. Marang.L, Production de plasma et de faisceau d'ions multichargés avec une source ECR, Stage de maîtrise université Paris VI (2003)
11. Sortais.P et al, General purpose high performance ECRIS for production of multicharged ions, Review of scientific instruments, vol 69.656 (1998)
12. Melin.G et al, Status of development of ECR ion sources at Grenoble, Review of scientific instruments, vol 65.1051 (1994)
13. Winter.M, Webelements in the periodic table, the university of Sheffield united kingdom (2006)
14. Adoui.L, Mécanismes d'excitation d'ions d'Ar<sup>16+</sup> en collision avec des cibles gazeuses à vitesse intermédiaire, Thèse université Paris VI (1995)
15. Vernhet.D, Distribution et anisotropie de moments cinétiques de capture pour des collisions d'ions multichargés a basse vitesse, Thèse d'état (1990)
16. Prigent.C, L'émission X : un outil et une sonde pour l'interaction laser agrégats, Thèse université Paris VI (2004)
17. Kestenbaum.K.L, X-ray diffraction from graphite in the energy range 2 to 8 keV, Applied spectroscopy, vol 27.454
18. Chabot.M et al, X-ray reflectivities at low and high order of reflection of flat highly oriented pyrolytic graphite crystals, NIM B, vol 61.377 (1991)
19. Hutchinson.I.H, Principles of plasma diagnostics, Cambridge university press (1987)
20. Lamoureux.M, Bremsstrahlung in hot plasmas with partially ionized atoms, Phys review E, vol 55.912 (1997)
21. Lee.C.M et al, Bremsstrahlung spectrum from atomic ions, Phys review A, vol 16.2169 (1977)
22. Pratt.R.H et al, Bremsstrahlung energy spectra from electrons of kinetic energy  $1\text{keV} \leq T \leq 2000\text{keV}$  incident on neutral atoms  $2 \leq Z \leq 92$ , Data and nuclei tables, vol 20.175 (1977)
23. Kissel.L et al, Shape functions for atomic field bremsstrahlung from kinetic energy 1-500 keV on selected neutral atoms  $1 \leq Z \leq 92$ , Data and nuclei tables, vol 28.381 (1983)

24. Barue.C et al, Investigation of hot electrons in electron cyclotron resonance ion sources, *Journal appl physics*, vol 76.2662 (1994)
25. Pras.R, Elaboration d'un diagnostic des électrons chauds dans le plasma et étude temporelle du plasma d'une ECRIS, Thèse université Paris VI (1997)
26. Sevier.K.D, Atomic electron binding energies, *Atomic data and nuclear data tables*, vol 24.323 (1979)
27. Gaudin.C et al, Compact electron cyclotron resonance plasma source, *Review of scientific instruments*, vol 69.890 (1998)
28. Douysset.G et al, Highly charged ion densities and ion confinement properties in an ECRIS, *Physical review E*, vol 61.3015 (2000)
29. Friedlein.R et al, X ray spectroscopy on ECR plasmas, *Nuclear instruments and methods in physics B*, vol 98.585
30. Hitz.D et al, Fundamental aspects of ECRIS: from classical to large superconducting devices, *Review of scientific instruments*, vol 71.839 (2000)
31. Douysset.G, Mesure des densités ioniques dans un plasma de source d'ions à résonance cyclotronique électronique par spectroscopie X haute résolution, Thèse université Paris VI (1998)
32. Nakagawa.T et al, Production of intense beams of highly charged metallic ions from RIKEN 18 GHz ECRIS, *Review of scientific instruments*, vol 69.637 (1998)
33. Geller.R, Electron cyclotron resonance sources: historical review and future prospects, *Review of scientific instruments*, vol 69.1302 (1998)
34. Kuchler.D et al, Numerical modelling and X ray spectroscopy of ECR plasmas, *Nuclear instruments and methods in physics B*, vol 168.566 (2000)
35. Martins.M.C et al, Interpretation of X ray spectra emitted by Ar ions in an ECRIS, *Journal of physics B*, vol 34.533 (2001)
36. Kim.Y.K et al, Binary encounter dipole model for electron impact ionization, *Physical review A*, vol 50.3954 (1994)
37. Kim.Y.K et al, Total cross section for inelastic scattering of charged particles by atoms and molecules, *Physical review A*, vol 3.665 (1971)
38. Bethe.H, Theory of passage of swift corpuscular rays through matter, *Annalen der physik*, vol 5.325 (1930)
39. Costa.A.M et al, Dirack Fock transition energies and radiative and radiationless transition probabilities for  $\text{Ar}^{9+}$  to  $\text{Ar}^{16+}$  ion levels with K shell holes, *Atomic data and nuclear data tables*, vol 79.223 (2001)
40. Shevelko.V.P et al, Semiempirical formulae for multiple ionization of neutral atoms and positive ions by electron impact, *Journal of physics B*, vol 28.589 (1995)
41. Belenger.C et al, Double ionization of neutral atoms positive and negative ions by electron impact, *Journal of physics B*, vol 30.2667 (1997)
42. Anagnostopoulos.D.F et al, On the characterisation of a bragg spectrometer with X rays from an ECR source, *Nuclear instruments and methods in physics A*, vol 545.217 (2005)
43. Grubling.P et al, Determination of ion charge state distribution in krypton and cobalt ECR plasmas by wavelength dispersive X ray spectroscopy, *Review of scientific instruments*, vol 69.1167 (1998)
44. Bhalla.C.P, K shell auger rates, transition energies and fluorescences yields of various ionized states of argon, *Physical review A*, vol 8.2877 (1973)
45. Zou.Y et al, Inner shell vacancy distribution in energetic Ar ions by penetration in solids, *Physical review A*, vol 51.3790 (1995)

46. Ryufuku.H et al, Oscillatory behaviour of charge transfer cross sections as a function of the charge of projectiles in low energy collisions, *Phys review A*, vol 21.745 (1980)
47. Barany.A et al, Absolute cross sections for multi-electron processes in low energy  $\text{Ar}^{q+}$ -Ar collisions: comparison with theory, *Nuclear instruments and methods B*, vol 9.397 (1985)
48. Niehaus.A, A classical model for multiple electron capture in slow collisions of highly charged ions with atoms, *Journal of physics B*, vol 19.2925 (1986)
49. Burgdorfer.J et al, Above surface neutralization of highly charged ions: the classical over the barrier model, *Physical review A*, vol 44.4574 (1991)
50. Cederquist.H, Highly charged ions colliding with atoms surfaces and clusters, *Physica scripta*, vol T80.46 (1999)
51. Thumm.U, Charge exchange and electron emission in slow collisions of highly charged ions with  $\text{C}_{60}$ , *Journal of physics B*, vol 27.3515 (1994)
52. Barany.A et al, Interaction of slow highly charged ions with atoms, clusters and solids: a unified classical barrier approach, *Nuclear instruments and methods B*, vol 98.184 (1995)
53. Selberg.N et al, Semi-empirical scaling laws for electron capture at low energies, *Physical review A*, vol 54.4127 (1996)
54. Stolterfoht.N, Multiple cascade model for the filling of hollow Ne atoms moving below an Al surface, *Physical review A*, vol 52.445 (1995)
55. Diez-Muino.R et al, Auger and radiative filling rates of highly charged ions below metal surfaces, *Physical review A*, vol 57.1126 (1998)
56. Ali.R et al, Multi-electron processes in 10keV/u  $\text{Ar}^{q+}$  (5-17) on Ar collisions, *Physical review A*, vol 49.3586 (1994)
57. Thumm.U, Hollow ion formation and decay in slow  $\text{Bi}^{46+}$ - $\text{C}_{60}$  collisions, *Physical review A*, vol 55.479 (1997)
58. Thumm.U, Electron transfer and emission in slow collisions of  $\text{N}^{5+}$  with  $\text{C}_{60}$ , *Journal of physics B*, vol 28.91 (1995)
59. Stolterfoht.N, Formation and cascading decay of hollow Ar atoms at a Si surface, *International journal of mass spectrometry*, vol 192.425 (1999)
60. Larkins.F.P, Dependence of fluorescence yield on atomic configuration, *Journal of physics*, vol 4.L29 (1971)
61. Bhalla.C.P et al, Theoretical K-shell Auger rates, transition energies and fluorescence yields for multiply ionized neon, *Physical review A*, vol 8.649 (1973)
62. Huang. W et al, Strong shell effects in the scattering of slow highly charged Ar ions from a Au (111) surface, *Physical review A*, vol 56.3777 (1997)
63. Thumm.U et al, Energy gain in collisions of highly charged ion with  $\text{C}_{60}$ , *Physical review A*, vol 56.4799 (1997)
64. Jens.J et al, Extended classical over barrier model for collisions of highly charged ions with conducting and insulating surfaces, *physical review A*, vol 57.338 (1998)
65. Ducree.J et al, Neutralization of hyperthermal multiply charged ions at surfaces: comparison between the extended dynamical over barrier model and experiment, *Physical review A*, vol 60.3029 (1999)
66. Winecki.S et al, Neutralization and equilibration of highly charged ions at grazing incidence on a graphite surface, *Physical review A*, vol 53.4228 (1996)
67. Stolterfoht.N et al, Structure and dynamics of hollow Ne atoms formed near a C and Al surface, *Nuclear instruments and methods B*, vol 124.303 (1997)
68. Hattas.M et al, Charge equilibration time of slow highly charged ions in solids, *Physical review letters*, vol 82.4795 (1999)



69. Schenkel.T et al, Energy loss of slow highly charged ions in solids, *Physical review A*, vol 56.R1701 (1997)
70. Bernard.J et al, Core dependence of electron emission in slow collisions of highly charged ions ( $\text{Ar}^{16+}$   $\text{Kr}^{16+}$   $\text{Xe}^{16+}$ ) with  $\text{C}_{60}$ , *Physical review A*, vol 66.13209 (2002)
71. Bethe.H.A, *Quantum mechanics of one and two electron atoms*, Plenum edition, New-York (1977)
72. Nastasi.M et al, *Ion solid interactions: fundamentals and applications*, Cambridge university press (1996)
73. Ziegler.J.F et al, *The stopping and range of ions in solids*, Pergamon press, New-York (1985)
74. Martin.S et al, Decay of hollow atoms in  $\text{Ne}^{10+}$ - $\text{C}_{60}$  collisions, *Physical review A*, vol 69.43202 (2004)
75. Cederquist.H et al, Electronic response of  $\text{C}_{60}$  in slow collisions with highly charged ions, *Physical review A*, vol 61.22712 (2000)
76. Huber.H.A, *Ionisation and excitation in ion cluster collisions*, *Physica scripta*, vol 68.c66 (2003)
77. Martin.S et al, Very fast hollow atom decay processes in  $\text{Xe}^{30+}$ - $\text{C}_{60}$  collisions, *Physical review letters*, vol 89.183401 (2002)
78. Thumm.U et al, Target electronic structure dependence in highly charged ions- $\text{C}_{60}$  collisions, *Physical review A*, vol 52.2955 (1995)
79. Tappe.W et al, Charge localization in collision induced multiple ionization of Van der Waals clusters with highly charged ions, *Physical review letters*, vol 88.143401 (2002)
80. Kagawa.T, An experiment on ion beam collisions with argon clusters, *Journal of nuclear science and technology*, vol 42.423 (2005)
81. Walch.B et al, Electron capture from  $\text{C}_{60}$  by slow multiply charged ions, *Physical review letters*, vol 72.1439 (1994)
82. Jin.J et al, New charged fullerene ions: production and fragmentation by slow ion impact, *Physical review A*, vol 53.615 (1996)
83. Martin.S et al, Excitation and fragmentation of  $\text{C}_{60}^{r+}$  ( $r=3-9$ ) in  $\text{Xe}^{30+}$ - $\text{C}_{60}$  collisions, *Physical review A*, vol 62.22707 (2000)
84. Jensen.J et al, Ionisation of  $\text{C}_{70}$  and  $\text{C}_{60}$  molecules by slow highly charged ions, comparison, *Physical review A*, vol 69.53203 (2004)
85. Chandezon.F et al, Rayleigh instabilities in multiply charged sodium clusters, *Physical review letters*, vol 87.153402 (2001)
86. Chandezon.F et al, Energy transfer in multi-ionizing ions/cluster collisions, *Physica scripta*, vol T92. 168 (2001)
87. Chen.L et al, Multi-electron capture and emission in low energy highly charged ions- $\text{C}_{60}$  collisions, *Physica scripta*, vol T80.52 (1999)
88. Chen.L et al, Charge transfer processes in asymmetric fragmentation of  $\text{C}_{60}^{5+}$ , *Physica scripta*, vol T92.138 (2001)
89. Chen.L et al, Dynamical fragmentation processes of  $\text{C}_{60}^{5+}$  ions in  $\text{Ar}^{8+}$ - $\text{C}_{60}$  collisions, *Physical review A*, vol 64.31201 (2001)
90. Martin.S et al, Production and asymmetric fragmentation of multicharged fullerene ions in  $\text{Xe}^{8+}$ - $\text{C}_{60}$  collisions, *Physical review A*, vol 57.4518 (1998)
91. Chen.L et al, Fragmentation scheme of  $\text{C}_{60}^{4+}$  ions produced in low energy collisions of  $\text{Ar}^{8+}$  and  $\text{C}_{60}$ , *Physical review A*, vol 59.2827 (1999)
92. Tomita.S et al, Kinetic energy release and fragment distribution of exploding highly charged  $\text{C}_{60}$  molecules, *Physical review A*, vol 65.53201 (2002)

93. Chandezon.F et al, Fission channels of multiply charged sodium clusters near the Rayleigh limit, *Physical review A*, vol 63.51201 (2001)
94. Ntamack.G.E et al, Stability and fragmentation processes of highly charged sodium clusters, *European physical journal D*, vol 24.153 (2003)
95. Martin.S et al, Projectile energy loss and final charge state distribution in  $\text{Xe}^{q+}$ - $\text{C}_{60}$  collisions at low energy, *Nuclear instruments and methods B*, vol 209.265 (2003)
96. Martin.S et al, Electron multiplicity in slow collisions of  $\text{Ar}^{8+}$  ions with  $\text{C}_{60}$ , *European physical journal D*, vol 4.1 (1998)
97. Bredy.R et al, Energy loss in  $\text{Ar}^{16+}$   $\text{Kr}^{16+}$   $\text{Xe}^{16+}$ - $\text{C}_{60}$  collisions at low energy, *Nuclear instruments and methods B*, vol 205.651 (2003)
98. Selberg.N et al, Slow collisions between highly charged ions and  $\text{C}_{60}$ : absolute  $\Delta E$  values and cross sections, *Physical review A*, vol 53.874 (1996)
99. Opitz.J et al, Correlation studies of energy gain and fragmentation in ion fullerene collisions, *Physical review A*, vol 59.3562 (1999)
100. Langereis.A et al, Stabilization of electrons  $\text{Ar}^{q+}$  ions after slow collisions with  $\text{C}_{60}$ , *Physical review A*, vol 63.62725 (2001)
101. Vancura.J et al, Absolute total one and two electron transfer cross section for  $\text{Ar}^{q+}$  (8-16) on He and  $\text{H}_2$ , *Physical review A*, vol 47.3758 (1993)
102. Martin.S et al, Very high multiplicity distributions of electrons emitted in multicapture collision between  $\text{Xe}^{25+}$  and  $\text{C}_{60}$ , *Physical review A*, vol 59.R1734 (1999)
103. Bredy.R et al, Electron kinetic energies in multicapture processes in  $\text{Xe}^{30+}$ - $\text{C}_{60}$  collisions, *Physica scripta*, vol T92.141 (2001)
104. Briand.J.P et al, Interaction of slow  $\text{Ar}^{(17,18)+}$  ions with  $\text{C}_{60}$ : an insight into ion surface interactions, *Physical review A*, vol 53.R2925 (1996)
105. Baldini.G, Ultraviolet absorption of solid argon, krypton and xenon, *Physical review*, vol 128.1562 (1962)
106. Stocker.H, *Toute la physique*, Dunod Paris (1999)
107. Farges.J et al, Noncrystalline structure of argon clusters polyicosahedral structure of  $\text{Ar}(n)$  clusters, *Journal chemical physics*, vol 78.5067 (1983)
108. Miehle.W et al, Mass spectrometric evidence for icosahedral structure in large rare gas clusters, *Journal chemical physics*, vol 91.5940 (1989)
109. Farges.J et al, Noncrystalline structure of argon clusters multilayer icosahedral structure of  $\text{Ar}(n)$  clusters, *journal of chemical physics*, vol 84.3991 (1986)
110. Haberland.H, *Clusters of atoms, molecules, theory, experiments and clusters of atoms*, Springer, Berlin (1994)
111. Farges.J et al, Structure and temperature of rare gas clusters in a supersonic expansion, *Surface science*, vol 106.95 (1981)
112. Tchapyguine.M et al, The size of neutral free clusters as manifested in the relative bulk to surface intensity in core level photoelectron spectroscopy, *Journal of chemical physics*, vol 120.345 (2004)
113. Gantefor.G et al, Photoionization thresholds of rare gas clusters, *Journal of chemical physics*, vol 91.7972 (1989)
114. Becker.E.W, *Gas dynamics*, Academic press New-York (1968)
115. Becker.E.W, On the history of cluster beams, *Zeitschrift fur physik D*, vol 3.101 (1986)
116. Shutte.S et al, Strong fragmentation of large rare gas by high energy electron impact, *International journal of mass spectrometry*, vol 220.183 (2002)
117. Hagena.O.F et al, Cluster formation in expanding supersonic jets: effect of pressure, temperature, nozzle size and test gas, *Journal of chemical physics*, vol 56.1793 (1972)

118. Hagen.O.F, Scaling laws for condensation in nozzle flows, *The physics of fluids*, vol 17.894 (1974)
119. Hagen.O.F, Nucleation and growth of clusters in expanding nozzle flows, *Surface science*, vol 106.101 (1981)
120. Hagen.O.F, Condensation in free jets: comparison of rare gases and metals, *Zeitschrift fur physik D*, vol 4.291 (1987)
121. Hagen.O.F, Cluster ion sources, *Review of scientific instruments*, vol 63.2374 (1992)
122. Smith.R.A et al, Characterization of a cryogenically cooled high pressure gas jet for laser, *Review of scientific instruments*, vol 69.3798 (1998)
123. Karnbach.R et al, Clulu, an experimental setup for luminescence measurements on van der Waals clusters with synchrotron radiation, *Review of scientific instruments*, vol 64.2838 (1993)
124. Wormer.J et al, Fluorescence excitation spectroscopy of xenon clusters in the U.V, *Chemical physics letters*, vol 159.321 (1989)
125. Buck.U et al, Cluster size determination from diffractive He atom scattering, *Journal of chemical physics*, vol 105.5408 (1996)
126. Arnou.M et al, Reanalysis of the trajectories of electrons in 127° cylindrical spectrometers, *Review of scientific instruments*, vol 43.72 (1972)
127. Hughes.L et al, On the analysis of electronic velocities by electrostatic means, *Physical review*, vol 34.284 (1929)
128. Roy.D et al, Design of electron spectrometers, *Reports on progress in physics*, vol 53.1621 (1990)
129. Dube.D et al, A generalized analytic approach for the determination of transmission functions of charged particle energy analyzers, *Nuclear instruments and methods*, vol 201.291 (1982)
130. Burek.A.J, Crystals for astronomical X-ray spectroscopy, *Space instruments*, Los Alamos (1976)
131. Burek.A.J et al, Spectrometric properties of crystals for X-ray astronomy, *Astrophysical journal*, vol 191.533 (1974)
132. Blasco.F et al, Characterization of argon cluster jets for laser interaction studies, *Nuclear instruments and methods B*, vol 205.324 (2003)
133. Dorchie.F et al, Spatial distribution of cluster and density in supersonic jets as targets of intense laser pulses, *Physical review A*, vol 68.23201 (2003)
134. Reinkoster.A et al, Multi-fragmentation of C<sub>60</sub> after collisions with Ar<sup>Z+</sup> ions, *Journal of physics B*, vol 35. 4989 (2002)
135. Thompson.A.C et al, X-ray data booklet, Lawrence Berkeley national laboratory, California (2001)
136. Deslattes.R.D. et al, X ray transition energies: new approach to a comprehensive evaluation, *Reviews of modern physics*, vol 75.35 (2003)