



**HAL**  
open science

**Echange de charge et excitation dans des feuilles minces amorphes ou cristallines d'ions atomiques légers (80-600 keV/u) d'agrégats d'hydrogène (30-120 keV/u) et d'ions Xe canalisés (25 MeV/u)**

Bernadette Farizon-Mazuy

► **To cite this version:**

Bernadette Farizon-Mazuy. Echange de charge et excitation dans des feuilles minces amorphes ou cristallines d'ions atomiques légers (80-600 keV/u) d'agrégats d'hydrogène (30-120 keV/u) et d'ions Xe canalisés (25 MeV/u). Agrégats Moléculaires et Atomiques [physics.atm-clus]. Université Claude Bernard - Lyon I, 1987. Français. NNT: . tel-00747323

**HAL Id: tel-00747323**

**<https://theses.hal.science/tel-00747323>**

Submitted on 31 Oct 2012

**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.

# THESE

présentée

devant l'Université Claude Bernard Lyon-1

pour l'obtention du

DIPLOME de DOCTORAT

par

Bernadette FARIZON MAZUY

\* \* \* \* \*

Echange de charge et excitation dans des feuilles minces amorphes ou cristallines d'ions atomiques légers (80-600 keV/u), d'agrégats d'hydrogène (30-120 keV/u) et d'ions Xe canalisés (25 MeV/u).

Soutenue le 30 Octobre 1987 devant la Commission d'Examen

## JURY

MM.	J.F.	BRUANDET
	N.	DE CASTRO FARIA
	J.	DESESQUELLES
	M.J.	GAILLARD
	H.	MOSER
	J.	REMILLIEUX
	A.	SALIN
	J.P.	THOMAS





## REMERCIEMENTS

La plus grande partie de ce travail a été effectuée à l'Institut de Physique Nucléaire de Lyon dans le Groupe des "Collisions Atomiques dans les Solides".

Je tiens tout d'abord à exprimer ma profonde gratitude à M.J. GAILLARD, J. REMILLEUX et J.C. POIZAT, Professeurs à l'Université Lyon-I, et M. CHEVALLIER, Chargé de Recherche au C.N.R.S., pour m'avoir réservé le meilleur accueil dans leur Groupe et avoir constamment réuni pour moi les conditions les plus favorables à l'aboutissement de ce travail. Ils m'ont fait bénéficier de leur grande expérience et de leur savoir tout au long du chemin que nous avons fait ensemble.

Je tiens à associer à ces remerciements R. KIRSCH et R. GENRE, Ingénieurs du Groupe "Collisions Atomiques dans les Solides" pour leur dévouement et leur collaboration exceptionnellement amicale et fructueuse. J'ai beaucoup appris en travaillant avec eux.

Je n'oublie pas non plus le concours que m'ont apporté A. CLOUVAS et A. BELKACEM tout au long de ce travail et je les en remercie chaleureusement.

Je remercie vivement Monsieur J.F. BRUANDET, Professeur à l'Université de Grenoble, Monsieur N. De CASTRO FARIA, Professeur à la Pontificia Universidade Catolica de Rio de Janeiro, Monsieur J. DESESQUELLES, Directeur du Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire de l'Université Lyon-I, Monsieur H. MOSER, Professeur à l'Université de Karlsruhe, Monsieur A. SALIN, Directeur de Recherche à l'Université de Bordeaux-I, et Monsieur J.P. THOMAS, Directeur de Recherche à l'Université de Lyon-I, d'avoir bien voulu participer à mon Jury de Thèse.

J'ai le plaisir de remercier J. MARTIN et F. ROCHIGNEUX pour leur aide compétente lors des expériences faites auprès de l'Accélérateur d'Agrégat de Lyon.

Je remercie très vivement le personnel du Service Documentation de l'Institut de Physique Nucléaire de Lyon, en particulier Madame C. FALCONET, Monsieur HERNAUS, Monsieur M. COMBE.

S'il m'est impossible de nommer les nombreuses personnes des autres services généraux de l'Institut de Physique Nucléaire de Lyon, qui ont, à un moment ou à un autre, contribué à la réalisation de ce travail, je voudrais pourtant les assurer collectivement de ma reconnaissance.



A mes parents,



## Résumé

Notre étude concerne les processus de perte et de capture électronique, non radiative ou radiative, dans diverses situations expérimentales.

La plus grande part de ce travail est consacrée à l'étude de l'interaction d'agrégats d'hydrogène d'énergies de 20 à 100 keV/p avec des cibles solides. Nous avons mesuré les distributions angulaires des fragments atomiques émergents, neutres ou chargés, résultant de la dissociation d'agrégats  $H_n^+$  ( $2 \leq n \leq 21$ ) dans une feuille mince de carbone. Nous en avons déduit les fractions de charges correspondantes. Nous avons mis en évidence des effets de proximité sur la neutralisation des fragments. De plus, pour une vitesse des projectiles et une épaisseur de cible données, il a été observé que la largeur de la distribution angulaire des atomes neutres et la fraction d'atomes neutres croissent avec  $n$ , mais tendent vers des valeurs constantes à partir de  $n = 5$  et  $n = 7$  respectivement. L'interprétation de ces résultats a permis d'apporter des informations sur l'aspect collectif de l'échange de charge et sur la structure des agrégats incidents.

Une seconde étude expérimentale a consisté à confirmer l'existence d'états excités liés d'ions  $He^+$  dans un solide à des énergies de l'ordre du MeV. Notre approche était fondée sur l'observation des photons de désexcitation de ces états. La comparaison des résultats obtenus par cette méthode avec ceux d'un modèle que nous avons proposé a confirmé que l'état 2p de l'ion  $He^+$  peut exister dans le solide, alors que l'état 4p n'existe pas.

Dans une troisième partie, nous présentons les résultats expérimentaux obtenus au cours d'une expérience faite à GANIL qui montrent que la canalisation d'ions lourds rapides très épluchés peut permettre une étude détaillée de la capture électronique radiative.

## Abstract

Our study concern electron loss processes and electron capture, radiative or not, in varying experimental situations.

First, we have studied interaction of fast hydrogen clusters with solid targets. We report on measurements of angular charge state distributions of hydrogen fragments resulting from the dissociation of fast  $H_n^+$  clusters ( $n \leq 21$ ) in a carbon foil. The proximity effects on the fragment neutralization have been investigated for beam velocities above and around the Bohr velocity. At a given velocity the angular width and the yield of neutral atoms are observed to saturate at  $n \geq 5$  and  $n \geq 7$ , respectively. The interpretation of this behaviour provides some insight into the collective aspects of the collisions and into the structure of hydrogen clusters.

A second experimental study lies in confirming the possibility for loosely bound systems such as  $He^+$  to survive the traversal of a thin solid target. The velocity dependences of the population of 2p and 4p states in fast (0.4-2 MeV)  $He^+$  ion beams transmitted through a thin carbon foil have been measured. They are found to be quite different to each other. These results are analyzed in the framework of a simple model based on the possibility for a given excited state to be formed inside the solid. The conclusion is that in the studied velocity range the 2p state can exist in carbon whereas the 4p state cannot.

In a third part, we present experimental results showing that channeling measurements with fast stripped heavy ions incident on thin crystals can allow a detailed study of radiative electron capture. We used 25 MeV/u  $X_e^{53+}$  ions delivered at Grand Accélérateur d'Ions Lourds (GANIL) in the LISE beam line.





## TABLE DES MATIERES

<b>CHAPITRE I - ECHANGE DE CHARGE D'IONS RAPIDES DANS LA MATIERE</b> . . . . .	3
<b>A - INTRODUCTION</b> . . . . .	3
<b>B - PHENOMENE D'ECHANGE DE CHARGE</b> . . . . .	5
<b>1 - Introduction</b> . . . . .	5
<b>2 - Echange de charge dans un milieu de faible densité</b> . . . . .	5
a - Equations d'évolution des états de charge	
b - Echange de charge de projectiles légers He, H dans un milieu de faible densité	
c - Echange de charge d'ions lourds ( $Z > 3$ ) dans un milieu de faible densité	
<b>3 - Echange de charge d'ions traversant une cible solide</b> . . . . .	8
a - Distributions hors équilibre et à l'équilibre	
b - Effets de densité sur la charge moyenne	
<b>C - THEORIES DE L'ECHANGE DE CHARGE</b> . . . . .	12
<b>1 - Cibles gazeuses</b> . . . . .	12
a - Section efficace de perte par des ions légers	
b - Section efficace de capture non radiative par des ions légers	
<b>2 - Cibles solides</b> . . . . .	17
a - Effet d'écran	
b - Mécanismes de perte et de capture non radiative par des ions légers : théorie de Brandt et Sizmann	
<b>3 - Capture électronique radiative</b> . . . . .	24
<b>D - CONCLUSION</b> . . . . .	26
<b>CHAPITRE II - ETUDE DU DECLIN DE LA LUMIERE EMISE PAR DES IONS</b>	
<b>He EMERGEANT DE FEUILLES MINCES A DIFFERENTES VITESSES</b> . . . . .	27
<b>A - INTRODUCTION</b> . . . . .	27
<b>B - L'ETAT LIE <math>H^0(1s)</math> PEUT-IL EXISTER DANS LE SOLIDE ?</b> . . . . .	28
<b>1 - Résultats expérimentaux antérieurs</b> . . . . .	28
<b>2 - Comparaison théories-expériences</b> . . . . .	29
<b>3 - Comparaison gaz-solide</b> . . . . .	30
<b>4 - Effet d'écran dynamique et état lié</b> . . . . .	32
<b>C - DES ETATS EXCITES LIES PEUVENT-IL EXISTER DANS LE SOLIDE ?</b> . . . . .	32
<b>1 - Résultats expérimentaux antérieurs</b> . . . . .	32
<b>2 - Modèle</b> . . . . .	34
a - Un état excité $n_l$ peut exister dans le solide	
b - Un état excité $n_l$ ne peut pas exister dans le solide	
c - L'état " $2p$ dans le solide"	

<b>D - ETUDE A L'EQUILIBRE DE CHARGE DE LA DECROISSANCE DE LA QUANTITE DE LUMIERE EMISE PAR DES IONS He DE DIFFERENTES VITESSES EMERGEANT DE CIBLES MINCES DE CARBONE</b> .....	p. 38
1 - Méthode et dispositif expérimental.....	p. 38
a - Principe de la méthode expérimentale	
2 - Dispositif expérimental.....	p. 38
a - Système de collimation	
b - Cibles et chambre à cibles	
c - Spectromètre à réseau	
d - Système de mesure du courant transmis	
3 - Système d'acquisition.....	p. 40
a - Comptage des impulsions	
b - Normalisation des mesures	
c - Commande des moteurs pas-à-pas et déroulement des mesures	
4 - Expériences préliminaires .....	p. 42
5 - Test du dispositif expérimental.....	p. 43
6 - Etude de la fraction $\phi_1^{2p}$ d'ions $He^+$ (2p).....	p. 43
a - Evaluation de la position "zéro" de la cible	
b - Détermination du nombre de photons $N^{2p}(x = 0)$ par extrapolation de la position "zéro" de la cible	
c - Mesure de la fraction $\phi_1^{2p}$	
d - Interprétation des résultats	
7 - Etude de la fraction $\phi_1^{4p}$ des ions $He^+$ (4p).....	p. 46
a - Mesure de la fraction $\phi_1^{4p}$	
b - Interprétation des résultats	
8 - Etude de la fraction $\phi_1^{n>2}$ des ions $He^+(n > 2)$ .....	p. 48
<b>E - CONCLUSION</b> .....	p. 49

**CHAPITRE III. ECHANGE DE CHARGE ENTRE DES AGREGATS D'HYDROGENE RAPIDE ( $1, 1v_0 \leq v \leq 3, 5v_0$ ) ET DES CIBLES MINCES DE CARBONE.....** p. 51

<b>A - INTRODUCTION</b> .....	p. 51
<b>B - METHODE ET DISPOSITIF EXPERIMENTAL</b> .....	p. 52
1 - Principe de la méthode expérimentale.....	p. 52
2 - Le faisceau d'agrégats $Hn^+$ .....	p. 53
3 - Dispositif expérimental.....	p. 55
a - Préparation du faisceau incident	
b - Cibles	
c - Mesures des distributions angulaires des fragments transmis	
4 - Système d'acquisition.....	p. 56
a - Comptage des impulsions	
b - Normalisation des mesures	
c - Mesure du spectre en énergie des fragments	
5 - Centrage du faisceau.....	p. 57

6 - Mesures des épaisseurs de cible.....	p. 58
7 - Influence du gaz résiduel sur la voie d'expérience.....	p. 59
8 - Analyse des spectres en énergie.....	p. 60
9 - Influence du ralentissement dans la cible.....	p. 62
<b>C - MESURES ET RESULTATS.....</b>	<b>p. 63</b>
1 - Mesures des distributions angulaires.....	p. 63
2 - Résultats des mesures de largeur à mi-hauteur de la distribution des $H^0$ .....	p. 63
a - Variation de la largeur avec n	
b - Variation de largeur avec la vitesse	
c - Variation de la largeur avec l'épaisseur de la cible	
3 - Résultats des mesures de la fraction neutre.....	p. 72
a - Mesure de référence	
b - Etude de la fraction neutre obtenue avec $H_2^+$	
c - Etude de la fraction neutre obtenue avec $H_n^+$	
<b>C - CONCLUSION.....</b>	<b>p. 81</b>
 <b>CHAPITRE IV. OBSERVATION DE LA CAPTURE RADIATIVE D'UN ELECTRON</b>	
<b>DANS LES NIVEAUX K, L ET M D'IONS Xe <math>54^+</math>, <math>53^+</math> ET <math>52^+</math> DE 25 MeV/u</b>	
<b>CANALISES DANS UN CRISTAL DE SILICIUM.....</b>	
	<b>p. 85</b>
<b>A - INTRODUCTION.....</b>	<b>p. 85</b>
<b>B - NOTIONS DE CANALISATION.....</b>	<b>p. 85</b>
<b>C - METHODES EXPERIMENTALES.....</b>	<b>p. 87</b>
1 - Choix des paramètres expérimentaux.....	p. 87
a - Divergence angulaire du faisceau incident	
b - Nature de l'ion	
c - Epaisseur de la cible	
2 - Dispositif expérimental.....	p. 88
3 - Méthode d'alignement du cristal.....	p. 88
<b>D - MESURE DES DISTRIBUTIONS DE CHARGE.....</b>	<b>p. 89</b>
<b>E - OBSERVATION DE LA CAPTURE ELECTRONIQUE RADIATIVE.....</b>	<b>p. 92</b>
1 - En conditions d'orientation quelconque.....	p. 92
2 - En conditions d'orientation axiale $< 110 >$ .....	p. 93
<b>F - CONCLUSION.....</b>	<b>p. 96</b>
<b>CONCLUSION.....</b>	<b>p. 97</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE.....</b>	<b>p. 99</b>



## INTRODUCTION

Lorsque l'on étudie l'interaction ion-solide, les situations expérimentales sont en nombre infini car les projectiles peuvent être atomiques ou moléculaires, légers ou lourds, et les cibles peuvent être également très diverses : être constituées d'atomes légers ou lourds, d'une part, présenter d'autre part une nature amorphe ou cristalline. Dans leurs particularités, ces situations expérimentales offrent la possibilité d'obtenir des informations très variées sur les phénomènes d'échange de charge et d'excitation. Elles permettent ainsi de progresser dans la compréhension des processus de perte et de capture électronique, radiative ou non radiative.

Pour décrire l'état de charge ou l'état d'excitation d'un ion atomique léger rapide dans un solide, il faut connaître au préalable les états électroniques possibles de cet ion dans le solide. Or la perturbation dynamique induite par le solide sur la structure électronique du projectile en mouvement reste encore mal connue.

Très peu d'expériences peuvent actuellement fournir des informations directes sur l'existence ou la non-existence d'états électroniques de projectiles légers à l'intérieur d'un solide. Or des études réalisées par le Groupe des Collisions Atomiques dans les Solides (C.A.S) de l'Institut de Physique Nucléaire de Lyon ont suggéré que des systèmes atomiques légers pouvaient survivre à haute vitesse dans un solide non seulement dans leur état fondamental, mais aussi dans les états excités les plus liés ; bien que certaines théories contestent leur existence, notamment celle de l'hydrogène atomique  $H^0$  dans les solides, quelle que soit sa vitesse de propagation.

D'autres études effectuées par le groupe C.A.S. ont suggéré que des systèmes moléculaires pouvaient aussi survivre dans les solides. De plus l'observation de tels systèmes permet d'accéder à des informations qui seraient inaccessibles avec des faisceaux de projectiles atomiques. La dissociation moléculaire offre en effet l'unique possibilité de faire voyager des particules chargées à très faible distance les unes des autres ( 1 à 10 Å), et qui sont donc spatialement et temporellement corrélées les unes avec les autres. Lorsqu'un ion moléculaire rapide pénètre dans une cible solide il perd ses électrons de liaison dans les premières couches atomiques ; les fragments positifs qui en résultent se repoussent alors mutuellement. Nous pourrions penser qu'hormis cette répulsion, les fragments interagiraient avec la matière de la même façon que des projectiles ioniques isolés de même vitesse. Mais de nombreuses expériences effectuées avec des faisceaux moléculaires ont montré de forts effets de proximité, notamment sur les phénomènes d'échange de charge. Le groupe C.A.S. a d'ailleurs mis en évidence que de 0,5 à 1,2 MeV/u la production d'atomes  $H^0$  à l'émergence d'une cible solide est environ deux fois plus élevée avec des projectiles incidents  $H_3^+$  que  $H_2^+$ . L'étude de ces effets collectifs sur le phénomène d'échange de charge peut donc apporter des informations sur les processus même de capture et de perte électronique.

C'est dans la même optique que fut entrepris notre travail expérimental ayant pour but principal d'étudier l'interaction d'agrégats d'hydrogène  $Hn^+$  avec des cibles solides, afin d'apporter des informations non seulement sur les effets collectifs lors des processus de capture et de perte électronique, mais aussi sur la structure de ces agrégats. Notre second but fut de mettre au point une méthode permettant de confirmer ou d'infirmer l'existence d'états atomiques légers dans les solides.

Dans le premier chapitre de ce mémoire nous introduisons les concepts théoriques liés aux phénomènes d'échange de charge et passons en revue les résultats expérimentaux antérieurs aux nôtres.

Dans le second chapitre, nous présentons l'étude des populations relatives des états électroniques excités  $2p$  et  $4p$  de l'hélium. La méthode est fondée sur la mesure combinée de l'état de charge et de l'état d'excitation d'ions transmis à travers des cibles solides. Dans cette expérience, l'état atomique du projectile émergent est déterminé par les méthodes habituelles utilisées en physique atomique ("Beam Foil Spectroscopy"). Cette étude a d'ailleurs été réalisée en collaboration avec le Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire (L.A.S.I.M. UA 171) de Lyon. Un des principaux résultats de cette étude est de déterminer l'existence ou la non existence des états  $2p$  et  $4p$  de l'ion  $He^+$  à l'intérieur du solide à des énergies de l'ordre du MeV.

Dans le chapitre III, sont décrites des expériences consacrées à l'étude de l'interaction d'agrégats d'hydrogène de 20 à 100 keV/u avec des cibles solides. La mesure des distributions angulaires des fragments atomiques émergents, neutres ou chargés, résultant de la dissociation d'agrégats  $Hn^+$  ( $2 \leq n \leq 21$ ) dans des feuilles minces de Carbone, permet d'étudier l'explosion des agrégats et de déterminer aussi la distribution de charge des fragments.

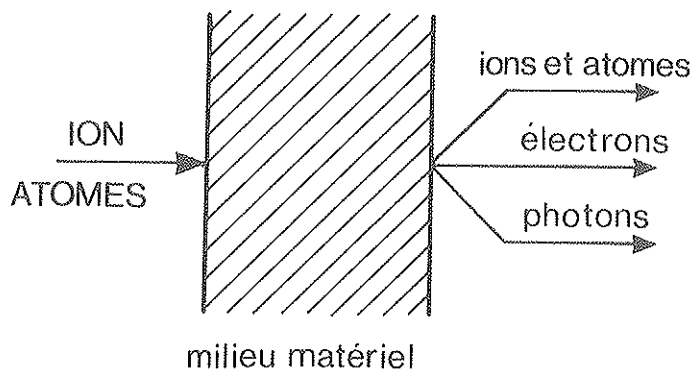
J'ai aussi eu la chance de participer à l'expérience de canalisation (P 77) faite au GANIL dans le cadre de la collaboration Bordeaux - Caen - Fontenay aux Roses - Lyon - Paris - Strasbourg, fondée sur l'étude de l'interaction d'ions Xe (25 MeV/u) très épluchés avec un cristal de Silicium. Dans le quatrième chapitre nous en présentons les résultats qui montrent que la canalisation d'ion lourds rapides très épluchés permet l'étude très détaillée de la capture électronique radiative.

## CHAPITRE I

### ECHANGE DE CHARGE D'IONS RAPIDES AVEC LA MATIERE

#### A - INTRODUCTION

Lorsqu' un ion ou un atome rapide pénètre dans un milieu matériel, il interagit avec les électrons et les noyaux du milieu. Ces interactions tendent essentiellement le ralentir, à défléchir sa trajectoire par diffusions multiples et à modifier ses états de charge et d'excitation atomiques. En outre d'autres phénomènes accompagnent son passage dans la matière, par exemple, l'éjection d'électrons, d'ions ou d'atomes de la cible, l'excitation des atomes cibles etc... (figure I-1).



Principales conséquences de l'interaction ion-matière à grande vitesse

Pour le projectile - Ralentissement

- Diffusion multiple
- Diffusion sous grand angle

Figure I-1 : Diverses manifestations de l'interaction ion-matière.



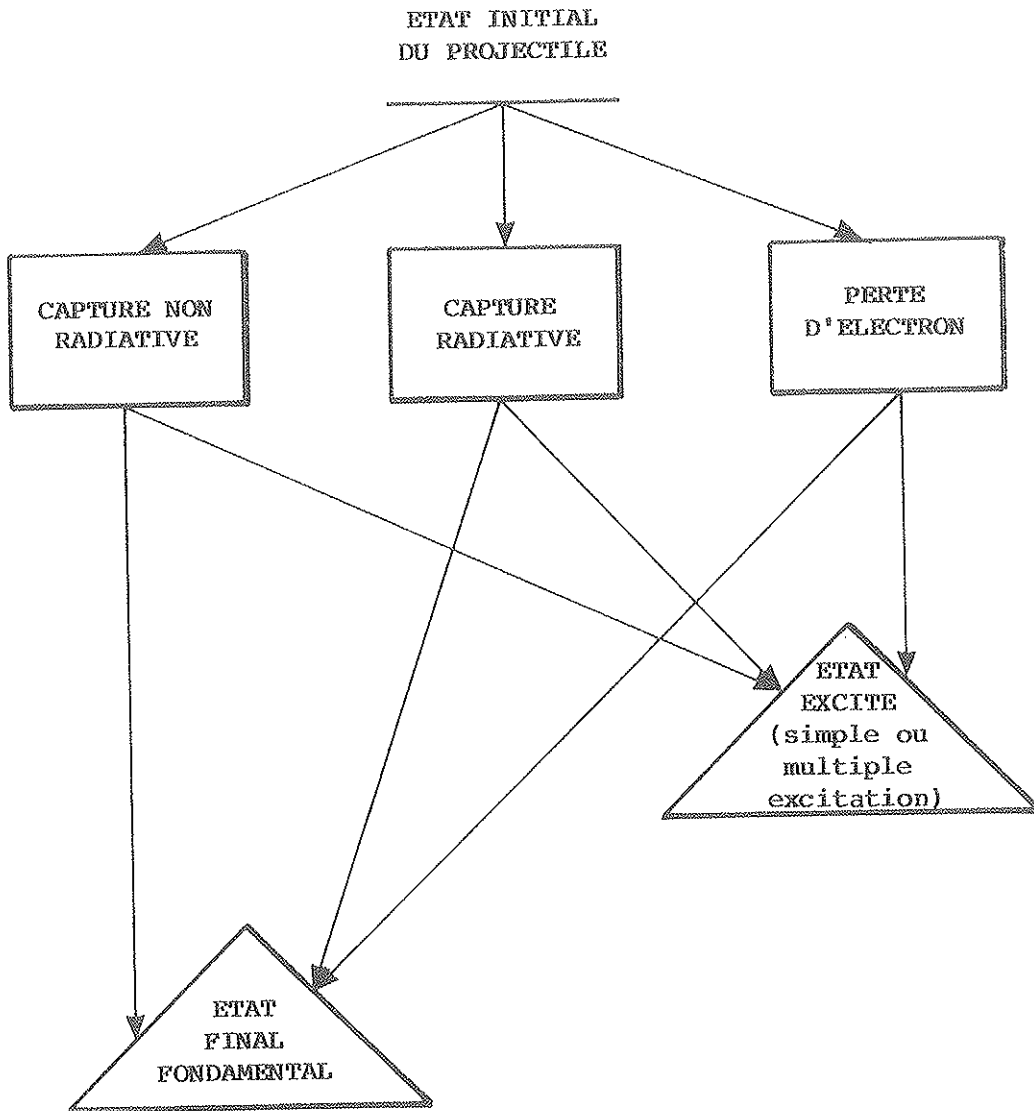


Figure I-2 : Processus d'échange et d'excitation induits par une collision ion-atome cible.

Dans notre présent travail, nous nous intéresserons essentiellement aux processus physiques qui conduisent à une modification de l'état de charge et de l'état d'excitation du projectile. Les principaux processus induits sur ce projectile lors de sa collision avec les atomes cibles, sont illustrés sur la figure I-2 : perte d'électrons, capture d'électrons de manière radiative ou non radiative. Après la collision le projectile peut se trouver dans l'état fondamental ou un état excité.

## B - PHENOMENE D'ECHANGE DE CHARGE

### 1 - Introduction

Le processus d'échange de charge consiste en une interaction entre la cible et le projectile qui peut amener ce dernier à capturer des électrons du milieu ou à lui en céder. La distribution des états de charge des ions émergents peut dépendre ou non de l'état de charge initial. Pour un projectile de vitesse donnée, la distribution des états de charge du faisceau émergent d'une cible gazeuse ou solide dépend en général de l'épaisseur de cette cible. Nous admettons que l'état "d'équilibre de charge" est atteint lorsqu'à vitesse de sortie constante, toute augmentation de l'épaisseur de la cible ou toute modification de l'état de charge des projectiles incidents ne modifie plus la distribution des états de charge des projectiles transmis.

La plupart des études expérimentales antérieures à 1970, mises à part celles entreprises séparément par Phillips, Hall et Allison (1-3), relatives à l'échange de charge d'ions légers avec la matière, avaient été réalisées avec des cibles gazeuses. Dans ces milieux de faible densité, l'intervalle de temps entre deux collisions successives est généralement suffisamment long pour que le projectile puisse se trouver dans un état atomique bien défini avant chaque collision. Nous pouvons alors déterminer les sections efficaces des processus élémentaires de capture et de perte d'électrons, à partir notamment des mesures d'états de charge.

L'étude de l'interaction d'ions lourds avec une cible gazeuse est plus complexe compte tenu du nombre élevé d'états de charge possibles, et l'analyse des résultats concernant ces états de charge fait souvent appel à des lois semi-empiriques valables dans des domaines limités (4, 5).

Lorsque la cible est un solide, les électrons de valence ou de conduction du milieu matériel perturbent la structure électronique du projectile. De plus, compte tenu de la forte densité du milieu traversé, l'intervalle de temps entre deux collisions successives est court. La question alors qui se pose est : peut-on encore parler d'état atomique lié à l'intérieur du solide ?

Pour un ion lourd en interaction avec une cible solide la plupart des niveaux d'énergie du projectile sont peu perturbés par le milieu, et il est clair que des états atomiques liés à ce projectile existent à l'intérieur du solide. Cependant il faut noter que du fait de la fréquence des collisions, un état excité créé au cours d'une première collision en général n'a pas le temps de se relaxer avant que n'ait lieu la collision suivante. Ce dernier point n'est pas seulement propre aux milieux solides mais aussi aux milieux gazeux denses.

Dans le cas d'un projectile léger, ses niveaux électroniques peuvent être très fortement perturbés lorsqu'il est en mouvement à l'intérieur du solide. L'investigation de l'existence ou non d'un état atomique lié dans le cas de projectiles légers a fait l'objet de nombreuses études expérimentales entreprises par le groupe C.A.S. Il a été montré (6) que certains états, les plus liés de l'hélium et de l'hydrogène, peuvent exister dans le solide à suffisamment haute vitesse ( $v > v_0$ ).

### 2 - Echange de charge dans un milieu de faible densité

#### a - Equations d'évolution des états de charge.

La distribution des états de charge d'ions émergents de milieux de faible densité peut être prévue à partir d'un système d'équations différentielles couplées, faisant intervenir des sections efficaces de perte et de capture électroniques au cours de collisions binaires entre projectiles et atomes cibles. Considérons un faisceau d'ions ou d'atomes de charge  $q$  traversant une cible gazeuse d'épaisseur surfacique  $x$ , exprimée en nombre d'atomes de la cible par unité de surface. Si le milieu est suffisamment dilué, les particules excitées à la suite d'une collision ont le temps de revenir à leur état fondamental avant qu'un nouveau choc ne modifie leur état de

charge. L'évolution des états de charge du faisceau pendant son passage à travers la cible est décrit par le système différentiel suivant :

$$\frac{d\varphi_q(x)}{dx} = \sum_{q' \neq q} (\sigma_{q'q} \varphi_{q'}(x) - \sigma_{qq'} \varphi_q(x)) \quad (I - 1)$$

avec la condition de normalisation  $\sum_q \varphi_q(x) = 1$

$\sigma_{qq'}$  représente la section efficace totale de passage de la charge  $q$  à la charge  $q'$  et  $\varphi_q(x)$  la fraction d'ions ayant l'état de charge  $q$  après avoir traversé l'épaisseur  $x$ .

Si le faisceau traverse une épaisseur suffisante de gaz pour atteindre l'équilibre de charge, le nombre de collisions qui peuplent l'état  $q$  est égal au nombre de collisions qui le dépeuplent, donc on peut écrire :

$$\sum_{q' \neq q} (\phi_{q'} \sigma_{q'q} - \phi_q \sigma_q^t) = 0 \quad (I - 2)$$

où  $\phi_q$  représente la fraction correspondant à l'état de charge  $q$  à l'équilibre et  $\sigma_q^t$  la section efficace totale de changement de charge des ions de charge  $q$ ,

$$\sigma_q^t = \sum_{q' \neq q} \sigma_{qq'} \quad (I - 3)$$

Le cas le plus simple que l'on puisse envisager est celui de l'hydrogène qui à l'émergence d'une cible ne peut se trouver que dans trois états ( $H^+$ ), ( $H^0$ ) et ( $H^-$ ) que nous noterons 1, 0, -1 respectivement. Ainsi la description la plus générale de l'évolution d'un faisceau d'hydrogène, représenté par un système à trois composantes, est déjà complexe puisqu'elle nécessite la connaissance de six sections efficaces, trois de capture d'électrons  $\sigma_{10}, \sigma_{1-1}, \sigma_{0-1}$  et trois de perte  $\sigma_{-10}, \sigma_{-11}, \sigma_{01}$ .

Dans le cas d'échange de charge d'ions lourds avec la matière, un grand nombre d'états de charge est à prendre en compte. Pour cette raison la distribution des états de charge à l'émergence est caractérisée par une valeur moyenne à l'équilibre  $\bar{q} = \sum_q q \phi_q$ , et une largeur.

#### b - Echange de charge de projectiles légers He, H dans un milieu de faible densité.

L'échange de charge de projectiles légers comme l'hydrogène et l'hélium a surtout été étudié dans les milieux de faible densité (7, 9). Dans de nombreux cas on peut se contenter de décrire le faisceau d'hydrogène émergeant du milieu matériel comme un système à deux états de charge :  $q = 1$  (le proton) et  $q = 0$  (l'atome neutre). En effet les expériences de Fogel (10) faites à l'équilibre de charge montrent que le rapport  $\phi_{-1}/\phi_0$  est de l'ordre de 0,01 pour des protons incidents de 30 keV (ce qui correspond à une vitesse du projectile de l'ordre de la vitesse de Bohr  $v_0$ ). Quand l'énergie augmente, ce rapport décroît rapidement et l'état  $q = -1$  ( $H^-$ ) ne joue plus aucun rôle. Il en résulte que le système d'équations différentielles (I-1) se simplifie considérablement et sa résolution donne

$$\varphi_0(x) = \frac{\sigma_c}{\sigma_c + \sigma_t} + \frac{\sigma_t}{\sigma_c + \sigma_t} e^{-(\sigma_c + \sigma_t)x} \quad (I - 4)$$

$$\varphi_1(x) = \frac{\sigma_t}{\sigma_c + \sigma_t} \left( 1 - e^{-(\sigma_c + \sigma_t)x} \right) \quad (I - 5)$$

où  $\sigma_c$  et  $\sigma_t$  sont les sections efficaces de capture et de perte électroniques.

A l'équilibre on peut écrire :  $\frac{d\phi_0}{dx} = \frac{d\phi_1}{dx} = 0$

on obtient

$$\phi_0 = \frac{\sigma_c}{\sigma_c + \sigma_t} \quad (I - 6)$$

et

$$\phi_1 = \frac{\sigma_t}{\sigma_c + \sigma_t} \quad (I - 7)$$

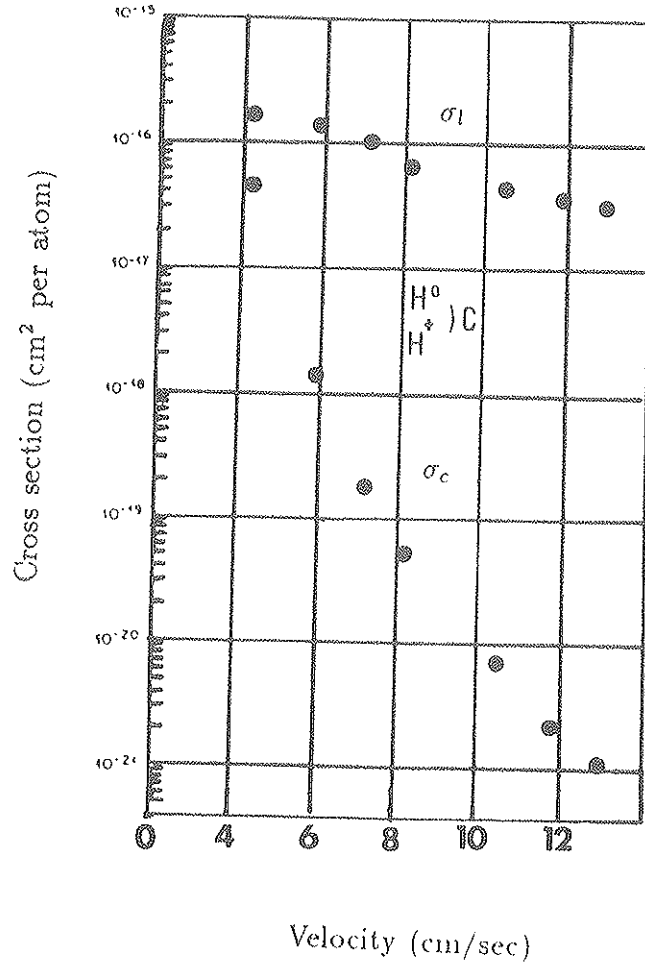


Figure I-3 : Sections efficaces de perte ( $\sigma_{01}$ ) et de capture d'électrons ( $\sigma_{10}$ ) pour des faisceaux d'hydrogène dans le carbone (valeurs déduites de mesures effectuées avec des composés carbonés en état gazeux (d'après (11) ).

Pour des énergies suffisamment élevées ( $> 1 \text{ MeV}$ ) pour lesquelles l'état  $He^0$  est très peu probable, nous pourrions décrire de la même manière l'évolution de l'état de charge de l'hélium en ne prenant en compte que les états de charge  $q=1 (He^+)$  et  $q=2 (He^{++})$ . Les relations (I-6) et (I-7) montrent que la connaissance de  $\phi_0$  et  $\phi_1$  dans le domaine d'équilibre de charge permet seulement la détermination du rapport  $\sigma_c/\sigma_l$ . La détermination des valeurs de  $\sigma_c$  et  $\sigma_l$  nécessite la mesure de  $\varphi_0(x)$  et de  $\varphi_1(x)$  en fonction de  $x$  dans des conditions où le faisceau émergent n'a pas encore atteint l'équilibre de charge.

En particulier, Toburen et al. (11) ont mesuré des sections efficaces de perte et de capture électroniques pour des faisceaux d'hydrogène entre 0,1 et 2,5 MeV dans le carbone en phase gazeuse (figure I-3).

### c - Echange de charge d'ions lourds ( $Z > 3$ ) dans un milieu de faible densité.

Contrairement à l'hydrogène et à l'hélium qui n'émergent qu'occasionnellement avec un électron lié, les ions lourds gardent un grand nombre d'électrons liés pendant leurs parcours dans la cible. Ces électrons, qui restent liés à l'ion projectile, ont en général une vitesse orbitale supérieure à la vitesse du projectile (argument de Bohr (12) ). Un grand nombre de sections efficaces sont alors nécessaires pour décrire les distributions de charge hors équilibre. Sur la figure I-4 sont représentées les fractions de charge calculées à

partir de l'équation (I-2) pour des ions  $^{127}\text{I}$  de 15 MeV traversant une cible d'hydrogène (12). L'équilibre n'est atteint qu'à partir d'épaisseur  $x \sim 10^{16}$  molécules /  $\text{cm}^2$ .

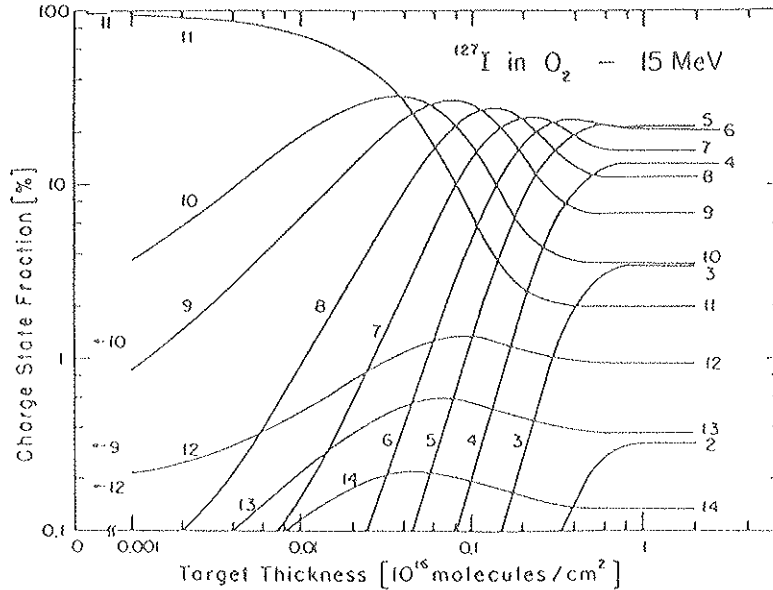


Figure I-4 : Distributions des états de charge d'ions  $^{127}\text{I}$  de 15 MeV à l'émergence d'une cible gazeuse d'oxygène (état de charge incident  $11^+$ ).

### 3 - Echange de charge d'ions traversant une cible solide

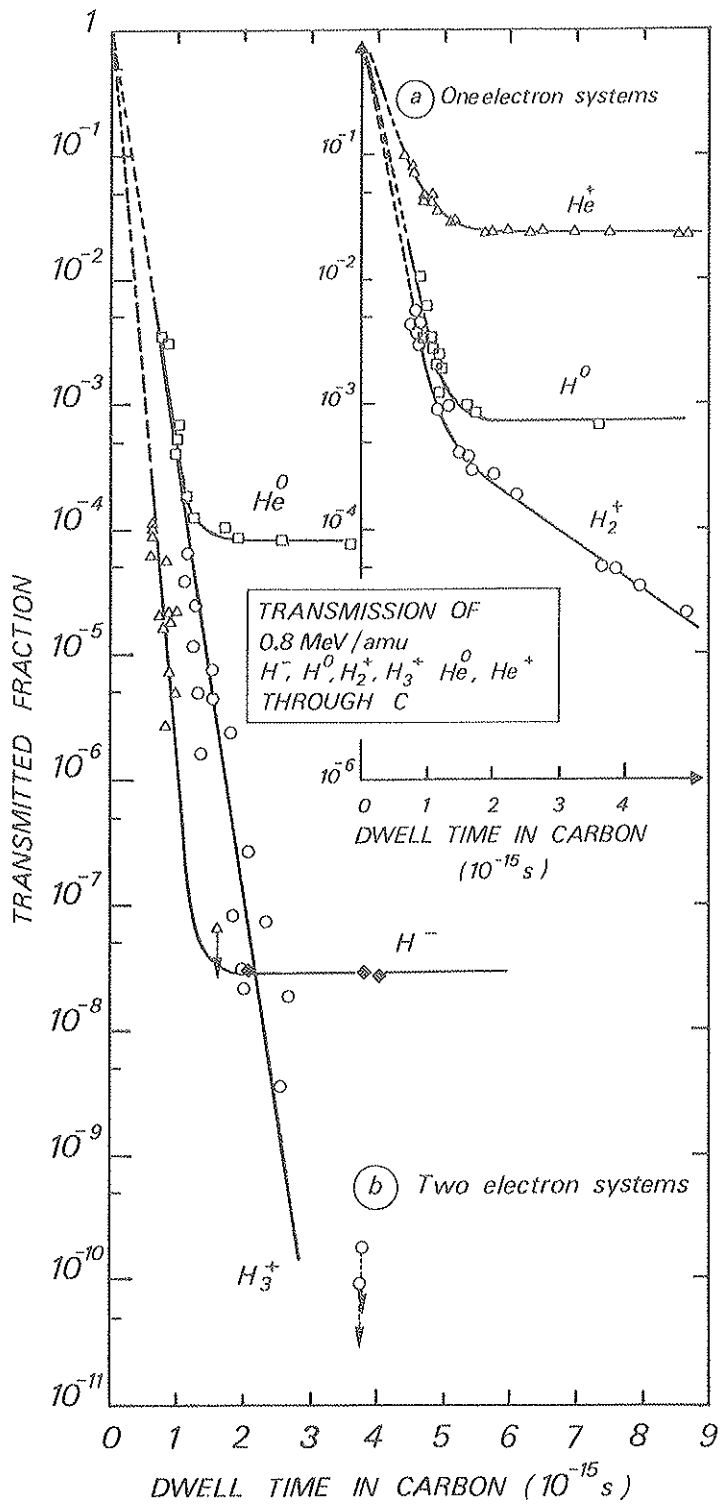
Lorsque la cible est un solide il n'est plus possible en principe de décrire l'évolution des états de charge par un système d'équations différentielles faisant intervenir les sections efficaces de capture et de perte d'électrons. Le solide ne se comporte pas comme un milieu gazeux à densité élevée, et les états de charge observés quand le faisceau d'ions émerge du solide ne sont pas nécessairement les mêmes qu'à l'intérieur du solide (13, 14).

Cependant, plusieurs travaux expérimentaux (15, 16) ont montré que la distribution des états de charge du faisceau émergeant d'une cible solide peut, comme dans le cas d'une cible gazeuse, être en équilibre ou hors équilibre selon l'épaisseur de la cible.

#### a - Distributions hors équilibre et à l'équilibre.

Comme illustration nous montrons les premières mesures de distributions de charges hors équilibre de projectiles légers émergeant de cibles solides, mesures réalisées par le groupe des "Collisions Atomiques dans les Solides" (C.A.S.) de l'Institut de Physique Nucléaire de Lyon (15).

Nous montrons sur la figure I-5 notamment la fraction  $T$  de projectiles hélium d'une part, hydrogène d'autre part qui émergent d'une feuille de carbone avec une charge identique à leur charge incidente (16). Pour des atomes à un ou deux électrons l'évolution de  $T$  en fonction du temps de passage dans la cible peut être caractérisée pour des temps de passage faibles par une simple décroissance exponentielle. Le temps caractéristique  $\tau$  de cette décroissance est de l'ordre de la femtoseconde ( $10^{-15}$  s) pour des énergies de l'ordre du MeV.



**Figure I-5 :** Variation de la fraction de projectiles de 800 keV/u émergeant de cibles de carbone avec une charge identique à leur charge incidente en fonction du temps de passage dans la cible (d'après (15)).

Si on suppose que l'état atomique lié  $H^0$  (ou  $He^+$ ) existe à l'intérieur du solide malgré la fréquence des collisions et l'effet d'écran des électrons du milieu sur le projectile, les états de charge en aval d'une cible mince pourraient être interprétés en terme de capture et de perte d'électrons à l'intérieur du solide. Le temps de décroissance peut alors être relié à la section efficace de perte électronique par la relation

$$\sigma_e = (N\tau v)^{-1} \quad (I-8)$$

où  $N$  est le nombre d'atomes cibles par unité de volume et  $v$  la vitesse du projectile incident. Pour des temps de passage plus longs,  $T$  atteint une valeur constante qui correspond à la fraction de charge à l'équilibre. Sur la figure I-5, il apparaît que des ions moléculaires tels que  $H_2^+$  ou  $H_3^+$  peuvent aussi être transmis à travers une cible mince de carbone.

**b - Effets de densité sur la charge moyenne.**

Du fait de la succession très rapide des collisions on observe dans les solides, comme d'ailleurs dans les gaz denses, des effets de densité sur la charge moyenne à l'équilibre. On constate que la charge moyenne à l'équilibre obtenue dans les solides est supérieure à celle obtenue dans les gaz ( $\bar{q}_S > \bar{q}_G$ ).

Bohr et Lindhard (B.L.) (12) interprètent la différence observée entre la charge moyenne à l'équilibre  $\bar{q}_S$  obtenue avec des cibles solides et  $\bar{q}_G$  obtenue avec des cibles gazeuses à partir de deux hypothèses :

1) - Dans les solides, la succession très rapide des collisions ne permet pas la désexcitation radiative de l'ion entre deux collisions. En effet l'intervalle de temps moyen entre deux collisions est de l'ordre de  $10^{-17}$  s (aux énergies de l'ordre du MeV) alors que la durée de vie des états excités est de l'ordre  $10^{-10}$  s. 2) - C'est l'électron le moins lié de l'ion qui a la probabilité la plus grande d'être excité dans une collision. L'excitation augmentant de choc en choc, c'est l'électron le moins lié qui est le premier perdu ; et ainsi de suite pour les électrons de plus en plus liés. La section efficace de perte dans un solide est donc plus grande que dans les gaz, ce qui entraîne une augmentation de  $\bar{q}_S$  au cours de la pénétration.

Betz et Grodzins (B.G.) (14), sur la base des résultats expérimentaux obtenus avec des cibles gazeuses denses ont observé un effet de densité sur la charge moyenne à l'équilibre. Mais ils ont montré que la section efficace de perte électronique d'un ion lourd traversant un gaz dense était peu différente de celle obtenue pour des gaz de faible densité, ce qui contredit les prédictions du modèle B.L.. Ainsi, ils ont repris la théorie précédente, modifiant la seconde hypothèse en supposant que l'excitation concerne tous les électrons des couches externes. Cette hypothèse conduit à une augmentation, mais plus faible, de la section efficace de perte car il n'y a plus de processus en cascade. Mais surtout, l'excitation globale de l'ion étant importante, la désexcitation après sa sortie par émission d'électrons Auger doit être prise en compte. Ce dernier processus conduit à une augmentation de la charge moyenne immédiatement après la sortie de la cible (figure I-6).

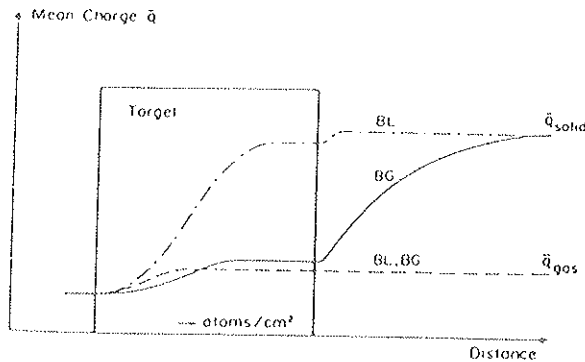


Figure I-6 : Illustration schématique de la différence de la charge moyenne entre des ions lourds sortant de cibles denses gazeuses ou solides. BL, théorie de BOHR et LINDHARD ; BG, théorie modifiée de BETZ et GRODZINS ; (d'après (5)).

Notons que B.L. n'excluent pas l'émission d'électrons après la sortie, se traduisant par une charge moyenne  $\bar{q}_S$  encore plus élevée. Enfin B.G. font remarquer à l'appui de leur thèse que la charge moyenne "effective"  $Z_{eff}$  que l'on extrait des mesures de pouvoir d'arrêt des solides est très proche de la charge moyenne à l'équilibre obtenue dans les gaz (17) (figure I-7).

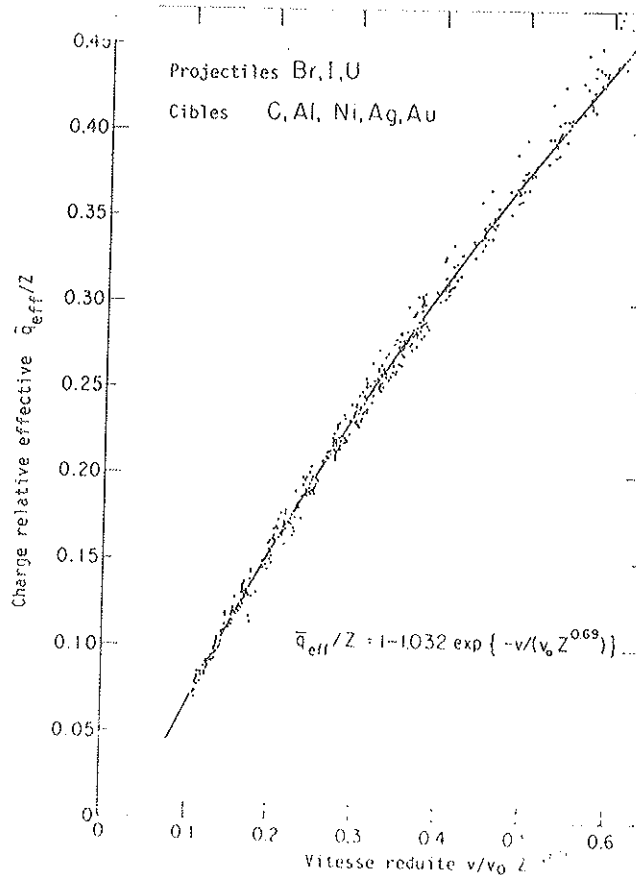


Figure I-7 : Variation de la charge effective relative  $\bar{q}_{eff}/Z$  d'ions lourds (déduite des mesures de la perte d'énergie de ces ions dans différentes cibles solides) avec la vitesse réduite  $v/v_0 Z^{0.69}$ .

Récemment Della Negra et al. (18) ont mesuré le taux de désorption d'hydrogène à la surface de cibles solides d'or et de carbone après passage d'ions rapides. Le taux de désorption dépend de la charge de l'ion qui traverse la surface. Ils ont déduit de leurs mesures la charge moyenne à l'équilibre de faisceaux de krypton et d'argon de 1,16 MeV/u à la surface de la cible, et l'ont comparée à celle qu'on obtient par une mesure classique, c'est à dire après désexcitation radiative ou par effet Auger. Pour le Krypton à 1,16 MeV/u ils obtiennent une différence de charge moyenne de l'ordre de 1,6 à 3 en accord avec le modèle d'excitation multiple (B.G.). Pour l'Argon, ils n'observent pas de différence sensible de charge moyenne. La désexcitation par effet Auger, indépendante de Z (sauf à grand Z où elle varie proportionnellement à Z) est en compétition avec la désexcitation radiative (variation en  $Z^4$ ). L'absence de variation de  $\bar{q}_S$  pour l'Argon est donc liée à une excitation moindre dans la cible.



## C - THEORIES DE L'ECHANGE DE CHARGE

Lorsque l'on s'intéresse aux phénomènes d'échange de charge, il est important de faire la distinction entre le processus d'ionisation et le processus de capture électronique. Lorsqu'il est non radiatif, ce dernier est très difficile à traiter car il nécessite la présence d'au moins trois corps pour que soient conservées simultanément la quantité de mouvement et l'énergie. Le processus de perte électronique est un problème, plus simple, à deux corps. La plupart des traitements théoriques concernent la perte ou la capture non radiative d'un électron par un ion traversant un milieu de faible densité. Cependant certains théoriciens, tels Yavlinskii et al. (19), Brandt et Sizmann (20), ont abordé l'étude de la capture d'un électron par un proton en mouvement dans une cible solide.

Dans ce chapitre, nous évoquerons tout d'abord les théories concernant la perte, la capture non radiative ou radiative d'un seul électron par un ion léger traversant une cible de faible densité. Nous aborderons plus précisément la théorie de Bohr (12) (cibles gazeuses) qui a été élaborée pour le même domaine de vitesse que celui de notre travail expérimental. Puis nous discuterons plus en détails la théorie de Brandt et Sizmann (20) (cibles solides) afin de tester sa validité dans quelques situations bien déterminées.

### 1 - Cibles gazeuses

#### a - Section efficace de perte par des ions légers.

La première étude détaillée du processus de perte d'électron a été élaborée par N. Bohr en 1948 (12). Dans une approche classique, Bohr décrit la perte de l'électron d'un projectile en mouvement dans un milieu matériel comme un simple processus d'ionisation. On peut observer la collision dans le système de référence de la particule où elle est soumise au bombardement des atomes du milieu. Bohr estime que, si le temps de collision est court devant la période orbitale de l'électron à arracher et si le transfert d'énergie est faible devant l'énergie incidente de la particule, on peut négliger les forces de liaison.

Considérons  $b$  le diamètre de collision et  $\hbar$  la longueur d'onde de l'électron à arracher.  $b$  et  $\hbar$  sont donnés par :

$$\hbar = 2a_0 \frac{v_0}{v} \quad \text{et} \quad b = 2a_0 \left( \frac{v_0}{v} \right)^2 \quad (I - 9)$$

où  $v$  est la vitesse du projectile incident, et

$$v_0 = \frac{2e^2}{\hbar} \quad \text{et} \quad a_0 = \frac{\hbar^2}{me^2}$$

sont la vitesse et le rayon de Bohr respectivement,  $m$  étant la masse de l'électron. Cette approximation des "collisions libres" n'est donc valable que lorsque le paramètre de Born

$$k = \frac{b}{\hbar} \quad (I - 10)$$

est très inférieur à 1, c'est à dire lorsque la vitesse des ions incidents est grande devant la vitesse de Bohr, ou plus précisément devant la vitesse orbitale  $u$  de l'électron à arracher.

- Pour des projectiles légers traversant un milieu de numéro atomique  $Z_2$  faible, les dimensions orbitales des atomes cibles sont comparables à celles de l'électron qui va être perdu par l'ion, de sorte que les effets ionisants des électrons et du noyau de la cible sont pratiquement indépendants l'un de l'autre. La théorie statistique de l'ionisation de Bohr conduit alors à l'expression suivante pour la section efficace de perte :

$$\sigma_l = 4\pi a_0^2 Z_1^{-1} (Z_2^2 + Z_2) \left( \frac{v_0}{v} \right)^2 \quad (I - 11)$$

où  $Z_1$  est le numéro atomique du projectile.

- Pour des atomes cibles ayant des valeurs de  $Z$  supérieures à 6, les dimensions orbitales des électrons les plus liés sont inférieures à celle de l'électron du projectile léger et les effets ionisants des électrons et des noyaux de la cible ne peuvent être dissociés.

- Pour des valeurs de  $Z_2$  comprises entre 6 et 18, en tenant compte des effets d'écran des électrons les plus liés sur le noyau cible, Bohr obtient

$$\sigma_1 \sim \pi a_0^2 Z_2^{2/3} Z_1^{-1} \frac{v_0}{v} \quad (I - 12)$$

- Pour des valeurs de  $Z_2$  très élevées, le champ à l'intérieur de l'atome est si intense que la plupart des collisions pour lesquelles la particule pénètre le volume de l'atome à une vitesse  $v$  très supérieure à  $v_0$ , conduisent à la perte d'électrons liés. Dans une large mesure  $\sigma_1$  est indépendant de  $Z_2$  et de  $v$  et devient comparable à la section efficace géométrique de la particule incidente :

$$\sigma_1 \sim \pi a_0^2 \quad (I - 13)$$

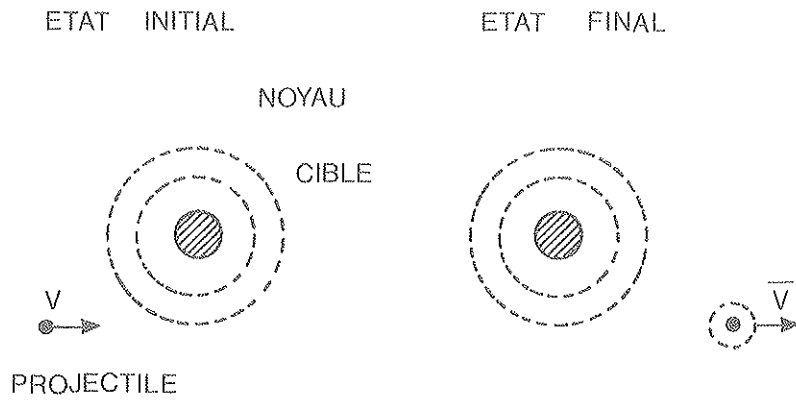
La validité de l'expression (I-11) de Bohr a été étudiée en 1963 par Dmitriev et Nikolaev (21) dans le cadre d'une approche quantique. Pour des cibles gazeuses d'hydrogène et d'hélium, ils ont utilisé l'approximation de Born qui, dans ce cas, donne des résultats identiques à ceux obtenus par l'approximation des "collisions libres". Rappelons que l'approximation de Born (au premier ordre) ne peut s'appliquer que si l'énergie d'interaction entre le projectile et l'atome cible est faible devant l'énergie de leur mouvement relatif. Les fonctions d'ondes incidentes et sortantes décrivant le projectile et l'atome cible sont alors supposées non perturbées au cours de la collision. Pour que les deux systèmes, atome cible et projectile, interagissent peu, il faut que le temps de collision soit court. Il en résulte, en accord avec Bohr, que l'approximation n'est valable que lorsque la vitesse  $v$  du projectile est grande devant la vitesse orbitale  $u$  de l'électron à arracher ; de sorte que la section efficace de perte peut-être supposée égale à la section efficace de diffusion d'un électron libre de vitesse  $v$  par un atome du milieu, accompagnée d'un transfert d'énergie au moins égal à l'énergie de liaison  $\frac{1}{2} mu^2$  de l'électron.

#### b - Section efficace de capture non radiative par des ions légers.

Comme nous l'avons déjà souligné, à la différence de la perte, la capture non radiative d'un électron est un phénomène plus complexe pour lequel les transferts d'énergie et de quantité de mouvement concernent au moins trois corps. La détermination de la dépendance en vitesse (en physique non relativiste) de la section efficace de capture électronique pour un noyau nu sur un atome cible dépend du domaine de vitesse étudié. Elle nécessite des considérations cinématiques importantes car, dans le cas d'un seul électron capturé, le sous-système constitué de cet électron et du noyau nu doit perdre au cours de la collision une énergie cinétique interne (c'est à dire l'énergie cinétique au centre de masse du sous système) plus ou moins importante selon la vitesse du noyau incident.

Avant d'aborder les différentes théories concernant la détermination de la section efficace de capture, nous allons étudier la cinématique de la capture d'un électron lié à un atome cible par un projectile de masse  $M$  et de vitesse incidente  $v$ .

i - Cinématique de la capture



L'énergie totale  $E$  du système (projectile + atome cible) s'écrit ;

$$E = \frac{1}{2} M v^2 - E_{l1}$$

$$E_{l1} \geq 0$$

où  $E_{l1}$  est l'énergie de liaison de l'électron de l'atome cible.

La quantité de mouvement  $\vec{P}$  du système s'écrit :

$$\vec{P} = M \vec{v}$$

L'énergie totale  $E'$  du système s'écrit, après capture :

$$E' = \frac{1}{2} (m + M) v'^2 - E_{l2} + \frac{Q^2}{2M'}$$

$$E_{l2} \geq 0$$

où  $E_{l2}$  est l'énergie de liaison de l'électron de l'atome projectile et  $Q$  le recul du noyau de masse  $M'$ .

La quantité de mouvement  $\vec{P}'$  du système s'écrit :

$$\vec{P}' = (m + M) \vec{v}' + \vec{Q}$$

Nous noterons  $\vec{P}_{\text{atome}} = (m + M)\vec{v}'$  la quantité de mouvement de l'atome projectile après capture.  
 - La conservation de la quantité de mouvement entraîne que

$$\vec{P} = \vec{P}_{\text{atome}} + \vec{Q} \quad (I - 14)$$

- La conservation de l'énergie entraîne que

$$\frac{P^2}{2M} - El_1 = \frac{P_{\text{atome}}^2}{2(m + M)} - El_2$$

En remplaçant  $P_{\text{atome}}$  par l'expression (I-14) il vient

$$\frac{P^2}{2M} - El_1 = \frac{(\vec{P} - \vec{Q})^2}{2(m + M)} - El_2$$

Remarquant que  $m \ll M$ , on peut écrire que

$$\frac{P^2}{2M} - El_1 \sim \frac{1}{2M} \left(1 - \frac{m}{M}\right) (\vec{P} - \vec{Q})^2 - El_2$$

Comme le recul du noyau cible est supposé très faible, nous allons négliger les termes en  $Q^2/M$  et  $mQ/M^2$  ( $m \ll M$ ).

Il vient

$$\frac{P^2}{2M} - El_1 \sim \frac{P^2}{2M} - \frac{mP}{2M^2} \frac{\vec{Q} \cdot \vec{P}}{M} - El_2$$

ou encore

$$-El_1 \sim -\frac{mP^2}{2M^2} - \frac{\vec{Q} \cdot \vec{P}}{M} - El_2$$

On obtient finalement d

$$El_1 - El_2 \sim \frac{mM^2 v^2}{2M^2} + \frac{M\vec{Q} \cdot \vec{v}}{M}$$

Il en résulte que la condition cinématique de la capture s'écrit :

$$El_1 - El_2 \sim \frac{1}{2} m v^2 + \vec{Q} \cdot \vec{v} \quad (I - 15)$$

Pour des vitesses  $v$  de l'ordre des vitesses orbitales, Bohr propose partir de considérations simples une estimation qualitative de la section efficace de capture.

## ii - Modèle de Bohr

Bohr considère que lors de la collision à trois corps (projectile, électron et ion cible), l'électron dans une première étape est transféré dans le continuum de l'atome cible puis dans une deuxième étape, capturé par le projectile. Pour une capture par des projectiles légers dans une cible lourde, la vitesse orbitale de l'électron avant capture est très supérieure à la vitesse orbitale après capture et l'expression (I-15) se réduit à

$$El_1 \sim \frac{1}{2} m v^2$$

Il en résulte que les électrons capturés sont ceux dont la vitesse orbitale est de l'ordre de la vitesse du projectile. C'est le critère de Bohr.

Bohr détermine alors, dans ce cas, la section efficace de capture  $\sigma_c$  en considérant trois termes :  $\sigma$ , la section efficace de collision qui place un électron cible dans le proche continuum de l'atome cible,  $n$ , le nombre

d'électrons susceptibles d'être capturés et  $f$ , la probabilité pour que l'électron transféré dans le continuum de l'atome cible soit capturé. La section efficace de capture s'écrit :

$$\sigma_c \sim \sigma f n \quad (I - 16)$$

- Pour déterminer  $\sigma$  Bohr estime que l'énergie transférée au cours de la collision est égale à  $\frac{1}{2}mv^2$ . Or la section efficace  $d\sigma$  de transférer une énergie cinétique comprise entre  $T$  et  $T + dT$  à un électron cible par collision avec un ion  $Z_1$  est telle que

$$d\sigma = 2\pi Z_1^2 \frac{e^4}{mv^2} \frac{dT}{T^2} \quad (I - 17)$$

Après intégration entre  $\frac{1}{2}mv^2$  et  $4mv^2$ , on obtient

$$\sigma = 4\pi a_0^2 Z_1^2 \left(\frac{v_0}{v}\right)^4 \quad (I - 18)$$

- Bohr estime la valeur de  $n$ , nombre d'électrons de la cible ayant une vitesse de l'ordre de  $v$ , à partir du modèle statistique de Thomas-Fermi ; Il obtient

$$n = Z_2^{1/3} \frac{v}{v_0} \quad (I - 19)$$

-  $f$  est donné directement par le rapport des espaces occupés par l'électron dans les états initial ( $4/3\pi a_2^3$ ) et final ( $4/3\pi Z_1^{-3} a_0^3$ ), où  $a_2$  est inversement proportionnel à  $v$ . D'où

$$f \sim Z_1^3 \left(\frac{v_0}{v}\right)^3 \quad (I - 20)$$

ce qui conduit à la section efficace de capture :

$$\sigma_c \sim 4\pi a_0^2 Z_1^5 Z_2^{1/3} \left(\frac{v_0}{v}\right)^6 \quad (I - 21)$$

Ce modèle même s'il n'est que qualitatif, conduit à des résultats quantitatifs en assez bon accord avec l'expérience. Le modèle de Bohr, valable pour des vitesses de projectile de l'ordre des vitesses orbitales n'est plus valable à très hautes vitesses ( $v \gg Z_1 v_0$ ). Thomas (22) avait, déjà en 1930, utilisé un modèle classique pour décrire la capture dans ce domaine de très hautes vitesses.

### iii - Autres modèles

#### iii . 1 - Modèle classique de Thomas

Thomas, comme Bohr, décrit la capture par un processus en deux étapes lors d'une collision à trois corps. La première étape est une collision entre le projectile incident et l'électron lié au noyau de la cible. La deuxième étape est une deuxième collision entre l'électron diffusé et le noyau cible. Thomas considère que la capture peut avoir lieu si, après la deuxième collision, l'électron acquiert une vitesse ayant même amplitude et direction que le projectile. Il y a donc double diffusion de l'électron. La dépendance en vitesse de la section efficace de capture est dans ce modèle en  $v^{-11}$ , donc très différente de celle obtenue par Bohr.

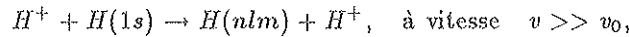
### iii . 2 - Modèles quantiques

En tenant compte d'une simple diffusion, Brinkman et Kramers (23) ont déterminé la section efficace de capture par un noyau d'un électron lié à un noyau cible, par application de l'approximation de Born (au premier ordre) avec comme potentiel perturbateur l'interaction entre le noyau projectile et l'électron. Pour des projectiles de vitesse grande par rapport aux vitesses orbitales maximum  $Z_1 v_0$  et  $Z_2 v_0$  des électrons du projectile et des atomes cibles, ils obtiennent

$$\sigma_c^{OBK} = \frac{2^{18}}{5} \pi a_0^2 Z_1^5 Z_2^5 \left(\frac{v_0}{v}\right)^{12} \quad (I - 22)$$

A ces vitesses, les théories quantique et classique doivent donner les mêmes résultats. L'approximation de Born au premier ordre n'est donc pas suffisante pour décrire quantitativement la section efficace de capture car elle ne redonne pas les résultats classiques de Thomas. Plusieurs théories du second ordre telles que les approximations  $B_2$  (Second Born Approximation) (24), CDW (Continuum Distorted Wave) (25), CIS (Continuum Intermediate State) (26) et IA (Impulse Approximation) (27) prédisent une section efficace de capture à haute énergie qui diffère des résultats au premier ordre. Le bon accord généralement obtenu entre la méthode CDW et les sections efficaces expérimentales indique que le contenu physique de l'approximation CDW est correct. Dans le cas d'un processus à trois corps, ce contenu est fortement relié aux idées de base du modèle classique de Thomas décrit précédemment : le processus en deux étapes de ce modèle correspond donc à une théorie quantitative du second ordre.

Pour la collision



la section efficace de capture obtenue par l'approximation CDW (ondes distordues) est

$$\sigma_{1s}^{CDW} = \left( 0,29458 + \frac{5\pi}{2^{12}} \frac{v}{v_0} \right) \sigma_{1s}^{OBK} \quad (I - 23)$$

où

$$\sigma_{1s}^{OBK} = \frac{2^{18}}{5} \left(\frac{v_0}{v}\right)^{12} \pi a_0^2$$

Nous retrouvons le terme en  $v^{-11}$  déjà obtenu dans le cadre du modèle de Thomas alors qu'au premier ordre il est en  $v^{-12}$ .

## 2 - CIBLES SOLIDES

Lorsque la cible est à l'état solide, la situation est encore plus complexe, notamment parce que la perturbation induite par le solide sur la structure électronique du projectile reste mal connue. Dans ce cas, les théories citées précédemment ne sont peut être plus valables car l'effet d'écran des électrons du milieu sur le projectile et la fréquence des collisions pourrait empêcher la formation d'un état atomique lié dans le solide.

### a - Effet d'écran.

Les électrons de conduction du solide sont attirés par la charge positive  $Z$  du projectile et répondent à la perturbation produite par cette "impureté" en formant autour d'elle un nuage de charge négative qui l'écrante.

#### i - Effet d'écran statique

Considérons une charge positive  $Z_1$  au repos dans un solide métallique, on peut décrire celui-ci par le modèle du "jellium" c'est-à-dire un fond uniforme de charges positives représentant les coeurs des atomes

du métal et un gaz d'électrons, de densité  $\rho_0$  (28). Cette densité est reliée au rayon  $r_S$  de la sphère de Wigner-Seitz occupée en moyenne par chaque électron du gaz ;  $r_S$  est exprimée en unités du rayon de Bohr  $a_0$  par la relation

$$\frac{4}{3}\pi r_S^3 = \frac{1}{\rho_0} \quad (I - 24)$$

L'augmentation  $\Delta\rho(r)(= \rho(r)-\rho_0)$  de la densité électronique autour de la charge tend à maintenir localement la neutralité de charge du système particule-cible et doit donc vérifier la relation

$$\int \Delta\rho(r)d^3r = Z_1^3 \quad (I - 25)$$

A des distances supérieures à l'extension de  $\Delta\rho(r)$ , la charge est complètement écrantée.

Si  $Z_1$  est suffisamment petit pour que  $\Delta\rho$  soit proportionnel à  $Z_1$ , nous avons d'après le modèle de Thomas-Fermi :

$$\Delta\rho(r)_{statique} = \frac{Z_1}{4\pi a_{TF}^2 r} \exp\left(-\frac{r}{a_{TF}}\right) \quad (I - 26)$$

La distance écran,  $a_{TF}$  (u.a.), est donnée par (20)

$$a_{TF} = \left(\frac{v_F}{3^{1/2}\omega_p}\right)$$

$v_F$  étant la vitesse de Fermi

et  $\omega_p = (4\pi\rho_0)^{1/2}$  la fréquence du plasma, en unités atomiques.

Il résulte de (I-26) que le potentiel créé par la charge dans le milieu est un potentiel dit écranté :

$$V(r) = \frac{Z_1 e}{r} \exp\left(-\frac{r}{a_{TF}}\right) \quad (I - 27)$$

Rogers et al (29) ont calculé avec précision les niveaux d'énergie de l'électron d'un système hydrogénoïde pour un tel potentiel en résolvant l'équation de Schrodinger radiale (Tableau I-1).

A cause de l'effet d'écran, tous les niveaux sont déplacés vers le continuum, l'énergie de liaison diminuant avec la distance écran. Au premier ordre, on obtient un déplacement approximatif de chaque niveau d'énergie d'une quantité égale à  $Z_1^2 e^2 / a_{TF}$ .

Dans le tableau I-1, la gamme de  $Z_1 D/a_0$  ( $D$  représente la distance écran  $a_{TF}$ ) qui correspond aux métaux est comprise entre 1 et 1,6. Le nombre d'états liés qui correspond à la particule de charge  $Z_1$  est

$$n^* = 0,583 + 0,499 a_{TF} \frac{Z_1}{a_0} \quad (I - 28)$$

$Z_1 D/a_0$	$1_s$	$2_s$	$2_p$	$3_s$	$3_p$	$3_d$
—	1.0000	0.2500	0.2500	0.1111	0.1111	0.1111
500	0.9960	0.2460	0.2460	0.1072	0.1072	0.1072
200	0.9900	0.2401	0.2401	0.1014	0.1011	0.1014
100	0.9601	0.2306	0.2305	0.09240	0.09234	0.09212
70	0.9717	0.2226	0.2224	0.00512	0.08191	0.08457
50	0.9606	0.2123	0.2119	0.07604	0.07570	0.07503
40	0.9509	0.2036	0.2030	0.06666	0.06616	0.6716
30	0.9350	0.1895	0.1686	0.05744	0.05647	0.05494
20	0.9036	0.1635	0.1615	0.03670	0.03712	0.03387
15	0.8731	0.1400	0.1366	0.02431	0.02195	0.01695
10	0.6141	0.09966	0.09307	0.00642	0.00315	
7	0.7424	0.05991	0.01643	0.00318		
5	0.6536	0.02421	0.00620			
4	0.5818	0.00679				
3	0.4737					
2	0.2962					
1.4	0.1351					
1	0.02037					

TABLEAU I-1 : Energie de liaison, en unités de  $Ry = 13,6 \text{ eV}$ , d'un électron sur une charge ponctuelle  $Z_1 e$ , en fonction de la distance écran  $D(= a_{TF})$  (d'après (29)).

En particulier lorsque  $a_{TF} < 0,84 \frac{a_0}{Z_1}$ , il n'y a pas d'état lié possible. Dans un métal, la formation d'un atome d'hydrogène représente donc un cas limite : seul l'état  $1s$  pourrait a priori exister, mais avec une énergie de liaison très faible. En conclusion, si l'on considère un effet d'écran statique il n'y a pas d'état lié possible proton-électron dans un métal.

## ii - Effet d'écran dynamique

Si la charge positive est en mouvement dans le solide avec une vitesse  $v$ , la densité électronique au voisinage de la particule est plus faible que si elle est au repos. Selon Brandt (20),

$$\Delta\rho_{dynamique} = \Delta\rho_{statique} \left( 1 - \exp\left(-\frac{v_F}{v}\right) \right) \quad (I - 29)$$

L'effet d'écran diminue donc de façon significative dès que  $v > v_F$ . Cependant d'après Brandt l'état lié n'est pas stable car la fréquence des collisions subies par la particule dans le solide est trop élevée.

## b - Mécanismes de perte et de capture non radiative par des protons : théorie de Brandt et Sizmann (20).

Avant 1970, l'étude théorique de la capture d'un électron par un proton en mouvement dans une cible métallique avait été essentiellement abordée par Yavlinskii et al. (21). Ils considèrent que l'effet d'écran sur la particule chargée en mouvement par les électrons du métal est élevé. Ainsi la probabilité de capture, négligeable à l'intérieur du métal, n'est conséquente qu'en surface. Cependant leurs prédictions théoriques



concernant la variation de la fraction neutre  $\phi_0$  avec la vitesse du projectile n'est pas conforme à l'observation expérimentale. La théorie, plus récente, de Brandt et Sizmann (B.S.), va ici nous intéresser tout particulièrement car sa validité est vérifiable dans la gamme de vitesse de nos études expérimentales (cf Ch II, Ch III).

Elle est fondée sur les concepts suivants : les effets d'écran et la fréquence des collisions sont tels qu'il ne peut pas y avoir d'état lié entre un proton et un électron dans un métal, quelle que soit la vitesse du proton. L'interaction entre le proton et un électron de la cible, après ionisation, est décrite en terme de corrélation entre leur vitesse d'une part et leur direction d'autre part. Ce n'est qu'à la surface, quand le proton se trouve dans une région de plus faible densité électronique, que la liaison devient possible.

### i - Gain et perte de corrélation

Si, à la sortie de la cible, une fraction d'un faisceau d'hydrogène émerge à l'état neutre bien qu'il n'y ait pas d'état lié à l'intérieur du matériau, c'est donc que le processus de capture s'est produit à la surface. Dans la zone de surface, la densité électronique devient suffisamment faible, pour que l'effet d'écran ne puisse plus s'opposer à la capture. B.S. décrivent l'interaction entre un proton et les électrons de la cible en terme de corrélation en vitesse et en direction (par rapport au proton) que les électrons peuvent gagner ou perdre à la suite de collisions.

Le processus est schématisé sur la figure I-8 : un électron du solide est corrélié en vitesse et en direction à la suite d'une collision avec le proton en mouvement. En se dirigeant vers la surface de sortie du solide, l'électron subit de la part du milieu les effets de la diffusion multiple. Au moment du franchissement de la surface, deux situations peuvent se présenter :

- soit l'électron sera trop éloigné du proton et (ou) sa vitesse sera trop différente de celle du proton pour que sa capture soit possible (a).
- soit la corrélation d'espace et de vitesse entre l'électron et le proton n'a pas été perdue et la formation d'un état lié  $H^0$  devient alors possible. La structure électronique de la surface du métal va donc jouer un rôle important dans le modèle de Brandt et Sizmann, nous allons nous attacher à la préciser dans la suite (b).

### ii - Modèle de la surface

Dans le modèle du Jellium (28), les charges positives sont portées par les coeurs des atomes et réparties avec une densité constante  $\rho_c$  jusqu'à la surface ( $x = 0$ ). La distribution de la densité électronique décroît de sa valeur  $\rho_e = \rho_0 = N_2 \rho_c$  (où  $N_2$  est le nombre d'électrons de conduction par atome de la cible) à l'intérieur du solide, à la valeur  $\rho_e = 0$  dans le vide (figure I-9). A la surface ( $x = 0$ ),  $\rho_e$  est à peu près égal à  $\rho_0/2$ . Un traitement "self consistant" (28) conduit à l'expression suivante :

$$\rho_e(x) = \frac{\rho_0}{2} \begin{cases} 2 - \exp\left(\frac{x}{a_S}\right) & \text{pour } x \leq 0 \\ \exp\left(-\frac{x}{a_S}\right) & \text{pour } x > 0 \end{cases} \quad (I - 30)$$

où le coefficient  $a_S$  mesure l'extension de la distribution électronique de part et d'autre de la surface.

Comme nous l'avons plus haut, la densité électronique au site du proton en mouvement est renforcée par rapport à la densité locale non perturbée  $\rho_e(x)$  du gaz de valence. La densité électronique renforcée  $\hat{\rho}_e(x)$  s'écrit :

$$\hat{\rho}_e(x) = h_+(r_S, v) \rho_e(x) \quad (I - 31)$$

Le facteur de renforcement  $h_+$  s'exprime en fonction de  $r_S$  et de la vitesse  $v$  du proton par la relation

$$h_+(r_S, v) = 1 + Cr_S^2/v, \quad \text{pour } v > v_F$$

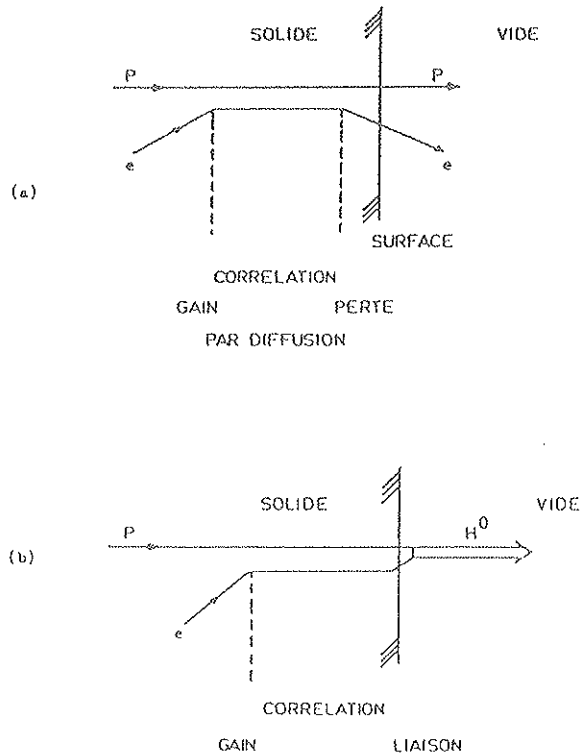


Figure I-8 : Processus conduisant à la formation d'un atome neutre d'hydrogène à la sortie d'un solide (a) perte de corrélation, (b) liaison).

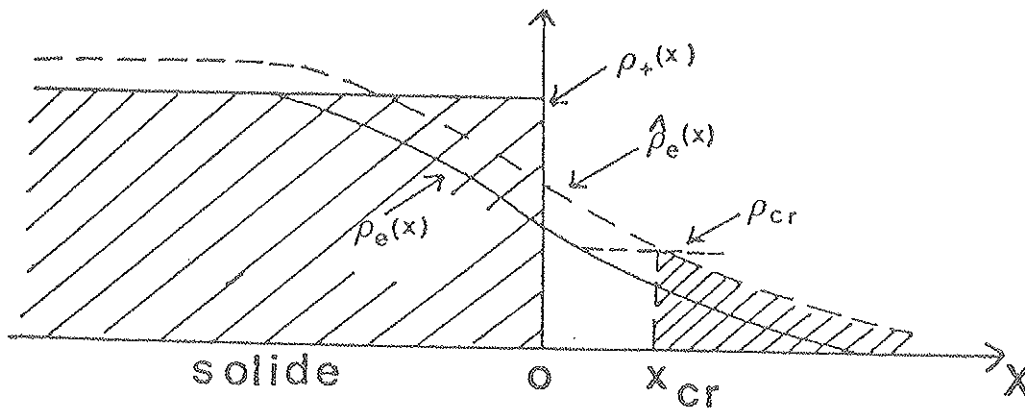


Figure I-9 : Modèle de la surface

$C$  est exprimé en unités atomiques et vaut environ 0,75. Le proton étant accompagné d'un électron corrélé celui-ci l'écrante et sa charge effective est environ égale à 0,7 (30). La densité électronique devient

$$\hat{\rho}_e(x) = h_0(r_S, v) \rho_e(x)$$

avec

$$h_0(r_S, v) = 1 + 0,7Cr_S^2/v \quad (I - 32)$$

### iii - Capture à la surface

La capture intervient à la surface dès que la densité électronique renforcée est suffisamment faible. Cela correspond à la partie hachurée de la figure I-14 qui s'étend à partir d'une distance critique  $x_{cr}$  de la surface telle que  $\rho(x_{cr}) = \rho_{cr}$  où  $\rho_{cr}$  est la densité critique satisfaisant cette condition. Pour exprimer la fraction  $\phi_0$  d'atomes d'hydrogène émergeant du solide, B.S. dissocient la contribution des électrons corrélés à partir du gaz de valence de celle des électrons corrélés à partir des coeurs ioniques et associent à ces processus des sections efficaces de corrélation. Ils écrivent :

$$\phi_0 = \phi_{0_{coeur}} + \phi_{0_{valence}}$$

$$\text{où } \phi_{0_{coeur}} = \frac{\sigma_{gc}}{\sigma_{gc} + \sigma_{lc}} \exp(-K(\sigma_{gv} + 0,7\sigma_{lv}))$$

$$\text{et } \phi_{0_{valence}} = \frac{\sigma_{gv}}{\sigma_{gv} + 0,7\sigma_{lv}} (1 - \exp(-K(\sigma_{gv} + 0,7\sigma_{lv}))) \quad (I - 33)$$

$$\text{avec } K = \int_{x_{cr}}^{\infty} \rho_e(x) h_0(x) dx \sim a_S \rho_{cr} \left( 1 + \frac{a_S}{\rho_{cr}^{2/3} V} \right)$$

$$\text{et } \rho_{cr} \sim \rho_e(x=0)$$

Les sections efficaces notées par les indices inférieurs se réfèrent soit à un gain (g) ou une perte (l) de corrélation d'un électron du gaz de valence (v) ou du coeur (c) avec un proton.

#### iii.1 Sections efficaces $\sigma_{lc}$ et $\sigma_{gc}$

En utilisant les expressions des sections efficaces de capture et de perte d'électrons données par Bohr ((I-11)-(I-13)), B.S. obtiennent pour  $Z_1 = 1$ ,

$$\sigma_{lc} = \frac{\pi a_0^2 Z_2^{2/3}}{Z_2^{2/3} + \frac{v}{v_0}} \frac{4Z_2^{1/3}(Z_2 + 1)}{\left(4Z_2^{1/3}(Z_2 + 1) + \frac{v}{v_0}\right)} \quad (I - 34)$$

et

$$\sigma_{gc} = \frac{\pi a_0^2 2^{18}}{5} \frac{Z_2^5}{\left(\frac{v}{v_0}\right)^6 \left(\left(\frac{v}{v_0}\right)^2 + \frac{2^6}{\sqrt[3]{40}} Z_2^{14/9}\right)^3} \quad (I - 35)$$

#### iii.2 Sections efficaces $\sigma_{lv}$ et $\sigma_{gv}$

B.S. ont utilisé pour  $\sigma_{gv}$  et  $\sigma_{lv}$ , des expressions dérivées des formules de Bohr. En considérant que les électrons du gaz de valence constituent un milieu de  $Z_2$  égal à 1 et que les collisions particules-électrons sont de type binaires, ils écrivent :

$$\sigma_{lv} = 4\pi a_0^2 \left(\frac{v_0}{v}\right)^2 \quad (I - 36)$$

et

$$\sigma_{gv} = 4\pi a_0^2 \left(\frac{v_0}{v}\right)^4 \quad (I - 37)$$

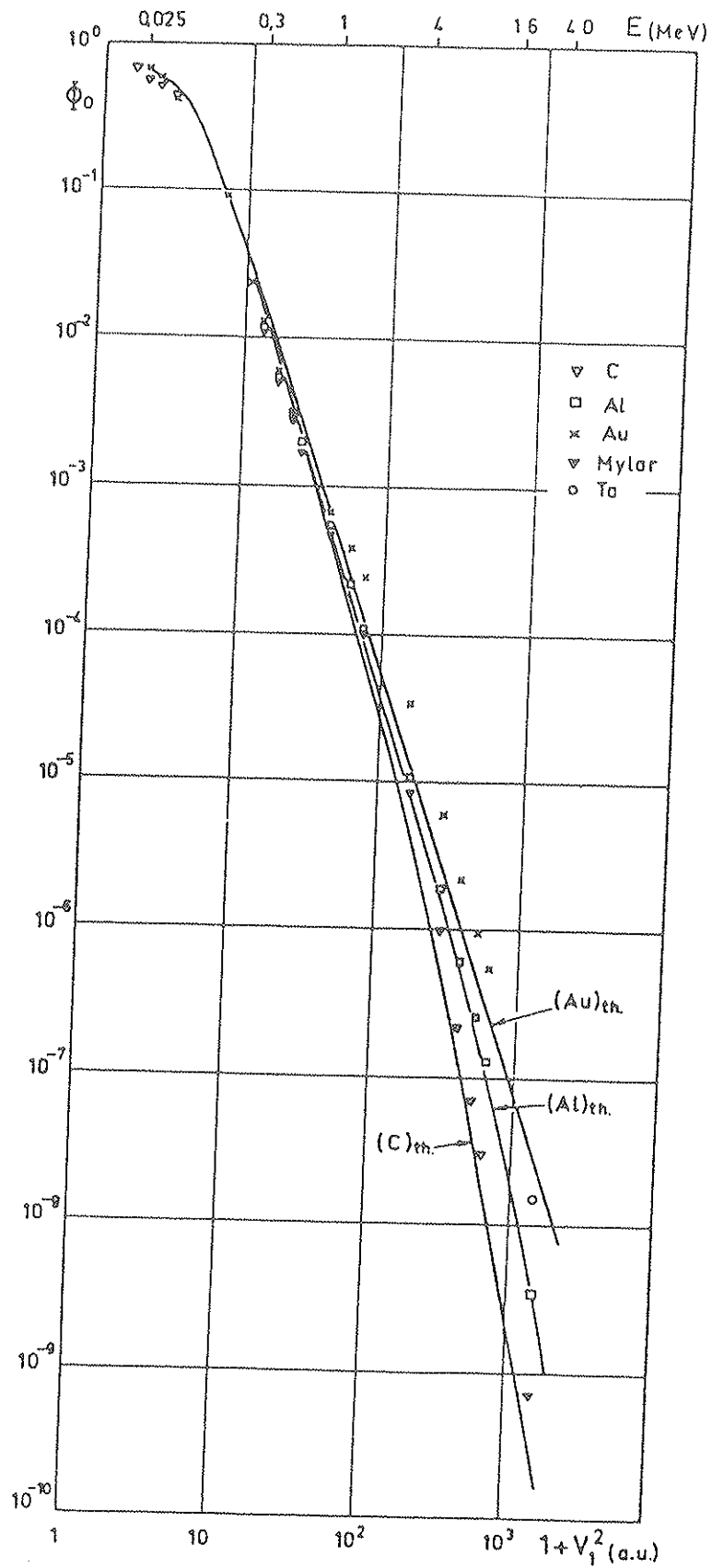


Figure I-10 : Comparaison des mesures expérimentales de  $\phi_0$  pour C, Al, Au, Mylar, Ta avec les prédictions théoriques de Brandt et Sizmann, (d'après (31)).

Au delà de  $v = 3v_0$ , ces deux expressions conduisent à surestimer considérablement la contribution du gaz de valence par rapport à celle des électrons du coeur : ainsi cette contribution est dominante dans un régime de vitesse où au contraire elle devrait être négligeable (critère de Bohr). Pour pallier à cela, Brandt et Sizmann ont atténué le terme de valence par une exponentielle décroissante qui rend  $\phi_{0_{valence}}$  négligeable pour  $v > 2v_0$ .

Les expressions obtenues par Brandt et Sizmann rendent bien compte des fractions d'atomes neutres  $\phi_0$  mesurées pour des protons par de Chateau-Tierry (31) (figure I-10), pour différentes vitesses et pour différentes cibles C, Al, Au, Mylar et Ta.vv

### iii - Prédications de la théorie de Brandt et Sizmann

Les prédictions de la dépendance de  $\phi_0$  avec  $v$ , vitesse des projectiles, et  $Z_2$ , le numéro atomique de la cible sont les suivantes :

- Pour des vitesses  $v \geq v_0$ , c'est-à-dire pour des vitesses de l'ordre de la vitesse des électrons de valence,  $\phi_0$  est presque le même pour tous les matériaux et varie essentiellement avec la vitesse suivant une loi en  $v^{-2}$ .

Ce régime couvre un domaine de vitesse des protons dans lequel la contribution à la capture des électrons de valence est d'abord dominante, puis diminue très vite par rapport à la contribution des électrons du coeur, pour devenir négligeable par rapport à celle-ci à partir de  $3v_0$  :

- Pour des vitesses proches de  $v = Z_2^{2/3} v_0$  la vitesse moyenne des électrons liés des atomes cibles, la variation de  $\phi_0$  suit une loi en  $v^{-5}$ . D'autre part, à la dépendance en vitesse, vient se superposer une faible dépendance en  $Z_2^{1/3}$ .
- Pour  $v > Z_2 v_0$  où  $Z_2 v_0$  est la vitesse orbitale des électrons les plus liés,  $\phi_0$  décroît suivant une loi en  $v^{-10}$  et dépend fortement de  $Z_2 (Z_2^{1/3})$ .

Signalons que cette théorie n'est pas applicable dans le régime de vitesse  $v < v_0$  où le processus de double capture d'électron peut se produire avec une probabilité non négligeable.

### 3 - CAPTURE ELECTRONIQUE RADIATIVE

Dans les discussions précédentes sur le processus de capture électronique, nous avons seulement considéré la capture non radiative d'électrons liés à un noyau de la cible. Lors d'une telle capture, énergie et quantité de mouvement sont conservés grâce au mouvement des particules participant à l'échange. En fait, dans le cas d'électrons libres ou presque libres cette description ne suffit plus. Un autre mécanisme peut intervenir pour lequel l'électron est capturé à partir d'un état libre (ou presque libre) dans un état lié avec émission d'un photon. Dans le repère de l'ion incident, la cinématique de la capture radiative est la suivante (figure I-11) :

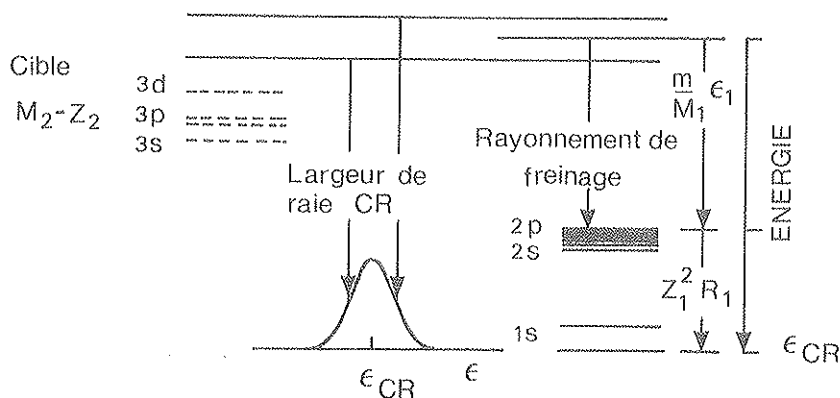


Figure I-11 : Cinématique de la capture radiative.

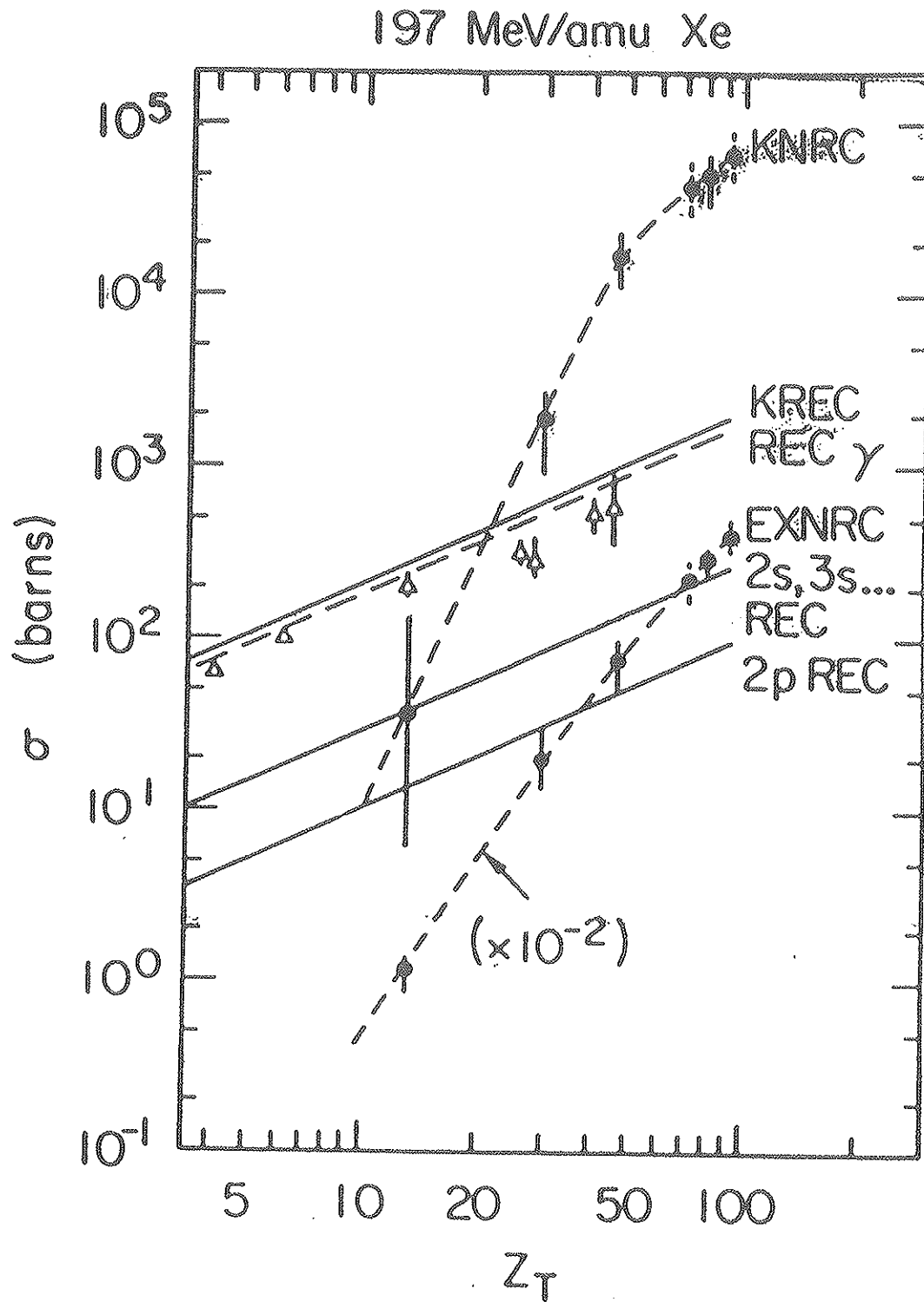


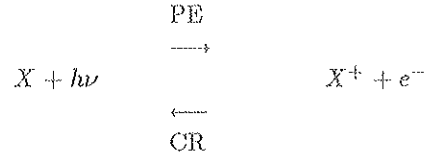
Figure I-12 : Variation de la section efficace de capture radiative  $\sigma_{K-CR}(KREC)$  en fonction du numéro atomique  $Z_T$  de la cible traversée par des ions Xénon de 197 MeV/u (d'après (33)).

La capture radiative (CR) par un projectile ( $M_1, Z_1, E_1$ ) d'un électron supposé au repos dans le laboratoire conduit à l'émission d'un photon dont l'énergie  $E_{CR}$  est la somme de l'énergie de liaison de l'électron dans l'état final et de l'énergie cinétique interne du système ion-électron :

$$E_{CR} = Z_1^2 Ry + \frac{m}{M} E_1 \quad (I - 38)$$

où Ry est l'énergie de Rydberg (13,6 eV).

Bethe et Salpeter (32) ont considéré que le processus de capture radiative d'un électron libre sur une couche interne du projectile est équivalent au processus inverse de l'effet photoélectrique (PE) :



On peut donc estimer la section efficace différentielle de capture radiative en considérant qu'elle est équivalente à la section efficace différentielle de l'effet photoélectrique :

$$\frac{d\sigma_{CR}}{d\Omega_{\text{photon}}} \sim \frac{d\sigma_{PE}}{d\Omega_{\text{électron}}}$$

Dans le cas de la capture électronique radiative d'un électron sur une couche K, il a été montré (32) que

$$\frac{d\sigma_{K-CR}}{d\Omega} = \sigma_{K-CR} \frac{3}{8\pi} \sin^2 \theta \quad (I - 39)$$

avec

$$\sigma_{K-CR} = \sigma_0 \frac{\eta^3}{1 + \eta^2} \frac{\exp(-4\eta \operatorname{arctg}(1/\eta))}{1 - \exp(-2\pi\eta)} \quad (I - 40)$$

où  $\sigma_0 = 9,1 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$

$$\eta \left( = \frac{Z_1 e^2}{\hbar v} \right)$$

étant le paramètre de Sommerfeld. Pour illustrer ce processus, nous montrons les valeurs expérimentales et théoriques de  $\sigma_{CR}$  obtenues par Anholt et al. (33) avec des ions Xénon de 197 MeV/u dans différentes cibles solides (figure I-12).

## D - CONCLUSION

Nous avons introduit les concepts théoriques liés aux phénomènes d'échange de charge et nous avons passé en revue certains résultats expérimentaux antérieurs aux nôtres. L'objet principal de ce travail est l'étude des phénomènes d'échanges de charge dans diverses situations expérimentales. Nous serons amenés à confronter nos résultats expérimentaux avec les conséquences de certains modèles théoriques que nous avons présentés et ainsi à vérifier leur validité.

## CHAPITRE II

### ETUDE DU DECLIN DE LA LUMIERE EMISE PAR DES IONS $He^+$ EMERGEANT DE FEUILLES MINCES A DIFFERENTES VITESSES

#### A - INTRODUCTION

Lorsque l'on étudie l'interaction entre un ion et un solide une des difficultés est liée au fait que la distribution de charges à l'intérieur du solide est le plus souvent inconnue. En effet la plupart des expériences donnent accès seulement à la distribution des états de charge des ions "longtemps" après émergence, et cette distribution n'est pas nécessairement la même qu'à la sortie du solide et à fortiori qu'à l'intérieur du solide. D'autre part, pour décrire l'état de charge ou l'état d'excitation d'un ion rapide dans un solide, il faut connaître au préalable les états électroniques possibles de cet ion dans le solide, états que l'on peut penser différents de ceux d'un atome isolé dans le vide. Or la perturbation dynamique induite par le solide sur la structure électronique du projectile en mouvement reste encore mal connue.

Le concept de section efficace de perte et de capture électronique s'impose quand on s'intéresse aux processus d'échange de charge entre un projectile et une cible gazeuse. Dans le cas de cibles solides et d'ions légers, il n'est pas évident que l'on puisse utiliser cette notion qui est fondée sur l'existence d'états liés. Très peu d'expériences peuvent actuellement fournir des informations directes sur l'existence d'états électroniques liés à l'intérieur du solide pour des projectiles légers. Le groupe C.A.S. a récemment fait des expériences qui suggéraient l'existence de tels états liés, pour des projectiles légers rapides. Elles étaient fondées, soit sur la mesure de distributions de charge, soit sur l'étude des états électroniques excités par l'observation du rayonnement de désexcitation, soit sur l'étude des états électroniques du continuum par mesure d'électrons "convoyés", à partir de faisceaux atomiques et moléculaires transmis à travers des cibles suffisamment minces pour que l'équilibre de charge ne soit pas atteint.

L'objet de cette étude a été de mettre au point une méthode expérimentale susceptible de déterminer parmi les systèmes atomiques légers tels que H et He, quels sont ceux qui peuvent exister dans des états liés dans le solide. Cette méthode est fondée sur l'étude de la population relative d'un état d'excitation et nécessite la mesure combinée de l'état de charge et de l'état d'excitation d'atomes transmis à travers des cibles solides. L'état atomique du projectile émergent est déterminé par spectroscopie optique, et les mesures ont été effectuées en collaboration avec le Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire (LA 171) de Lyon.



## B - L'ETAT LIE $H^0(1s)$ PEUT-IL EXISTER DANS LE SOLIDE ?

### 1 - Résultats expérimentaux antérieurs

Les mesures des distributions d'états de charge hors équilibre et à l'équilibre de projectiles hélium et hydrogène à la sortie d'un solide, effectuées par le groupe C.A.S.(6, 15, 16), suggéraient que les états de charge en aval d'une feuille mince soient simplement interprétés à partir de l'existence d'un état lié  $H^0$  dans le solide, permettant d'utiliser le concept de section efficace de perte et de capture. Notamment, l'étude des distributions d'état de charge hors équilibre et à l'équilibre à partir de faisceaux d'atomes neutres  $H^0$ , d'énergie 1,2 MeV, émergeant d'une feuille de carbone d'épaisseur comprise entre 50 et 800 Å, a permis de déterminer (figure II-1) :

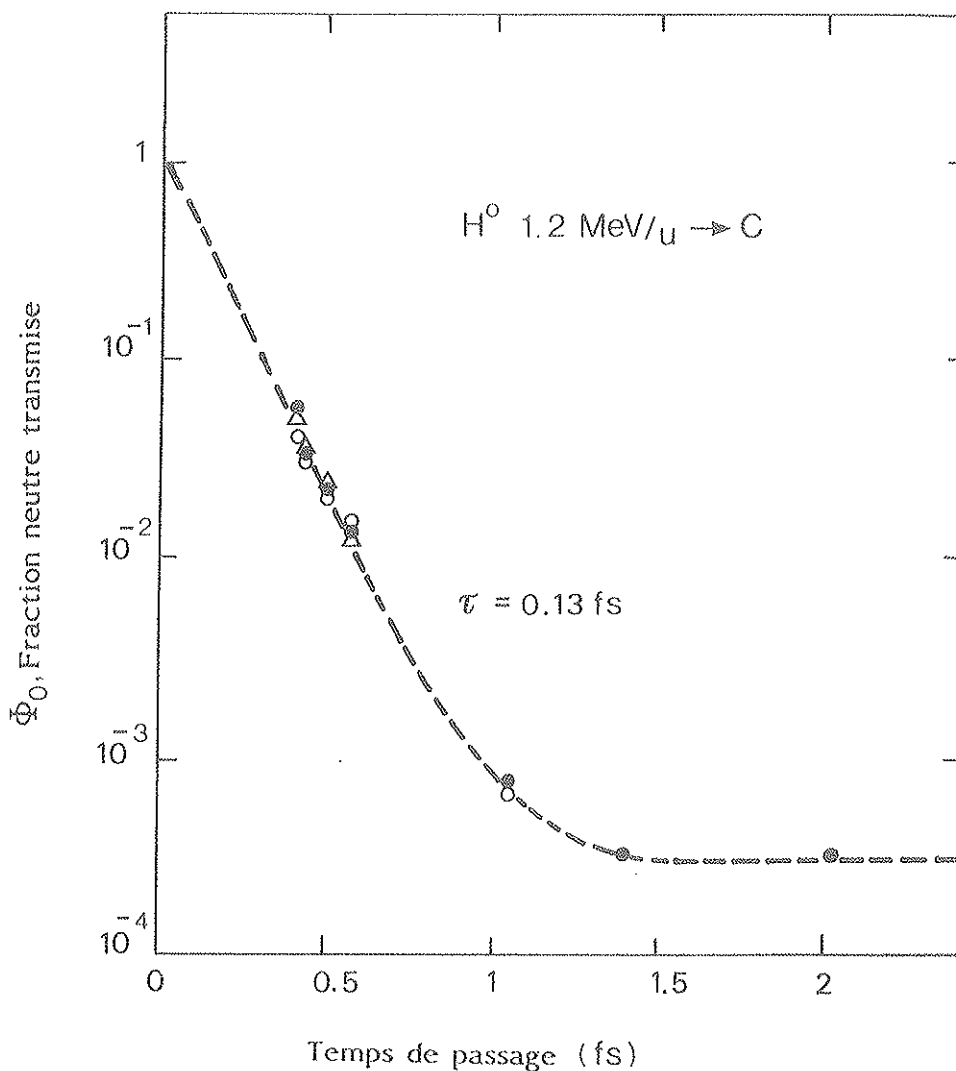


Figure II-1 : Variation de la fraction  $\phi_0$  des atomes d'hydrogène  $H^0$  d'énergie 1,2 MeV transmis à travers une cible de carbone en fonction du temps de passage du projectile dans la cible (d'après (6)).

a) La valeur de la section efficace de perte d'électrons  $\sigma_l$  à partir de la relation

$$\sigma_l = (N_2 \tau v)^{-1} \quad (II - 1)$$

où  $\tau$  est le temps caractéristique de la décroissance exponentielle de la fraction d'atomes neutres ( $\tau = 0,13 \cdot 10^{-15} s$ ),  $N_2$  est le nombre d'atomes cibles par unité de volume, et  $v$  la vitesse du projectile incident ; dans ce cas

$$\sigma_l = (6,15 \pm 0,5) 10^{-17} cm^2$$

b) La valeur de la section efficace de capture  $\sigma_c$  à partir de la relation

$$\sigma_c = \sigma_l \frac{\phi_0}{1 - \phi_0} \quad (II - 2)$$

qui décrit la situation à l'équilibre d'un système à deux états (cf.ch.I, éq. (I-6) ) et où  $\phi_0$  est la fraction d'atomes neutres à l'équilibre ; dans ce cas,

$$\sigma_c = (19,6 \pm 2) 10^{-21} cm^2$$

Cependant  $\sigma_c$  et  $\sigma_l$  ne peuvent être déduits des distributions d'états de charge que si l'on fait l'hypothèse que l'état  $H^0$  lié existe dans le solide. Or pour des faisceaux atomiques légers, certaines théories contestent la possibilité d'existence de l'hydrogène atomique dans un solide, quelle que soit la vitesse du projectile.

## 2 - Comparaison théories - expériences

Deux descriptions de l'échange de charge dans un solide sont possibles, l'une fondée sur la théorie de Brandt et Sizmann (B.S.) (20), l'autre sur celle de Bohr (12) (cf.ch.I, § I.C1, 2).

Comme nous l'avons vu, d'après B.S., la fréquence de collisions et l'effet d'écran des électrons de conduction sur un proton en mouvement dans une cible solide sont deux arguments qui s'opposent à l'existence d'un état lié  $H^0$  à l'intérieur du solide. Il faut attendre la surface de sortie pour que la densité électronique deviennent suffisamment faible et qu'ainsi l'effet d'écran ne puisse pas s'opposer à la capture. B.S. décrivent l'interaction proton-électron dans le solide en terme de corrélation en vitesse et en direction. Dans ce modèle, l'observation d'un état lié  $H^0$  à la sortie de la feuille traduit la conservation de cette corrélation en espace et en vitesse jusqu'à la surface.

Bohr n'envisage que des collisions binaires entre projectiles et atomes cibles, dans le cas d'ions légers traversant un milieu de faible densité, et néglige donc tout effet de densité. Il calcule des sections efficaces de perte et de capture qui sous-entendent l'existence d'états liés entre chaque collision binaire.

La comparaison des sections efficaces expérimentales  $\sigma_l$  et  $\sigma_c$  avec celles calculées par Bohr d'une part et par B.S. d'autre part conduit à deux conclusions (tableau II-1):

a) La valeur de la section efficace de perte calculée à partir de la théorie de Bohr est en bon accord avec la valeur expérimentale.

Dans la théorie de B.S., l'expression de la fraction d'atomes d'hydrogène émergeant d'un solide, lorsque la vitesse  $v$  est supérieure à  $3v_0$  est

$$\phi_0 \sim \frac{\sigma_{gc}}{\sigma_{gc} + \sigma_{lc}} \quad (II - 3)$$

où  $\sigma_{gc}$  et  $\sigma_{lc}$  sont respectivement les sections efficaces de gain et de perte de corrélation d'un électron de coeur de la cible. L'expression de  $\sigma_{lc}$  est directement déduite des sections efficaces de perte obtenues par Bohr et dans cette estimation, l'effet du milieu solide n'est pas pris en compte. Ainsi le moins bon accord de la section efficace de perte de corrélation avec la valeur expérimentale par rapport à celle de Bohr, ne permet pas de conclure sur l'existence d'états électroniques liés à l'intérieur du solide.

	EXPERIENCES		THEORIES	
	<i>Groupe des collisions atomiques de Lyon (CAS)</i>	<i>Toburen</i>	<i>Bohr</i>	<i>Brandt et Sizmann</i>
$\sigma_l$ ( $10^{-17} \text{ cm}^2$ )	$6,15 \pm 0,5$	5	4,2	2,49
$\sigma_c$ ( $10^{-21} \text{ cm}^2$ )	$19,6 \pm 2$	15	5,77	7,3

**Tableau II-1** : Sections efficaces de perte ( $\sigma_l$ ) et de capture ( $\sigma_c$ ) pour des atomes  $H^0$  de 1,2 MeV dans le carbone. Les sections efficaces expérimentales déterminées par le groupe C.A.S. (6) sont comparées à celles calculées par Bohr (12) et Brandt et Sizmann (20), ainsi qu'à celles obtenues expérimentalement par Toburen (11) dans du carbone en phase gazeuse.

- b) Un écart important est observé entre la valeur expérimentale et théorique de la section efficace de capture. Remarquons que dans le calcul de Bohr intervient notamment le nombre d'électrons susceptibles d'être capturés par le projectile au cours d'une collision avec un atome de la cible. (éq. (I-19) )

$$n \sim Z_2^{1/3} \frac{v}{v_0}$$

Pour des projectiles  $H^0$  de 1,2 MeV traversant une feuille mince de carbone, cette formule conduit à des valeurs de  $n$  de l'ordre de 12. Or nécessairement  $n$  est inférieur à  $Z_2$ , c'est à dire 6 dans ce cas.

Ainsi, la comparaison théories-expériences ne permet pas de conclure sur l'état électronique du projectile à l'intérieur de la cible, car l'une des théories suppose l'existence d'un état lié, auquel sont associées les sections efficaces de perte et capture, alors que l'autre utilise la notion de corrélation, et donc des sections efficaces de gain et de perte de corrélation. Quand la cible est gazeuse, l'existence d'un état lié entre chaque collision n'est évidemment pas mis en doute, aussi la comparaison gaz-solide devient-elle fondamentale.

## 2 - Comparaison gaz - solide

La comparaison (tableau II-1) entre les sections efficaces expérimentales mesurées avec des feuilles et celles de Toburen, mesurées avec des cibles gazeuses montre que l'écart gaz solide est très faible. Par ailleurs Cross (34) a comparé la fraction neutre  $\phi_{0\text{gaz}}$  calculée à partir des sections efficaces de capture et de perte électronique obtenues par Toburen (11) (cf. figure I-3) et la fraction neutre  $\phi_{0\text{solide}}$  mesurée par de Chateau-Thierry (31) (figure II-2). De l'ensemble des travaux réalisés avec des protons, il résulte que les états de

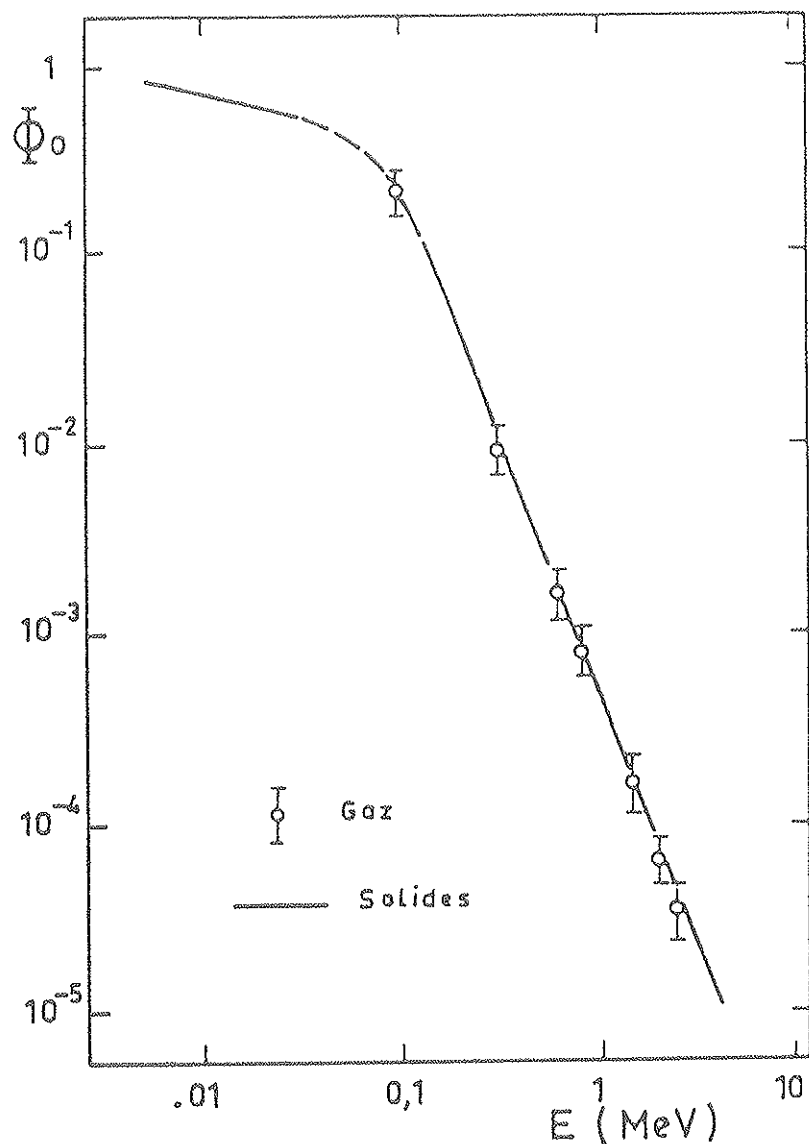


Figure II-2 : Comparaison gaz-solide de la fraction  $\phi_0$  d'atomes neutres pour du carbone (d'après (34)).

charge atomiques dans un solide peuvent être interprétés en terme de section efficace de capture et de perte électronique à l'intérieur du solide.

Cependant les projectiles émergeant d'une cible solide se trouvent soit dans l'état électronique fondamental, soit dans un état excité. Pour avoir une estimation de la fraction émergeant dans l'état excité, il est donc nécessaire de connaître la variation avec le nombre quantique principal  $n$  des sections efficaces élémentaires correspondant à la capture dans un état excité d'une part, à l'excitation directe du projectile incident d'autre part. Or Oppenheimer (35) a établi que, dans le domaine de vitesse  $v > v_0$ , la section

efficace de capture d'un électron par un ion léger dans un état de nombre quantique principal élevé était :

$$\sigma_n = \frac{1}{n^3} \sigma_c \quad (II - 4)$$

$\sigma_c$  étant la section efficace de capture dans l'état fondamental  $n=1$ . Cette loi en  $n^{-3}$  est valable aussi dans les cas d'excitation directe. Yager et Lane (36) ont calculé les sections efficaces absolues d'excitation d'ions légers incidents au cours de collisions binaires avec des atomes. La variation de ces sections efficaces en fonction du nombre quantique principal  $n$  suit également une loi en  $n^{-3}$ . Il résulte de ces considérations que 80 % des projectiles transmis par une cible de carbone sont dans l'état fondamental (1s).

La fraction d'atomes neutres émergeant d'un solide est donc principalement composée de projectiles dans l'état (1s). La comparaison gaz-solide nous suggère donc l'existence de l'atome neutre  $H^0$  dans son état fondamental à l'intérieur du solide. Cependant, l'effet d'écran des électrons de conduction du milieu solide sur le projectile en mouvement entraîne un déplacement vers le continuum des niveaux d'énergie de l'ion.

### 6 - Effet d'écran dynamique et état lié

Rogers et al.(29) (cf.ch.I, § C2 a-i-) montrent que chaque niveau d'énergie d'un atome de numéro atomique  $Z_2$  au repos dans un solide est déplacé, au premier ordre, d'une quantité  $Z_1^2 e^2 / a_{TF}$  ( $a_{TF}$  est la distance écran statique) par rapport à la position qu'il occupe si l'atome est placé dans le vide. Les énergies de liaison des six premiers niveaux (1s, 2s, 2p, 3s, 3p, 3d) sont reportées dans le tableau I-1 en fonction de  $Z_1 D / a_0$  ( $D = a_{TF}$ ). Pour un projectile de vitesse  $v > v_0$ , l'effet d'écran dans le solide est dynamique, caractérisé par une distance écran  $a_d$  égale à  $v / \omega_p$ . Pour un atome  $H^0$  de vitesse  $7v_0$  traversant une feuille de carbone ( $\hbar\omega_p \sim 25eV$ )  $a_d$  est de l'ordre de 3,6 Å. Le tableau I-1 montre que le niveau d'énergie de l'état 1s de l'atome  $H^0$  peut exister dans le solide comme l'avait suggéré la comparaison gaz-solide (énergie de liaison de l'ordre de 10 eV).

Cependant nous pouvons observer, dans le tableau I-1, que dans le solide l'énergie de liaison d'un état électronique dépend de la vitesse du projectile et notamment l'état 2p lié ne peut exister dans le solide qu'à partir d'une valeur de  $Z a_d / a_0$  égale à 5. Il était alors nécessaire d'élargir cette étude à des états autres que le fondamental.

## C - DES ETATS EXCITES LIES PEUVENT-ILS EXISTER DANS LE SOLIDE ?

### 1 - Résultats expérimentaux antérieurs

Le groupe C.A.S. (37) a mesuré pour des projectiles  $H^0$  d'énergie 0,4 ; 0,6 ; 0,8 et 1,2 MeV la variation du nombre de photons (raie Lyman  $\alpha$ ) émis par les atomes  $H^0$  excités au niveau 2p, après passage à travers une cible d'épaisseur suffisante pour que l'équilibre de charge soit atteint. Le tableau II-2 présente les valeurs relatives des fractions d'excitation  $\phi_0^{2p}$  et des fractions de charge  $\phi_0$  pour différentes énergies ;  $\phi_0^{2p}$  représente la fraction émergente d'atome  $H^0$  excités au niveau 2p. Ces valeurs sont normalisées à l'énergie la plus élevée 1,2 MeV. Il apparaît que le rapport  $P_0^{2p} (= \phi_0^{2p} / \phi_0)$  est constant. Cela signifie que la population relative du niveau 2p, comparée à celle de l'ensemble des niveaux des atomes  $H^0$  (où l'état fondamental 1s, lié dans le solide prédomine) émergeant de la cible ne varie pas avec la vitesse du projectile incident ; nous verrons plus loin que cette similitude de comportement peut être interprétée comme une signature de l'existence de l'état lié  $H^0$  (2p) dans le solide.

Energie des protons (MeV)	$\phi_0^{2p}$	$\phi_0$	$p_0^{2p} = \frac{\phi_0^{2p}}{\phi_0}$
1.2	1	1	1
0.8	$2.67 \pm 0.3$	$2.46 \pm 0.1$	1.08
0.6	$5.17 \pm 0.5$	$4.8 \pm 0.2$	1.073
0.4	$17 \pm 2$	$14.2 \pm 0.7$	1.22

**Tableau II-2 :** Variations relatives des fractions de charge  $\phi_0$  et d'excitation  $\phi_0^{2p}$  en fonction de l'énergie des protons incidents (les valeurs sont normalisées à la valeur obtenue à 1,2 MeV) (d'après (6)).

Par contre, pour un faisceau d'ions  $He^+$  dans la même gamme de vitesse (250 à 800 keV/u), il avait été observé (37) que la population relative de l'état excité  $n=4$  comparée à celle de l'ensemble des états des ions  $He^+$  variait avec la vitesse en  $v^{-1}$ .

Ceci avait été attribué à l'impossibilité pour les ions  $He^+$  d'exister dans le solide dans l'état  $n=4$ . Les ions observés résultaient donc d'une capture directe dans l'état  $n=4$  ou d'une capture dans un état inférieur suivie d'une excitation dans l'état  $n=4$  à la surface de sortie, où la densité électronique devient suffisamment faible pour que l'état lié  $n=4$  devienne possible.

D'autre part les calculs de Rogers et al. nous permettent de prévoir :

- que l'état  $H^0$  (2p) peut exister dans le solide dès que  $Z_1 a_d / a_0 \geq 5$  soit ici  $a_d = 2,65 \text{ \AA}$ , c'est à dire  $v \geq 4,7v_0$ , ce qui correspond à une énergie incidente supérieure ou égale à 550 keV/u.
- que l'existence de l'état  $He^+$  ( $n=4$ ) dans le solide n'est possible que si  $Z_1 a_d / a_0 \geq 20$ , c'est à dire  $v \geq 9,4v_0$ , ce qui correspond à une énergie incidente supérieure ou égale à 2,5 MeV.

Les résultats expérimentaux et les prévisions théoriques obtenus jusqu'alors sont rassemblés dans le tableau II-3.

			EXPERIENCES	PREVISIONS THEORIQUES
<i>Nature du projectile incident</i>	<i>Domaine d'énergie</i>	<i>Transition</i>	<i>Populations relatives</i>	<i>Energie minimum du projectile pour que l'état excité nl existe dans le solide (MeV)</i>
$H^0$	0,4 - 1,2	1s - 2p	$P_0^{2p} \sim cste$	0,55
$He^+$	0,25 - 0,8	3d - 4p	$P_1^{4p} \sim v^{-1}$	2,5

Tableau II-3 : Résultats expérimentaux (d'après (37)) et prévisions théoriques concernant respectivement la variation avec la vitesse des populations relatives  $P_1^{4p}$  et  $P_0^{2p}$  et l'énergie minimum du projectile pour que les états excités 4p et 2p correspondants existent dans le solide.

Pour interpréter les variations avec la vitesse des populations relatives  $P_0^{2p}$  et  $P_1^{4p}$  observées expérimentalement, nous proposons un modèle simple pour décrire l'excitation des systèmes hydrogénoïdes (ici  $\gamma H^0, He^+$ ).

## 2 - Modèle

Supposons qu'un faisceau de particules A interagisse avec une cible solide d'épaisseur suffisante pour que, à la sortie, l'équilibre de charge soit atteint. Une fraction émerge sous la forme  $A^{q+}$ , système à un électron (ici  $H^0$  ou  $He^+$ ), dans l'état fondamental ou dans un état excité. Nous nous intéresserons ici à la variation avec la vitesse du projectile de la population relative

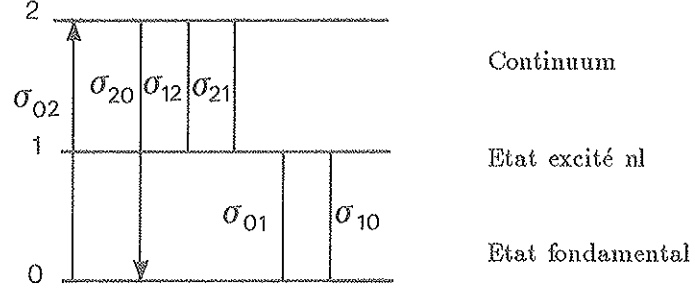
$$P_q^{nl} = \frac{\phi_q^{nl}}{\phi_q} \quad (II - 5)$$

où  $\phi_q^{nl}$  est la fraction des ions  $A^{q+}$  qui émergent dans l'état particulier d'excitation nl et  $\phi_q$  la fraction d'ions  $A^{q+}$  émergents.

Deux situations sont alors envisageables selon l'existence ou non d'un état nl dans le solide.

a - Un état excité nl lié peut exister dans le solide.

La durée de vie d'un niveau excité ( $\sim 10^{-10}$  s) étant très supérieure au temps d'interaction projectile-cible ( $10^{-15}$  s), nous ne tiendrons pas compte du peuplement de l'état nl par décroissance des états d'excitation supérieurs. D'autre part environ 80 % des électrons étant capturés dans l'état fondamental, on peut négliger le peuplement de l'état excité nl par excitation d'un état excité inférieur. Seule peut intervenir l'excitation à partir de l'état fondamental. Nous pouvons alors schématiser le problème en considérant un système à trois niveaux :



Le niveau 0 correspond à l'état fondamental, le niveau 1 à l'état d'excitation nl, et le niveau 2 au continuum.

D'une façon générale les fractions à l'équilibre d'un système à trois niveaux (0,1,2) s'expriment à partir de six sections efficaces de transition ( $\sigma_{10}, \sigma_{01}, \sigma_{12}, \sigma_{21}, \sigma_{20}, \sigma_{02}$ ).

La résolution de l'équation (I-4) conduit à

$$\phi_q^{nl} = \frac{\alpha\sigma_{21} + \sigma_{01}\sigma_{20}}{\sigma_{12}(\alpha + \sigma_{20}) + \sigma_{10}(\gamma + \sigma_{02}) + \alpha\sigma_{21} + \sigma_{01}\sigma_{20}} \quad (II-6)$$

où

$$\alpha = \sigma_{01} + \sigma_{02} \text{ et } \gamma = \sigma_{20} + \sigma_{21}$$

Nous appellerons par la suite  $\sigma_{02} = \sigma_\ell$ , la section efficace de perte de l'électron à partir de l'état fondamental ;  $\sigma_{12} = \sigma_\ell^*$  celle à partir de l'état excité nl ;  $\sigma_{20} = \sigma_c$ , la section efficace de capture dans l'état fondamental ;  $\sigma_{21} = \sigma_c^*$ , celle dans l'état excité nl ;  $\sigma_{01} = \sigma_{ex}$ , la section efficace d'excitation de l'état fondamental à l'état excité nl ;  $\sigma_{10} \sim 0$ . Alors, d'après l'équation (II-6) :

$$\phi_q^{nl} = \frac{(\sigma_{ex} + \sigma_\ell)\sigma_c^* + \sigma_\ell\sigma_c}{(\sigma_{ex} + \sigma_\ell)\sigma_c^* + \sigma_{ex}\sigma_c + \sigma_\ell^*(\sigma_{ex} + \sigma_\ell + \sigma_c)}$$

ou encore

$$\phi_q^{nl} = \frac{1}{1 + \frac{\sigma_{ex}(\sigma_{ex} + \sigma_\ell + \sigma_c)}{(\sigma_{ex} + \sigma_\ell)\sigma_c^* + \sigma_{ex}\sigma_c}} \quad (II-7)$$

Si l'on admet la règle de population  $\sigma_c^* = \frac{1}{n^3}\sigma_c$  suggérée initialement par Oppenheimer (35),

$$\phi_q^{nl} \sim \frac{\sigma_c/\sigma_\ell}{\frac{\sigma_c}{\sigma_\ell} + \frac{\sigma_\ell^*(\sigma_{ex} + \sigma_\ell + \sigma_c)}{\sigma_\ell(\sigma_{ex} + n^{-3}(\sigma_{ex} + \sigma_\ell))}} \quad (II-8)$$

Si l'on néglige le terme en  $n^{-3}$  devant  $\sigma_{ex}$  il vient,

$$\phi_q^{nl} = \frac{\sigma_c/\sigma_\ell}{\sigma_c/\sigma_\ell + K} \quad (II-9)$$

avec

$$K = \frac{\sigma_\ell^*}{\sigma_\ell} \left( \frac{\sigma_{ex} + \sigma_\ell + \sigma_c}{\sigma_{ex} + n^{-3}\sigma_\ell} \right)$$

D'autre part

$$\phi_q = \frac{\sigma_c}{\sigma_c + \sigma_\ell}$$

Ainsi

$$P_q^{nl} = \frac{\sigma_c/\sigma_\ell + 1}{\sigma_c/\sigma_\ell + K} \quad (II-10)$$



i) Cas où  $\sigma_c \ll \sigma_l$ . Ceci est le cas notamment de  $He^+$  à des énergies supérieures à 1 MeV et de  $H^0$  à partir de 300 keV. On a alors

$$P_q^{nl} \sim \frac{1}{K'} \quad (II - 11)$$

avec  $K' = (\sigma_l^*/\sigma_l)((\sigma_{ex} + \sigma_l)/(\sigma_{ex} + n^{-3}\sigma_l))$

Des expériences d'un autre type faites à Lyon (6) ont montré que  $\sigma_{ex}$  et  $\sigma_l$  ont la même dépendance en vitesse (en  $v^{-1}$ ). De plus d'après Bohr (12),  $\sigma_l^*$  est de l'ordre de  $n^2\sigma_l$ ,  $\sigma_l^*$  et  $\sigma_l$  ont donc aussi la même dépendance en vitesse. Ainsi tant que  $\sigma_c \ll \sigma_l$ , le rapport  $P_q^{nl}$  ne doit pas dépendre de la vitesse du projectile incident.

Si l'approximation  $\sigma_c \ll \sigma_l$  est tout à fait justifiée pour des projectiles  $H^0$  d'énergie supérieure à 300 keV, il n'en est pas de même pour les projectiles  $He^+$  d'énergie inférieure à 1 MeV.

ii) Etudions le cas particulier de projectiles hélium d'énergie inférieure à 1 MeV. Si l'on ne fait aucune approximation, on a vu que :

$$P_q^{nl} = \frac{\sigma_c/\sigma_l + 1}{\sigma_c/\sigma_l + K}$$

alors

$$P_q^{nl} = \frac{\sigma_c/\sigma_l + 1}{\sigma_c/\sigma_l + n^2 \frac{(\sigma_{ex} + \sigma_l + \sigma_c)}{(\sigma_{ex} + n^{-3}\sigma_l)}} \quad (II - 12)$$

Or il a été montré par Yager et Lane (36) que pour l'hélium, dans ce domaine d'énergie,  $\sigma_{ex} \sim 0,1\sigma_l$ .

Alors :

$$P_q^{nl} \sim \frac{\sigma_c/\sigma_l + 1}{\sigma_c/\sigma_l + \frac{n^2(1,1 + \sigma_c/\sigma_l)}{(0,1 + n^{-3})}} \quad (II - 13)$$

Comme le terme  $n^2/(0,1 + n^{-3})$  est très grand devant 1, nous pouvons négliger  $\sigma_c/\sigma_l$  devant  $n^2(1,1 + \sigma_c/\sigma_l)/(0,1 + n^{-3})$ . On obtient :

$$P_q^{nl} \sim \frac{\sigma_c/\sigma_l + 1}{n^2(1,1 + \sigma_c/\sigma_l)}(0,1 + n^{-3}) \quad (II - 14)$$

soit

$$P_q^{nl} \sim \frac{(0,1 + n^{-3})}{n^2} \quad (II - 15)$$

Cette formulation montre que la population relative  $P_q^{nl}$  est indépendante de la vitesse du projectile.

Ainsi, nous avons montré dans les deux cas que, si l'état excité nl lié existe dans le solide, la population relative  $P_q^{nl}$  doit être indépendante de la vitesse du projectile.

b - Un état excité nl ne peut pas exister dans le solide.

Quand l'état excité nl n'existe pas dans le solide, les états excités sont formés à la surface de sortie de la cible. Plusieurs processus sont alors envisageables :

- la capture directe dans l'état excité nl,
- la capture dans l'état fondamental, suivie d'une excitation dans l'état nl,
- la capture dans un état excité inférieur n'l' à l'état excité nl, suivie d'une excitation au niveau nl.

Si l'on néglige le dernier processus devant les deux autres, on obtient :

$$\phi_q^{nl} \sim K_c^* \phi_{q+1} + K_{ex}^- \phi_q \quad (II - 16)$$

où  $K_c^*$  est la probabilité de capturer un électron dans l'état d'excitation  $nl$  à la surface du solide et  $K_{ex}$  la probabilité d'excitation de l'état fondamental à l'état d'excitation  $nl$  en surface de sortie. Or nous avons vu que la plupart des projectiles émergent de la cible dans leur état fondamental (qui, lui, est lié dans le solide) :

$$\phi_{q+1}/\phi_q \sim \sigma_l/\sigma_c \quad (II - 17)$$

donc  $\phi_q^{nl}$  peut s'écrire

$$\phi_q^{nl} \sim K_c^* \frac{\sigma_l}{\sigma_c} \phi_q + K_{ex} \phi_q \quad (II - 18)$$

d'où

$$\frac{\phi_q^{nl}}{\phi_q} \sim K_c^* \frac{\sigma_l}{\sigma_c} + K_{ex} \quad (II - 19)$$

Si l'on suppose maintenant que  $\sigma_c$  et  $K_c^*$  doivent varier de la même façon avec la vitesse, et que l'on utilise l'observation faite à Lyon que la probabilité d'excitation  $K_{ex}$  et la section efficace de perte varient, l'une et l'autre en  $v^{-1}$ , on peut prévoir que le rapport  $\phi_q^{nl}/\phi_q$  doit lui aussi varier en  $v^{-1}$  lorsque l'état  $nl$  considéré n'est pas lié dans le solide.

Le but de notre expérience est de confronter les conclusions de ce modèle aux dépendances en vitesse respectives de  $P_1^{2p}$  et  $P_1^{4p}$  de l'ion  $He^+$  émergent d'une feuille de carbone. Ce cas est intéressant car, nous avons déduit des calculs de Rogers et al. dans le domaine d'énergie 0,6 - 2,2 MeV, que l'état  $2p$  lié devrait exister dans le solide alors que l'état  $4p$  lié ne devrait pas.

Cependant avant d'aborder cette étude expérimentale, il est important de préciser ce que signifie un état  $2p$  lié dans le solide par rapport à l'état  $2p$  de l'atome dans le vide, dans le cas d'ions  $He^+$  d'énergie de l'ordre du MeV.

### c - L'état "2p dans le solide".

En effet dans le solide l'état  $2p$  est perturbé :

- Son énergie de liaison dans le solide n'est bien sûr pas celle de l'atome dans le vide, elle est plus faible.
- Sa durée de vie est une durée de vie "collisionnelle", égale à la valeur du temps moyen entre deux collisions, qui est très inférieure au temps de désexcitation radiative. La durée de vie du niveau  $2p$  dans la solide est alors déterminée par le temps associé à la perte électronique.

$$\tau_c = \frac{1}{\lambda v} \quad (II - 20)$$

où  $\lambda$  est le libre parcours moyen de l'électron lorsqu'il est lié au noyau du projectile dans le solide. Le groupe C.A.S. (15) a mesuré directement ce temps pour des ions  $He^+$  traversant une feuille mince de carbone. En supposant que  $\sigma_l^* \sim n^2 \sigma_l$ , la valeur trouvée est

$$\tau_c = 6,5 \cdot 10^{-17} \text{ s}$$

- Le niveau d'énergie a une largeur non nulle. La théorie des perturbations dépendantes du temps au premier ordre permet de relier la largeur du niveau lié dans le solide à sa durée de vie ;

$$\Delta E \tau_c \sim \hbar \quad (II - 21)$$

ce qui conduit à une largeur

$$\Delta E \sim 9 \text{ eV}$$

Or pour un projectile de  $5v_0$ , l'énergie de liaison de l'état  $2p$  dans le solide est d'environ 10 eV.

Continuum

Ainsi, bien que le niveau ait une largeur importante il reste en dessous du continuum et nous pouvons le décrire comme un état lié, en accord avec notre conclusion expérimentale.

## D - ETUDE A L'EQUILIBRE DE CHARGE DE LA DECROISSANCE DE LA QUANTITE DE LUMIERE EMISE PAR DES IONS $He^+$ DE DIFFERENTES VITESSES EMERGEANT DE CIBLES MINCES DE CARBONE.

### 1 - Méthode et dispositif expérimental

#### a - Principe de la méthode expérimentale

Nous utilisons un faisceau d'ion  $He^+$  de 0,2 à 2,2 MeV (délivré par l'accélérateur Van de Graaff) traversant des cibles de carbone d'épaisseur suffisante pour que l'équilibre de charge soit atteint. Le principe de la méthode est fondé sur la mesure en aval de la cible du nombre de photons issus de transition 1s-2p ( $\lambda_{2p} = 256\text{\AA}$ ,  $\tau_{2p} = 0,1ns$ ) et 1s-4p ( $\lambda_{4p} = 304\text{\AA}$ ,  $\tau_{4p} = 0,77ns$ ) dans une géométrie donnée. Un spectromètre à réseau fixe, équipé d'un multiplicateur tubulaire d'électrons, est utilisé pour mesurer le nombre de photons émis. Il permet un réglage en longueur d'onde par translation et rotation du réseau. Pour mesurer la décroissance de la lumière émise en aval de la cible on fait varier la distance entre le point d'observation du spectromètre et la cible. Le système de déplacement des cibles le long de l'axe du faisceau doit avoir une course assez longue pour pouvoir mesurer les durées de vie longues tout en assurant une bonne précision des déplacements nécessaire pour la mesure des courtes durées de vie. Les mesures de photons sont normalisées entre elles à un même nombre de particules incidentes. En supposant que l'émission de photons est isotrope ou que l'anisotropie est indépendante de la vitesse, le nombre de photons émis par transition 1s-2p est proportionnel au nombre d'ions émergents dans l'état 2p. Il en est de même pour l'état 4p. Nous pouvons ainsi déterminer les variations avec la vitesse des fractions  $\phi_1^{2p}$  des ions  $He^+$  qui émergent dans l'état 2p et  $\phi_1^{4p}$  des ions  $He^+$  qui émergent dans l'état 4p.

Pour que cette étude soit possible il faut:

- que l'intensité lumineuse soit suffisante pour assurer un bon rapport signal / bruit à la sortie du multiplicateur tubulaire d'électrons
- que la résolution spatiale soit bonne
- que l'épaississement de la cible au cours de l'enregistrement du déclin reste faible.

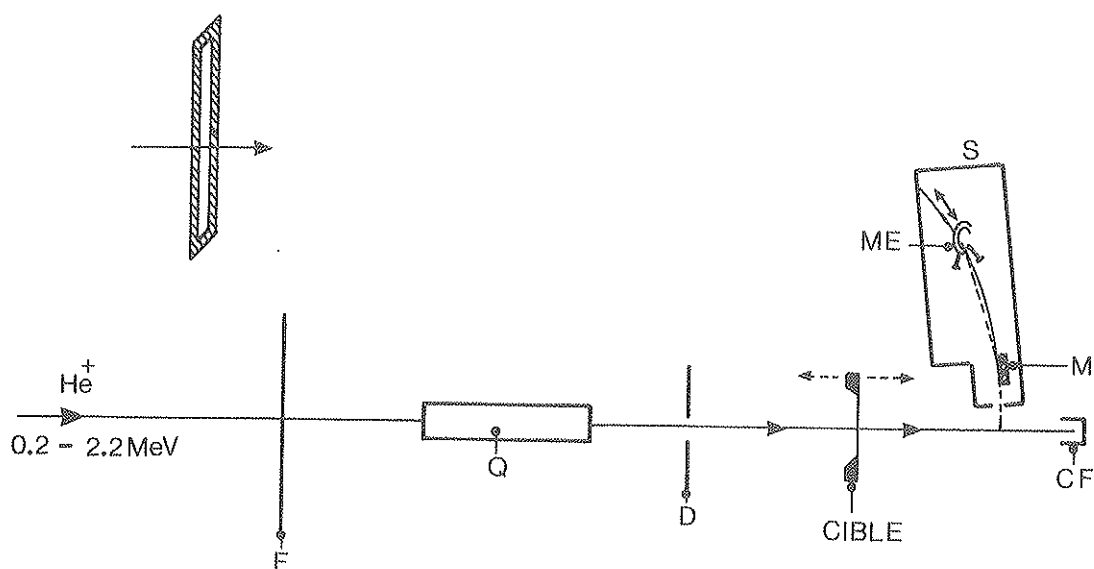
Certaines de ces contraintes sont incompatibles entre elles et conduisent à certains compromis.

### 2 - Dispositif expérimental

Le schéma du dispositif expérimental est représenté sur la figure II-3 (38). Nous avons utilisé des faisceaux d'ions  $He^+$  d'énergie comprise entre 0,2 et 2,2 MeV ayant des intensités de l'ordre de  $1\mu A$ .

#### a - Système de collimation

Une fente F ( $6 \times 25mm$ ) et un diaphragme D ( $\phi = 6 mm$ ), distants de 3 m, limitent l'impact du faisceau sur la cible à  $30mm^2$ . Un quadrupôle Q permet d'optimiser l'intensité du faisceau sur la cible. La voie d'expérience est maintenue sous une pression inférieure à  $10^{-6}$  Torr ce qui rend négligeable l'excitation des ions par collision dans le gaz résiduel.



**Figure II-3** : Schéma du dispositif expérimental **F** : Fente ; **Q** : Quadripôle ; **D**<sub>1</sub> Collimateur ; **S** : Spectromètre à réseau ; **CF** : Cage de Faraday ; **ME** : Multiplicateur tubulaire d'électrons ; **M** : Miroir torique.

## b - Cibles et chambre à cibles

### - Préparation des cibles

Cette étude a été réalisée avec des cibles autoportantes de carbone d'environ  $10 \mu\text{g.cm}^{-2}$  d'épaisseur. Elles sont produites dans le laboratoire par la méthode habituelle d'évaporation sous vide, à partir d'un arc électrique entre deux électrodes de graphite très pur (taux d'impuretés  $< 10^{-3}$ ). Le carbone diffusé est déposé sur une lame de verre préalablement recouverte d'un produit soluble dans l'eau (détergent ou KBr) ce qui facilite le décollage ultérieur du dépôt de carbone dans l'eau désionisée. Le film de carbone détaché de la lame de verre est alors collecté à la surface de l'eau sur un support métallique percé d'un trou de 8 mm de diamètre.

### - Distributeur de cibles

Le distributeur de cibles est constitué d'un disque portant une série de supports (douze au maximum) sur lesquels sont déposées les cibles de carbone. Par rotation du disque autour d'un axe parallèle au faisceau on place sur le trajet du faisceau la cible choisie.

### - Système de déplacement des cibles

Le distributeur de cibles est fixé sur un chariot qui glisse parallèlement au faisceau sur deux guides cylindriques. Le déplacement du chariot se fait au moyen d'une vis sans fin entraînée par un moteur pas à pas (200 pas par tour). Deux interrupteurs de fin de course limitent le déplacement du chariot et permettent de rattraper les jeux mécaniques. Un tel dispositif permet des déplacements par pas de  $5 \mu\text{m}$  sur une longueur de 10 cm, avec une incertitude de l'ordre de  $1 \mu\text{m}$ .

## c - Spectromètre à réseau

L'appareil utilisé est un spectromètre sous vide à incidence rasante "Higler & Watts type E580". La fente d'entrée verticale, de largeur  $50 \mu\text{m}$ , est fixe. Un multiplicateur tubulaire d'électrons ME, monté immédiatement derrière la fente de sortie se déplace avec elle sur le cercle de Rowland permettant le réglage en longueur d'onde. Le système d'entraînement de l'ensemble fente de sortie-détecteur est commandé par un moteur pas à pas (200 pas par tour). Grâce à un miroir torique M placé entre la chambre à cibles et la fente d'entrée la résolution spatiale est ramenée à la valeur de la largeur de la fente d'entrée.

## d - Système de mesure du courant transmis

Une cage de Faraday CF située en aval de la cible permet de mesurer le courant transmis. Cette cage est munie d'un anneau de garde, porté à  $-400 \text{ V}$ , qui annule les effets de l'émission secondaire électronique.

## 3 - Système d'acquisition

Le système d'acquisition schématisé sur la figure II-4 permet d'assurer trois fonctions essentielles:

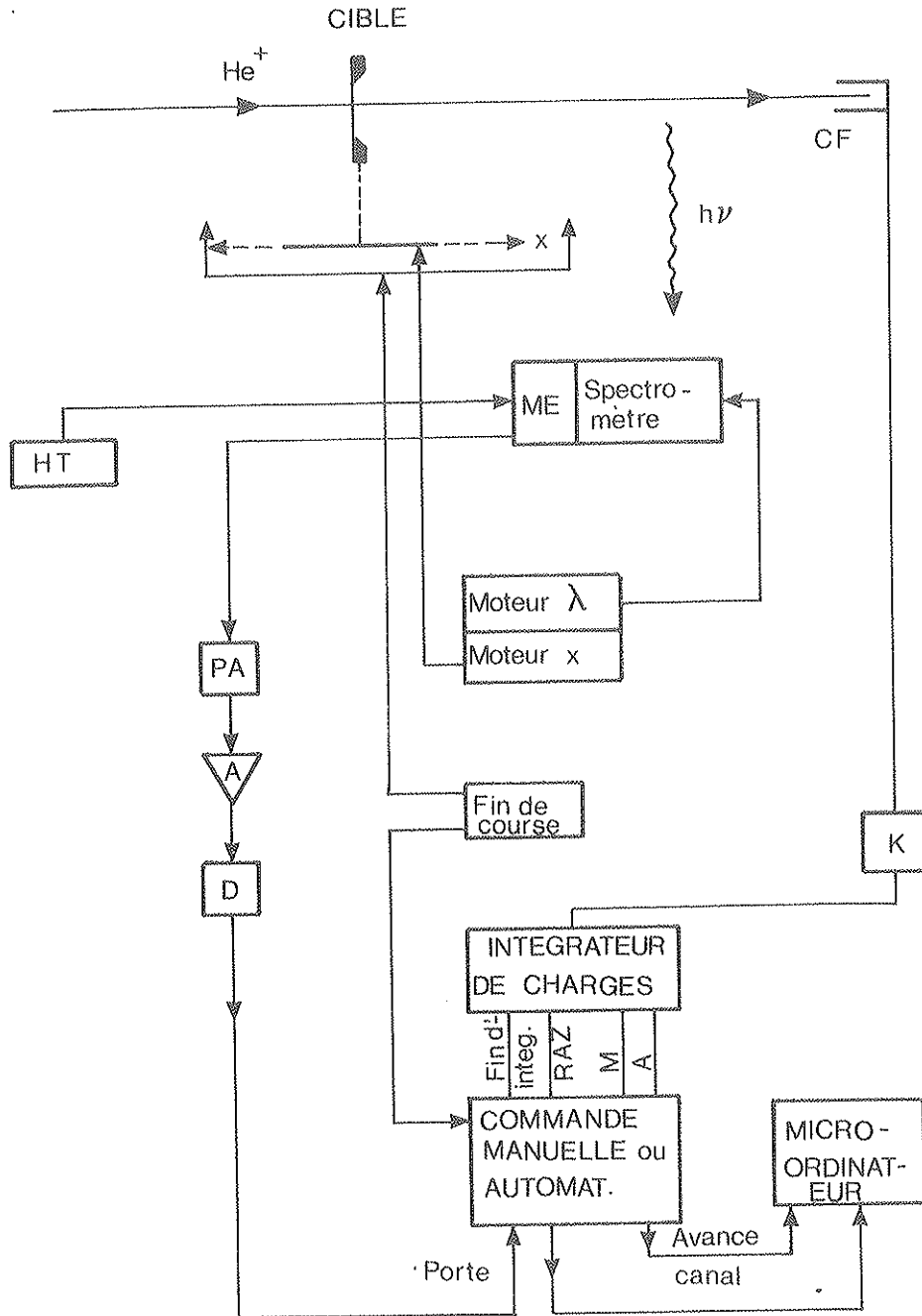


Figure II-4 : Système d'acquisition

- Le comptage des impulsions délivrées par les différents détecteurs
- La normalisation des mesures
- La commande pas à pas du déplacement de la cible et le déroulement des mesures. La gestion du système est prise en charge par un micro-ordinateur (Apple II).

a - Comptage des impulsions.

- Les impulsions délivrées par le multiplicateur tubulaire d'électrons MC, polarisé à 3500 V, sont traitées par un préamplificateur PA et un amplificateur A. Un discriminateur D assure la mise en forme des

impulsions d'amplitude supérieure à un certain seuil. Ce seuil est réglé afin que la rapport signal/bruit soit optimum.

- Le courant de la cage de Faraday est mesuré à l'aide d'un picoampèremètre (Keithley 602) qui délivre une tension analogique de 0 à 1 Volt proportionnelle au courant d'entrée. Cette tension est convertie en fréquence, les impulsions de sortie étant comptées dans une échelle dont le contenu est proportionnel à la charge des ions émergents.

#### b - Normalisation des mesures.

Pour décrire une courbe de déclin, il faut pouvoir mesurer à chaque position de la cible le nombre de photons émis au point d'observation et dans un angle solide donné du spectromètre pour un même nombre de particules incidentes, c'est à dire pour un même précompte. Afin d'accéder à la variation avec la vitesse du nombre de photons issus des transitions 1s-2p et 1s-4p de l'hélium, il est nécessaire de normaliser nos mesures à un même nombre de particules incidentes. Le faisceau étant très stable, nous avons pu mesurer successivement dans la cage de Faraday, et pour une vitesse donnée de l'ion  $He^+$  incident, le courant incident  $I_t$ , lorsque la cible est escamotée, et le courant  $I_i$  transmis à travers la cible. Le rapport  $I_t/I_i$  est le rapport du nombre de charges émergentes sur le nombre de charges incidentes. Les mesures normalisées à un même nombre de particules émergentes peuvent donc être normalisées à un même nombre de particules incidentes en les multipliant par le facteur  $I_i/I_t$ .

#### c - Commande du moteur pas à pas et déroulement des mesures.

La commande du moteur pas à pas permettant le déplacement de la cible, peut s'effectuer en mode manuel ou en mode automatique.

##### - Commande manuelle

Le déplacement de la cage peut être commandé manuellement, soit de la salle du faisceau, soit de la salle d'acquisition.

##### - Commande automatique

Après avoir préaffiché un nombre de pas de déplacement, les mesures s'effectuent de la façon suivante :

- Le moteur effectue le nombre de pas préaffiché. Pendant ce temps, l'acquisition est inhibée.
- L'échelle à précompte est remise à zéro, l'adresse mémoire est incrémentée. L'ouverture de la porte permet alors une nouvelle mesure : début de l'intégration du courant mesuré par la cage de Faraday et accumulation dans l'échelle d'acquisition.
- Quand le précompte est atteint une impulsion de fin d'intégration ferme la porte et commande une nouvelle rotation du moteur.

#### 4 - Expériences préliminaires

Au cours d'expériences préliminaires nous avons vérifié que :

- L'efficacité de détection de la cage de Faraday était constante et n'était pas affectée par la dispersion angulaire du faisceau transmis, principalement due à la diffusion multiple des ions dans la cible, ceci pour différentes positions de la cible.
- L'efficacité de détection optique était sensiblement constante quelle que soit la dispersion angulaire du faisceau excité transmis.
- Le multiplicateur tubulaire d'électrons était correctement protégé contre le bruit de fond  $\gamma$  et X induits par le faisceau.
- Le bruit de fond électronique de la détection optique est suffisamment faible ( $< 1cp/s$ ).
- Le bruit de fond dû à l'excitation des particules  $He^+$  sur les supports des cibles était lui aussi négligeable.
- Pour chaque déclin, la durée de vie mesurée était en bon accord avec les valeurs théoriques (39) correspondantes : 96 ps et 0,77 ns, respectivement pour les transitions 1s-2p et 1s-4p.

## 5 - Test du dispositif expérimental

Le rapport des courants du faisceau transmis et incident peut s'écrire :

$$\frac{I_t}{I_i} = \phi_1 + 2\phi_2 \quad (II - 22)$$

où  $\phi_1$  et  $\phi_2$  sont les fractions de charge à l'équilibre. Nous avons ainsi vérifié que pour chaque vitesse incidente, les valeurs du rapport  $I_t/I_i$  étaient en bon accord avec celles que l'on déduit des fractions de charge mesurées par Armstrong et al. (40) pour l'hélium dans le carbone.

## 6 - Etude de la fraction $\phi_1^{2p}$ d'ions $He^+(2p)$ .

La figure II-5 représente la décroissance de la lumière émise par des ions  $He^+$  (transition 1s-2p) de 1 MeV émergent d'une feuille de carbone d'environ  $10 \mu g.cm^{-2}$ . Nous observons tout d'abord sur le premier dixième de mm de la position de la cible une croissance du nombre de photons détectés, jusqu'à une valeur maximum  $N_{max}$ , qui traduit l'effet d'ombre du porte cible devant le spectromètre. Puis nous observons la décroissance de la transition 1s-2p d'autant plus nourrie par les cascades (c'est à dire la décroissance des niveaux supérieurs sur le niveaux 2p) que la cible est éloignée du point d'observation du spectromètre.

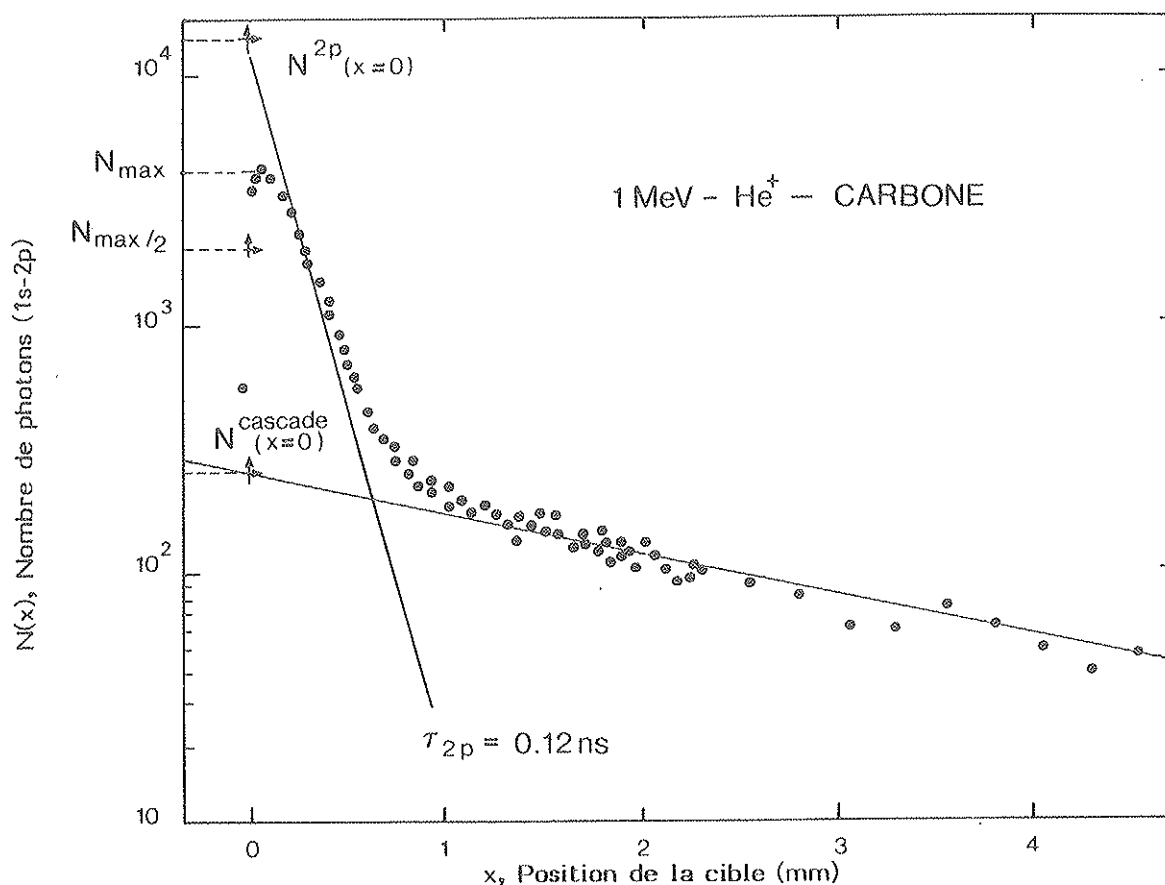


Figure II-5 : Décroissance de la lumière émise par des ions  $He^+$  (transition 1s-2p) de 1 MeV émergent d'une feuille de carbone.



a - Evaluation de la position "zéro" de la cible.

La cible est supposée être dans la position "zéro" quand elle est à la même abscisse que la fente d'entrée du spectromètre (figure II-6). Pour cette position nous supposons que le nombre de photons mesuré est égal à  $N_{max}/2$  (figure II-5).

Compte tenu de la méthode employée, la précision sur l'évaluation de la position "zéro" de la cible n'est que de  $50 \mu m$ , précision cependant suffisante pour cette expérience.

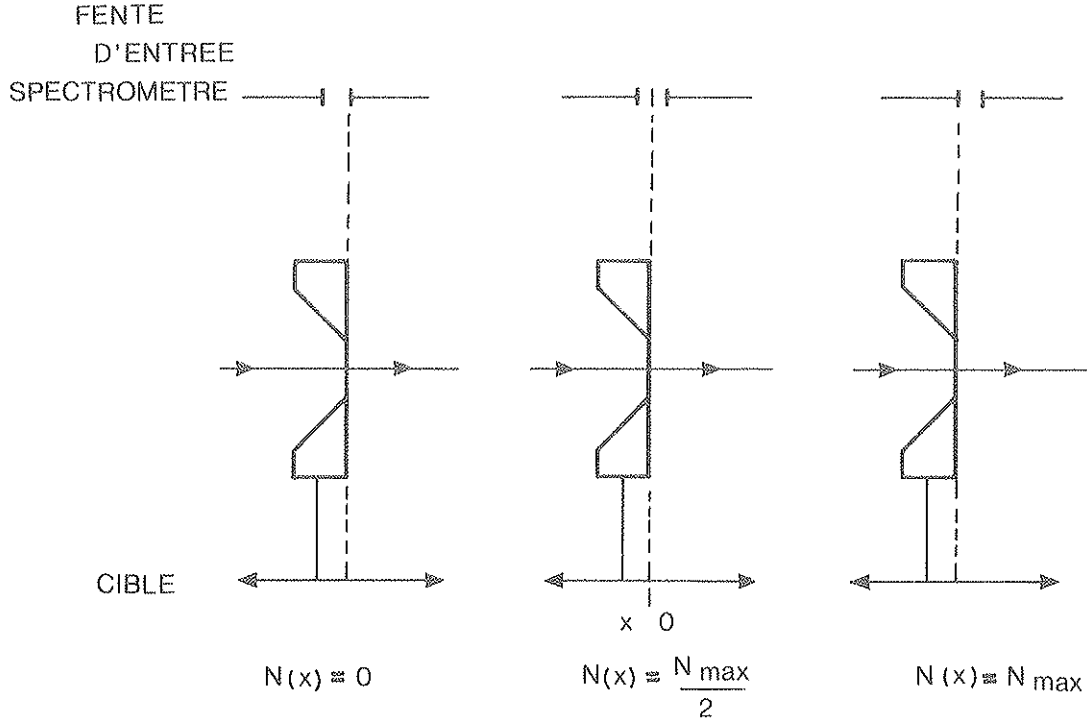


Figure II-6 : Position "zéro" de la cible.

b - Détermination du nombre de photon  $N^{2p}$  ( $x=0$ ) par extrapolation à la position "zéro" de la cible.

Pour obtenir la décroissance de la transition  $1s-2p$ , nous devons soustraire la contribution des cascades. L'obtention du nombre  $N^{2p}$  ( $x=0$ ) est explicitée sur la figure II-5. Nous pouvons aussi extraire le nombre de photons émis par les cascades  $N^{cascade}$  ( $x=0$ ). Evidemment ce nombre, obtenu par extrapolation de la position "zéro" de la cible, n'est pas le nombre que l'on mesurerait à  $x=0$  s'il n'y avait que des cascades. En effet la désexcitation des niveaux supérieurs (principalement  $n=4$  et  $n=3$ ) sur le niveau  $2p$  est associée à un temps de vol  $\tau_{dés} \sim 1ns$ . Mais ce nombre  $N^{cascade}$  ( $x=0$ ) est cependant proportionnel au nombre réel de photons émis par cascade.

c - Mesure de la fraction.

Pour pouvoir comparer les valeurs de  $N^{2p}$  ( $x=0$ ) à différentes vitesses  $v$ , nous devons faire deux corrections :

- 1)  $N^{2p}$  ( $x=0$ ) doit être normalisé à un même nombre de particules incidentes par le facteur multiplicatif  $I_i/I_t$ .
- 2) La fente d'entrée du spectromètre (de largeur  $f = 50 \mu m$ ) étant fixe, le temps de passage des ions  $He^+$  devant la fente est  $t_0 = f/v$ . Or nous voulons évaluer le nombre de photons émis pour différentes vitesses mais correspondant à un même temps de passage devant la fente du spectromètre. Soit  $N^{2p}(t=0)$  le nombre de photons émis au temps  $t=0$ ,  $\tau_{2p} v = d$ , nous avons :

$$N^{2p}(x=0) = \int_0^{t_0} N^{2p}(t=0) e^{-t/\tau_{2p}} dt \quad (II - 23)$$

Si on néglige la largeur  $f$  de la fente devant  $d$  ( $d \sim 0,4 \text{ mm}$  à  $v = 2v_0$ ) :

$$N^{2p}(x=0) \sim N^{2p}(t=0) \frac{f}{v} \quad (II - 24)$$

Nous appelons  $H^{2p}$  la quantité

$$H^{2p} = N^{2p}(x=0) v \frac{I_i}{I_t} \quad (II - 25)$$

Si l'on suppose, comme nous l'avons déjà fait, que l'émission des photons est isotrope dans le laboratoire ou que l'anisotropie est indépendante de la vitesse, alors  $H^{2p}$  est proportionnel à  $\phi_1^{2p}$  avec un facteur de proportionnalité qui ne dépend pas de la vitesse incidente.

Nous avons pu ainsi extraire la variation avec la vitesse de la fraction  $\phi_1^{2p}$  des atomes  $He^+$  excités dans l'état 2p par passage dans la cible. L'expérience étant fondée sur la mesure de la variation, et non pas sur celle de la valeur absolue du nombre de photons détectés en fonction de la vitesse du projectile, nous avons normalisé nos résultats aux valeurs mesurées correspondant à une vitesse de  $3,3v_0$ . La précision globale de la détermination de  $H^{2p}$  est de l'ordre de  $\pm 7\%$ . Les résultats obtenus, normalisés à la fraction  $\phi_1$  de charge à l'émergence, sont portés sur la figure II-7. Nous constatons que le rapport  $\phi_1^{2p}/\phi_1$ , qui représente la population relative  $P_1^{2p}$  du niveau 2p par rapport à l'ensemble des autres niveaux, est sensiblement indépendant de la vitesse dans la gamme de vitesse étudiée, comprise entre 1,8 et  $4,5 v_0$ .

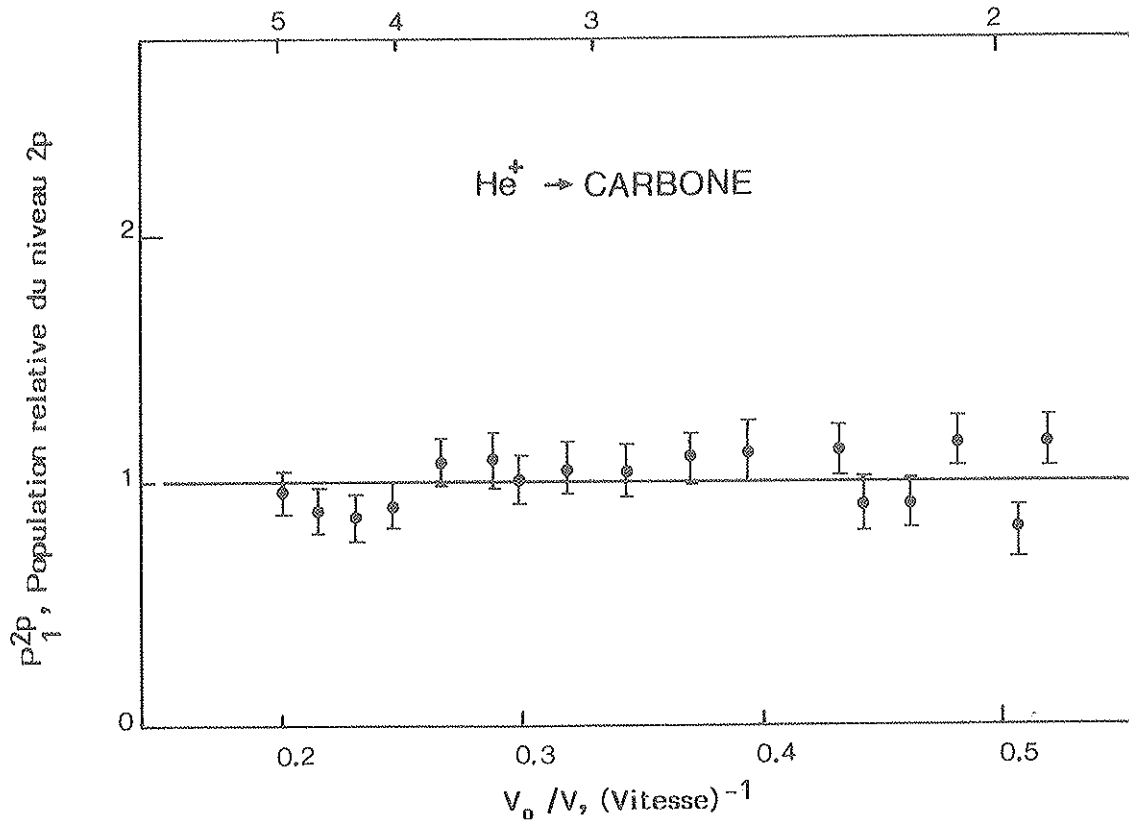


Figure II-7 : Variation avec la vitesse de la population relative du niveau 2p

#### d - Interprétation des résultats.

D'après notre modèle à trois niveaux, les résultats expérimentaux montrent que l'état 2p de l'ion  $He^+$  existe

dans le solide, dans le domaine de vitesse étudié. Ceci est aussi en accord avec les calculs de Rogers et al. En effet nous avons établi précédemment, à partir de ces calculs, que l'état 2p de l'ion  $He^+$  peut exister lié dans le solide, mais seulement à partir d'une vitesse de  $2,3v_0$  (correspondant à une énergie de 500 keV). Or sur la figure II-9 pour des vitesses inférieures à  $2,3v_0$ , nous observons que la population relative  $P_1^{2p}$  reste sensiblement constante alors que l'état 2p lié ne peut exister dans le solide à ces basses vitesses. Dans ce cas, d'après notre modèle à trois niveaux, nous devrions observer une variation avec la vitesse de  $P_1^{2p}$ . Le fait que la population relative reste constante pour des vitesses inférieures à  $2,3v_0$  semble être directement relié au processus même de capture à ces vitesses. En effet d'une part, la cinématique de la capture (cf.ch.I, § C1b-i-) nous indique que dans ce domaine de vitesse, pour qu'il y ait capture, la vitesse orbitale de l'électron cible avant capture doit être supérieure ou égale à la vitesse orbitale de l'électron lié au projectile après capture. D'autre part d'après le critère de Bohr, la vitesse de l'électron susceptible d'être capturé est de l'ordre de la vitesse  $v$  du projectile. Ainsi, la vitesse orbitale de l'électron après capture doit-elle être inférieure ou égale à la vitesse du projectile. Or sur l'orbitale 1s de l'ion  $He^+$ , l'électron a une vitesse égale à  $2v_0$ . Nous pouvons donc en conclure que, pour des projectiles  $He^+$  incidents de vitesse inférieure à  $2v_0$ , la capture d'un électron dans l'état 1s semble impossible dans le cadre du modèle de Bohr. Or une des hypothèses de notre modèle à trois niveaux de la cible est de considérer que 80 % des ions  $He^+$  émergent dans l'état 1s. Dans ce contexte, il est difficile d'interpréter nos résultats concernant  $P_1^{2p}$  pour des vitesses inférieures à  $2v_0$ , dans le cadre de notre modèle. De plus, à ces vitesses, la fraction d'atomes  $He^0$  n'est plus négligeable et nous devons tenir compte des atomes  $He^0$  qui perdent un électron à la sortie de la cible.

## 7 - Etude de la fraction $\phi_1^{4p}$ des ions $He^+(4p)$ .

### a - Mesure de la fraction $\phi_1^{4p}$ .

La figure II-8 représente la décroissance de la lumière émise par des ions  $He^+$  (1s-4p) de 0,4 MeV émergeant d'une feuille de carbone d'environ  $10 \mu g.cm^{-2}$ . Comme précédemment sur les premiers dixièmes de mm de la position de la cible nous observons tout d'abord une croissance du nombre de photons détectés jusqu'à une valeur  $N_{max}$  maximum qui traduit l'ombre du porte cible devant le spectromètre. Puis nous observons la décroissance de la transition 1s-4p. Contrairement à la transition 1s-2p, nous n'observons pas de cascade.

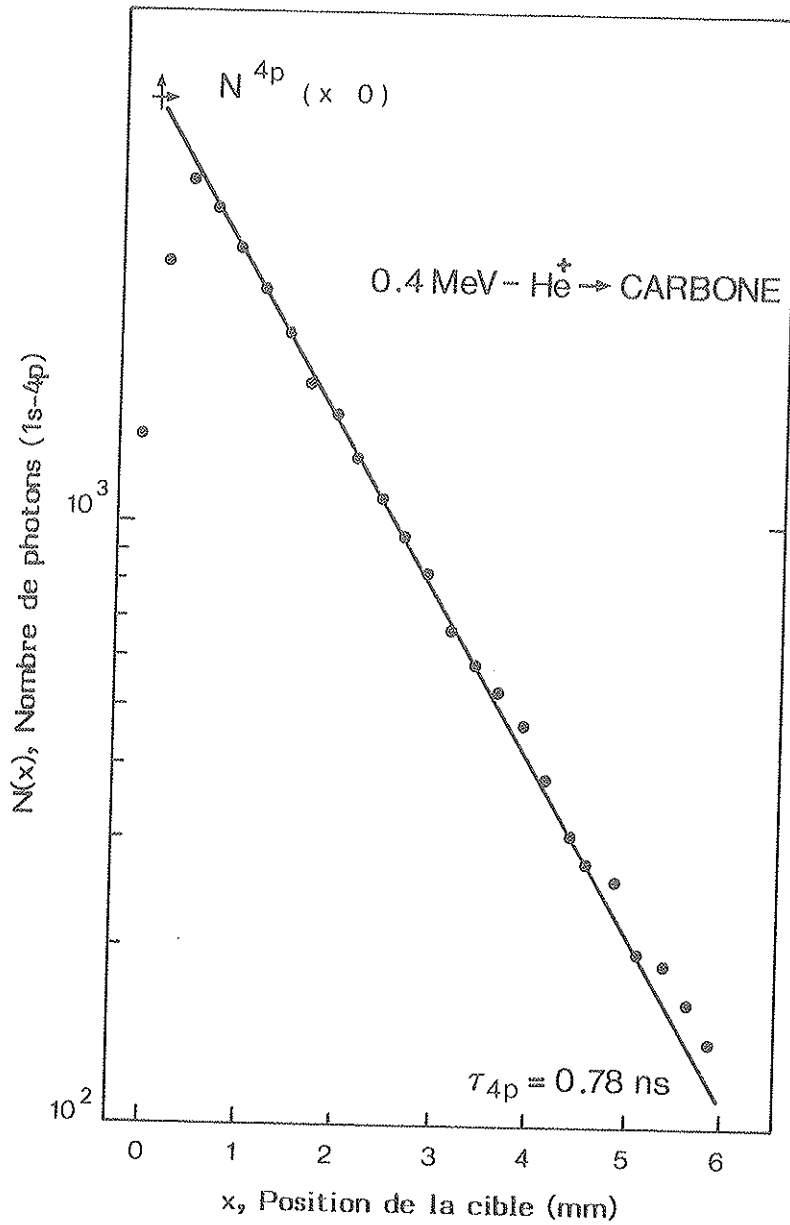


Figure II-8 : Décroissance de la lumière émise par des ions  $He^+$  ( $1s-4p$ )

La quantité  $H^{4p}$  peut être déduite des courbes de croissance de la lumière par la même méthode :

$$H^{4p} = N^{4p}(x=0)v \frac{I_i}{I_t} \quad (II-26)$$

La précision globale des mesures est ici de 5 %.

La variation avec la vitesse de la fraction normalisée à la fraction  $\phi_1$  émergente, est portée sur la figure II-9. Nous constatons que la population relative  $P_1^{4p}$  ( $= \phi_1^{4p} / \phi_1$ ) varie sensiblement en  $v^{-1}$ .

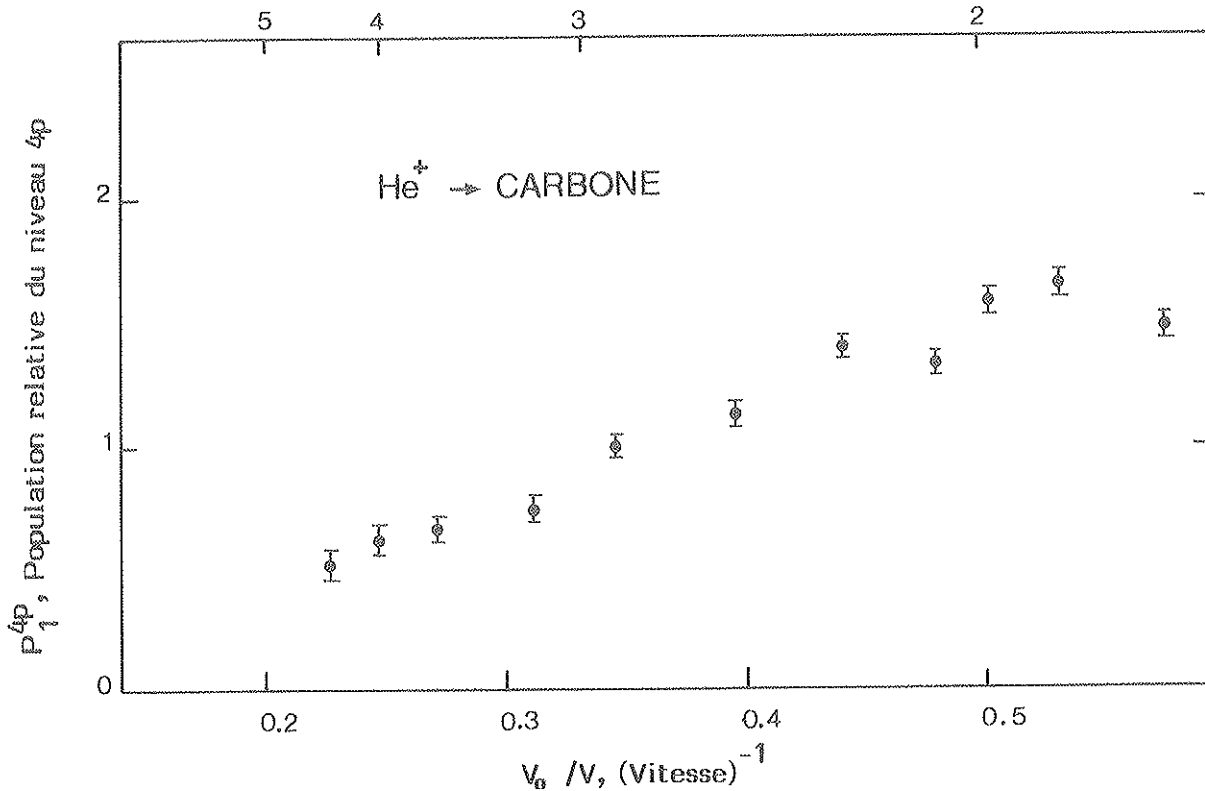


Figure II-9 : Variation avec la vitesse de la population relative du niveau 4p

#### b - Interprétation des résultats

Pour des vitesses supérieures à  $2, 3v_0$ , les résultats concernant  $P_1^{4p}$  confirment que l'état 4p lié n'existe pas dans le solide, comme l'avaient suggéré nos déductions des calculs de Rogers et al. En effet d'après notre modèle à trois niveaux la population relative d'un état qui n'existe pas lié dans le solide devait suivre une variation avec la vitesse en  $v^{-1}$ .

#### 8 - Etude de la fraction $\phi_1^{n>2}$ des ions $He^+$ ( $n > 2$ )

Nous avons aussi déduit des courbes de décroissance de la lumière émise à partir du niveau 2p, la quantité

$$H^{cascade} = N^{cascade} (x=0) v \frac{I_i}{I_t} \quad (II-27)$$

De nouveau,  $H^{cascade}$  doit être proportionnel au nombre total de photons émis par cascades de transitions vers l'état 2p et qui proviennent en particulier des niveaux  $n=3$  et  $n=4$  (principalement la transition 2p-3d). Si l'on appelle  $\phi_1^{n>2}$  la fraction d'ions  $He^+$  émergeant de la cible dans un état excité  $n$  supérieur à 2, on a  $H^{cascade}$  qui est proportionnel à  $\phi_1^{n>2}$ . Or il a été montré à Lyon (41) que les populations relatives des sous-niveaux d'un niveau  $n$  donné d'ions  $He^+$  émergeant d'une cible solide à l'équilibre étaient indépendantes de la vitesse des projectiles incidents. Il résulte de ces considérations que la mesure de la variation avec la vitesse de  $H^{cascade}$  doit être identique à celle de  $\phi_1^{n>2}$ . Les résultats obtenus, normalisés à la fraction de charge émergente, sont portés sur la figure II-10. La précision globale des mesures n'est ici que de 20 % car le nombre de photons émis par cascades est faible. Nous observons que le rapport  $P_1^{n>2}$  ( $= \phi_1^{n>2} / \phi_1$ ) varie

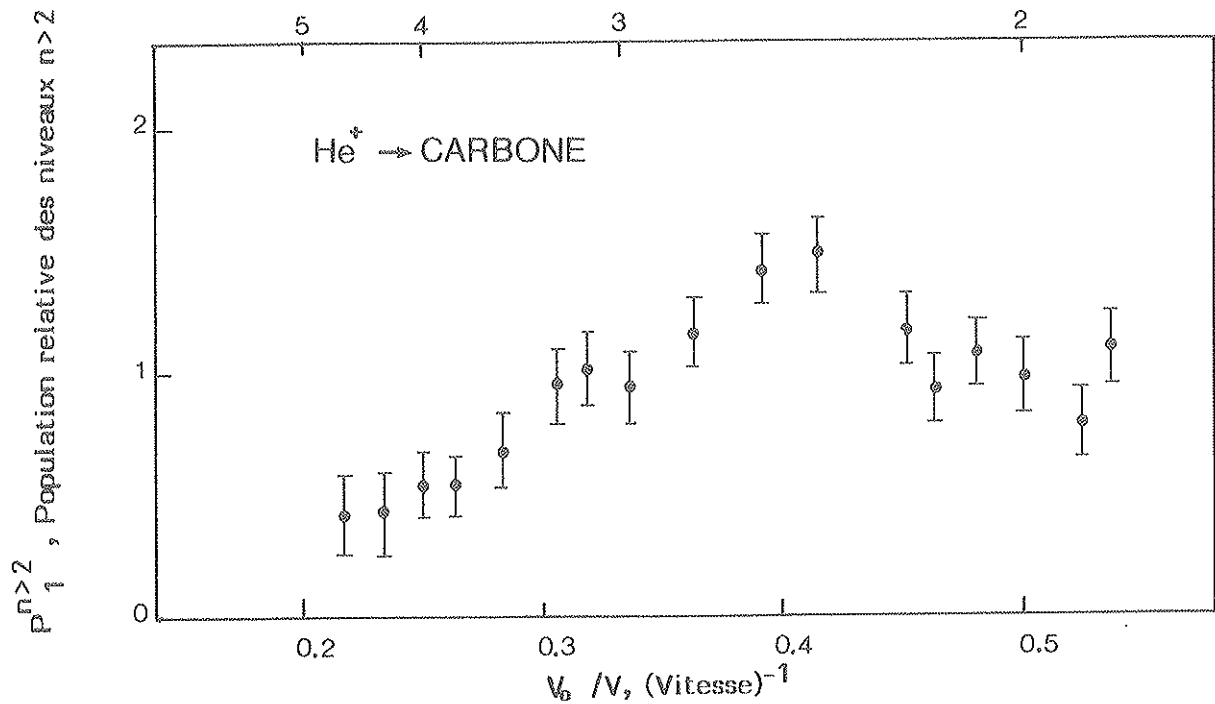


Figure II-10 : Variation avec la vitesse de la population relative des niveaux supérieurs à 2.

ici avec la vitesse pour des vitesses incidentes comprises entre  $4,5v_0$  et  $2,3v_0$  puis semble se stabiliser pour de vitesses incidentes inférieures à  $2,3v_0$ .

Ces résultats sont conformes à ceux obtenus précédemment lors de l'étude de la variation de  $P_1^{4p}$  avec la vitesse. En effet la population relative  $P_1^{n>2}$  est représentative principalement des états  $n=3$  et  $n=4$ . Or d'après les calculs de Rogers et al., nous pouvons établir que l'état  $n=3$  lié ne peut exister dans le solide qu'à partir d'une vitesse  $v$  égale  $9v_0$ . Ainsi dans le domaine de vitesse étudié les états  $n=3$  et  $n=4$ , liés, ne peuvent exister dans le solide. Et  $P_1^{n>2}$  doit alors suivre sensiblement la même variation avec la vitesse que  $P_1^{4p}$ , ce que nous observons expérimentalement pour  $v > 2,3v_0$ .

## E - CONCLUSION

Lors de cette étude expérimentale, nous avons mis en évidence que les populations relatives des niveaux 2p et 4p des ions He<sup>+</sup> émergeant de feuille de carbone ne suivaient pas la même variation avec la vitesse. Nous avons montré que cela pouvait provenir de l'existence ou de la non-existence de ces états excités dans le solide. Dans le domaine de vitesses comprises entre  $2v_0$  et  $4,5v_0$ , nous en avons conclu que l'état 2p lié semblait exister dans le solide alors que l'état 4p n'existe pas. Pour des vitesses inférieures à  $2v_0$ , les hypothèses émises pour établir notre modèle ne sont plus valables. En fait le processus de capture électronique non radiative reste mal connu dans ce domaine de vitesse et nous allons plus loin tenter de mieux comprendre ce processus fondamental en étudiant l'interaction d'agrégats rapides d'hydrogène avec une cible solide.



## CHAPITRE III

### ECHANGE DE CHARGE ENTRE DES AGREGATS D'HYDROGENE RAPIDES ( $1,1v_0 \leq v \leq 3,5v_0$ ) ET DES CIBLES MINCES DE CARBONE

#### A - INTRODUCTION

Il est bien établi que lorsqu'un ion moléculaire rapide traverse une feuille mince, la distribution des états de charge des fragments émergents est différente de celle qu'on obtient avec des faisceaux atomiques de même vitesse (42-44). Quand une molécule pénètre dans un milieu solide la plupart de ses électrons sont arrachés et la liaison entre les différents atomes constituant la molécule est rompue. Les fragments ioniques résultants se repoussent alors mutuellement pendant leur parcours dans le solide. Lorsqu'ils émergent de la surface de sortie, certains de ces fragments atomiques auront "conservé" leurs électrons incidents et d'autres capturé des électrons de la cible. Le premier processus est dominant dans le cas de feuilles très minces car il est directement relié à la probabilité de transmission des électrons du projectile. Le groupe C.A.S.(15) a d'ailleurs montré, pour des énergies de l'ordre du MeV, que la probabilité de transmission d'atomes  $H^0$  à travers une cible solide décroît exponentiellement avec l'épaisseur, pour des temps de passage inférieurs à  $10^{-15}$  s. Ils ont observé que, pour des temps de passage plus longs, le taux de production d'atomes neutres par atome incident est le même que celui que l'on obtient avec des protons incidents de même vitesse. Cela signifie que la neutralisation résulte alors de la capture d'électrons de la cible.

Plusieurs expériences (6,45-47) ont montré que, dans le domaine où la neutralisation résulte principalement de la capture d'électrons de la cible, la proximité des fragments à la surface de sortie se traduit par une diminution de leur état de charge moyen. Dans le cas particulier de molécules d'hydrogène, ces effets augmentent la probabilité de neutralisation de chaque fragment. Par exemple, le groupe C.A.S. (45) a mis en évidence que de 0,5 à 1,2 MeV/proton la production d'atomes  $H^0$  est environ deux fois plus élevée dans le cas de projectiles incidents  $H_3^+$  que  $H_2^+$ , montrant ainsi que les effets collectifs dépendent aussi du nombre de proches voisins pendant la neutralisation. De plus, de Castro Faria et al. (48) ont montré qu'avec des projectiles incidents  $D_2^+$  la production d'atomes neutres passe par un maximum pour une certaine épaisseur de cible : pour des temps de passage longs la production diminue avec la séparation entre les fragments, alors que pour des temps de passage très courts les fragments sont assez proches les uns des autres pour que la formation d'atomes neutres soit inhibée par la probabilité de recombinaison moléculaire.

Le but de ce chapitre est de décrire les résultats expérimentaux que nous avons obtenus avec des faisceaux d'agrégats d'hydrogène  $H_n^+$  ( $n \leq 21$ ), de vitesse comprise entre  $1,1v_0$  et  $2,2v_0$ , sur la neutralisation des



fragments à l'émergence d'une feuille de carbone. Dans le domaine de vitesse de ce travail, les fragments émergents sont principalement des atomes neutres et des protons. De plus les cibles que nous avons utilisées sont suffisamment épaisses pour que les  $H^0$  émergents résultent en majorité de la capture d'un électron cible. Nous avons donc mesuré la distribution angulaire des fragments émergeant de feuilles de carbone de différentes épaisseurs (0,9; 1,5; 2,1 et 3,4  $\mu g.cm^{-2}$ ) et en avons déduit, pour chaque masse du projectile, la fraction d'atomes neutres émergents par proton incident  $\phi_0^n$ . Nous avons aussi mesuré la fraction  $\phi_0^2$  à des vitesses comprises entre 2,2 $v_0$  et 3,5 $v_0$  dans des feuilles de 3,15 et 10 $\mu g.cm^{-2}$ . Puis nous discuterons nos résultats dans le cadre des théories existantes.

## B - METHODE ET DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Les prises de données se sont déroulées sur une année en trois séries de mesures : Février-Mars 86, Mai-Juin 86, Janvier-Mars 87. En ce qui concerne la détection et la normalisation des mesures, certaines améliorations ont été apportées entre les différentes prises de données. Nous allons présenter essentiellement les caractéristiques des dernières mesures en mettant en évidence les améliorations apportées.

### 1 - Principe de la méthode expérimentale

Le principe de l'expérience est schématisé sur la figure III-1. Le faisceau d'agrégats d'hydrogène  $H_n^+$  ( $2 \leq n \leq 21$ ) d'énergie comprise entre 30 et 120 keV/proton, pénètre dans une cible mince de carbone d'épaisseur comprise entre 0,9 et 3,4  $\mu g.cm^{-2}$ . Les agrégats perdent leurs électrons dans les premières couches atomiques et les fragments ioniques de chaque agrégat se repoussent mutuellement par interaction coulombienne écrantée. Nous avons vérifié que la probabilité de transmission des agrégats incidents (sans dissociation) à travers les cibles solides, ainsi que la formation de fragments moléculaires étaient négligeables. Ainsi, le faisceau émergent peut être considéré comme constitué uniquement d'atomes d'hydrogène et de protons ; dans le domaine de vitesse étudié, la fraction d'ions négatifs est tout à fait négligeable ( $\phi_{-1}^1 \sim 1\%$  pour  $v = 1,1v_0$ ).

Un détecteur mobile permet de mesurer la distribution angulaire des fragments émergents (figure III-1). Afin de mesurer indépendamment les distributions angulaires de la totalité des fragments et des seuls atomes neutres, un aimant permanent a été placé entre la cible et le système de détection pour dévier les protons dans un plan perpendiculaire au plan de détection. Ainsi, pour chaque espèce  $H_n^+$  et à chaque énergie incidente, furent mesurées successivement les distributions angulaires  $N_n^0(\theta)$  des atomes neutres et  $N_n(\theta)$  de la totalité des fragments  $H^0$  et  $H^+$ . De ces mesures, furent déduites :

- la largeur à mi-hauteur  $\theta_n^0$  de la distribution des atomes neutres émergents.
- et, après intégration des distributions précédentes sur tout le cône d'explosion, la fraction  $\phi_0^n$  d'atomes neutres émergents (exprimée par proton de l'agrégat incident).

Il est alors utile de comparer les mesures faites à partir de faisceaux d'ions moléculaires ou d'agrégats à une mesure de référence, que l'on obtient avec un faisceau atomique de même vitesse. En fait, pour ne pas modifier les conditions de fonctionnement de l'accélérateur, nous avons simulé ici les conditions "atomiques" en utilisant une "cible double", constituée de deux feuilles minces de carbone, séparées de 1 mm l'une de l'autre. En effet les fragments résultant de la dissociation d'un agrégat dans la première feuille pénètrent dans la seconde avec des distances interatomiques suffisamment grandes pour que toutes les interactions dans la seconde feuille puissent être considérées comme indépendantes les unes des autres. Puisque  $\phi_0^1$  a une

valeur bien connue, cette mesure constitue un test pour notre dispositif expérimental.

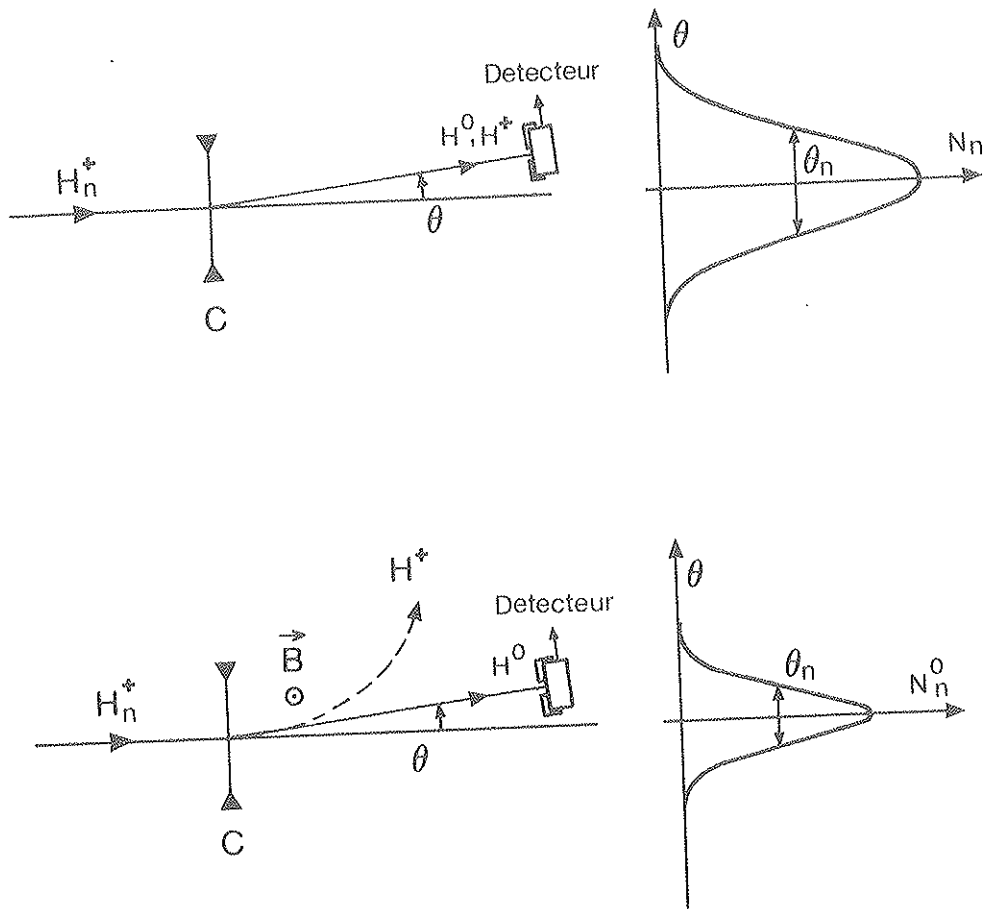


Figure III-1 : Principe de la méthode expérimentale

## 2 - Le faisceau d'agrégats $H_n^+$

Les faisceaux d'agrégats d'hydrogène  $H_n^+$  ( $n \leq 21$ ) d'énergie comprise entre 60 et 630 keV sont délivrés par l'Accélérateur d'Agrégats de l'Institut de Physique Nucléaire de Lyon (49,50) (figure III-2).

Ces agrégats sont formés à partir d'hydrogène gazeux dans une source cryogénique refroidie à l'hélium liquide (consommation 1,5 l/h avec possibilité de récupération de 80 % de l'hélium gazeux). Une détente adiabatique du gaz d'hydrogène, commandée par une vanne électromagnétique, est à l'origine de la formation de gros agrégats neutres. Ceux-ci sont alors brisés et les fragments ionisés sous l'impact d'un faisceau transverse d'électrons. Ces derniers, émis par chauffage indirect de cathodes en oxyde, sont accélérés perpendiculairement au faisceau d'agrégats par des grilles anodiques (transparence  $\sim 70$  %). Une large distribution de masse d'agrégats ioniques  $H_n^+$  est alors extraite de l'ioniseur par une électrode négative puis ces agrégats sont alors accélérés (tension maximum 630 kV). Cet accélérateur produit un faisceau pulsé de faible cycle utile. En effet la durée de l'impulsion ne peut excéder 300 ms et la fréquence de répétition des impulsions

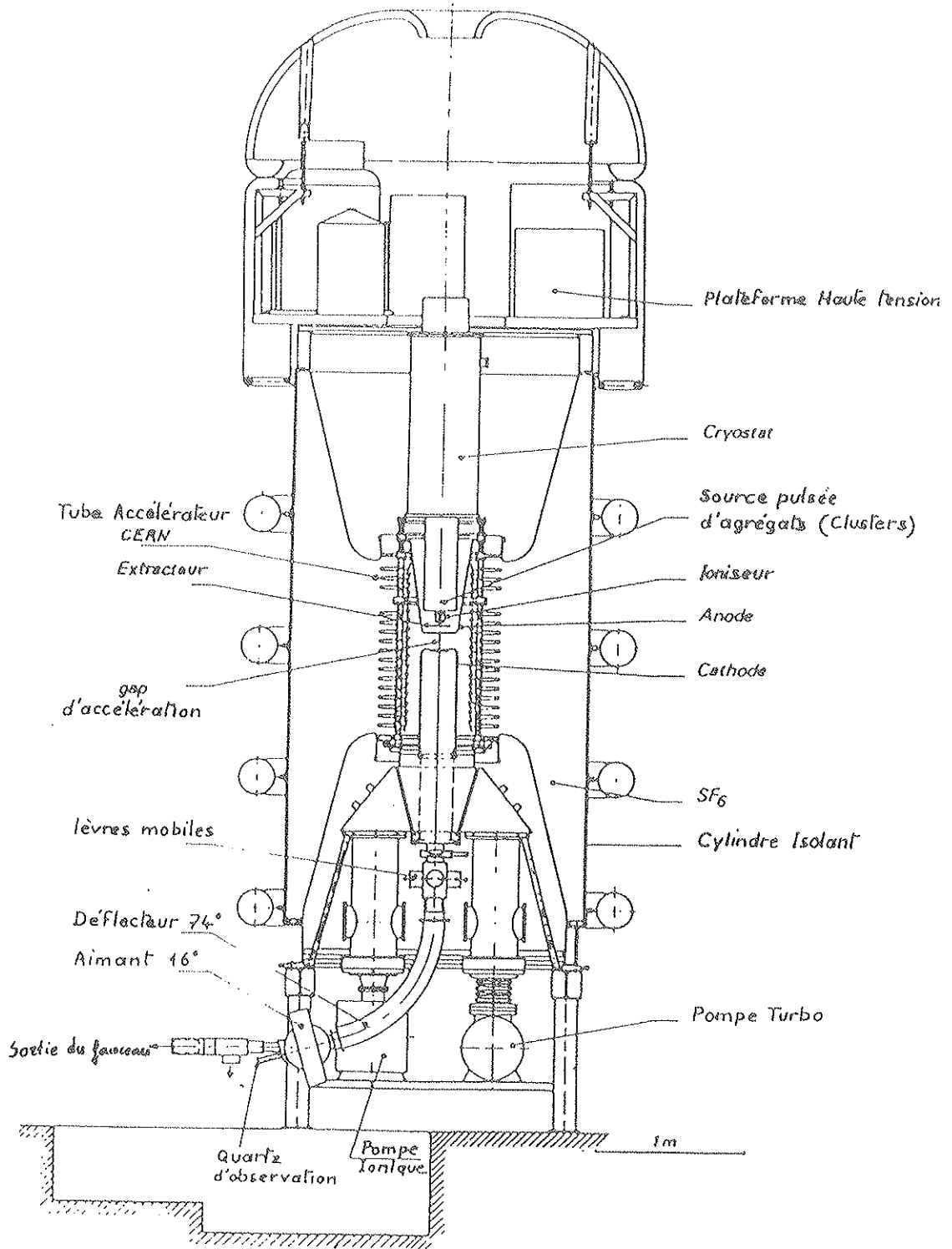


Figure III-2 : L'accélérateur d'agrégats de Lyon

doit être assez faible pour que la remontée en pression dans le tube accélérateur pendant la détente soit récupérée, entre deux détentés, par le système de pompage. Au cours de notre expérience, nous avons une impulsion de faisceau de 60 ms toutes les 3 s. Remarquons que seuls les agrégats comprenant un nombre impair de protons (sauf l'ion moléculaire  $H_2^+$  qui n'est pas à proprement parler un agrégat) peuvent être extraits de la source avec une intensité mesurable. L'intensité du faisceau sur cible peut varier dans une gamme d'environ 1 à  $10^8$  agrégats par impulsion. Les deux paramètres qui sont utilisés pour régler l'intensité du faisceau sont :

- la pression du gaz hydrogène dans la source (100-300 Torr)
- l'intensité du courant d'électrons de l'ioniseur (100 mA).

Notons que durant l'impulsion et hors impulsion, ce faisceau est pollué par un faisceau continu constitué principalement d'ions atomiques et moléculaires  $H^+$ ,  $H_2^+$ ,  $H_3^+$  et pollué par des ions  $HeH^+$ ,  $C^+$ ,  $N^+$ ,  $O^+$  etc... Cependant dans nos expériences l'analyse en masse et en énergie du faisceau incident était suffisante pour éliminer cette pollution.

### 3 - Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est schématisé sur la figure III-3.

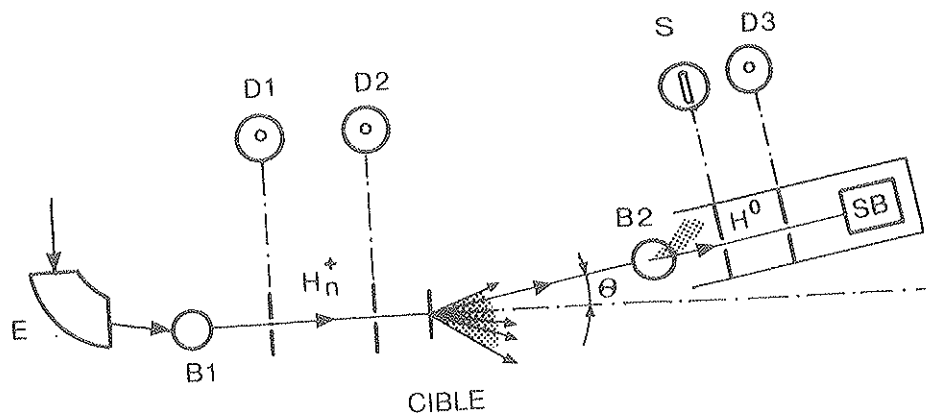


Figure III-3 : Schéma du dispositif expérimental

(E)	:	Analyseur électrostatique
(B <sub>1</sub> )	:	Analyseur magnétique
(D <sub>1</sub> , D <sub>2</sub> )	:	Collimateurs de $\phi$ 2 et 1mm, respectivement
(B <sub>2</sub> )	:	Aimant permanent escamotable
(F)	:	Fente (6 × 20 mm)
(D <sub>3</sub> )	:	Collimateur de $\phi$ 0,5 mm
(BS)	:	Détecteur

#### a - Préparation du faisceau incident

La combinaison d'un analyseur électrostatique (E) et d'un analyseur magnétique (B<sub>1</sub>) permettent de sélectionner la masse et l'énergie du faisceau d'agrégats désiré et de le guider dans la voie d'expérience. Un doublet de diaphragmes D<sub>1</sub> et D<sub>2</sub> de diamètres respectifs 2 et 1 mm permettent de limiter le demi-angle d'ouverture du faisceau à  $0,05^\circ$  et l'impact sur la cible à  $3\text{mm}^2$ . Deux pompes turbomoléculaires permettent de maintenir la voie d'expérience sous une pression de l'ordre de  $10^{-6}$  Torr.

## b - Cibles

Les cibles de carbone autoportantes, d'épaisseur comprise entre 0,9 et  $10\mu\text{g.cm}^{-2}$ , ont été obtenues par la méthode décrite dans le chapitre II (§ D 2 b). Les cibles de carbone sont déposées soit sur un anneau de cuivre de diamètre intérieur 2-3 mm (pour les cibles d'épaisseur supérieure à  $2\mu\text{g.cm}^{-2}$ ) soit sur une grille de microscope électronique dont la transparence est de 70 % (pour les feuilles les plus minces).

Le porte cible permet la rotation et les translations (X-Y) de la cible. Il est isolé, ce qui permet la mesure du courant d'aux électrons secondaires émis sous l'impact du faisceau. La chambre à cible est équipée d'une pompe turbomoléculaire qui maintient la pression à environ  $10^{-6}$  Torr. Ainsi l'épaississement des cibles par dépôt de carbone sous l'impact du faisceau pendant une mesure est négligeable.

## c - Mesure des distributions angulaires des fragments transmis

Sous l'effet combiné de leur répulsion mutuelle et de la diffusion multiple, la distribution angulaire des fragments émergeant de la feuille est relativement large (par exemple pour des agrégats  $H_{13}^+$  de 40 keV/p dans une cible de  $3,4\mu\text{g.cm}^{-2}$ ,  $\theta_{13}^0 = 2,2^\circ$ ). Les distributions angulaires sont mesurées à l'aide d'un détecteur à barrière de surface (BS) placé sur une table (X-Y) permettant d'effectuer des rotations dans les plans horizontal et vertical autour d'un centre situé près de la position de la cible dont il est distant d'environ 80 cm. Il est précédé d'un diaphragme  $D_3$  définissant une résolution angulaire de  $0,03^\circ$ . Les déplacements angulaires ont été effectués dans le plan vertical. L'excursion angulaire maximum est de  $3^\circ$  par rapport à la direction du faisceau incident. Après la mesure de la distribution angulaire de la totalité des fragments, on mesurait celle des seuls atomes neutres en intercalant un aimant permanent ( $B_2$ ) entre la cible et le système de détection. Quand il est en place, cet aimant dévie les particules chargées dans un plan perpendiculaire au plan de détection. Une fente (F) verticale (6 x 20 mm), solidaire de la table (X-Y) et située entre l'aimant ( $B_2$ ) et le diaphragme ( $D_3$ ) permettait de sélectionner les fragments neutres. Le déplacement du système de détection (F- D -BS) était commandé par un moteur pas à pas.

Notons que, lors de la troisième période de prise de données, pour pouvoir détecter des fragments d'énergie inférieure à 40 keV par un détecteur semi-conducteur nous avons utilisé une diode Si-implantée dont le bruit de fond correspondait à une énergie d'environ 25 keV. Ainsi notre gamme de projectiles est-elle limitée en masse et en énergie des agrégats incidents, d'un côté par la valeur du seuil en énergie du détecteur ( $\sim 25$  keV) et de l'autre côté par la tension maximum d'accélération (630 kV).

## 4 - Système d'acquisition

Le système d'acquisition schématisé sur la figure III-4 permet d'assurer quatre fonctions essentielles:

- le comptage des impulsions délivrées par les différents détecteurs
- la normalisation des mesures
- la mesure du spectre en énergie des particules détectées.

### a - Comptage des impulsions

Les impulsions délivrées par le détecteur (BS) sont traitées par un préamplificateur de charge (PA) et un amplificateur spectrométrique (A) puis distribuées d'une part vers un sélecteur d'amplitude pour être comptées dans une échelle, d'autre part vers une voie de spectrométrie.

La mesure du courant cible se fait à l'aide d'un picoampèremètre (Keithley-602) qui délivre une tension analogique (0-1 Volt) proportionnelle au courant d'entrée.

Puis un convertisseur tension-fréquence (1 kHz/Volt) délivre un train d'impulsions qui est compté dans une échelle dont le contenu est proportionnel à la quantité de charge incidente.

### b - Normalisation des mesures

Les distributions angulaires doivent être normalisées à un même nombre de particules incidentes. Dans notre cas nous voulons aussi accéder à la fraction totale d'atomes neutres par proton incident. Il est donc nécessaire de normaliser à un même nombre de particules incidentes chaque point de chacune des deux distributions angulaires, celle de la totalité des fragments et celle des seuls atomes neutres. Pour un projectile incident

$H_n^+$ , d'énergie  $E$ , traversant une cible de carbone d'épaisseur donnée, la normalisation relative des mesures a été obtenue à partir de la mesure du courant cible (émission d'électrons secondaires de la cible) qui est proportionnel au courant de faisceau. Notons que le facteur de proportionnalité dépend de la masse de l'agrégat, de sa vitesse et de l'angle d'inclinaison de la cible par rapport à la direction du faisceau, paramètres qui restent inchangés durant les mesures successives des deux distributions. Signalons que, lors de la première prise de données, la normalisation relative des mesures avait été obtenue à partir du comptage des protons diffusés à grand angle ( $\sim 20^\circ$ ) par la cible de carbone. Ce nombre est bien proportionnel au nombre d'agrégats incidents, mais il était difficile de détecter des particules d'énergie inférieure à 40 keV par un détecteur à barrière de surface.

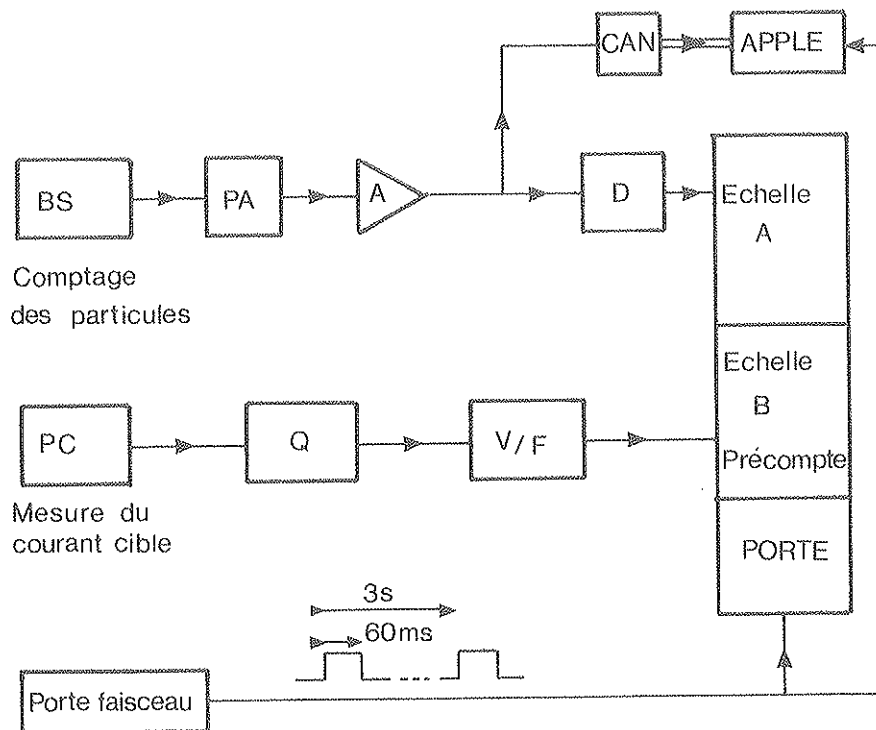


Figure III-4 : Schéma du système d'acquisition

### c - Mesure du spectre en énergie des fragments

Le signal délivré par le détecteur à barrière de surface (BS) est proportionnel à l'énergie de la particule. Il est amplifié, puis traité par un convertisseur analogique-numérique, le numéro de chaque canal étant proportionnel à l'énergie de la particule, ce qui permet d'obtenir le spectre en amplitude des impulsions et donc le spectre en énergie des particules.

### 5 - Centrage du faisceau

La position du faisceau incident doit être repérée avec précision dans la voie d'expérience. Sa direction constitue la référence dans la mesure des distributions angulaires. La position "zéro" de la table (X-Y) est obtenue à l'aide du faisceau direct à intensité réduite.

### 6 - Mesures des épaisseurs de cible

Nous avons utilisé des cibles de carbone de 0,9; 1,5; 2,2; 3,15; 3,4 et  $10 \mu g.cm^{-2}$  et deux cibles doubles de (6,3 + 2,2) et (3,15 + 3,15)  $\mu g.cm^{-2}$ . L'épaisseur des cibles de 2,2 ; 3,4 et 6,3  $\mu g.cm^{-2}$  avait été mesurée au préalable par rétrodiffusion en utilisant un faisceau de protons (Van de Graaff de 2,5 MeV de l'Institut de Physique Nucléaire de Lyon). Ces mesures sont calibrées à l'aide d'une cible étalon dont l'épaisseur avait été mesurée par perte d'énergie de particules  $\alpha$ . La précision globale de ces mesures d'épaisseur est de 12 %.

Remarquons que notre dispositif expérimental ne permet pas d'utiliser cette technique de rétrodiffusion in situ car elle nécessite la mesure, en amont de la cible, du nombre de particules incidentes, mesure difficile à réaliser dans le cas d'un faisceau pulsé. Nous avons alors développé une méthode fondée sur la mesure de la largeur de la distribution angulaire résultant de la diffusion multiple d'un faisceau incident de protons (à ces basses énergies la diffusion multiple n'est pas un phénomène négligeable). Nous avons donc mesuré les distributions angulaires de protons émergeant de cibles de différentes épaisseurs. Les largeurs à mi-hauteur  $\theta_D$  de chaque distribution sont comparées aux prédictions (bien vérifiées) de P.Sigmund (51) qui prévoit les distributions angulaires complètes en fonction de l'épaisseur et de l'énergie du proton incident. La validité de la méthode a été contrôlée en vérifiant, avec des faisceaux de protons de 80 et 120 keV,

- 1) que, pour chaque épaisseur de cible, la largeur de la distribution angulaire était bien inversement proportionnelle à l'énergie des protons incidents,
- 2) que l'épaisseur de la cible prise comme étalon ( $2,2 \pm 0,25$ )  $\mu g.cm^{-2}$  était correctement évaluée ( $2,1 \pm 0,3$ )  $\mu g.cm^{-2}$ .

Nous avons déterminé les épaisseurs des cibles de 10 ; 3,15 ; 2,1 et 1,5  $\mu g.cm^{-2}$  avec une précision globale de 15 %, celle de la cible de 0,9  $\mu g.cm^{-2}$  a été évaluée à 25 %, la divergence angulaire du faisceau incident étant, dans ce cas moins négligeable par rapport à l'angle de diffusion multiple. Les valeurs des différents angles mesurés et des épaisseurs déduites sont portées dans le tableau III-1. Notons que la même feuille de 3,15  $\mu g.cm^{-2}$  déposée soit sur une grille, soit sur un anneau, conduit bien à des épaisseurs identiques. La distribution angulaire de protons de 120 keV émergeant de la cible d'épaisseur 2,1  $\mu g.cm^{-2}$  est montrée sur la figure III-5. La courbe continue correspond à la distribution prédite par Sigmund (51).

$\phi_D$ (120 keV) (degrés)	$\phi_D$ (80 keV) (degrés)	Épaisseur déduite ( $\mu g.cm^{-2}$ )
1,2	1,8	$10 \pm 1,5$
0,47	0,69	* $3,15 \pm 0,35$
0,47	0,69	$3,15 \pm 0,35$
0,4	0,52	$2,1 \pm 0,3$
0,3	0,41	* $1,5 \pm 0,2$
0,2	0,2	* $0,9 \pm 0,25$

Tableau III-1 : Largeurs à mi-hauteur  $\phi_D$  des distributions angulaires et épaisseurs de cibles déduites (\* : cibles montées sur grille).

7 - Influence du gaz résiduel dans la voie d'expérience.

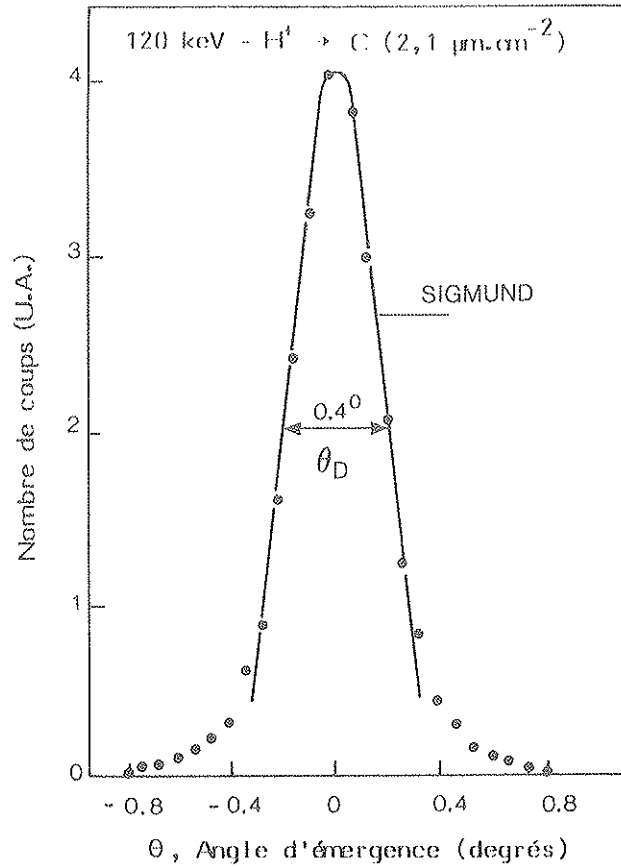


Figure III-5 : Distribution angulaire de protons de 120 keV émergeant d'une cible de carbone de 2,1 μg.cm<sup>-2</sup> d'épaisseur.

Entre l'accélérateur et la chambre à cibles le faisceau d'agrégats parcourt un espace de 125 cm dans lequel peuvent se produire des collisions avec les atomes du gaz résiduel (pression de l'ordre de 10<sup>-6</sup> Torr) conduisant à une dissociation prématurée des agrégats avant qu'ils n'atteignent la cible. Les sections efficaces de dissociations d'agrégats d'hydrogène H<sub>n</sub><sup>+</sup> (n ≤ 21) de quelques dizaines de keV/p ont été déterminées précédemment auprès de cet accélérateur dans des cibles gazeuses d'Argon (52). Le gaz résiduel étant ici principalement composé de carbone, d'azote et d'oxygène, nous pouvons utiliser ces résultats pour évaluer le taux de projectiles dissociés dans le gaz résiduel. Si on évalue la quantité de gaz à 4.10<sup>10</sup> at/cm<sup>2</sup> et que l'on admet que la section efficace de dissociation est de 40.10<sup>-16</sup> cm<sup>2</sup> /at (H<sub>11</sub><sup>+</sup>, 20 keV/p), on peut prévoir ainsi que la fraction de projectiles dissociés est seulement de l'ordre de 3.10<sup>-3</sup>. La dissociation dans un gaz étant induite par des collisions uniques, les fragments moléculaires qui en résultent subissent une répulsion réduite par rapport à celle des fragments atomiques ; ainsi une large fraction de ces fragments subissent une très faible déviation. De ce fait les mesures des distributions angulaires N<sub>n</sub>(θ) et N<sub>n</sub><sup>0</sup>(θ) peuvent être faussées par la présence de fragments issus de dissociations dans le gaz résiduel. Pour évaluer expérimentalement la contribution du nombre de fragments produit par dissociation respectivement dans le gaz résiduel et dans la cible, nous avons mesuré au voisinage de θ = 0° le spectre en énergie des particules du faisceau direct.

Ces mesures ont été effectuées à 80 cm en aval de la position de la cible. Elles surestiment donc le taux de dissociés puisqu'elles concernent la dissociation dans l'ensemble de la voie (avant et après la cible). La figure III-6 représente le spectre en énergie correspondant à un faisceau incident H<sub>7</sub><sup>+</sup> de 40 keV/p. Nous avons ainsi obtenu un taux de projectiles dissociés de l'ordre de 10<sup>-2</sup>. Notons que nous supposons que la



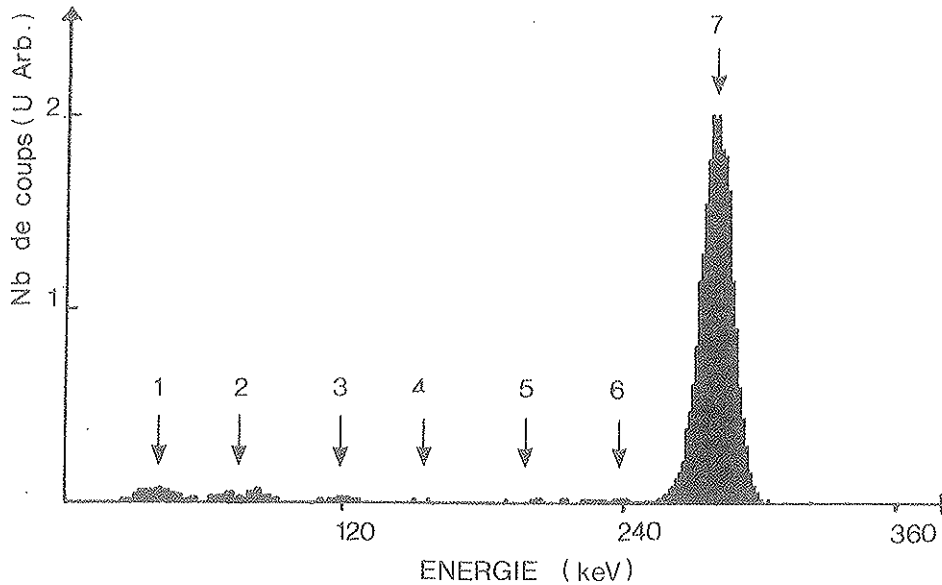


Figure III-6 : Spectre en énergie du faisceau incident  $H_7^+$ .

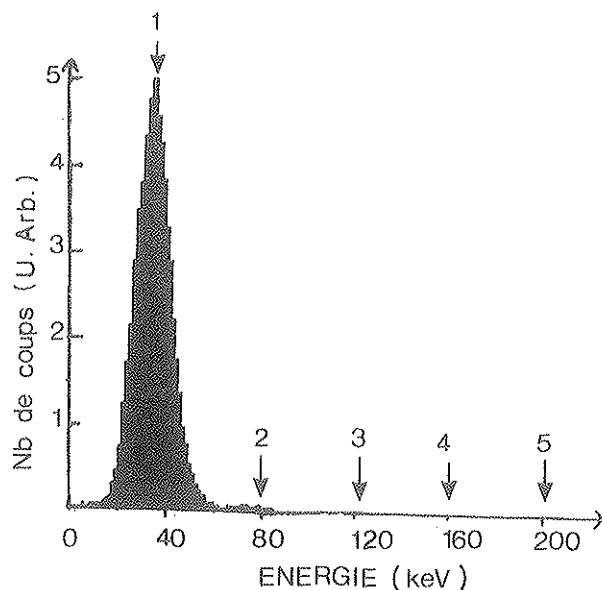
répulsion entre les fragments est suffisante pour que la probabilité pour que tous les fragments d'un même agrégat soient détectés simultanément est très faible.

#### 8 - Analyse des spectres en énergie.

L'analyse en énergie des particules émergent de la cible permet de confirmer que les fragments prépondérants sont des fragments atomiques  $H^+$  et  $H^0$  (La fraction  $H^-$  est négligeable aux vitesses supérieures à  $v_0$  : de l'ordre de  $10^{-2}$  à  $v = v_0$ ). Les seuls autres fragments observés sont à l'énergie double de celle des fragments atomiques. Ils correspondent

- soit à de l'hydrogène moléculaire ( $H_2^+$ ,  $H_2^0$ )
- soit à deux fragments atomiques, issus d'un même agrégat et détectés en coïncidence (l'empilement électronique des impulsions peut être négligé car le taux de comptage ne dépassait pas 3000 cps/s).

A ces vitesses, et pour des cibles d'épaisseur supérieure à  $2\mu g.cm^{-2}$ , la transmission moléculaire est négligeable : inférieure à  $10^{-3}$  pour des ions  $H_2^+$  de 300 keV à travers une cible de  $2\mu g.cm^{-2}$  d'épaisseur (15). En outre l'acceptance angulaire du système de détection est trop faible pour qu'il faille considérer la probabilité de détecter deux atomes issus d'un même agrégat. La figure III-7 montre le spectre en énergie des fragments issus de la dissociation d'agrégats  $H_5^+$  de 200 keV dans une cible de carbone de  $3,4\mu g.cm^{-2}$  d'épaisseur qui justifie que l'on ne considère que les fragments atomiques. Pour les cibles plus minces, de 0,9 et  $1,5\mu g.cm^{-2}$ , la transmission moléculaire est toujours négligeable (sauf pour des ions  $H_2^+$  à des vitesses supérieures à  $3v_0$ ). Cependant les spectres en énergie des fragments issus à  $0^0$  de la dissociation d'ions  $H_n^+$  de 30 keV/p dans une cible d'épaisseur  $0,9\mu g.cm^{-2}$  présentent un pic à l'énergie double (60 keV) qui est plus important que pour des cibles plus épaisses.



**Figure III-7 :** Fragments issus de la dissociation d'un agrégat  $H_6^+$  dans une cible de carbone de  $3,4\mu g.cm^{-2}$  d'épaisseur.

Afin d'évaluer cette contribution des événements mesurés à l'énergie double par rapport au nombre total de fragments nous avons mesuré les distributions angulaires des différents types de fragments pour les projectiles  $H_n^+$  ( $3 \leq n \leq 21$ ) de 30 keV/p dans une cible d'épaisseur  $0,9\mu g.cm^{-2}$ . Sur la figure III-8 sont représentées les distributions obtenues avec des projectiles  $H_{10}^+$ . Remarquons que la largeur de la distribution des fragments détectés à l'énergie double est nettement inférieure à celle des fragments atomiques et, ainsi, leur contribution au nombre total de fragments est-elle négligeable ( $\sim 10^{-2}$ ).

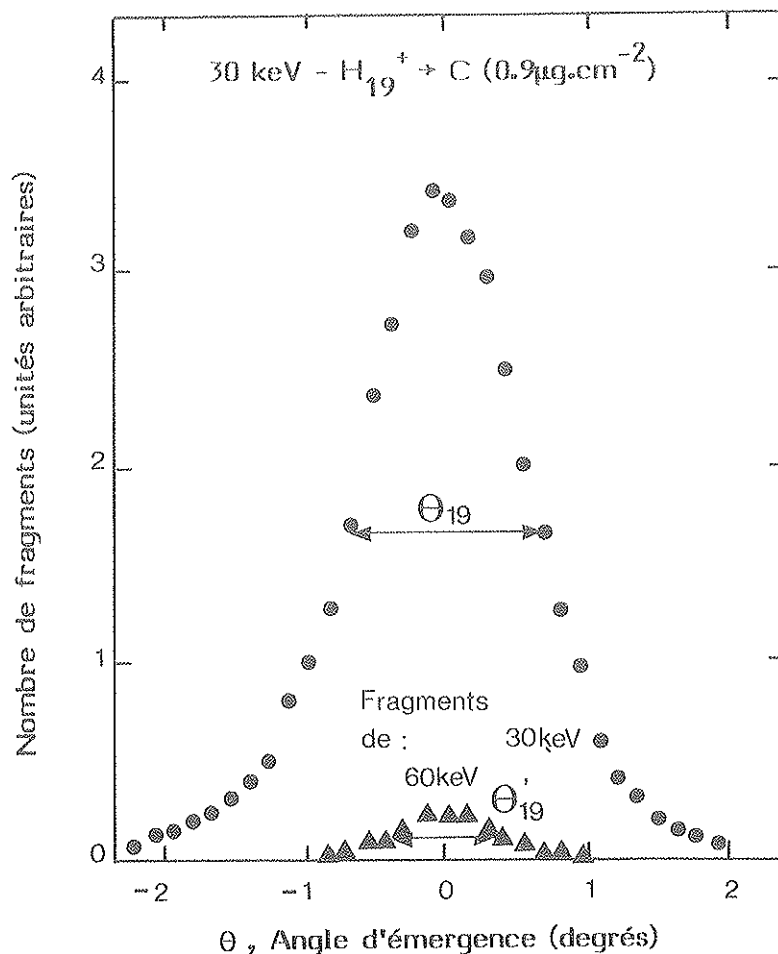


Figure III-8 : Distributions angulaires des fragments de 30 keV et 60 keV issus d'agrégats  $H_{19}^+$  traversant une cible de carbone de  $0,9 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$  d'épaisseur.

### 9 - Influence du ralentissement dans la cible

La fraction neutre  $\phi_0^1$  dans un faisceau d'hydrogène émergeant d'une cible solide est une fonction rapidement décroissante de la vitesse. Or la neutralisation éventuelle de fragments issus de la dissociation d'un agrégat résulte de collisions se produisant au voisinage de la surface de sortie de la cible, et dépend donc de l'énergie des fragments à leur sortie de la cible. Un proton d'énergie incidente  $E_0$  traversant une cible de faible épaisseur subit une perte d'énergie  $\Delta E = S_0 \varepsilon$  où  $S_0$  représente le pouvoir d'arrêt du carbone pour des protons d'énergie  $E_0$ . Un proton de même énergie issu de la dissociation d'un agrégat perd dans une cible de même épaisseur une énergie  $\Delta E'$  a priori différente de  $\Delta E$  à cause des effets de proximités, tout au moins au début de son parcours dans la cible. En effet la mesure de la perte d'énergie d'ions  $H_2^+$  dans des cibles de carbones a montré (53) que le pouvoir d'arrêt par proton excédait de 20 % le pouvoir d'arrêt mesuré avec des protons de même vitesse (à des énergies de l'ordre de 100 keV). Le pouvoir d'arrêt (54) est maximum à 70 keV ( 0,7 keV/p) et vaut 0,6 keV/p à 40 keV/p d'une part et 120 keV/p d'autre part. Pour pouvoir comparer les distributions de charge des fragments à une même vitesse sortante, nous avons calculé pour différentes vitesses du projectile incident, la perte d'énergie  $\Delta E'$  dans chaque cible traversée en utilisant simplement les valeurs des tables de pouvoir d'arrêt pour les protons (la résolution en énergie

de notre dispositif expérimental étant de  $\pm 1$  keV, il n'est pas possible de déduire de cette expérience la perte d'énergie des fragments dans les cibles de carbone). De plus nous négligeons ici la différence de perte d'énergie d'un proton isolé de celle d'un proton issu d'un agrégat. L'erreur qu'on ferait sur la mesure de  $\phi_0^1$  en négligeant la perte d'énergie  $\Delta E$  dans la cible est de 5 % pour la plus épaisse. En effet remarquons que pour des protons de 40 keV la perte d'énergie dans la traversée de la "cible double" ( $(6,3 + 2,2)\mu g.cm^{-2}$ ) n'est pas négligeable :  $\Delta E = 5$  keV,  $\Delta E/E \sim 12\%$ .

## C - MESURES ET RESULTATS

Nous allons étudier les variations des grandeurs mesurées  $\theta_n^0$  et  $\phi_0^n$  en fonction de trois paramètres :

- le nombre de masse  $n$  de l'agrégat incident
- la vitesse  $v$  de l'agrégat incident
- l'épaisseur de la cible traversée.

L'étude de  $\phi_0^n$  nous permettra de mettre en évidence de nouveaux effets collectifs sur les processus de perte et de capture électroniques. Nous analyserons alors les résultats expérimentaux obtenus dans le cadre des théories existantes.

### 1 - Mesure des distributions angulaires.

A titre d'exemple, nous montrons sur la figure III-9 la distribution angulaire des fragments  $H^+$  et  $H^0$  résultant de la dissociation d'agrégats  $H_7^+$  de 80 keV/p dans une feuille de carbone de  $3,4\mu g.cm^{-2}$  d'épaisseur. La courbe en traits pleins représente la distribution de la totalité des fragments ( $H^0 + H^+$ ), la courbe en pointillés celle des atomes neutres ( $H^0$ ). La courbe en traits-pointillés, obtenue par soustraction, représente la distribution angulaire des protons ( $H^+$ ). Nous observons que la largeur à mi-hauteur de la distribution des protons est supérieure à celle des atomes neutres. Ceci est dû au processus de dissociation dans la cible qui peut être décrit de la manière suivante : dès leur entrée dans la feuille, les protons se repoussent mutuellement par interaction coulombienne écrantée. L'énergie cinétique gagnée par chaque proton au cours de cette explosion dépend fortement de sa position initiale dans l'agrégat, et aussi de l'effet d'écran des électrons de la cible, que l'on caractérisera par la distance  $a_d$ . D'après Brandt (20), la distance écran est de l'ordre de  $v_F/\omega_p$ , quand  $v \leq v_F$  (écran statique), et de  $v/\omega_p$ , quand  $v > v_F$  (écran dynamique). Dans le domaine de vitesse des projectiles incidents utilisés dans notre expérience, l'effet d'écran est dynamique, et  $a_d$  varie de 0,6 à 2 Å. Ainsi l'agrégat dissocié traverse-t-il la cible comme un essaim de protons, dont le volume augmente avec la profondeur de pénétration. Sous l'action de la diffusion multiple, les fragments atteignent rapidement une distribution quasi-aléatoire à l'intérieur du volume et en particulier à la sortie de la feuille où leur séparation mutuelle influe sur leur probabilité de neutralisation.

En première approximation nous pouvons faire l'hypothèse qu'en aval de la feuille, les protons contrairement aux atomes neutres continuent à se repousser mutuellement dans le vide ; et c'est pour cette raison que la distribution des protons est plus large. Ainsi, la distribution angulaire des atomes neutres résulte de la répulsion mutuelle des fragments et de la diffusion multiple à l'intérieur de la cible. Dans la suite, nous nous intéresserons principalement à la valeur de  $\theta_n^0$  qui est seule représentative de l'évolution des fragments dans le solide.

### 2 - Résultats des mesures de largeur à mi-hauteur de la distribution des $H^0$ .

La variation de la largeur à mi-hauteur  $\theta_n^0$  avec le nombre de masse  $n$  et pour différentes vitesses à l'émergence d'une cible de  $2,1\mu g.cm^{-2}$  est représentée sur la figure III-10.

La précision globale des mesures est meilleure que 7 %. Notons que les valeurs  $\theta_1^0$  ont été mesurées expérimentalement à 120 et 80 keV, et déduites de ces valeurs pour les autres énergies en admettant que les angles de diffusion multiple varient comme l'inverse de l'énergie (51).

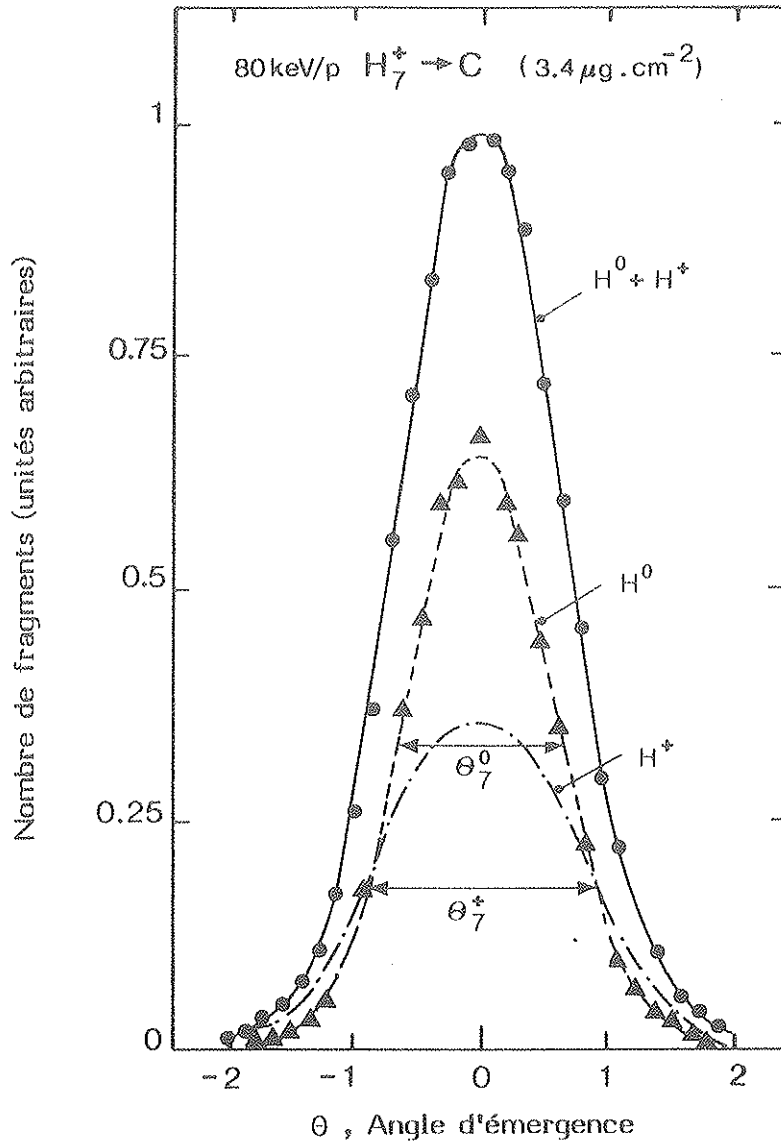


Figure III-9 : Distribution angulaire des fragments  $H^+$  et  $H^0$  résultant de la dissociation d'agrégats  $H_7^+$  de 80 keV/p dans une feuille de carbone de  $3,4 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$  d'épaisseur.

**a - Variation de la largeur avec n**

Nous observons qu'à une vitesse donnée  $\theta_n^0$  augmente avec n, puis tend vers une valeur constante pour  $n > 5$ , quelle que soit la vitesse du projectile. Il est vrai qu'à 120 keV/p, la saturation n'est pas clairement observé car la tension de l'accélérateur est limitée à 630 kV.

Comme nous l'avons suggéré précédemment, l'étude de  $\theta_n^0$  peut nous donner des informations sur la structure de l'agrégat incident. La distance écran  $a_d$  étant de l'ordre de la distance moyenne entre chaque proton de l'agrégat incident ( $\sim 1 \text{ \AA}$ ), il est raisonnable de supposer que durant l'explosion écrantée chaque proton interagit seulement avec ses plus proches voisins. Ainsi la saturation de  $\theta_n^0$  à  $n \sim 5$  pourrait-elle signifier que le nombre moyen de proches voisins pour un proton dans un agrégat de nombre de masse élevé est d'environ quatre atomes ; conclusion qui est en accord avec les prévisions théoriques sur la structure des agrégats d'hydrogène (55, 56). En effet ces agrégats de masse impaire sont vraisemblablement constitués d'un coeur  $H_3^+$  entouré de molécules  $H_2$  (figure III-11).

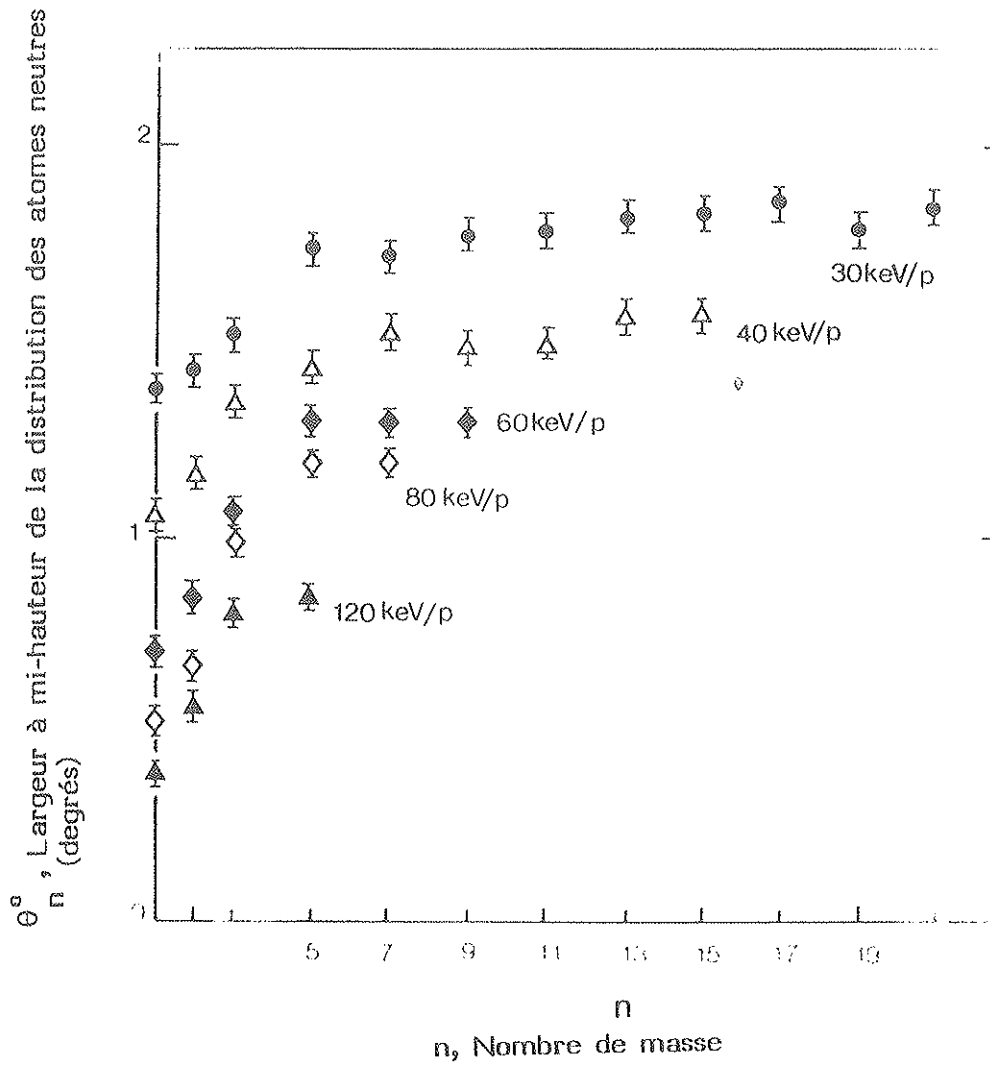


Figure III-10 : Variation de la largeur à mi-hauteur  $\theta_n^0$  de la distribution des atomes neutres, pour différentes vitesses, à l'émergence d'une feuille de  $2,1 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$  d'épaisseur.

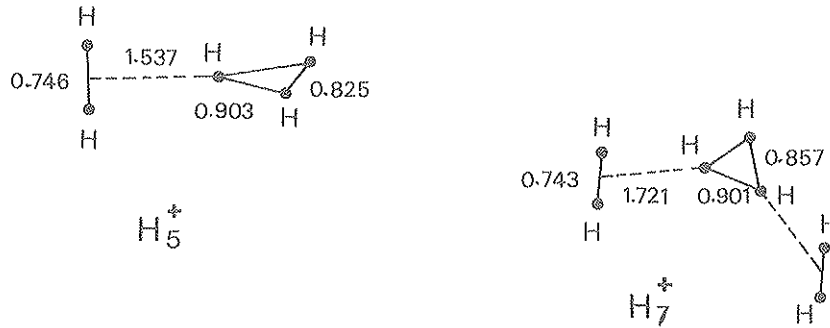


Figure III-11 : Prédiction théorique concernant la structure des  $H_5^+$  et  $H_7^+$  (les distances entre les protons sont en Å) (d'après (55)).

D'autre part, la contribution de l'explosion écrantée à la largeur  $\theta_n^0$  est directement reliée à la distance moyenne entre les protons à l'entrée de la cible. Les effets moléculaires sur la diffusion multiple étant négligeables (57), on peut interpréter l'invariance de  $\theta_n^0$  avec  $n$  pour  $n > 5$ , par la constance de la distance interprotonique moyenne entre les plus proches voisins dans tous les agrégats lourds d'hydrogène. En particulier la densité de l'agrégat ne devrait pas dépendre de son nombre de masse, conclusion qui est en bon accord avec les résultats expérimentaux obtenus précédemment par le groupe C.A.S. à partir de la dissociation d'agrégats dans des cibles gazeuses (52, 56).

#### b - Variation de la largeur avec la vitesse.

Sur la figure III-10, nous observons que pour un nombre de masse donné  $\theta_n^0$  diminue lorsque la vitesse du projectile augmente. On peut voir aussi que la variation de  $\theta_n^0$  avec la vitesse ne semble pas dépendre de  $n$  et suit la même variation avec  $v$  que l'angle de diffusion multiple (mesuré avec des protons incidents). Il semble que cette variation avec la vitesse de  $\theta_n^0$  résulte en fait de deux effets opposés liés à l'explosion :

L'énergie cinétique finale des fragments est proportionnelle d'une part à la force de répulsion qui s'exerce entre les fragments et d'autre part au temps pendant lequel cette force est appliquée ; ainsi pour une épaisseur donnée, une augmentation de vitesse se traduit par une augmentation de la distance écran dynamique et donc de la force de répulsion mais par une diminution du temps de répulsion.

#### c - Variation de la largeur avec l'épaisseur de la cible.

Nous montrons sur les figures III-12 à 14 les variations de  $\theta_n^0$  avec la vitesse et le nombre de masse pour trois épaisseurs de cible. L'allure de ces courbes est comparable à celle des courbes discutées précédemment. De plus le seuil de saturation de ( $n \sim 5$ ) ne semble pas dépendre de l'épaisseur de la cible. Cela est probablement dû au fait que l'explosion est déjà achevée dans la cible la plus mince. Ceci confirme l'hypothèse déjà émise que pendant l'explosion dans le solide chaque proton n'interagit qu'avec ses plus proches voisins. A cause de

l'effet d'écran, l'explosion n'est effective que dans les premières couches atomiques de la cible, ensuite les fragments ne se repoussent pratiquement plus.

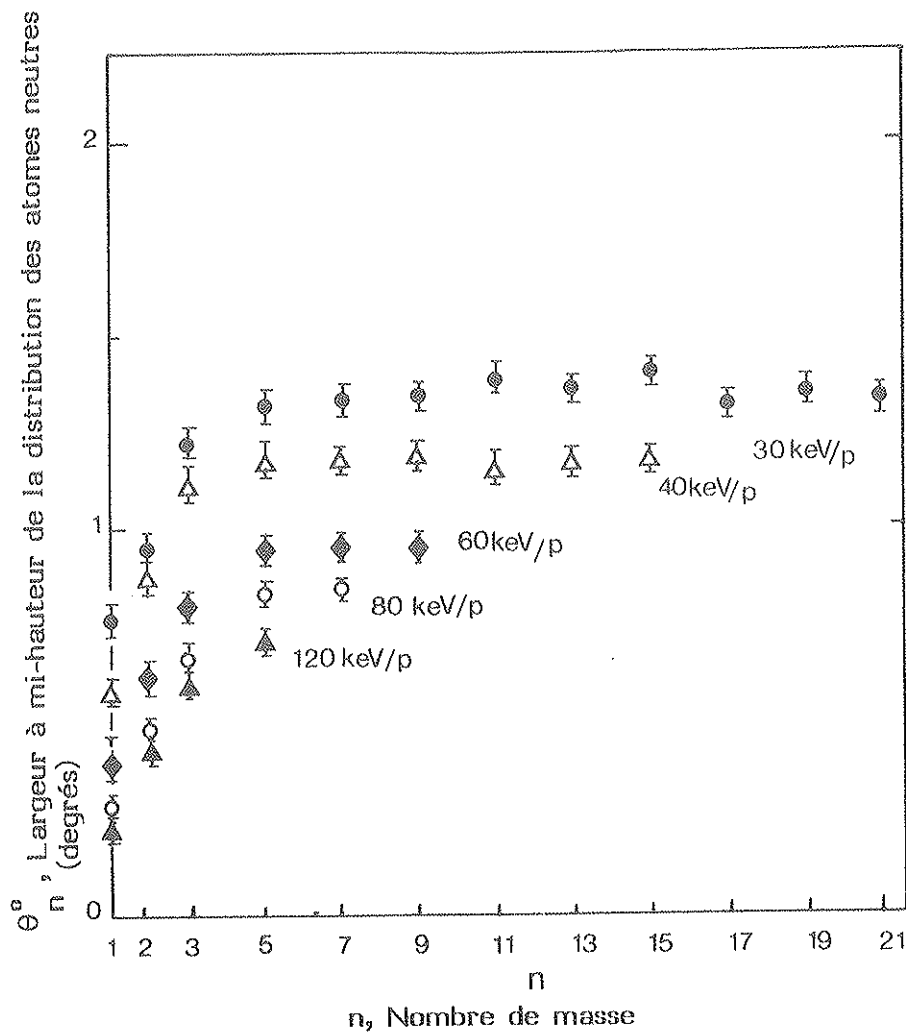


Figure III-12 : Variation de la largeur à mi-hauteur  $\theta_n^0$  de la distribution des atomes neutres, pour différentes vitesses, à l'émergence d'une feuille de  $0,9 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ .

Sur la figure III-15 est représentée l'évolution de  $\theta_n^0$  en fonction de l'épaisseur de la cible pour différents projectiles ( $1 \leq n \leq 5$ ) de même vitesse (80 keV/p). Nous observons pour chaque projectile une augmentation régulière de  $\theta_n^0$  avec l'épaisseur qui a la même allure pour tous les projectiles, y compris  $H^+$ , et ne semble donc pas dépendre de  $n$ , mais uniquement de la diffusion multiple.

Après déconvolution de l'effet de la diffusion multiple à une vitesse donnée et pour un agrégat donné, la variation résiduelle de  $\theta_n^0$  en fonction de l'épaisseur représente l'évolution, en fonction du temps passé dans la feuille, de la vitesse transverse acquise par chaque proton au cours de l'explosion. Nous supposons, dans la suite, que les distributions angulaires expérimentales  $N_n^0(\theta)$  sont sensiblement gaussiennes. Ceci n'est pas tout à fait rigoureux mais permet d'avoir un ordre de grandeur de cette contribution  $\theta_{nc}^0$  qui peut alors s'écrire

$$\theta_{nc}^0 \sim (\theta_n^0 - \theta_D^2)^{1/2} \quad (III - 1)$$



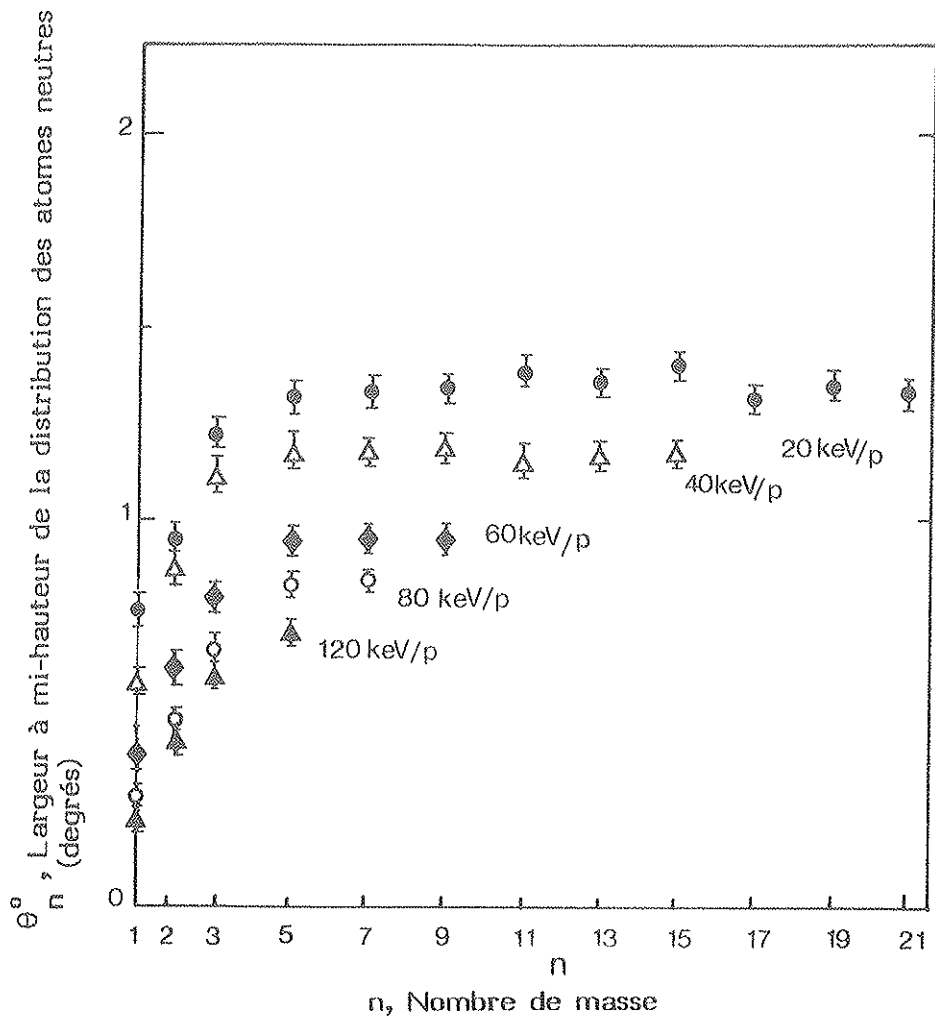


Figure III-13 : Variation de la largeur à mi-hauteur  $\theta_n^0$  de la distribution des atomes neutres, pour différentes vitesses, à l'émergence d'une feuille de  $1,5 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$  d'épaisseur.

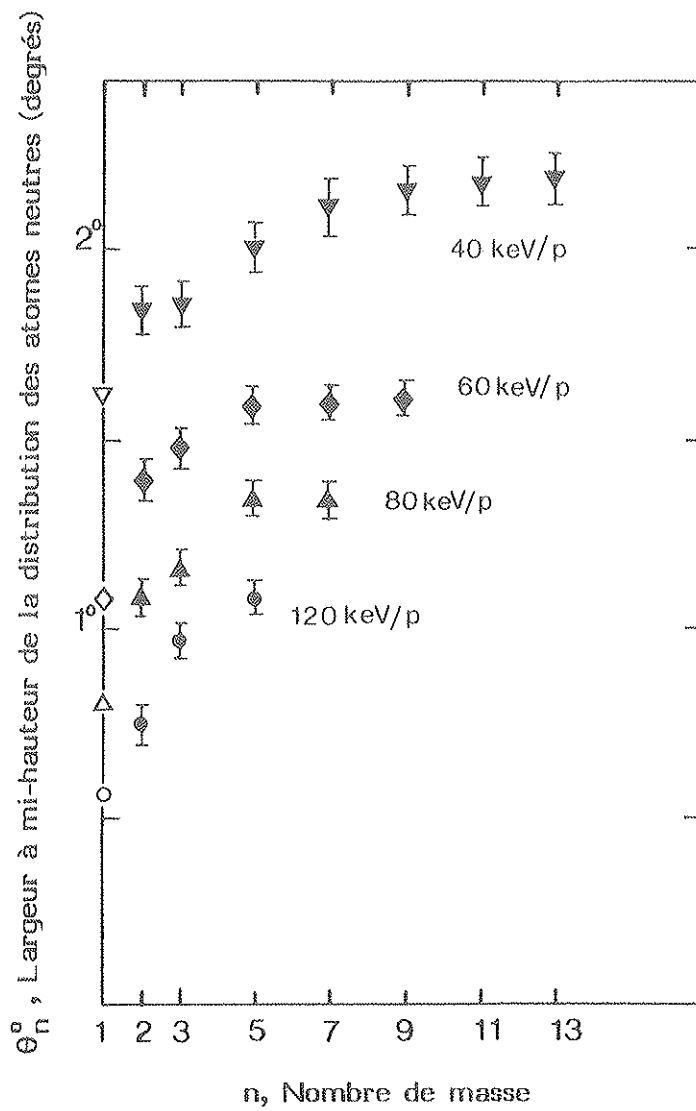


Figure III-14 : Variation de la largeur à mi-hauteur  $\theta_n^0$  de la distribution des atomes neutres, pour différentes vitesses, à l'émergence d'une feuille de  $3,4 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$  d'épaisseur.

$\theta_n^0$ , Largeur à mi-hauteur de la distribution des atomes neutres (degrés)

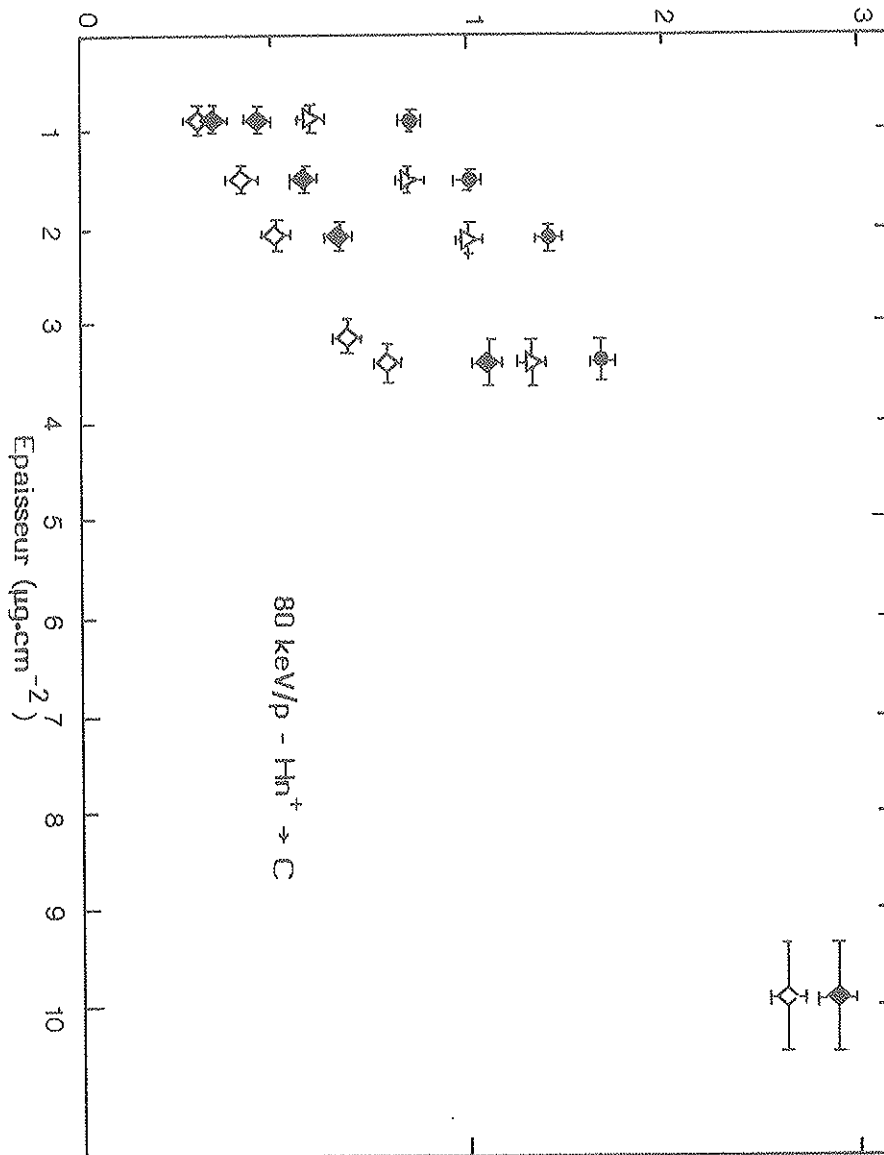


Figure III-15 : Variation de  $\theta_n^0$  ( $1 \leq n \leq 5$ ) avec l'épaisseur de la cible pour des projectiles de 80 keV/p.

Nous nous intéresserons dans la suite au cas le plus simple, c'est à dire à la valeur  $\theta_{2c}^0$ . Sur la figure III-16 est reportée la variation de  $\theta_{2c}^0$  en fonction de l'épaisseur traversée par des projectiles  $H_2^+$  de 80 keV/p. Nous observons qu'au-delà de  $2 \mu g \cdot cm^{-2}$ , l'angle  $\theta_{2c}^0$  n'augmente plus avec l'épaisseur. Comparons ces valeurs expérimentales à celles prévues par un modèle simple d'explosion écrantée.

- Modèle d'explosion coulombienne écrantée de la molécule  $H_2^+$  dans une cible solide.

Afin de décrire pour les paires de protons l'évolution des angles et des distances internucléaires en fonction du temps passé dans la cible, nous sommes amenés à faire quelques hypothèses simplificatrices sur les conditions initiales : en première approximation nous négligeons les énergies de vibration et de rotation de la molécule  $H_2^+$  incidente.

Avec ces conditions initiales, nous pouvons alors décrire à chaque instant  $t$  la variation de la distance interatomique  $R(t)$  et la variation de la vitesse relative  $u$  à partir de l'équation du mouvement relatif. Dans le système du centre de masse (C.M.) on a :

$$\mu \ddot{R} = -\frac{e^2}{R} \exp\left(-\frac{R}{a_d}\right) / R^2 \quad (III - 2)$$

avec  $R(0) = 1,3 \text{ \AA}$

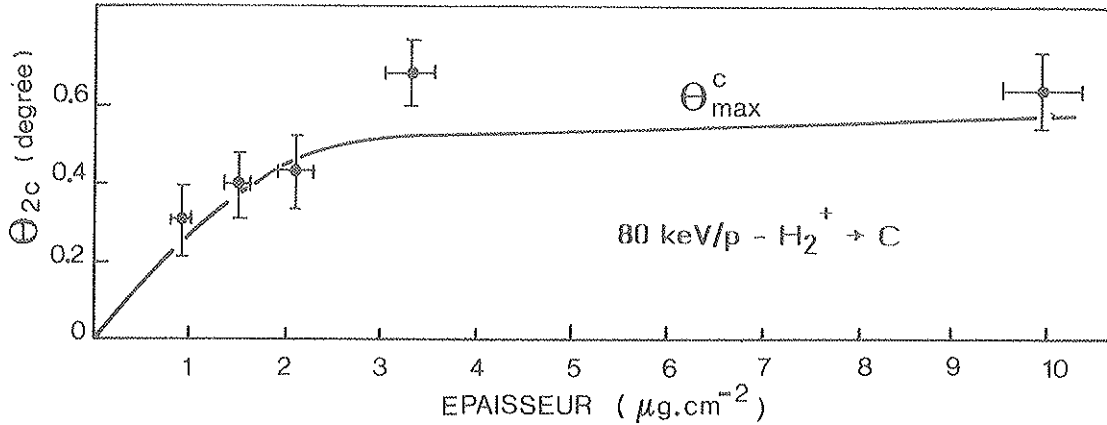


Figure III-16 : Variation de l'angle  $\theta_{2c}^0$  en fonction de l'épaisseur traversée par des ions  $H_2^+$  de 80 keV/p. La courbe continue représente la valeur calculée à partir d'un modèle d'explosion.

Le diagramme vectoriel de la figure III-18 permet d'établir la correspondance entre la vitesse finale  $u$  d'un proton dans le système (CM) et sa déviation  $\theta_c$  dans le système du laboratoire. On voit sur la figure III-17 que :

$$\theta_c = \frac{u \sin \phi}{v} \quad (III - 3)$$

où  $\phi$  caractérise l'orientation initiale de l'ion moléculaire incident de vitesse  $v$ .

Pour une molécule alignée on a  $\theta_c = 0$ , et pour une molécule transverse  $\theta_c^{max} = \frac{u}{v}$ .

Nous avons porté sur la figure III-16 les valeurs calculées de  $\theta_c^{max}$  pour différentes vitesses et épaisseurs de cible. Remarquons que la distribution angulaire de deux protons se repoussant par interaction coulombienne est sensiblement constante entre  $-\theta_c^{max}/2$  et  $\theta_c^{max}/2$  et nulle ailleurs ; ainsi nous prendrons  $\theta_c^{max}$  comme valeur de la largeur à mi-hauteur. Nous constatons que les valeurs sont en bon accord avec les valeurs expérimentales. A partir d'une certaine épaisseur ( $\sim 1,5 \mu\text{g.cm}^{-2}$ )  $\theta_{2c}^0$  ne semble plus dépendre de l'épaisseur ; cela signifie que la vitesse transverse acquise par chaque proton reste constante à partir de cette épaisseur.

En conclusion, dans le domaine de vitesse de notre étude expérimentale l'effet d'écran des électrons du milieu est si efficace que les fragments ne se repoussent que faiblement dans le solide. En conséquence, à la surface de sortie, les fragments de la dissociation d'un agrégat de vitesse donnée, seront à des distances internucléaires très semblables qu'ils aient traversé une cible de  $0,9 \mu\text{g.cm}^{-2}$  ou de  $2 \mu\text{g.cm}^{-2}$  d'épaisseur. Cependant à faible vitesse la diffusion multiple tend à augmenter sensiblement la valeur finale de  $R$ . L'étude de  $\theta_n^0$  nous a permis aussi de montrer que la densité d'un agrégat  $H_n^+$  est sensiblement indépendante de son nombre de masse  $n$  et que chaque proton dans l'agrégat a en moyenne quatre proches voisins, en accord ce que l'on peut déduire des prédictions théoriques de Yamaguchi et al. (55) concernant la structure de ces agrégats.

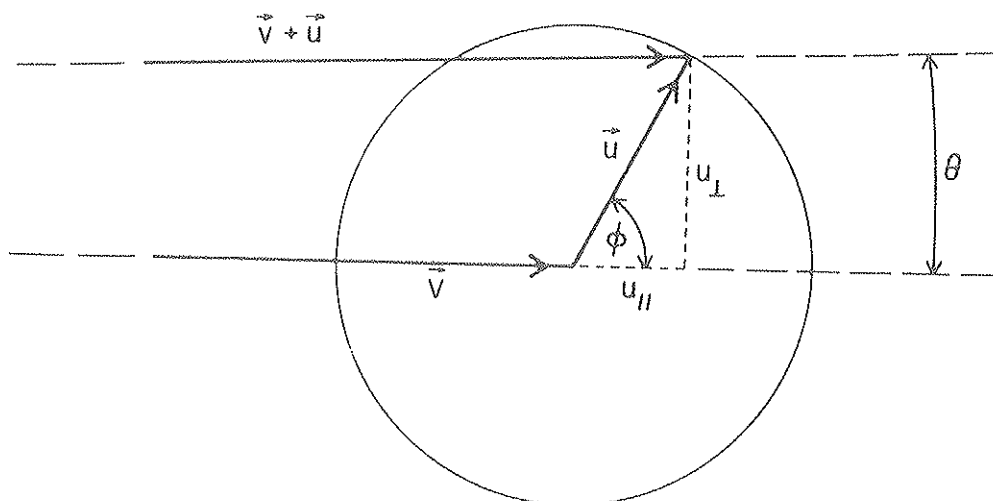


Figure III-17 : Diagramme vectoriel de l'explosion.

### 3 - Résultats des mesures de fractions d'atomes neutres.

Nous allons étudier les mesures concernant la fraction d'atomes neutres par proton de l'agrégat incident. Nous nous intéresserons tout d'abord au cas atomique ( $\phi_0^1$ ), puis au cas moléculaire ( $\phi_0^2$ ) et enfin aux agrégats ( $\phi_0^n$ ).

#### a - Mesure de référence.

Afin d'étudier les effets de proximité sur l'état de charge des fragments d'un agrégat, il est nécessaire de se référer à la fraction neutre  $\phi_0^1$  obtenue avec des faisceaux atomiques de même vitesse. L'étude de  $\phi_0^1$  dans ce domaine de vitesse a déjà été faite auparavant (58, 59), nous l'avons utilisée pour tester notre dispositif expérimental. Nous avons ainsi mesuré  $\phi_0^1$  soit à l'aide de la technique de la "cible double", soit en utilisant un faisceau incident de protons.

#### i - Dépendance avec la vitesse.

La variation expérimentale de  $\phi_0^1$  en fonction de la vitesse du projectile émergent est reportée sur la figure III-18. Le faible écart entre les vitesses incidentes et émergentes, dû à la perte d'énergie dans la cible, a été calculé à partir des tables de pouvoir d'arrêt (94). Nous observons que  $\phi_0^1$  est une fonction rapidement décroissante de  $v$  : dans l'intervalle  $1, 1 \leq v/v_0 \leq 3, 5$ ,  $\phi_0^1$  varie d'environ deux ordres de grandeur. En fait  $\phi_0^1$  suit une loi moyenne de décroissance en  $v^{-1}$  dans l'intervalle  $1, 1v_0 \leq v \leq 1,5v_0$ , en  $v^{-2}$  dans l'intervalle  $1,5v_0 \leq v \leq 2v_0$  et en  $v^{-5,5}$  pour  $v \leq 2v_0$ .

La figure III-18 montre que nos valeurs expérimentales sont en très bon accord avec celles de de Chateau-Thierry et Gladieux (58) d'une part, et Kreussler et Sizmann (59) d'autre part. Ceci nous montre que notre dispositif expérimental fonctionne correctement.

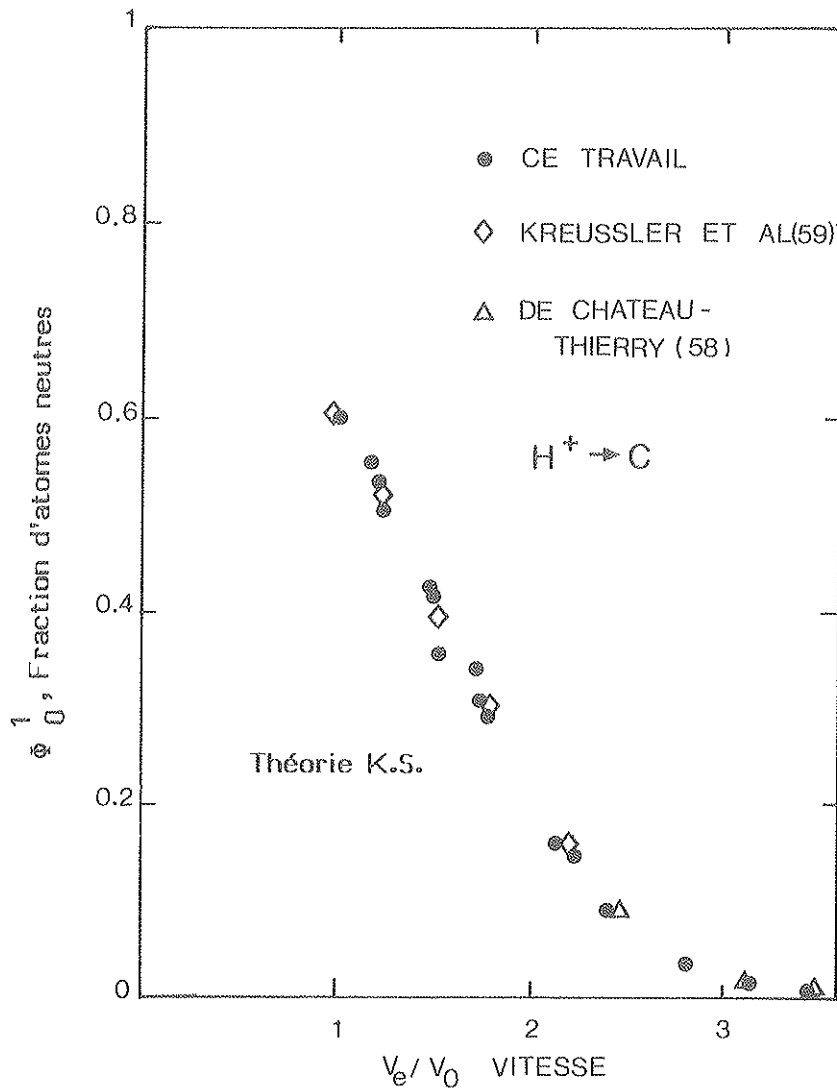


Figure III-18 : Variation de la fraction  $\phi_0^1$  d'atomes neutres avec la vitesse à l'émergence.

ii - Interprétation des résultats dans le cadre des théories existantes.

Le modèle de Bohr, valable pour  $v > v_0$ , ne peut pas rendre compte de nos résultats mettant en jeu des vitesses inférieures à  $2v_0$ . Sur la figure III-18 sont reportés les résultats de nos calculs établis à partir des prédictions théoriques de Kreussler et Sizmann (59) (K.S.) fondées sur la théorie de Brandt et Sizmann (cf Ch I, bi x 2b). Ils correspondent à des valeurs nettement en deçà des valeurs expérimentales. Or leur propres prédictions reproduisent correctement leurs résultats expérimentaux ainsi que ceux de de Chateau-Thierry (31). Ce désaccord pourrait être dû à l'une des deux raisons suivantes :

- un des paramètres donné dans leur publication (59) n'aurait pas la bonne valeur.
- ils utilisèrent pour calculer  $\phi_0^1$  une autre expression non explicitée, utilisée par de Chateau-Thierry (référénciée dans sa Thèse d'Etat (31)).

Ce désaccord entre les modèles théoriques et l'expérience montre que les concepts fondamentaux d'é-

change de charge dans le domaine de vitesse qui nous intéresse sont encore mal cernés.

Il nous a paru intéressant d'étendre notre étude à la recherche d'effets collectifs dans les échanges de charge avec des projectiles moléculaires : les processus de capture et de perte électronique sont perturbés ici par la proximité entre les fragments. Dans cette optique, l'étude de la fraction  $\phi_0^2$  est fondamentale.

b - Etude de la fraction neutre obtenue avec  $H_2^+$ .

i - Revue des résultats expérimentaux antérieurs.

Il a déjà été mis en évidence que les effets moléculaires observés sur la distribution des états de charge à la sortie d'une cible solide sont directement reliés à la distance entre les fragments à la surface de sortie de la feuille.

En particulier, le groupe C.A.S (45) a mesuré pour des projectiles incidents  $H_2^+$  et  $H_3^+$  les rapports des fractions neutres  $\phi_0^2/\phi_0^1$  et  $\phi_0^3/\phi_0^1$  à l'émergence d'une feuille de carbone dans le domaine de vitesse 4,5 - 10 $v_0$ . Les variations observées de  $\phi_0^{2,3}/\phi_0^1$  en fonction de la distance R entre les fragments à la sortie sont représentées sur la figure III-19. R est calculé ici dans le cadre d'un modèle d'explosion coulombienne pure car l'effet d'écran des électrons du milieu est négligeable à ces hautes vitesses.

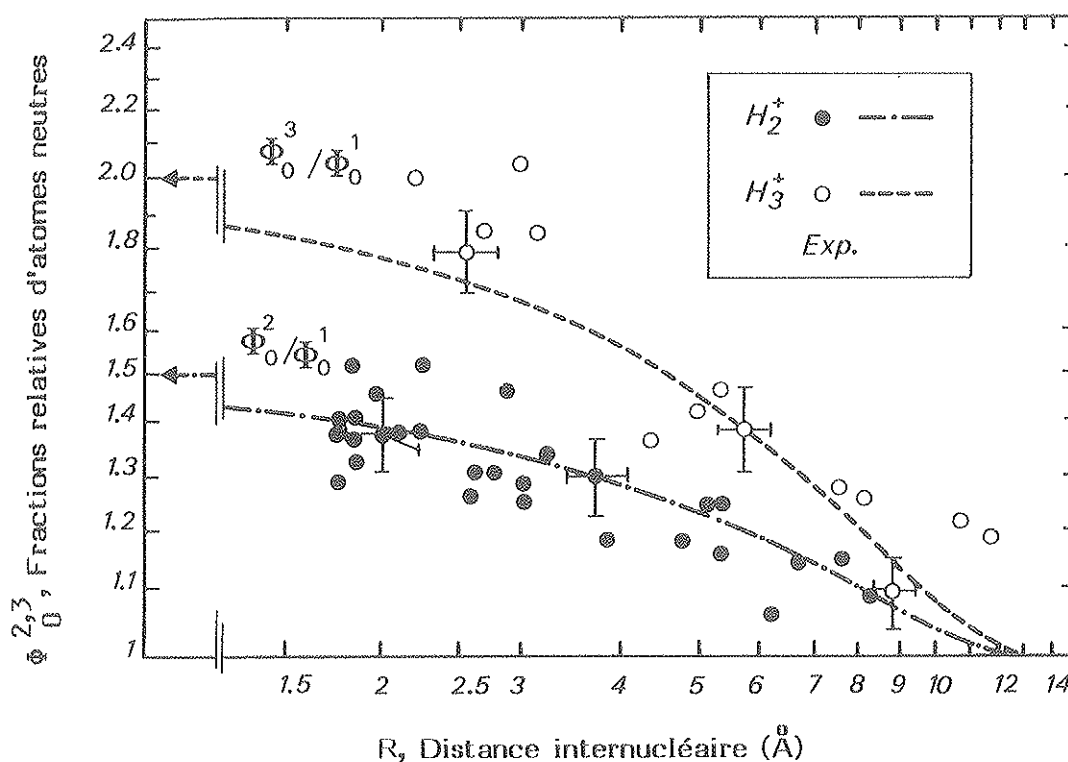


Figure III-19 : Variation des fractions relatives  $\phi_0^{2,3}/\phi_0^1$  en fonction de la distance internucléaire (d'après (45)).

Trois observations principales ont été faites :

- A une distance interprotonique donnée l'excès relatif de production d'atomes neutres  $\Delta\phi_0^2/\phi_0^1 = (\phi_0^2 - \phi_0^1)/\phi_0^1$  ne dépend pas de la vitesse des projectiles.
- A une distance interprotonique de l'ordre de 3 Å ce rapport vaut environ 0,4 puis décroît et devient nul au-delà de 15 Å.
- L'effet observé avec  $H_3^+$  est deux fois plus élevé qu'avec  $H_2^+$ .

Ces résultats avaient alors été interprétés par un modèle géométrique simple, fondé sur les concepts suivants :

- Certains électrons émergent de la cible dans un état libre et à la vitesse des protons émergents, ce sont les électrons "convoyés" (61,62).
- Lorsque ce sont maintenant deux protons voisins qui émergent, il y a une certaine probabilité pour qu'un électron cible arraché par l'un, et convoyé par les deux protons, soit capturé par l'autre.

Ceci peut expliquer la surproduction de particules neutres qui est observée dans cette expérience. L'évaluation quantitative de cet effet a été effectuée en supposant que, pour être capturé par un proton un électron doit se trouver à une distance inférieure à  $R_A = 15\text{\AA}/2$ , ( $2R_A$  est donc la séparation maximum entre les deux protons à l'émergence pour que l'effet soit observable). Si  $S_1$  et  $S_2$  sont les sphères de rayon  $R_A$  associées à chaque proton de l'ion moléculaire  $H_2^+$ , un effet moléculaire apparaît lorsque  $R < 2R_A$ , c'est à dire quand  $S_1$  et  $S_2$  se recouvrent (la notion de fonction d'onde n'intervient pas dans ce recouvrement). Sur la figure III-19, nous montrons les variations de  $\phi_0^{2,3} / \phi_0^1$  avec  $R$  ainsi obtenues. Ce modèle reproduit bien les valeurs expérimentales et à ces énergies les rapports  $\phi_0^2 / \phi_0^1$  et  $\phi_0^3 / \phi_0^1$  ne dépendent pas de la vitesse.

### ii - Nos résultats expérimentaux.

Sur la figure III-20 nous montrons la variation de  $\phi_0^2 / \phi_0^1$  avec la vitesse  $v_e$  des fragments émergents obtenue pour des projectiles  $H_2^+$  de vitesse comprise entre 1,1 et  $3,5v_0$  émergeant de feuilles de carbone de différentes épaisseurs.

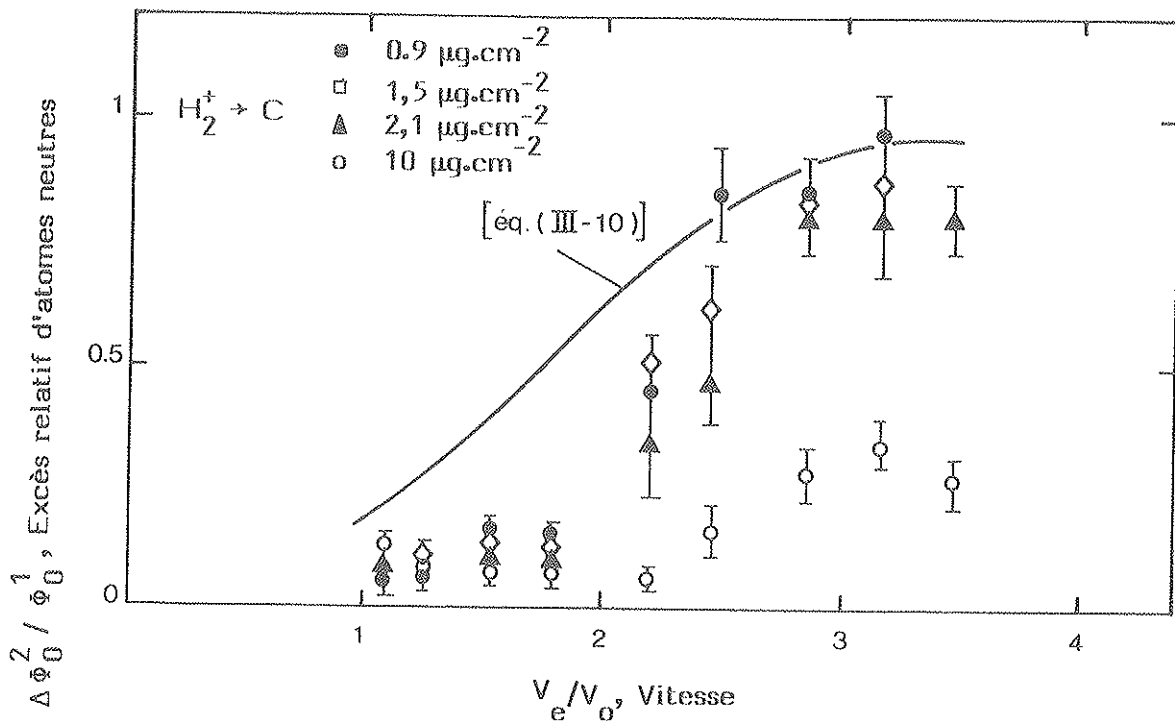


Figure III-20 : Variation avec la vitesse des fragments, de l'excès relatif d'atomes neutres.

#### ii.1 - Variation avec l'épaisseur de l'excès relatif d'atomes neutres.

Pour des épaisseurs comprises entre 0,9 et  $2 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ , nous observons que  $\Delta \phi_0^2 / \phi_0^1$  ne dépend pas ou peu de l'épaisseur traversée à une vitesse donnée. Cela confirme un résultat obtenu lors de l'étude des largeurs à mi-hauteur des distributions angulaires,  $\theta_2^0$  : dans ces expériences la séparation internucléaire  $R$  entre les fragments à l'émergence varie peu avec l'épaisseur traversée ; ces distances internucléaires étant typiquement de l'ordre de 2 Å. Remarquons que  $R$  a dû être calculé à partir du modèle d'explosion coulombienne écrantée (cf. § C2c-) car, à ces basses vitesses, l'effet d'écran n'est plus négligeable. Pour des cibles plus épaisses,



notamment celle de  $10 \mu\text{g.cm}^{-2}$ , nous observons un effet plus faible à une vitesse donnée car à l'émergence d'une telle cible la séparation moyenne entre les fragments peut atteindre typiquement  $5 \text{ \AA}$ .

### ii.2 - Variation avec la vitesse de l'excès relatif des atomes neutres.

Contrairement à ce qui se passe aux vitesses plus élevées,  $\Delta\phi_0^2 / \phi_0^1$  varie ici avec la vitesse. De plus la variation de  $\Delta\phi_0^2 / \phi_0^1$  est sensiblement indépendante de l'épaisseur.

Avec la cible la plus mince ( $0,9 \mu\text{g.cm}^{-2}$ ) ce rapport  $\Delta\phi_0^2 / \phi_0^1$  est de 0,05 dans le domaine de vitesse  $1,1 - 2v_0$  puis croît jusqu'à atteindre 0,8 à  $2,8v_0$ , et reste sensiblement constant pour des vitesses supérieures à  $2,8v_0$ . Ainsi nous observons ici pour la première fois que la valeur du rapport  $\Delta\phi_0^2 / \phi_0^1$  ne dépend pas seulement de la distance internucléaire à l'émergence mais aussi de la vitesse à l'émergence, l'effet collectif disparaissant à basse vitesse. Nous ne pouvons donc pas ici utiliser le modèle géométrique décrit précédemment car il ignore la vitesse des projectiles.

### ii.3 - Variation avec la distance internucléaire à l'émergence de l'excès relatif d'atomes neutres.

Nous avons vu que pour des vitesses supérieures à environ  $2,8v_0$ ,  $\Delta\phi_0^2 / \phi_0^1$  ne varie pas avec la vitesse et vaut environ 0,8 (pour des épaisseurs comprises entre  $0,9$  et  $2 \mu\text{g.cm}^{-2}$ ). Dans ce domaine de vitesse nous allons maintenant étudier la variation de  $\Delta\phi_0^2 / \phi_0^1$  avec la distance interprotonique  $R$  à l'émergence (figure III-21).

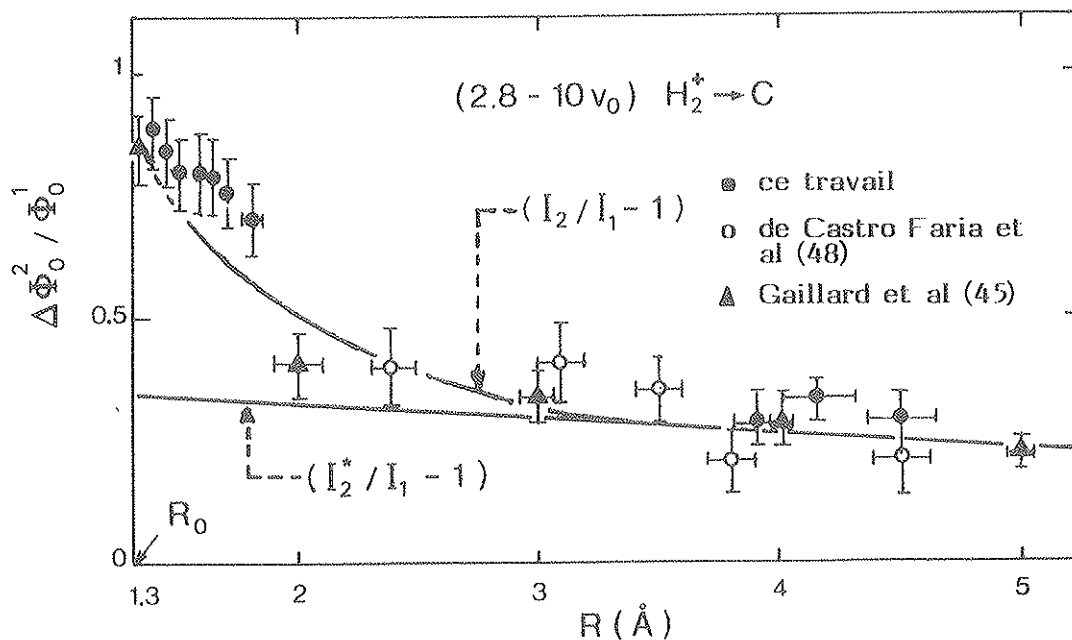


Figure III-21 : Variation avec la distance internucléaire de l'excès relatif d'atomes neutres.

Remarquons, d'une part, que pour les cibles les plus minces l'effet d'écran conduit à des valeurs  $R$  qui sont typiquement de l'ordre de  $1,6 \text{ \AA}$ , et, d'autre part, qu'à ces vitesses ( $> 2,8v_0$ ) la diffusion multiple devient négligeable. Pour des valeurs de  $R$  faibles ( $R < 1,8 \text{ \AA}$ ),  $\Delta\phi_0^2 / \phi_0^1 \sim 0,8$  et pour  $R > 2 \text{ \AA}$ ,  $\Delta\phi_0^2 / \phi_0^1 \sim 0,3$ . Nous observons une décroissance très rapide du rapport entre  $1,6$  et  $2 \text{ \AA}$ . Nous avons inclus dans les résultats ceux qui ont été obtenus antérieurement par le groupe C.A.S. (45) avec des projectiles  $H_2^+$  de vitesse  $4,5 - 10v_0$  et ceux de de Castro Faria et al. (48) avec des ions  $D_2^+$  de vitesse  $4,5v_0$ .

On observe que tous ces résultats se rassemblent sur une seule et même courbe qui montre que  $\Delta\phi_0^2 / \phi_0^1$

semble ne pas dépendre de la vitesse tant que  $v > 3v_0$ .

### iii - Interprétation des résultats.

Aucun modèle existant ne permet de rendre compte de ces résultats. Nous proposons d'utiliser ce qui est connu des processus d'échange de charge, pour interpréter ces résultats et discuter leurs conséquences sur les processus de perte et de capture.

Nous avons vu que la fraction atomique neutre pour un système à deux états de charge, pouvait s'exprimer simplement en fonction des sections efficaces de perte et de capture  $\sigma_{l,at}$  et  $\sigma_{c,at}$  d'un électron par un proton :

$$\phi_0^1 = \frac{\tau_1}{1 + \tau_1} \quad (III - 4)$$

où

$$\tau_1 = \frac{\phi_0^1}{1 - \phi_0^1} \quad (III - 5)$$

avec

$$\tau_1 = \left( \frac{\sigma_c}{\sigma_l} \right)_{at}$$

De la même manière on peut considérer pour un projectile moléculaire  $H_2^+$ , le rapport

$$\tau_2 = \left( \frac{\sigma_c}{\sigma_l} \right)_{mol} = \frac{\phi_0^2}{1 - \phi_0^2} \quad (III - 6)$$

où  $\phi_0^2$  est la fraction neutre par proton de la molécule incidente et  $\sigma_{l,mol}$  et  $\sigma_{c,mol}$  sont les sections efficaces de perte et de capture d'un électron à partir de deux protons corrélés. Nous supposons ici que la capture d'un électron par deux protons (dans un état lié ou autodissociatif) est possible à l'intérieur du solide.

#### iii.1 - Variation de $\phi_0^2$ à haute vitesse

Pour de très faibles distances interprotoniques, et à suffisamment haute vitesse ( $v \leq 3v_0$ ) l'expérience montre que  $\phi_0^2 \sim 2\phi_0^1$ .

A haute vitesse  $\tau_1 \ll 1$ , et les relations (III 4-6) s'écrivent :

$$\phi_0^1 \sim \tau_1$$

et

$$\phi_0^2 \sim \tau_2 \quad (III - 7)$$

Donc  $\tau_2 \sim 2\tau_1$ , ce qui entraîne

$$\left( \frac{\sigma_c}{\sigma_l} \right)_{mol} \sim 2 \left( \frac{\sigma_c}{\sigma_l} \right)_{at}$$

Or il a été déduit (6) à partir des mesures expérimentales de la fraction neutre  $\phi_0^2$  avec des ions moléculaires  $H_2^+$  de 0,6 et 1,2 MeV/p, que la section efficace de perte de l'ion moléculaire  $H_2^+$  est deux fois plus faible que la section efficace de perte de l'atome  $H^0$ .

De plus, deux protons distants de quelques Å peuvent capturer un électron dans un état moléculaire (fondamental ou excité), ou perdre un électron à partir de cet état. Sur la figure III-22 qui représente les courbes d'énergie potentielle de la molécule  $H_2^+$  nous observons que pour une distance de l'ordre de 1,5 Å l'énergie  $I_2$  nécessaire à l'ionisation de l'état moléculaire fondamental  $H_2^+(1s\sigma_g)$  vers le continuum ( $H^+ + H^+$ ) se trouve être de l'ordre de deux fois l'énergie d'ionisation  $I_1$  d'un atome isolé. Or nous venons de voir que  $\sigma_{l,mol} \sim \frac{1}{2}\sigma_{l,at}$ , donc la section efficace de perte varie sensiblement en  $\frac{1}{2}$ ,  $I$  étant l'énergie d'ionisation du projectile considéré.

Sur la figure III-21 est reportée la variation avec la distance internucléaire R des rapports  $(I_2 - I_1)/I$  et  $(I_2^* - I_1)/I_1$  où  $I_2^*$  est l'énergie nécessaire pour ioniser l'état moléculaire dissociatif  $H_2^+(2p\sigma_u)$  vers l'état libre ( $H^+ + H^+$ ). Nous observons que pour des distances R inférieures à 1,8 Å le rapport  $\Delta\phi_0^2 / \phi_0^1$  est celui que l'on attend pour un état moléculaire  $H_2^+(1s\sigma_g)$ , et pour des distances supérieures à 2 Å celui de l'état moléculaire  $H_2^+(2p\sigma_u)$ . Ainsi la mesure de  $\Delta\phi_0^2 / \phi_0^1$  en fonction de la séparation internucléaire R révèle le rôle joué par les orbitales moléculaires liées de la molécule  $H_2^+$ .

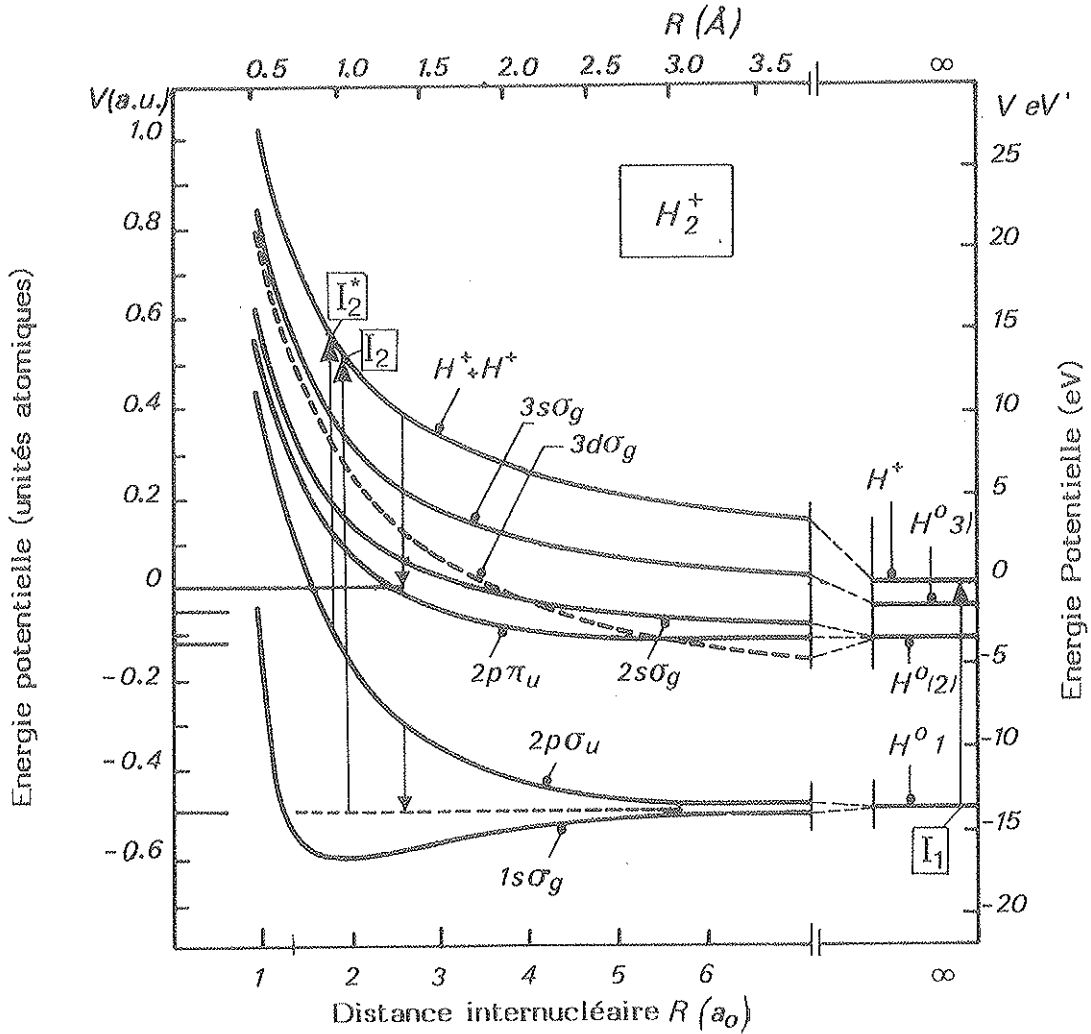


Figure III-22 : Etats de la molécule  $H_2^+$

Ces résultats semblent aussi montrer que, pour  $H_2^+$ , la capture est peu affectée par des effets collectifs. En effet la relation  $\sigma_{L_{m,01}} \sim \frac{1}{2}\sigma_{L_{at}}$  et l'équation (III-7) montrent que la section efficace de capture moléculaire est sensiblement égale à la section efficace de capture atomique.

### iii.2 - Variation de $\phi_0^2$ à basse vitesse

Pour des vitesses supérieures à  $2,8v_0$  nous avons vu que  $\phi_0^1$  et  $\phi_0^2$  étaient de l'ordre de  $\tau_1$  et  $\tau_2$  respectivement. Mais à basse vitesse,  $\sigma_c$  et  $\sigma_l$  deviennent du même ordre de grandeur, et :

$$\phi_0^2 = \frac{\tau_2}{1 + \tau_2} \quad (III - 8)$$

Nous avons vu que  $\tau_2$  est de l'ordre de  $2\tau_1$  ainsi

$$\phi_0^2 \sim \frac{2\tau_1}{1 + 2\tau_1} \quad (III - 9)$$

soit

$$\Delta\phi_0^2/\phi_0^1 \sim \frac{1 - \phi_0^1}{1 + \phi_0^1} \quad (III - 10)$$

A partir de nos mesures de  $\phi_0^1$  (figure III-18) nous avons pu porter en trait plein sur la figure III-20 la variation de  $\Delta\phi_0^2/\phi_0^1$  avec la vitesse  $v_e$  de l'atome émergent donnée par cette relation. Nous observons que l'allure générale de  $\Delta\phi_0^2/\phi_0^1$  obtenue expérimentalement est assez bien reproduite par la relation (III-10). Toutefois entre 1,1 et  $2,2v_0$  notre calcul surestime la valeur de  $\Delta\phi_0^2/\phi_0^1$ . Ceci est dû au fait que la relation III-7 a été établie à haute vitesse, alors qu'à basse vitesse la section efficace de perte de l'ion moléculaire  $H_2^+$  n'est plus deux fois plus faible que la section efficace de perte de l'atome  $H^0$ . En effet,  $\sigma_{L_{at}}$  augmente lorsque la vitesse diminue mais ne peut de toute manière excéder la valeur de la section efficace géométrique de  $\pi a_0^2$  l'atome  $H^0(1s)$ . Dans le modèle de Bohr qui a été établi dans notre domaine de vitesse (cf. ch.I, éq.(I-22)), on a

$$\sigma_l \sim \pi a_0^2 Z_1^{-1} Z_2^{\frac{3}{2}} \frac{V_0}{V}$$

A partir de  $v = 3,3v_0$ ,  $\sigma_l$  atteint la valeur limite  $\pi a_0^2$ . Il résulte de ces considérations que pour des vitesses inférieures à  $3v_0$ ,  $\sigma_{L_{mat}} > \frac{1}{2}\sigma_{L_{at}}$  et

$$\tau_2 < 2\tau_1$$

C'est pourquoi les valeurs expérimentales  $\Delta\phi_0^2/\phi_0^1$  décroissent plus vite avec la vitesse entre 1,1 $v_0$  et  $3v_0$  que les valeurs calculées à partir de (III-10). Ainsi les effets collectifs deviennent-ils très faibles à basse vitesse.

#### c - Étude de la fraction neutre obtenue avec $H_n^+$

Nous allons maintenant nous intéresser au cas où il n'y a pas seulement deux protons mais un essaim de  $n$  protons à l'émergence d'une cible de carbone. La figure III-23 représente la variation de la fraction  $\phi_0^n$  d'atomes neutres par proton en fonction du nombre de masse  $n$ , pour différentes vitesses du projectile traversant une cible d'épaisseur  $1,5\mu g.cm^{-2}$ .

##### i - Variation de $\phi_0^n$ avec la vitesse

Pour un agrégat  $H_n^+$  donné, nous observons que la fraction neutre est d'autant plus élevée que la vitesse du projectile est faible mais surtout que la fraction relative  $\phi_0^n/\phi_0^1$  est d'autant plus faible que la vitesse est faible. Par exemple pour  $H_5^+$ ,  $\phi_0^5/\phi_0^1$  est égal à 1,2 à 130 keV/p et à 2 à 120 keV/p. Or nous avons vu pour des ions  $H_2^+$  à basse vitesse ( $v < 2,8v_0$ ) que  $\phi_0^2/\phi_0^1$  augmentait avec la vitesse du projectile. Nous pouvons déduire de la figure III-23 que pour chaque projectile  $H_n^+$  le rapport  $\phi_0^n/\phi_0^1$  augmente avec la vitesse du projectile.

##### ii - Variation de $\phi_0^n$ avec le nombre de masse $n$ .

A une vitesse donnée, nous observons que  $\phi_0^n$  augmente linéairement avec  $n$  puis cesse de croître pour  $n \leq 7$ , quelle que soit la vitesse du projectile. L'augmentation linéaire de  $\phi_0^n$  avec  $n$  est en bon accord qualitatif avec les résultats observés par le groupe C.A.S.(45) dans le cas limité d'ions incidents  $H_3^+$  et  $H_2^+$ . L'augmentation linéaire de  $\phi_0^n$  avec  $n$  signifie que la distance moyenne entre les protons est constante à l'émergence, quel que soit le projectile incident. Ainsi la densité de l'essaim des fragments à l'émergence pour une vitesse et une épaisseur de cible données ne doit-elle pas dépendre de  $n$ .

Sur les figures III - 24 - 26, nous montrons les variations de  $\phi_0^n$  avec la vitesse et avec le nombre de masse  $n$  pour trois épaisseurs de cible. Les courbes ont des allures comparables à celles des courbes discutées précédemment. De plus un seuil de saturation apparaît aux masses  $n \sim 7$  et ce seuil ne semble pas dépendre de l'épaisseur. Ceci semble montrer que le nombre moyen de proche voisins d'un proton à l'émergence est 6. Nous pouvons interpréter ce résultat de la manière suivante :

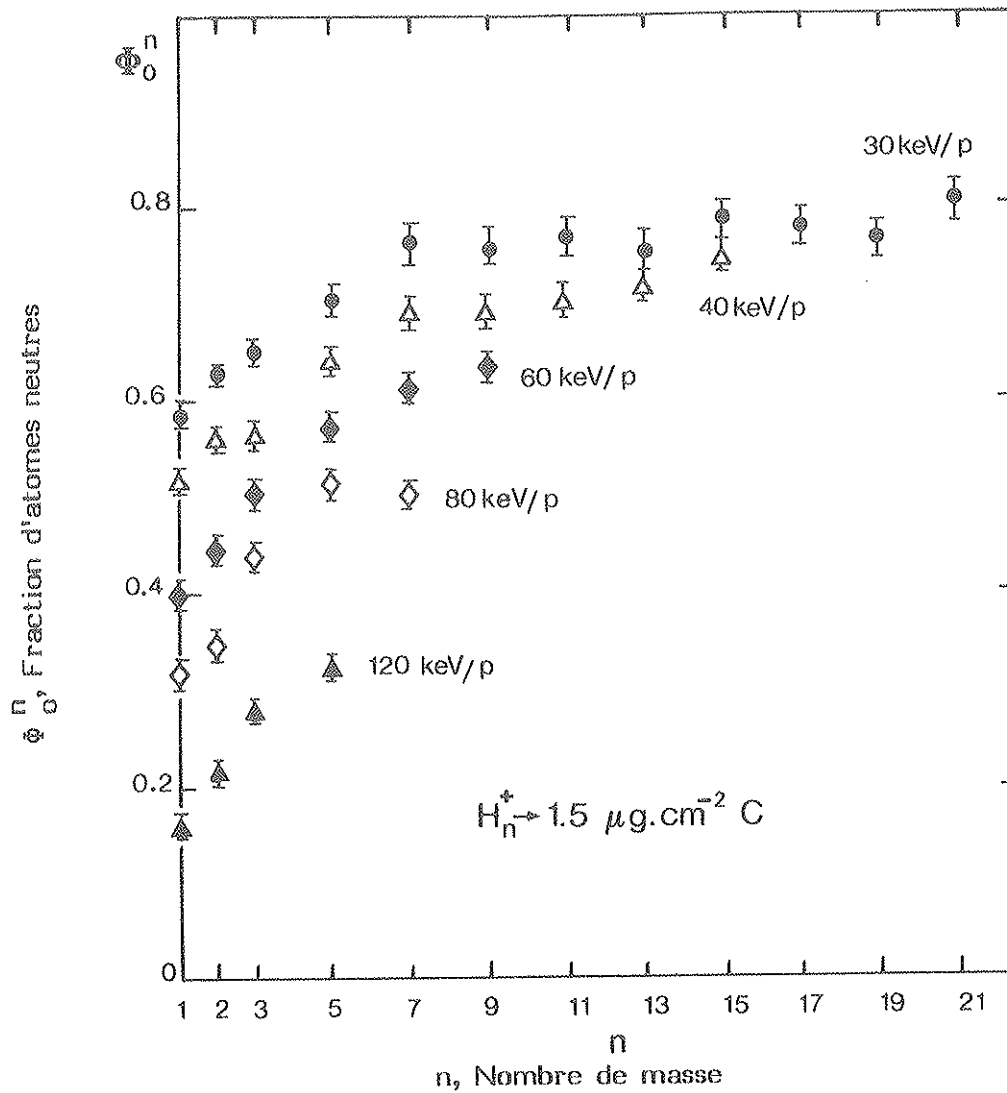


Figure III-23 : Variation de la fraction d'atomes neutres  $\phi_0^n$  par proton incident en fonction du nombre de masse, pour différentes vitesses des projectiles.

Nous avons vu que chaque proton à l'entrée de la cible a en moyenne quatre proches voisins, résultat en accord avec les prédictions théoriques concernant la structure de l'agrégat incident. Au cours de son voyage dans la feuille, chaque fragment subit sur les atomes du milieu des diffusions multiples qui rendent sa position dans l'essaim aléatoire. A l'émergence, nous pouvons supposer que le nombre de proches voisins d'un proton situé au centre de l'essaim est égal au nombre de protons que l'on peut mettre dans une sphère centrée autour de ce proton. Ce nombre est égal à 12. Cependant pour connaître le nombre moyen de proche voisin il faut tenir compte de la position du proton dans la sphère (en surface ou à l'intérieur du volume). On trouve alors un nombre moyen de proche voisin qui est environ de 6,5, valeur très proche de la valeur expérimentale. Remarquons que cette interprétation implique que les effets de proximité sur la neutralisation des protons à l'émergence de la feuille ne sont ressentis que par les proches voisins d'un fragment. Au-delà les fragments s'ignorent. De plus, le fait que le seuil de saturation à ( $n = 7$ ) soit le même pour toutes les épaisseurs montre que la distance entre les fragments à l'émergence n'est pas un paramètre critique vis à vis des effets observés.

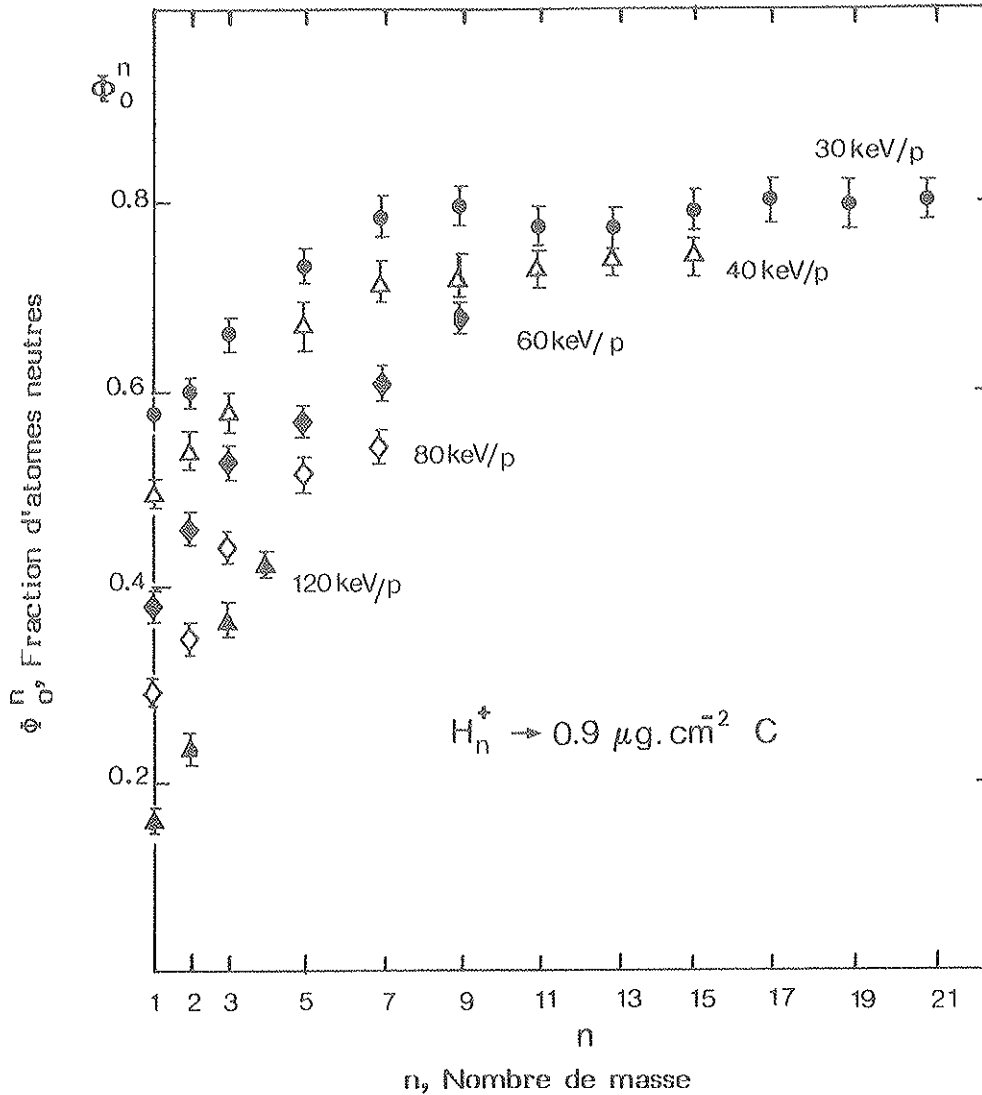


Figure III-24 : Variation de la fraction d'atomes neutres  $\phi_0^n$  par proton incident en fonction du nombre de masse, pour différentes vitesses des projectiles.

#### D - CONCLUSION

Nous avons montré que les informations que l'on peut extraire des expériences de collisions agrégat-solide sont de deux sortes. D'une part la distribution angulaire des fragments est conditionnée par les premières couches atomiques de la feuille et donne donc des renseignements sur la structure des agrégats incidents. En particulier, nous avons montré que la densité des agrégats d'hydrogène ne dépend pas de leur nombre de masse et que chaque proton dans l'agrégat a en moyenne quatre proches voisins. D'autre part, la distribution des états de charge à l'émergence dépend fortement de la taille de l'essaim de protons dans les dernières couches de la feuille et donne des informations sur les processus fondamentaux de l'interaction ion-solide.

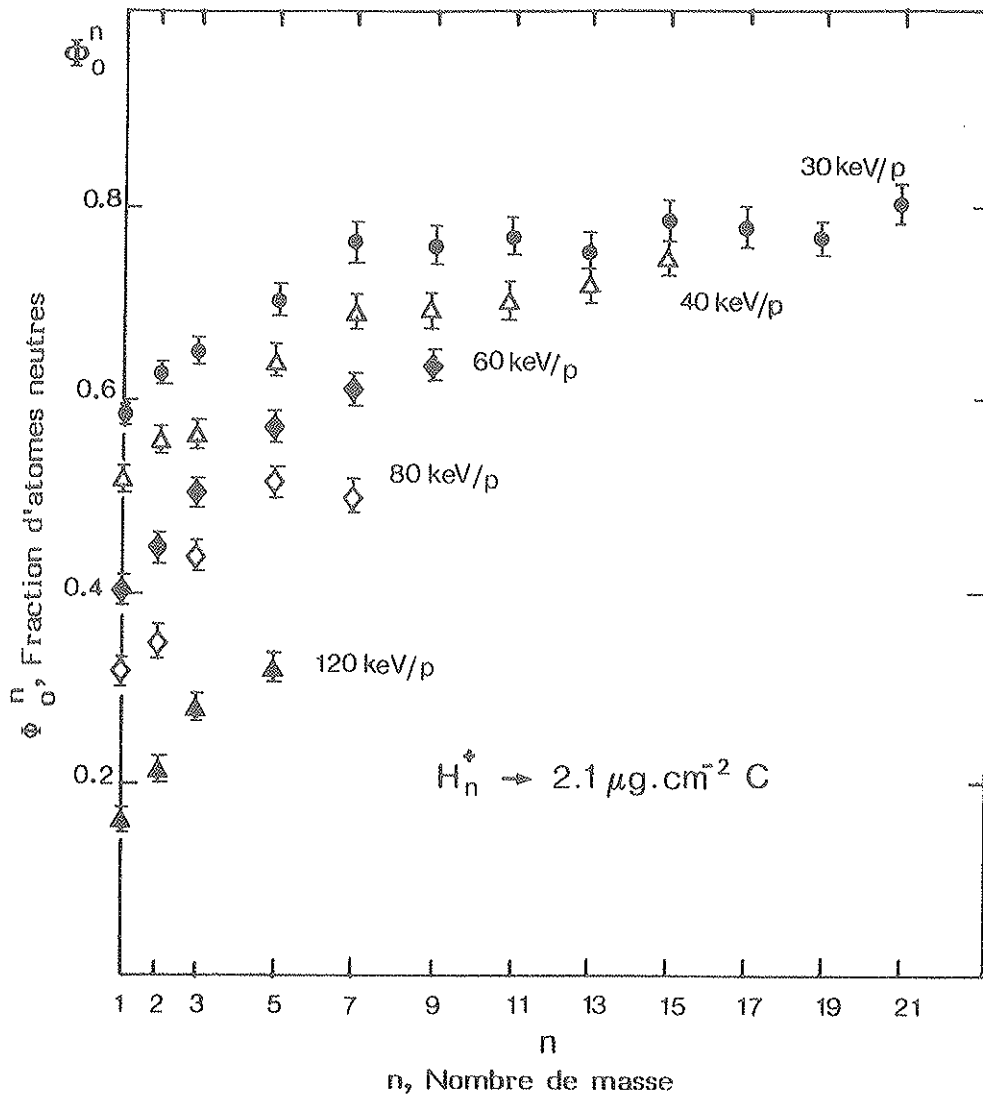


Figure III-25 : Variation de la fraction d'atomes neutres  $\phi_0^n$  par proton incident en fonction du nombre de masse, pour différentes vitesses des projectiles.

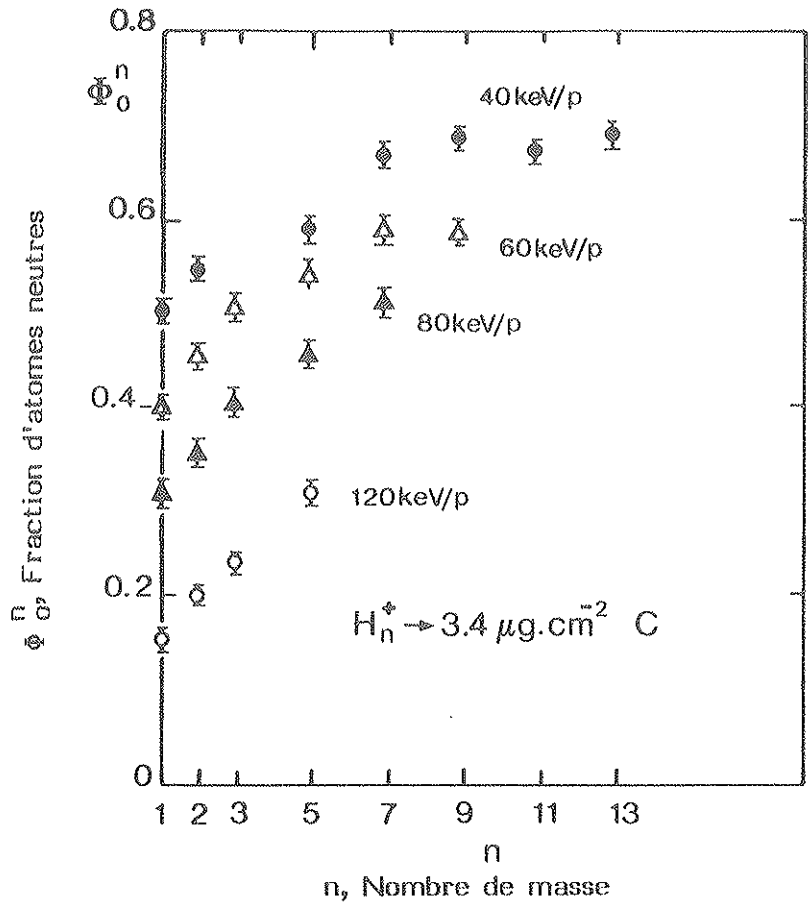


Figure III-26 : Variation de la fraction d'atomes neutres  $\phi_0^n$  par proton incident en fonction du nombre de masse, pour différentes vitesses des projectiles.



## CHAPITRE IV

### OBSERVATION DE LA CAPTURE RADIATIVE D'UN ELECTRON DANS LES NIVEAUX K, L ET M D'IONS Xe $54^+$ , $53^+$ ET $52^+$ DE 25 MeV/u CANALISES DANS UN CRISTAL DE SILICIUM.

#### A - INTRODUCTION

J'ai participé aux expériences faites au GANIL dont le but était d'étudier le phénomène d'échange de charge entre un ion lourd rapide fortement épluché et un cristal, en conditions de canalisation. Des études de ce type avaient déjà été réalisées à plus basse énergie avec des ions plus légers auprès du tandem d'Oak Ridge (63). Elles avaient mis en évidence de très intéressantes manifestations de la canalisation sur les échanges de charge pour des ions Carbone et Oxygène : le "gel" des états de charge des ions canalisés, l'excitation cohérente des ions canalisés conduisant à l'ionisation et la capture électronique radiative (CR). L'utilisation d'ions plus lourds et plus rapides fournis par le GANIL nous a permis de prolonger cette étude dans de meilleures conditions.

Pour différentes charges incidentes (54, 53 et 52) d'ions Xénon de 25 MeV/u, nous avons mesuré les distributions de charge après traversée d'un cristal mince de Silicium en conditions de canalisation. L'étude des résultats obtenus permettra de déterminer l'influence des paramètres d'impact de collision sur les processus de perte et de capture électronique. Et ce travail démontrera que la canalisation offre une unique opportunité d'étudier la CR. L'étude simultanée des états de charge et de l'intensité de la CR nous permettra de montrer que la capture électronique par des particules canalisées est dominée par la CR.

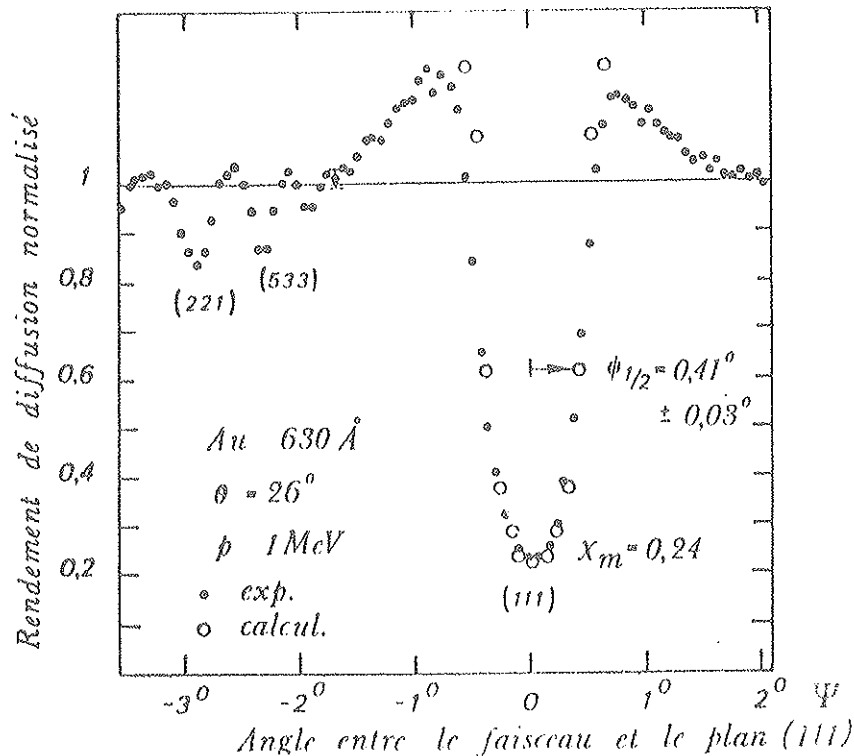


Figure IV - 1 : Variation du rendement de diffusion d'un cristal mince en fonction de l'angle  $\psi$  entre le faisceau incident de protons de 1 MeV et un plan (111) : (•) valeurs expérimentales : épaisseur du cristal 630 Å,  $\theta = 26^\circ$  (o) valeurs calculées pour une épaisseur de 700 Å (d'après (64)).

## B - NOTIONS DE CANALISATION

L'interaction d'un faisceau de particules chargées avec la matière dépend beaucoup des paramètres d'impact des collisions entre les particules incidentes et les atomes de la cible. Or, lorsque le faisceau incident fait un angle très faible avec une direction cristalline d'un solide monocristallin, les différents paramètres d'impact associés aux collisions successives avec les atomes de la cible sont corrélés entre eux, et non plus distribués de façon aléatoire comme ce serait le cas pour une cible amorphe. Ceci perturbe fortement des phénomènes physiques tels que la diffusion de Rutherford, la perte d'énergie, l'émission d'électrons secondaires, etc... (64-66).

La figure IV-1 montre par exemple le résultat d'une mesure de diffusion de Rutherford obtenu par Poizat et Remillieux (64) avec un cristal d'or, on observe une forte extinction de la diffusion de Rutherford lorsque le faisceau de protons utilisé coïncide avec une direction de plan cristallin.

Pour expliquer les effets de la canalisation Lindhard (67) a montré en 1965 qu'une particule chargée en mouvement rapide le long d'une direction d'axe ou de plan cristallin subit une série de légères déflexions par les atomes successifs de la rangée ou du plan. La trajectoire de cette particule à l'intérieur du cristal peut être calculée en moyennant le potentiel cristallin le long de la direction cristalline considérée. Ainsi dans cette approximation le potentiel  $V(r)$  ne dépend que de la distance  $r$ , dans le plan transverse, à l'axe (plan) cristallin le plus proche. Une particule chargée positivement ayant une énergie transverse suffisamment faible rencontre ainsi une barrière de potentiel qui l'empêche de s'approcher des rangées atomiques. Dans le cas d'une incidence le long d'une direction de plan, cette particule chargée positive peut se trouver ainsi piégée entre deux plans cristallins tout au long de sa pénétration dans le cristal ; la particule est alors dite "canalisée" le long du plan cristallin.

Lindhard a montré que pour qu'il y ait canalisation il faut que l'angle d'incidence par rapport à un axe ou à un plan cristallin soit inférieur à un angle  $\psi_c$  appelé angle critique de canalisation (67).

$$\psi_c = \left( \frac{2V_0}{E_1} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (IV - 1)$$

$V_0$  est la profondeur du puits et  $E_1$  l'énergie de la particule incidente.

Confinées dans les régions du réseau éloignées des rangées (ou des plans) atomiques, les particules canalisées ne peuvent pas subir avec les atomes du réseau des interactions mettant en jeu des paramètres d'impact inférieurs à la distance minimum d'approche d'une rangée cristalline : diffusion sous grand-angle, réaction nucléaire, capture électronique non radiative ...

L'intérêt de l'étude de la CR par des ions canalisés est dû aux raisons suivantes :

- les ions canalisés restent pour la plupart d'entre eux "gelés" dans leur état de charge initial,
- la canalisation atténue fortement tous les autres processus d'interaction conduisant à l'émission de photons dans la même gamme d'énergie ce qui favorise l'observation de la CR.

## C - METHODES EXPERIMENTALES

Dans ce paragraphe, nous allons décrire le dispositif expérimental de l'expérience entreprise par la collaboration CANIL au GANIL pour mesurer les distributions des états de charge d'ions Xénon très épluchés émergeant d'un cristal mince de Silicium ainsi que le nombre et l'énergie des photons émis par ces ions canalisés.

### 1 - Choix des paramètres expérimentaux.

#### a - Divergence angulaire du faisceau incident.

Une étude expérimentale en conditions de canalisation nécessite une définition angulaire de la direction des particules incidentes inférieure à l'angle critique de canalisation. Une expérience préliminaire (68) a montré que sur la ligne LISE des faisceaux d'excellentes émittances permettent ce type d'étude.

#### b - Nature de l'ion.

Pour étudier le processus de CR par un ion canalisé dans les meilleures conditions, l'idéal est d'utiliser les ions les plus lourds possibles à l'énergie la plus faible compatible avec un état de charge moyen très élevé à l'équilibre. Nous avons choisi d'étudier la CR avec des ions Xénon de charge  $52^+$ ,  $53^+$  et  $54^+$  de 25 MeV/u. L'énergie des photons émis est de l'ordre de 50 keV (d'après éq. (I-38)). Ces photons sont détectés avec un détecteur de Germanium intrinsèque avec peu de fond puisque le rayonnement X caractéristique du projectile n'excède pas  $Z_1^2 Ry$  ( $\sim 40$  keV) et que la coupure du rayonnement de freinage des électrons est de  $4 \frac{m}{M} E_1$  ( $\sim 43$  keV).

Nous avons obtenu le maximum d'intensité d'ions Xénon de charge  $52^+$ ,  $53^+$  et  $54^+$  de 25 MeV/u à partir de la distribution de charge d'ions Xe, à l'émergence d'une cible de Béryllium de  $2 \text{ mg.cm}^{-2}$  placée en amont de la ligne LISE.

#### c - Epaisseur de la cible.

En ce qui concerne le choix de l'épaisseur de la cible, nous avons dû faire un compromis. En effet lorsque l'épaisseur du cristal est faible, le nombre d'événements CR augmente linéairement avec l'épaisseur tant qu'il y a un "gel" important de l'état de charge incident. Mais à partir d'une certaine épaisseur, l'état de charge incident est de moins en moins gelé et le nombre d'événements CR n'augmente plus avec l'épaisseur. Nous avons choisi d'utiliser un cristal de Silicium de  $17 \mu\text{m}$  d'épaisseur et  $0,7 \text{ cm}^2$  de surface. Notons que le Silicium est un des rares cristaux que l'on sache faire très mince et de bonne qualité.

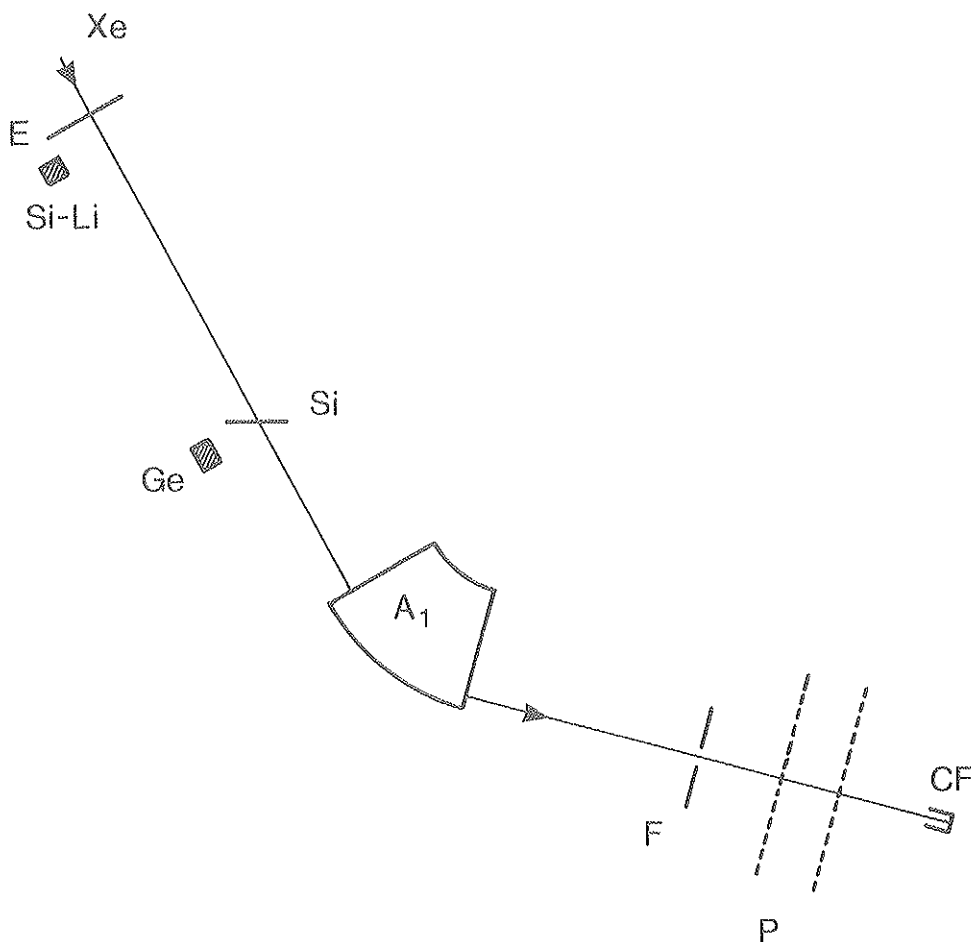


Figure IV-2 : Schéma du dispositif expérimental. E : Echantillonneur ; Si-Li : Détecteur Silicium-Lithium ; Si : Cristal de Silicium ; GE : Détecteur Germanium ; A<sub>1</sub> : Spectromètre magnétique ; F : Fente ; P : Chambre à fils ; CF : Cage de Faraday.

## 2 - Dispositif expérimental.

Le dispositif expérimental est schématisé sur la figure IV-2. Avant d'atteindre le cristal, le faisceau est périodiquement arrêté par un échantillonneur tournant dont les palettes en Argent émettent des rayons X caractéristiques de l'Argent sous l'impact du faisceau. Le taux d'émission X mesuré par un détecteur Si-Li est proportionnel au nombre d'ions incidents.

L'ensemble cristal-porte-cible est monté sur un goniomètre de haute précision. Ce goniomètre permet deux rotations autour de deux axes perpendiculaires et une translation. Le détecteur de Germanium intrinsèque est positionné à 90° par rapport à la direction du faisceau incident. Les ions Xénon transmis par le cristal sont alors analysés en charge et en énergie par un spectromètre magnétique associé à une chambre à fils. L'expérience de canalisation a été effectuée dans la direction axiale  $\langle 110 \rangle$ , à environ 35° par rapport à l'incidence normale qui est pour les cristaux du type cubique faces centrées comme le Silicium, l'axe le plus dense le long duquel se trouvent donc les champs cristallins les plus forts.

## 3 - Méthode d'alignement du cristal.

Sur la figure IV-3 est représentée la projection stéréographique des directions de plans et d'axes cristallins principaux autour de la direction  $\langle 110 \rangle$ . Dans ce repère  $(\varphi_1, \varphi_2)$  du cristal, une incidence donnée du faisceau correspond à un point A dont les coordonnées  $\varphi_1(A)$  et  $\varphi_2(A)$  sont a priori inconnues.

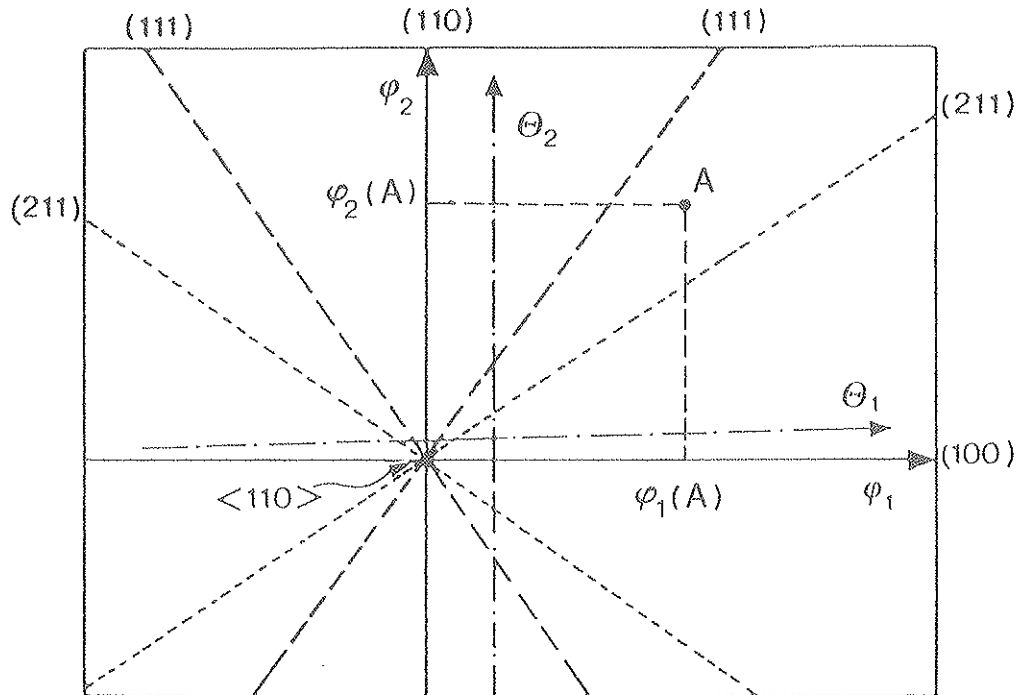


Figure IV-3 : Projection stéréographique des plans cristallins principaux autour de la direction  $\langle 110 \rangle$ .

L'orientation du cristal par rapport au faisceau est définie par deux directions perpendiculaires (indiquées sur la figure IV-3) correspondant aux deux rotations  $\theta_1$  et  $\theta_2$  du goniomètre ; Les positions  $\theta_1$  et  $\theta_2$  du goniomètre sont affichées par son dispositif de commande. L'alignement du cristal consiste à associer à chaque couple de valeurs ( $\theta_1$ ,  $\theta_2$ ) affichés les angles d'incidence ( $\varphi_1(A)$  et  $\varphi_2(A)$ ) du faisceau par rapport aux directions cristallines.

Nous avons choisi de mesurer, pour cela, l'intensité du rayonnement émis par les ions Xénon traversant le cristal pour différents angles d'incidence du faisceau d'ions  $Xe^{52+}$  (donc pour différentes positions du point A). Nous faisons varier une seule des coordonnées  $\theta_1$  et  $\theta_2$  par pas successifs de  $0,01^\circ$ . Pour chacune des positions du point A, nous mesurons le nombre de photons émis pour un nombre donné d'ions  $Xe^{52+}$  incidents. A partir d'un certain nombre de balayages de ce type où l'on fait varier  $\theta_1$  ou  $\theta_2$ , la connaissance de la géométrie cristalline au voisinage de  $\langle 110 \rangle$  permet d'identifier les différents plans traversés et d'établir ainsi la cartographie du cristal. Ceci permet de déterminer les valeurs  $\theta_1$  et  $\theta_2$  à afficher par le dispositif de commande du goniomètre pour aligner le faisceau avec une direction cristalline donnée.

#### D - MESURE DES DISTRIBUTIONS DE CHARGE

Les mesures des distributions de charge ont été effectuées de la manière suivante : les charges électriques collectées sur chaque fil sont intégrées pendant un temps que l'on peut ajuster. La sortie du multiplexeur est visualisée sur un oscilloscope puis photographiée. En faisant varier l'intensité du courant dans l'aimant chargé de sélectionner les ions émergents, nous pouvons alors décrire l'histogramme des états de charge. Seulement un ou deux états de charge sont visibles en même temps. Lorsque le cristal a une orientation quelconque c'est-à-dire une orientation où il n'y a aucun effet cristallin, tous les ions transmis

perdent en moyenne la même énergie (environ 180 MeV pour un parcours de  $21,5 \mu\text{m}$ ) et les différents états de charge donnent des pics gaussiens régulièrement espacés et de largeur constante.

Dans les conditions d'alignement axial, les ions canalisés et non canalisés ont un comportement différent non seulement vis à vis de l'échange de charge mais aussi de la perte d'énergie. En effet la densité électronique décroissant avec la distance aux rangées, on doit s'attendre à une diminution du taux de perte d'énergie et à une distribution asymétrique des pertes d'énergie des particules canalisées. L'identification et l'analyse de la contribution des différents états de charge sont complexes du fait du déplacement et de la superposition des pics de différentes formes. La distribution des états de charge est obtenue en mesurant la surface des pics sur les photographies. Les fractions de charge étant distribuées sur plusieurs ordres de grandeur, la précision résultante est suffisante.

Sur la figure IV-4 nous montrons la distribution des états de charge des ions transmis quand le cristal a une orientation quelconque ainsi que les distributions obtenues en conditions d'alignement axial pour des ions Xe incidents de charge  $52^+$ ,  $53^+$  et  $54^+$  respectivement. Nous observons que la distribution mesurée pour une orientation quelconque, a une forme régulière reflétant l'équilibre de charge (charge moyenne à l'équilibre 49,5). Les distributions obtenues, lorsque le cristal est aligné le long de la direction  $\langle 110 \rangle$  sont assez loin de l'équilibre puisque 83%, 80% et 60% des ions de charge  $52^+$ ,  $53^+$  et  $54^+$  respectivement restent dans leur état de charge initial. Les particules canalisées apparaissent "gelées" dans leur état de charge initial. Ceci est dû au fait qu'elles ont une plus faible probabilité de capturer un électron que les particules voyageant dans le cristal en orientation quelconque et pour lesquelles la capture non radiative, processus à petit paramètre d'impact est dominant. Notons, que pour avoir une intensité suffisante d'ions Xe incidents de charge  $54^+$  il a été nécessaire d'augmenter la divergence angulaire du faisceau. Ceci a eu pour conséquence d'augmenter la proportion d'ions non canalisés dans ce cas. Pour des ions incidents de charge  $54^+$  nous observons justement que les fractions de charge inférieure à  $52^+$ , représentatives de la fraction d'ions non canalisés, sont plus élevées que dans le cas d'ions  $53^+$  incidents.

Sur la figure IV-5 nous montrons le spectre en énergie des ions Xe de charge  $53^+$  transmis à travers le cristal en conditions d'orientation  $\langle 110 \rangle$ . Nous observons que ce spectre en énergie a une forme asymétrique typique du spectre obtenu avec des particules canalisées. Pour les ions incidents  $52^+$ ,  $53^+$  et  $54^+$  le taux de perte d'énergie associé au maximum du pic est de 0,45 en unité de taux tabulé correspondant à une cible amorphe, en très bon accord avec l'extrapolation des résultats obtenus à basse vitesse.

Nous allons maintenant étudier plus précisément la distribution des états de charge en condition d'orientation  $\langle 110 \rangle$  obtenues avec un faisceau incident d'ion  $Xe^{53+}$ . Il est clair que les ions canalisés ont une probabilité réduite de capturer un électron. Dans le cas d'un faisceau incident d'ions  $Xe^{53+}$ , la fraction de charge  $52^+$  à l'émergence est faite de deux contributions que l'on peut extraire du spectre en énergie correspondant : une composante canalisée (8%) avec un spectre en énergie similaire au spectre obtenu avec des ions  $53^+$  et une composante (5%) qui a une perte d'énergie moyenne légèrement plus faible que la valeur obtenue lorsque le cristal a une orientation quelconque. Les taux de perte d'énergie pour les pics successifs de 51 à 46 deviennent progressivement égaux au taux obtenu en conditions d'orientation quelconque. Les états de charge inférieurs à  $51^+$  apparaissent comme une réplique de la distribution obtenue avec le cristal en orientation quelconque et indique que la fraction de charge équilibrée est pour une orientation  $\langle 110 \rangle$  de 2%, une valeur assez raisonnable pour une fraction non canalisée. Ceci montre que la décanalisation est négligeable.

Il en résulte que la fraction du faisceau émergent qui a une perte d'énergie typique de canalisation est de 88%. Le reste, 12%, est alors composé de 2% d'ions non canalisés et de 10% d'ions mal canalisés ayant une perte d'énergie intermédiaire entre la perte d'énergie en condition d'orientation  $\langle 110 \rangle$  et celle correspondant à une orientation quelconque.

L'information la plus importante à retenir est que, pour des particules  $Xe^{53+}$  bien canalisées, la probabilité de capturer un électron dans le cristal est de  $8/88 = 0,09$ . De la même manière, les études respectives des distributions des états de charge d'ions  $Xe^{54+}$  et  $Xe^{52+}$  montrent que, pour des particules bien canalisées, la probabilité de capture d'un électron par un ion  $Xe^{54+}$  dans le cristal est de 0,196 et par un ion  $Xe^{52+}$

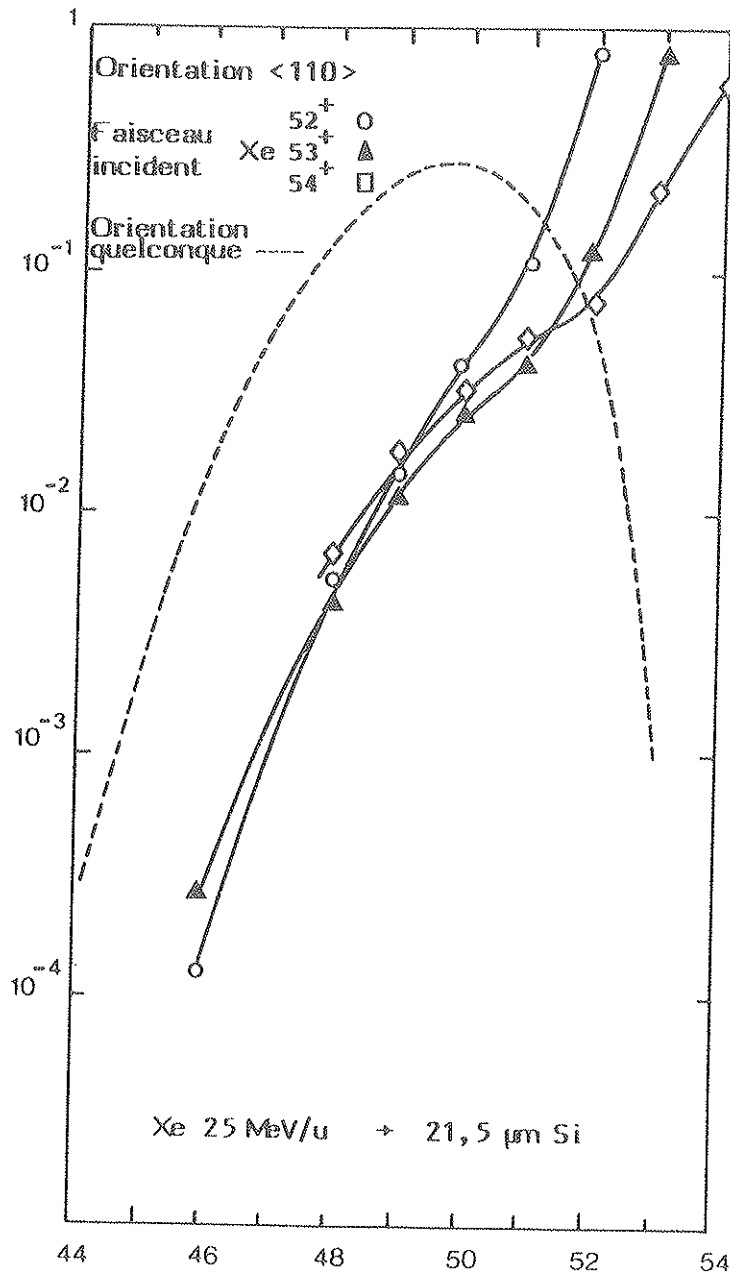


Figure IV-4 : Distributions des états de charge des ions Xe transmis lorsque le cristal à une orientation quelconque et une orientation axiale, pour des ions incidents de charge  $52^+$ ,  $53^+$  et  $54^+$ .

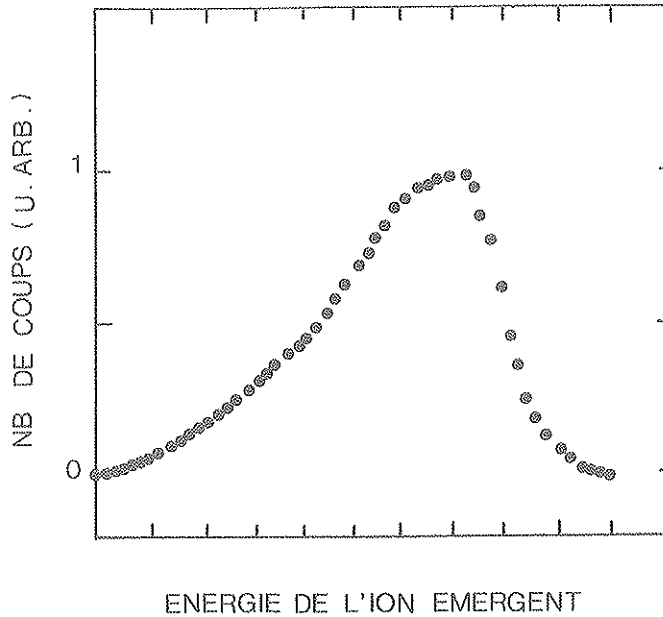


Figure IV-5 : Spectre en énergie de la fraction d'ions  $Xe^{53+}$  émergeant du cristal (orientation  $\langle 110 \rangle$ ).

de 0,072. Ces résultats montrent qu'un ion  $Xe^{54+}$  bien canalisé a une probabilité environ deux fois plus grande de capturer un électron qu'un ion  $Xe^{53+}$  dans la même situation. Si on suppose que la capture est principalement radiative (ce que nous verrons plus loin), et plus probable dans la couche K, un ion  $Xe^{54+}$  bien canalisé peut capturer sur sa couche K un électron de spin quelconque. Pour un ion  $Xe^{53+}$ , ayant donc une lacune K comblée, l'électron susceptible d'être capturé sur la couche K n'a qu'une possibilité de spin. Ainsi le nombre d'électrons susceptibles d'être capturés par un ion  $Xe^{53+}$  est égal à la moitié du nombre d'électrons susceptibles d'être capturés par un ion  $Xe^{54+}$  dans la même situation.

## E - OBSERVATION DE LA CAPTURE ELECTRONIQUE RADIATIVE

Sur la figure IV-6, pour un faisceau d'ions incidents  $Xe^{53+}$ , nous montrons le spectre de rayonnement X obtenu par le détecteur Ge lorsque le cristal a, soit une orientation quelconque, soit une orientation  $\langle 110 \rangle$  pour le même nombre de particules incidentes.

### 1 - En conditions d'orientation quelconque.

Nous observons que le spectre mesuré en condition d'orientation quelconque est dominé par les séries Lyman du Xénon ( $Ly \alpha$ ,  $Ly \beta$ ,  $Ly \gamma$ , ...). Les deux petits pics à 18 keV et 24 keV sont dus à un effet d'échappement du détecteur Ge dans la détection des photons issus des  $Ly \alpha$ ,  $Ly \beta$  (l'énergie perdue est égale à l'énergie de liaison de la couche K du Germanium). Trois autres petits pics (appelés K, L et



M-CR respectivement) peuvent être observés. Ils correspondent à une capture électronique radiative dans les niveaux K, L et M du projectile et sont situés aux énergies (éq.(I-38))

$$E_n = E_l(n) + \frac{m}{M} E_1$$

où  $n$  et  $E_l(n)$  sont le nombre quantique principal et l'énergie de liaison du niveau,  $m$  la masse de l'électron  $M$  et  $E$  la masse et l'énergie du projectile. La contribution de la K-CR est très faible car d'une part, la première capture qui remplit une lacune K est le plus souvent un événement non radiatif et d'autre part, à l'équilibre la couche K est toujours remplie.

L'émission d'une raie Lyman peut résulter non seulement d'une excitation directe des ions Xénon mais aussi du processus de capture électronique. Or d'après les mesures de Meyerhof et al. (69) et des prédictions de Gayet et Salin (70), la capture électronique non radiative a lieu principalement dans des états excités. De plus la contribution de la CR à la section efficace totale de capture est faible en condition d'orientation quelconque. Ainsi on peut estimer qu'un photon d'une transition Lyman est émis après chaque événement de capture (sauf capture dans l'état 2s). De tout ceci il résulte en particulier que le nombre total de raies lyman émises par un ion incident  $Xe^{53+}$  doit être égal au nombre correspondant à un ion  $Xe^{52+}$  plus un. En supposant que l'émission Lyman est distribuée suivant une loi en  $\sin^2\theta$ , cela nous a permis d'obtenir une mesure absolue d'intensité pour un faisceau incident très faible de  $Xe^{53+}$  par comparaison au faisceau de  $Xe^{52+}$  pour lequel l'intensité a pu être mesurée électriquement.

## 2 - En conditions d'orientation axiale $\langle 110 \rangle$ .

Le spectre obtenu en conditions d'orientation  $\langle 110 \rangle$  est assez différent (figure IV-6) : la composante continue et l'intensité des raies Lyman sont diminuées alors que d'importants pics CR apparaissent, le plus intense étant le pic K-CR. L'intensité Lyman (11% de la valeur obtenue en condition d'orientation quelconque) ne peut être attribuée à la composante non canalisée du faisceau aligné (2%). On doit aussi tenir compte de la contribution, difficile à évaluer, des particules mal canalisées et peut être de la contribution des particules canalisées qui, après capture électronique radiative dans une couche L ou M, peuvent alors émettre des raies  $Ly \alpha$  et  $Ly \beta$  si les transitions sont permises.

Nous observons que les intensités de la M-CR et de la L-CR sont les mêmes qu'en orientation quelconque bien que les pics apparaissent plus clairement en raison de la diminution du rayonnement de freinage. Au contraire, l'intensité de la K-CR augmente fortement du fait que la plupart des ions incidents  $Xe^{53+}$  (90% en moyenne) restent hydrogénoïdes dans le cristal et sont alors susceptibles de capturer un électron dans leur couche K. Cependant la densité électronique rencontrée par des particules bien canalisées dans le cristal est réduite. Toutefois le processus de CR, différemment du processus de capture électronique non radiative, est un phénomène qui peut avoir lieu pour de grands paramètres d'impact de collision. Il est donc difficile d'évaluer le nombre d'électrons susceptibles d'être capturés radiativement. En supposant que la CR est un processus dont l'émission est en  $\sin^2\theta$ , nous avons déduit des spectres que le nombre d'événements de CR par ion incident est 0,135. Or des mesures des distributions d'états de charge et en énergie, nous avons montré que 88% des ions incidents sont bien canalisés. Il en résulte que 12% des particules bien canalisées induisent un événement CR. Ce nombre est en bon accord avec la valeur 9% correspondant à la probabilité de capture d'un électron par un ion  $Xe^{53+}$  bien canalisé, si l'on tient compte de la précision de nos mesures. Cela semble montrer que la CR est le seul processus de capture pour des ions bien canalisés.

Sur la figure IV-7 est représentée la dépendance angulaire de certains paramètres relatifs aux pics K et L-CR : la surface, l'énergie moyenne et la largeur de ces pics.

Nous montrons aussi la dépendance angulaire du taux de Lyman  $\alpha$  afin de pouvoir comparer les dépendances angulaires du processus de CR avec un processus nécessitant un petit paramètre d'impact. Le taux de L-CR varie peu alors que la variation du taux de K-CR est importante. Ceci est dû principalement au fait qu'en conditions d'orientation  $\langle 110 \rangle$  l'ion incident  $Xe^{53+}$ , "gelé" dans son état de charge initial

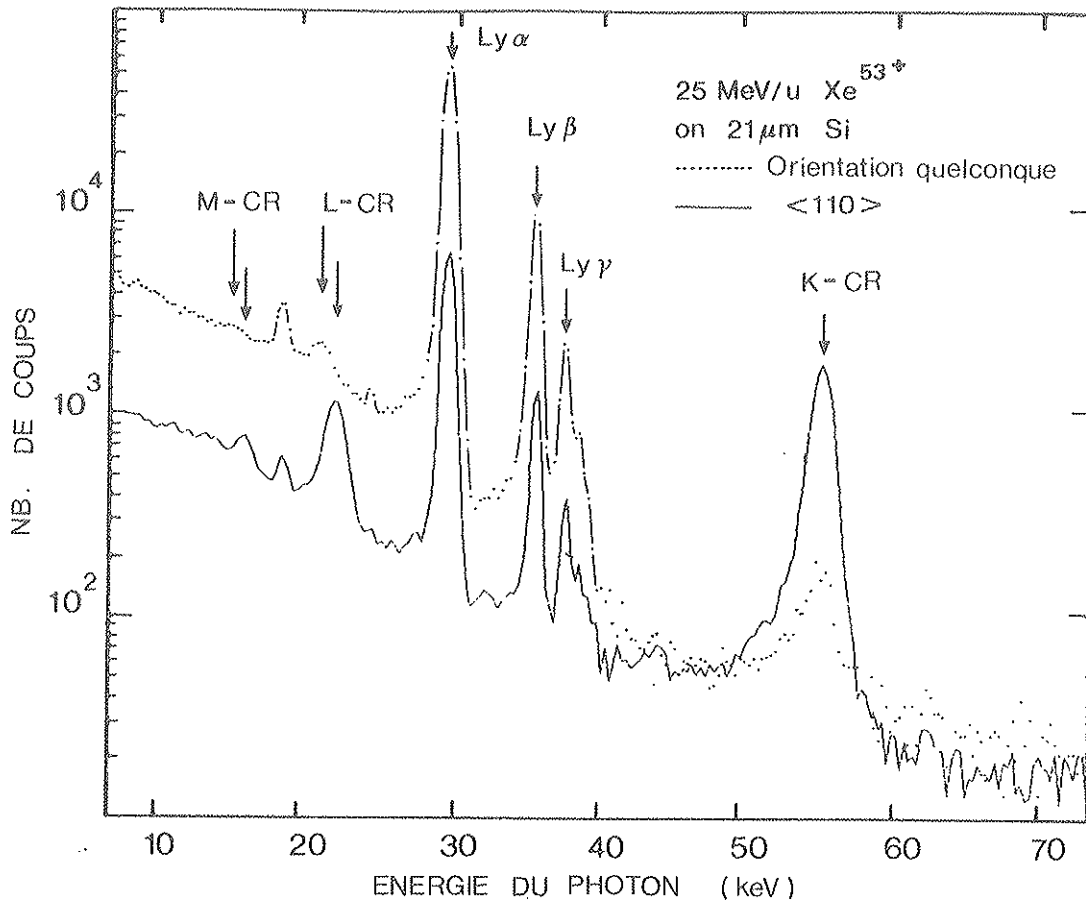


Figure IV-6 : Spectre de rayonnement X, lorsque le cristal a une orientation quelconque  $E$ , orientation  $\langle 110 \rangle$ .

est susceptible de capturer radiativement un électron sur sa couche K, alors qu'en condition d'orientation quelconque la lacune K de l'ion incident  $Xe^{53+}$  est très vite comblée par un processus non radiatif. Un événement L-CR lui est toujours possible dans les deux situations étant donné que la charge moyenne à l'équilibre est 49,5. Ainsi le taux de CR reflète principalement le nombre moyen de lacunes du projectile à l'intérieur du cristal. Pour la K-CR, ce nombre est proche de l'unité en conditions d'orientation  $\langle 110 \rangle$  et de 0 en condition d'orientation quelconque. Ce nombre est alors très sensible à des effets planaires lorsque le cristal est désorienté de l'axe  $\langle 110 \rangle$ , et cela explique pourquoi, dans le déplacement angulaire observé sur la figure IV-7 le taux de K-CR en conditions d'orientation quelconque est différent de la valeur extraite du spectre de la figure IV-6 obtenue pour une autre orientation quelconque.

Il est remarquable que les taux de K et L-CR présentent un maximum qui n'est pas atteint pour un alignement axial mais pour des angles de l'ordre de la demi-largeur du creux  $Ly \alpha$ . Ceci est dû au fait que la CR est sensible à la densité électronique moyenne rencontrée par le projectile. Le maximum résulte des variations posées de la densité électronique et du nombre de lacune du projectile à l'intérieur du cristal.

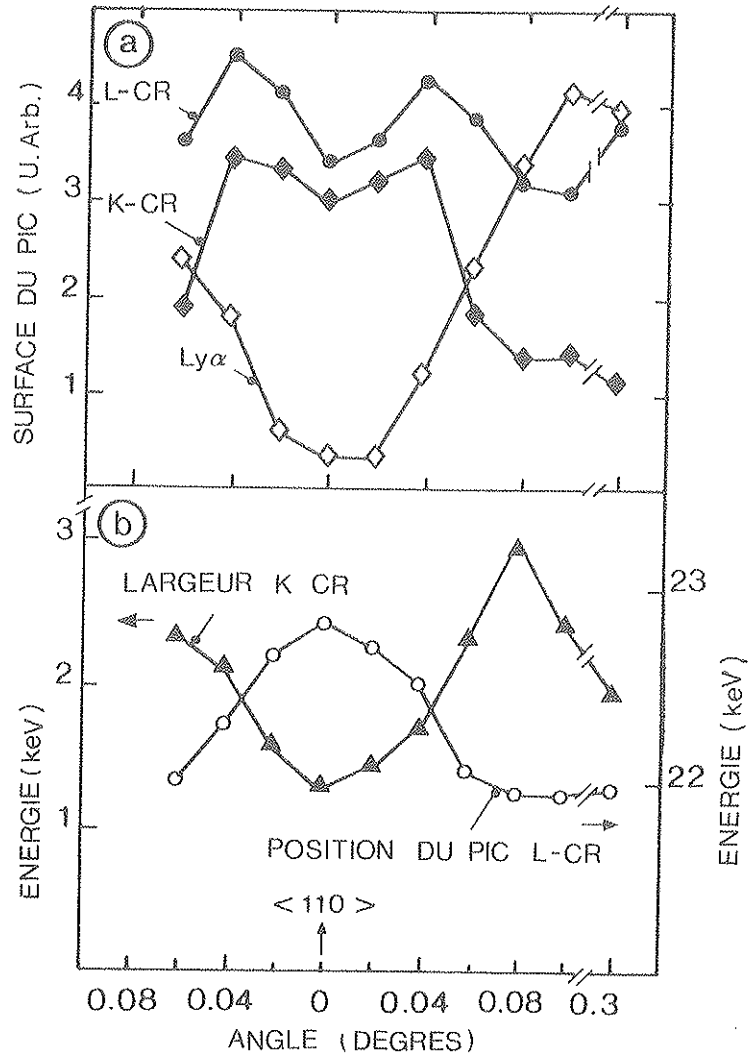


Figure IV-7 : Dépendance angulaire autour de la direction  $\langle 110 \rangle$  du cristal de silicium de la surface des pics des K-CR, L-CR, et Ly  $\alpha$  (a) ; de la largeur de la K-CR ; et de la position du pic L-CR (b).

Les énergies moyennes des photons K et L-CR sont aussi sensibles à l'orientation et présentent un maximum pour un alignement exact. Sur la figure IV-7 est représentée la dépendance angulaire de l'énergie moyenne du pic L-CR pour laquelle les effets sont plus importants que pour la K-CR.

Sur la figure IV-6 nous pouvons observer les déplacements en énergie des pics L et M-CR pour une orientation quelconque et une orientation axiale respectivement. Ceci peut s'expliquer de la manière suivante : l'énergie du photon dépend de l'énergie de liaison initiale des électrons de la cible avant capture, et de l'énergie de liaison finale de l'électron lié au projectile. Or, l'énergie de liaison finale dépend plus fortement de l'état de charge du projectile pour les couches L et M que pour la couche K. Les états de charge du projectile en orientation axiale et en orientation quelconque étant différents, l'énergie de liaison finale de l'électron sur les couches L et M est différente.

Finalement la forme du spectre en énergie dépend fortement de la distribution en vitesse des électrons cibles capturés et est très sensible à l'orientation comme nous pouvons l'observer sur la figure IV-7 par la dépendance angulaire de largeur du pic K-CR. L'effet est assez important et la largeur est minimum pour un alignement axial et maximum pour un angle d'incidence presque égal à l'angle critique de canalisation.

## F - CONCLUSION

En conclusion nous avons montré que les divers aspects de la capture électronique radiative peuvent être étudiés en conditions de canalisation. Une plus complète analyse est en cours et d'autres expériences prévues en Octobre 1987 à GANIL permettront une meilleure compréhension du processus de capture électronique radiative.

## CONCLUSION

Au cours de notre étude expérimentale nous avons tout d'abord mesuré les populations relatives des niveaux 2p et 4p d'ions  $He^+$  après traversée d'une cible de carbone à des vitesses comprises entre  $2v_0$  et  $5v_0$ . Ces deux populations ne suivent pas la même variation avec la vitesse. Nous avons montré que ce résultat expérimental pouvait s'interpréter à partir de l'existence de ces états excités à l'intérieur de la cible : dans le domaine de vitesse étudié, notre modèle nous conduit à conclure que l'état 2p est lié dans le solide alors que l'état 4p ne l'est pas. Ce travail expérimental a donc permis de mettre au point une méthode permettant d'établir le diagramme des états liés possibles des systèmes hydrogénoïdes légers en mouvement dans un solide. Nous l'avons établi pour l'Hélium, il serait intéressant de confirmer cette méthode pour d'autres systèmes plus lourds. D'autre part, une expérience en préparation, nous permettra peut-être de mettre en évidence une discontinuité dans la variation avec la vitesse de la population relative du niveau 2p des atomes d'hydrogène émergeant d'une cible solide. Cette discontinuité est attendue à basse vitesse, et devrait survenir dès que l'état 2p n'est plus lié dans le solide.

Nous avons ensuite montré que l'on peut extraire des collisions agrégat-solide deux types d'informations :

1) La traversée des deux premières couches atomiques de la feuille est déterminante pour la distribution angulaire finale des fragments. Celle-ci donne donc des renseignements sur la structure initiale des agrégats. Nous avons ainsi pu montrer que la densité des agrégats d'hydrogène ne dépend pas de leur nombre de masse et que chaque proton dans l'agrégat a en moyenne quatre proches voisins.

2) La distribution des états de charge à l'émergence dépend fortement de la taille de l'essaim de protons lorsqu'il atteint les dernières couches de la feuille. Nous avons montré que le taux de production d'atomes d'hydrogène augmente linéairement avec le nombre de masse du projectile et tend vers une valeur constante à partir des masses  $n = 7$ . En particulier, nous en avons déduit qu'à l'émergence chaque proton est entouré en moyenne de six partenaires, chaque proton ne ressentant lors des processus d'échange de charge que les effets de proximité dus à ses plus proches voisins. Dans le cas d'ions  $H_2^+$  de vitesse supérieure à  $3v_0$ , l'interprétation des résultats obtenus a permis de montrer que la surproduction d'atomes neutres à l'émergence de la feuille était liée à la section efficace de perte électronique qui, dans le cas d'un système de deux protons corrélés, est deux fois plus faible que celle d'un atome isolé. D'autre part, l'étude de la surproduction d'atomes neutres en fonction de la séparation des deux protons à l'émergence a mis en évidence deux plateaux ; l'un à faible séparation, l'autre à grande séparation internucléaire. Ces deux plateaux peuvent être interprétés par la perte d'un électron à partir d'orbitales moléculaires  $H_2^+(1s\sigma_g)$  pour les faibles distances et  $H_2^+(2p\sigma_u)$  pour les plus grandes. Des expériences complémentaires sur l'étude des collisions d'agrégats sont actuellement en préparation. Elles combineront l'observation de la distribution des états de charge et de la quantité de lumière émise ( $Ly \alpha$ ) à l'émergence d'une feuille de carbone pour différents agrégats et pour différentes vitesses, et apporterons ainsi d'autres informations sur les effets collectifs dans l'échange de charge.

Enfin, par l'étude simultanée des états de charge et de l'intensité de la capture électronique radiative d'ions Xe très épluchés en conditions de canalisation, nous avons montré que la capture électronique par des particules canalisées est dominée par la capture radiative. Cette situation expérimentale nous a donc permis d'en étudier différents aspects. Une plus complète analyse est en cours et d'autres expériences sont prévues en Octobre 1987 au GANIL.

## BIBLIOGRAPHIE

- ( 1) - T.HALL,  
Phys. Rev., 79 (1950) 504.
- ( 2) - S.K. ALLISON,  
Rev. Modern. Phys., 30 (1958) 1137.
- ( 3) - J.A. PHILLIPS,  
Phys. Rev., 97 (1955) 404.
- ( 4) - I.S. DMITRIEV et V.S. NIKOLAEV,  
Zh. Eksperim. i Teor. Fiz., 47 (1964) 615.
- ( 5) - H.D. BETZ,  
Rev. Modern. Phys., 44 (1972) 465.
- ( 6) - A. CLOUVAS,  
Thèse d'état, Lyon (1985).
- ( 7) - S.K. ALLISON et S.D. WARSHAW,  
Rev. Modern. Phys., 25(1953) 779.
- ( 8) - S.K. ALLISON et M. GARCIA-MUNOZ  
in atomic and molecular processes, édité par D.R. BATES (Academic, New-York) (1962) .
- ( 9) - H. TAWARA et A. RUSSEK,  
Rev. Modern. Phys., 45 (1973) 178.
- (10) - Ya. M. FOGEL,  
Krupnik. Safronov. Shur. Ehsptl. Teort. fiz, 28 (1955) 589.
- (11) - L.H. TOBUREN, M.Y. NAKAI et R.A. LANGLEY,  
Phys. Rev., 171 (1968) 114.
- (12) - N. BOHR,  
Kgl. Dans. Vidensk. Selsk., Mat. Phys Medd., 18 (1948) N° 8.
- (13) - N. BOHR et J. LINDHARD,  
Kgl. Dans. Vidensk. Selsk., Mat. Fys. Medd., 28 (1954) N° 7.
- (14) - H.D. BETZ et L. GRODZINS,  
Phys. Rev. Lett., 25 (1970) 211.

- (15) - M.J. GAILLARD, J.C. POIZAT, A. RATKOWSKI,  
J. REMILLIEUX et M. AUZAS,  
Phys. Rev. A, 16 (1977) 2323.
- (16) - N. CUE, N.V. de CASTRO FARIA, M.J. GAILLARD, J.C. POIZAT et J. REMILLIEUX,  
Nucl. Inst. and Meth., 170 (1980) 67.
- (17) - M. BROWN et C.D. MOAK,  
Phys. Rev. B, 6 (1972) 90.
- (18) - S. DELLA-NEGRA, Y. LE BEYEC, B. MONART, K. STANDING et K. WIEN,  
Phys. Rev. Lett., 58 (1987) 17.
- (19) - Yun. YAVLINSKII, B.A. TUBNIKOV et V.F. ELLESIN,  
Bull. Acad. Sci. USSR Phys. Soc., 30 (1966) 1996.
- (20) - W. BRANDT,  
5 Intern Conference on Atomic Collisions in Solids, Gattinburg, Tenesses 1973 (Plenum Press 1974).
- W. BRANDT et R. SIZMANN,  
Phys. Lett. A, 37 (1971) 115.
- W. BRANDT,  
Atomic Collisions in Solids, (Plenum Press, New-York, 1975) vol. 1, p. 261.
- W. BRANDT et R. SIZMANN,  
Atomic Collisions in Solids (Plenum Press, New-York, 1975), vol. 1, p. 305.
- (21) - I.S. DMITRIEV et V.S. NIKOLAEV,  
Sov. Phys. JETP., 17 (1963) 447.
- (22) - L.H. THOMAS,  
Proc. Camb. Phil. Soc., 23 (1927) 713.
- L.H. THOMAS,  
Proc. Camb. Phil. Soc., 23 (1927) 827.
- L.H. THOMAS,  
Proc. Roy. Soc. A, 114 (1927) 561.
- (23) - H.C. BRINKMANN et H.A. KRAMERS,  
Proc. Acad. Sci. Amsterdam, 33 (1930) 973.
- (24) - R.M. DRISKO,  
Thèse Ph.D, Carnegie Institute of Technology (1955) non publié.
- (25) - D.Z. BELKIC, R. GAYET et A. SALIN,  
Phys. Rep., 56 (1979) 279.



- (26) - D.Z. BELKIC,  
J. Phys. B : Atom. Molec. Phys. 10 (1977) 3491.  
Corrigendum : J. Phys. B : Atom. Molec. Phys., 12 (1979) 337.
- (27) - B.H. BRANSDEN, I.M. CHESHIRE,  
Proc. Phys. Soc., 83 (1964) 907.
- (28) - N.F. MOTT,  
Proc. Cambridge Phil. Soc., 32 (1936) 281.
- (29) - F.J. ROGERS, H.C. CRABOSKE, J.R. et D.J. HARWOOD,  
Phys. Rev. A, 1 (1970) 1577.
- (30) - W. BRANDT et J. REINHEIMER,  
Phys. Rev. B, 2 (1970) 3104 .
- (31) - A. de CHATEAU-THIERRY,  
Thèse d'état, Orsay (1978).
- (32) - H. BETHE et E.E. SALPETER,  
in "Quantum Mechanics of one and two Electron Systems" Spinger Verlag Berlin, 1957, p.320-322.
- (33) - R. ANHOLT, W.E. MEYERHOF, J.D. MOLITORIS, D.W. SPOONER,  
Ch. STOLLER, H. BOWMAN, J.O. RAMUSSEN, E. MORENZONI,  
D.H.H. HOFFMAN, J.S. XU, Z.Z. XU et S. ANDRIAMONJE,  
Phys. Rev. A, 33 (1986) 2270.
- (34) - M.C. CROSS,  
Phys. Rev. B, 15 (1977) 602.
- (35) - J.R. OPENHEIMER,  
Phys. Rev., 31 (1928) 349.
- (36) - R.E. YAGER et N.F. LANE,  
J. Phys. B, 2 (1969) 1060.
- (37) - A. CLOUVAS, M.J. GAILLARD, A.G. de PINHO, J.C. POIZAT,  
J. REMILLIEUX et J. DESESQUELLES,  
Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res. B, 2 (1984) 273.
- (38) - J.P. BUCHET,  
Thèse d'état, Lyon (1974).
- (39) - W.L. WIESE, M.W. SMITH et B.M. GLENNON,  
Atomic transition Probabilities, Vol. 1, NSRDS-NBS 4, (1966).
- (40) - J.C. ARMSTRONG, J.V. MULLENDORE, W.R. HARRIS et J.B. MARION,  
Proc. Phys. Soc., 86 (1965) 1283.

- (41) - A. CLOUVAS,  
Thèse de troisième cycle, Lyon (1982).
- (42) - B.T. MEGGIT, K.G. HARRISON et M.W. LUCAS,  
J. Phys B, 6 (1973) L-362.
- (43) - M.J. GAILLARD, J.C. POIZAT, A. RATKOWSKI,  
J. REMILLIEUX et M. AUZAS,  
Phys. Rev., 16 (1977) 2323.
- (44) - W.H. ESCOVITZ, T.R. FOX et R. LEVI-SETTI,  
I.E.E.E. Trans. Nucl. Sci., 26 (1979) 1149.
- (45) - M.J. GAILLARD, J.C. POIZAT, A. RATKOWSKI, J. REMILLIEUX,  
Nucl. Instr. Meth. , 132 (1976) 69.
- (46) - D. MAOR, P.J. COONEY, A. FAIBIS, E.P. KANTER,  
W. KOENIG et B.J. ZABRANSKY,  
Phys. Rev. A, 32 (1985) 105.
- (47) - N.V. de CASTRO FARIA, F.L. FREIRE, E.C. MONTENEGRO  
et A.G. de PINHO,  
J.Phys. B, 17 (1986) 321.
- (48) - N.V. de CASTRO FARIA, F.L. FREIRE, E.C. MONTENEGRO  
et A.G. de PINHO,  
J.Phys. B, 19 (1986) 1781.
- (49) - H.O. MOSER, J. MARTIN et R. SALIN,  
J. Phys., 38 (1977) 215.
- (50) - Y. CHANUT, J. MARTIN, R. SALIN et H.O. MOSER,  
Surf. Sci., 106 (1981) 563.
- (51) - P. SIGMUND et K.B. WINTERBON,  
Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res., 119 (74) 541.
- (52) - M. CHEVALLIER, A. CLOUVAS, H.J. FRISCHKORN, M.J. GAILLARD,  
J.C. POIZAT et J. REMILLIEUX,  
Z. Phys., D2 (1986) 87.
- (53) - W. BRANDT, A. RATKOWSKI et R.H. RITCHIE,  
Phys. Rev. Lett. , 33 (1974) 1325.
- (54) - J.F. ZIEGLER,  
Stopping power and ranges, Vol. 4, Pergamon Press, New-York 1977.

- (56) - Y. YAMAGUCHI, J.F. GAW et H.F. SHAEFFER III,  
J. Chem. Phys., 78 (1983) 4074.
- (56) - H. HUBERT,  
J. Chem. Phys., 70 (1980) 353.
- (57) - G. SIDENIUS, N. ANDERSEN, P. SIGMUND, F. BESENBACHER,  
Phys. Rev. B, 2 (1976) 402.
- (58) - A. de CHATEAU-THIERRY et A. GLADIEUX,  
Nucl. Instr. Meth., 132 (1976) 553.
- (59) - S. KREUSSLER et R. SIZMANN,  
Phys. Rev. B, 26 (1982) 520.
- (60) - J. REMILLIEUX,  
in Radiation Research (Academic, New-York, 1975), p. 302.
- (61) - K. DETTMANN, K.G. HARRISON et M.W. LUCAS,  
J. Phys. B, 7 (1974) 269.
- (62) - MM. DUNCAN et M.G. MENENDEZ,  
Phys. Rev. A, 13 (1976) 566.
- (63) - S. DATZ, T.S. NOGGLE et C.D. MOAK,  
Nucl. Instr. Meth. 38 (1965) 21.
- (64) - J.C. POIZAT et J. REMILLIEUX,  
J. Phys. 33 (1972) 1013.
- (65) - J.C. POIZAT et J. REMILLIEUX,  
Radiation Effects. 13 (1972) 51.
- (66) - D.S. GEMMEL,  
Rev. Mod. Phys., 46 (1974) 129.
- (67) - J. LINDHARD,  
K. Dans. Vidensk. Selsk. Matt. Fys. Medd. 34 (1965) N° 14.
- (68) - C. COHEN, J. DUVAL, M.J. GAILLARD, R. GENRE, J.J. GRAB,  
M. HAGE-ALI, R. KIRSCH, A. L'HOIR, J.C. POIZAT, Y. QUERE,  
J. REMILLIEUX, D. SCHMAUS et M. TOULEMONDE,  
J. Phys. 46 (1985) 1565.
- (69) - W.E. MEYERHOF, R. ANHOLT, J. EICHLER, H. GOULD, Ch. MONGER,  
J. ALONSO, P. THIEBERGER et H.E. WEGNER,  
Phys. Rev. A, 32 (1985) 3291.
- (70) - R. GAYET et A. SALIN,  
Communication privée.



