



HAL
open science

Agrégats d'hydrogène - Structure et interaction avec des cibles solides

Michel Farizon

► **To cite this version:**

Michel Farizon. Agrégats d'hydrogène - Structure et interaction avec des cibles solides. Agrégats Moléculaires et Atomiques [physics.atm-clus]. Université Claude Bernard - Lyon I, 1988. Français. NNT: . tel-00795192

HAL Id: tel-00795192

<https://theses.hal.science/tel-00795192v1>

Submitted on 27 Feb 2013

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

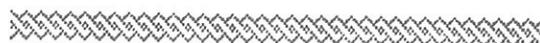
devant l'UNIVERSITE CLAUDE BERNARD - LYON 1

pour l'obtention du

DIPLOME DE DOCTORAT

par

Michel FARIZON



"Agréats d'hydrogène
Structure et interaction avec des cibles solides"

Soutenu le 20 octobre 1988
devant la Commission d'examen

Jury :

MM. M. LEVY
A. CACHARD
N. de CASTRO FARIA
H. CHERMETTE
J. DESEQUELLES
M.J. GAILLARD
J. REMILLIEUX
A. SALIN

Université Claude Bernard Lyon-1

. Président de l'Université	M. le Professeur P. ZECH
. 1er Vice-Président "Fédération Santé"	M. le Professeur L.M. PATRICOT
. 1er Vice-Président "Fédération Sciences"	M. le Professeur R. UZAN
. Président du Comité de Coordination des Etudes Médicales (CCEM)	M. le Professeur P. ZECH
. Secrétaire Général	M. F. MARIANI

Fédération "Santé"

U.F.R. de Médecine GRANGE-BLANCHE	Directeur : Mme le Professeur H. PELLET
U.F.R. de Médecine ALEXIS-CARREL	Directeur : M. le Professeur EVREUX
U.F.R. de Médecine LYON-NORD	Directeur : Mme le Professeur A. PINET
U.F.R. de Médecine LYON-SUD	Directeur : M. le Professeur J. NORMAND
U.F.R. de PHARMACIE	Directeur : M. le Professeur C.A. BIZOLLON
U.F.R. d'ODONTOLOGIE	Directeur : M. le Professeur G. LABE
INSTITUT de TECHNIQUES de READAPTATION	Directeur : M. le Professeur M. EYSSETTE

DEPARTEMENTS "FEDERATION SANTE"

Département de BIOLOGIE HUMAINE	Directeur : M. le Professeur P.A. BRYON
Département d'INNOVATION et de COORDINATION PEDAGOGIQUE	Directeur : M. le Professeur G. LLORCA

Fédération "Sciences"

INSTITUT des SCIENCES de la MATIERE (I.S.M.)	Directeur : M. le Professeur E. ELBAZ
INSTITUT des SCIENCES de l'INGENIERIE et du DEVELOPPEMENT TECHNOLOGIQUES (I.S.I.D.T.)	Directeur : M. le Professeur G. FONTAINE
INSTITUT de CHIMIE et BIOLOGIE MOLECULAIRE et CELLULAIRE (I.C.B.M.C.)	Directeur : Mme A. VARAGNAT, Maître de Conférences
INSTITUT d'ANALYSE des SYSTEMES BIOLO- GIQUES et SOCIO-ECONOMIQUES (I.A.S.B.S.E.)	Directeur : M. le Professeur J.M. LEGAY
INSTITUT des SCIENCES de la TERRE, de l'OCEAN, de l'ATMOSPHERE, de l'ESPACE et de l'ENVIRONNEMENT (I.S.T.O.A.E.E.)	Directeur : M. le Professeur S. ELMI
U.F.R. des ACTIVITES PHYSIQUES et SPORTIVES (U.F.R.A.P.S.)	Directeur : M. le Professeur J. CAMY
I.U.T. - A	Directeur : M. le Professeur J. GIELLY
I.U.T. - B	Directeur : M. le Professeur J. PIVOT

DEPARTEMENTS "FEDERATION SCIENCES"

Département de 1er Cycle Pluridisciplinaire Sciences	Directeur : M. P. PONCET, Maître de Conférences
Départements de 2ème Cycle :	
.. Sciences de la Vie et de la Terre	Directeur : M. le Professeur J.P. BLANCHET
.. Sciences pour l'Ingénieur	Directeur : M. le Professeur P. BETHOUX
.. Sciences de l'Analyse et de la Matière	Directeur : M. le Professeur J.L. VIALLE

À mes parents,

REMERCIEMENTS

Ce travail a été effectué au Laboratoire de Spectroscopie Ionique et Moléculaire en collaboration avec l'Institut de Physique Nucléaire. Je remercie Monsieur J. Désesquelles, Directeur de recherche au C.N.R.S., de m'avoir accueilli dans son équipe.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à N.V. de Castro Faria, Professeur à l'Université P.U.C. de Rio de Janeiro, et H. Chermette, Professeur à l'Université Claude Bernard (Lyon-I), pour leurs conseils et leur soutien dans la réalisation de ce travail. Ils m'ont fait bénéficier de leur expérience et de leur savoir durant cette année de collaboration particulièrement amicale et fructueuse.

Je remercie Messieurs M. Lévy, Professeur à l'Université Pierre et Marie Curie (Paris VI), A. Cachard, Professeur à l'Université de Saint-Etienne, M.J. Gaillard, Professeur à l'Université Claude Bernard (Lyon-I), J. Remillieux, Professeur à l'Université Claude Bernard (Lyon-I), et A. Salin, Directeur de recherche au C.N.R.S., d'avoir accepté de participer au jury de cette thèse.

Je tiens à associer à ces remerciements Madame E. Gerlic, Chargée de recherche au C.N.R.S., Monsieur A. Clouvas, Professeur à l'Université de Thessalonique, Mademoiselle A.M. Briançon et Monsieur Y. Ouerdane pour leur participation à la partie expérimentale de ce travail.

Je remercie également Messieurs G. Docao, R. Genre, et R. Kirsch, pour leur appui technique lors de la réalisation des expériences.

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 Monsieur M. Combe.

Je ne terminerai pas ces quelques lignes sans remercier tout particulièrement Bernadette Mazuy qui, autant que moi, s'est investie dans ce travail.

résumé

L'étude théorique de la structure des agrégats d'hydrogène a été réalisée par calcul "ab initio". Un calcul HARTREE-FOCK a été effectué pour les agrégats H_n^+ , $n = 3, 5, 7, \dots, 21$ avec un ensemble de fonctions de base triple zeta avec polarisation. Le calcul d'interaction de configurations avec doubles substitutions a été effectué pour H_n^+ , $n = 3, 5, 7, 9$.

Nous avons utilisé ces structures pour calculer la distribution des distances entre les fragments et la distribution de leurs vitesses résultant de la dissociation d'agrégats d'hydrogène rapides dans des feuilles minces de carbone. Pour cela, nous avons construit un programme du type Monte Carlo, simulant la répulsion des protons et la diffusion multiple dans la cible. L'analyse quantitative des distributions angulaires des fragments neutres résultant de la dissociation d'agrégats rapides (30-80 keV/p), montre que les agrégats formés dans la source de l'accélérateur d'agrégats de LYON sont dans des états vibrationnels proches de l'état fondamental.

Nous avons aussi mesuré la variation du nombre de photons émis par les atomes d'hydrogène excités émergeant de feuilles minces de carbone (2 et $3.8 \mu g.cm^{-2}$) après dissociation d'agrégats H_n^+ , $n = 3, 5, 7, \dots, 61$ rapides (10-80 keV/p). Nous proposons un modèle fondé sur les variations de la section efficace de perte, pour interpréter les effets collectifs observés.

abstract

Ab initio molecular electronic structure theory has been used in an attempt to characterize the low lying stationary point on the potential energy hypersurface of positive hydrogen clusters. Using triple zeta plus polarization basis set, self consistent field calculations have been carried out for H_n^+ , $n = 3, 5, 7, \dots, 21$. The configuration interaction calculations with double substitutions have been carried out for H_n^+ , $n = 3, 5, 7, 9$.

We have used these structures to calculate the distributions of separation and relative velocity resulting from the dissociation of fast hydrogen clusters traversing thin foils. For that, a Monte Carlo computer program including effects of protons repulsion and multiple scattering has been developed. The quantitative analysis of the angular distribution of atomic fragments, resulting from the foil dissociation of 30-80 keV/p hydrogen clusters, shows that the clusters formed in the LYON accelerator source are preferentially in low lying vibrational states.

We have also measured the variation of the number of photons emitted by excited hydrogen atoms emerging from a thin carbon foil (2 et 3.8 $\mu g.cm^{-2}$) after dissociation of 10-80 keV/p hydrogen clusters H_n^+ , $n = 3, 5, 7, \dots, 61$. We propose a model based on the loss cross section variations to interpret the vicinity effects observed.

INTRODUCTION

Des développements techniques récents ont permis la production dans les laboratoires d'une grande variété d'agrégats atomiques ou moléculaires. Suivant le type de source et le type d'atome ou de molécule mis en jeu, les agrégats obtenus peuvent être neutres ou chargés et contiennent un plus ou moins grand nombre de constituants (de trois ou quatre pour les plus petits à plusieurs centaines pour les plus gros).

Ces développements sont à l'origine d'un nouveau domaine de recherche situé entre la physique moléculaire et la physique de l'état solide. Le champ des investigations est large et les recherches sont menées dans plusieurs directions: étude des structures et de la stabilité (géométrie, densité de charges), étude des propriétés thermodynamiques (mélange, chaleurs spécifiques, vibrations), étude des propriétés optiques (spectroscopie U.V., I.R., Raman), étude des propriétés électriques et magnétiques (interactions hyperfines, magnétisme, supraconductivité), étude de l'interaction des agrégats accélérés avec la matière (sections efficaces de dissociation, effets collectifs sur les différents phénomènes d'interaction avec la matière liés à la présence de plusieurs atomes proches dans chaque projectile).

Ce travail expérimental et théorique a été suscité par les résultats expérimentaux obtenus par B. MAZUY et al. auprès de l'accélérateur d'agrégats d'hydrogène de l'Institut de Physique Nucléaire de LYON. Cet accélérateur fournit des faisceaux d'agrégats rapides (énergie totale de 60 keV à 630 keV) H_n^+ , n impair, avec une large distribution de masse ($n = 3, 5, \dots, 101, \dots$). Ces agrégats H_n^+ formés d'atomes d'hydrogène contenant donc n protons et "seulement" $n-1$ électrons présentent une relative simplicité.

Les faisceaux d'agrégats accélérés permettent des études à la fois sur l'agrégat lui-

même et sur l'interaction des agrégats avec la matière. Les expériences réalisées par B. MAZUY et al., étudiant l'interaction des faisceaux d'agrégats avec des cibles solides, ont été réalisées dans cette optique.

Quand un agrégat pénètre dans une cible solide, il perd brutalement la plupart de ses électrons par interaction avec la matière. Les protons qui constituaient l'agrégat se repoussent alors et leurs vitesses par rapport au centre de masse de l'agrégat sont modifiées. Les distributions des vitesses des fragments à l'émergence de la cible sont alors caractéristiques des distances entre les protons à l'entrée. En effet la répulsion est plus grande pour les protons les plus proches à l'entrée et cette répulsion est la même pour les protons qui ont une position identique dans l'agrégat.

Cependant, à basse vitesse, une grande part de l'information est perdue du fait des collisions des protons sur les atomes de la cible qui modifient de manière importante la vitesse des protons tout au long de la traversée de la cible et de manière indépendante pour chaque proton (diffusion multiple).

Néanmoins l'analyse quantitative des largeurs des distributions angulaires des fragments neutres à l'émergence de la cible de carbone pour des agrégats H_n^+ ($n = 3, 5, 7, 9, 11, 13, 15, 17, 19, 21$) mesurée par B. MAZUY et al. que nous présentons dans le chapitre II, en simulant le faisceau d'agrégats et l'interaction des agrégats avec la matière, a, en particulier mis en évidence des informations importantes sur l'état vibrationnel des agrégats formés dans la source de l'accélérateur d'agrégats de LYON. Le programme de type Monte-Carlo que nous avons construit, reliant les vitesses des fragments et leur position relative en sortie de la cible aux phénomènes élémentaires s'est avéré un outil important dans l'interprétation quantitative des résultats expérimentaux par interaction d'agrégats d'hydrogène dans une cible solide.

La simulation du faisceau d'agrégats nécessite, en particulier, la connaissance des structures des agrégats d'hydrogène. L'étude théorique des structures par calculs ab initio n'a été abordée, à notre connaissance, que pour H_3^+ , H_5^+ , H_7^+ , H_9^+ , H_{11}^+ , H_{13}^+ . Nous avons repris le calcul de ces structures avec une description plus précise et nous avons prolongé cette étude aux structures des agrégats H_{15}^+ , H_{17}^+ , H_{19}^+ , H_{21}^+ (chapitre 1). Le programme de calcul utilisé est GAUSSIAN 80 réalisé par J.A. POPLÉ et al., et adapté à l'ordinateur IBM du Centre de Calcul de l'Institut National de Physique Nucléaire et de Physique des Particules par H. CHERMETTE.

A l'émergence de la cible, suivant son épaisseur et la vitesse des projectiles incidents, les fragments peuvent être des protons H^+ , des atomes d'hydrogène H^0 , des ions H^- produits par échange de charge des protons dans la cible. Pour des projectiles très rapides et des cibles minces, on observe aussi des ions moléculaires H_2^+ , H_3^+ et des molécules H_2 (recombinaison moléculaire et transmission).

L'étude expérimentale des fractions d'atome d'hydrogène à l'émergence de cibles

solides par proton dans l'agrégat incident, pour des agrégats d'hydrogène H_n^+ ($n = 3, 5, 7, 9, 11, 13, 15, 17, 19, 21$) d'énergie 30 keV/p., 40 keV/p, 60 keV/p, 80 keV/p, 120 keV/p à été réalisée par B. MAZUY et al.. Cette étude a mis en évidence des effets collectifs sur l'échange de charge des protons en fonction de leur nombre dans l'agrégat incident. Parmi les atomes d'hydrogène à l'émergence, certains sont dans un état excité et la désexcitation radiative de ces atomes peut être observée. Nous avons réalisé la mesure de la quantité de photon correspondant à la transition Lyman α (1s-2p) de l'hydrogène émise à l'émergence de la cible pour différents agrégats d'hydrogène H_n^+ ($n = 3, 5, 7, 9, 11, \dots 61$) incidents de différentes vitesses (10 keV/p, 20 keV/p, 30 keV/p, 40 keV/p, 60 keV/p, 80 keV/p) avec des cibles de $2 \mu g.cm^{-2}$ et $3.8 \mu g.cm^{-2}$. La dépendance du nombre de photons mesurés avec le nombre de protons dans l'agrégat incident que nous avons obtenue est différente de celle obtenue pour la fraction d'atomes neutres.

La comparaison des fractions d'atomes neutres et d'atomes dans un état excité à l'émergence d'une cible solide avec celles obtenues avec des cibles gazeuses pour des protons incidents nous a conduit à préciser la description des échanges de charge dans les solides. L'ensemble des résultats expérimentaux obtenus par interaction de faisceaux d'agrégats d'hydrogène avec des cibles solides et l'utilisation de notre programme de simulation de cette interaction nous a permis de mettre en évidence les phénomènes dominants à basse vitesse qui sont à l'origine des effets observés (chapitre 3).

L'ensemble des calculs ont été réalisés sur l'ordinateur du centre de calcul de l'Institut National de la Physique Nucléaire et de la Physique des Particules.

L'expérience a été réalisée en collaboration avec le groupe des collisions atomiques dans les solides (C.A.S.) de l'Institut de Physique Nucléaire de Lyon (I.P.N.L.)

Les calculs des structures (chapitre 1) ont été réalisés en collaboration avec H. CHERMETTE (I.P.N.L.), N. de CASTRO FARIA (C.A.S. et Pontificia Universidade Catolica (Rio de Janeiro)) et B. FARIZON-MAZUY (C.A.S.).

Le travail présenté dans les chapitres 2 et 3 a été réalisé en collaboration avec N. de CASTRO FARIA (C.A.S. et Pontificia Universidade Catolica (Rio de Janeiro)) et B. FARIZON-MAZUY (C.A.S.).

CHAPITRE 1

ETUDE THEORIQUE DES STRUCTURES

DES AGREGATS D'HYDROGENE H_n^+ ($n = 3, 5, 7, 9, 11, 13, 15, 17, 19, 21$)

1.1 - METHODE D'APPROXIMATION DE LA CHIMIE QUANTIQUE

1.1.1 - DESCRIPTION D'UNE MOLECULE

Dans le cadre de la théorie quantique, l'énergie et les propriétés d'un état stationnaire d'une molécule sont obtenues par résolution de l'équation de Schrödinger

$$\hat{H}\psi = E\psi \quad [1.1]$$

ψ est la fonction d'onde caractérisant l'état moléculaire. Elle dépend des coordonnées d'espace et du spin des électrons et noyaux constituant la molécule. La fonction d'onde doit satisfaire en outre aux conditions de symétrie dans l'échange des particules identiques composant la molécule.

E est la valeur numérique de l'énergie de l'état moléculaire ψ relative à un état où les électrons et les noyaux sont, à l'arrêt, infiniment éloignés les uns des autres.

L'hamiltonien \hat{H} est un opérateur différentiel représentant l'énergie totale (non relativiste) du système (les effets relativistes n'étant importants que pour des électrons des

couches internes d'atomes de numéro atomique élevé).

La résolution de l'équation de Schrödinger pour une molécule, ne peut être réalisée de manière exacte. Les calculs sont donc effectués dans le cadre de modèles correspondant aux différentes approximations utilisées.

1.1.2 - L'APPROXIMATION ADIABATIQUE

Le rapport des masses des noyaux à celle d'un électron est tel que le mouvement des noyaux est beaucoup plus lent que celui des électrons. Les électrons ajustent donc leur distribution à chaque changement de position des noyaux, et l'on peut considérer que la distribution des électrons ne dépend que des positions instantanées des noyaux et non de leurs vitesses. C'est l'approximation adiabatique (BORN-OPPENHEIMER). Le problème est alors ramené à l'étude du mouvement des électrons dans le champ des noyaux fixes à une position donnée, puis à l'étude du mouvement des noyaux compte tenu de la distribution électronique correspondant à chaque position.

D'une manière quantitative, l'équation de Schrödinger devient

$$\hat{H}^{\text{elec}} \psi^{\text{elec}}(r, R) = E(R) \psi^{\text{elec}}(r, R) \quad [1.2]$$

$\psi^{\text{elec}}(r, R)$ est la fonction d'onde électronique qui dépend des coordonnées des électrons et des coordonnées des noyaux R .

\hat{H}^{elec} est l'hamiltonien décrivant le mouvement des électrons dans le champ fixe des noyaux de coordonnées R .

La résolution de l'équation pour différentes positions des noyaux conduit à la fonction $E(R)$ appelée surface de potentiel de la molécule. La surface de potentiel est fondamentale pour la description quantitative des structures des molécules. La fonction $E(R)$ associée à l'état d'énergie minimum solution de l'équation de Schrödinger présente un ou plusieurs minima locaux, ceux-ci définissant les structures d'équilibre de la molécule. Les structures ainsi calculées sont celles dont les noyaux seraient considérés à l'arrêt. En fait même pour une molécule dans l'état vibrationnel minimum les noyaux sont en mouvement. Néanmoins les géométries correspondant aux minima de la surface de potentiel sont de bonnes approximations de la structure moyenne de la molécule dans l'état vibrationnel minimum. Dans la suite, nous omettrons les indices notés dans l'équation 1.2, et nous noterons \hat{H} , ψ et E les grandeurs associées uniquement au mouvement des électrons, chaque grandeur étant implicitement fonction des coordonnées relatives R des noyaux.

1.1.3 - LE CALCUL HARTREE FOCK

1.1.1.1 - Modélisation de l'état moléculaire

La fonction d'onde moléculaire est construite à partir de fonctions monoélectroniques χ_i . Ces fonctions monoélectroniques sont le produit d'une fonction des coordonnées de l'électron considéré φ_i (orbitale moléculaire) et d'une fonction de spin σ_i . La fonction

d'onde d'un système à n électrons (satisfaisant les postulats sur l'indiscernabilité des particules identiques) est alors décrite par le déterminant de Slater construit à partir des fonctions monoélectroniques. La répartition des électrons dans les différentes orbitales moléculaires est appelée configuration électronique de l'état moléculaire. Compte tenu du spin $\frac{1}{2}$ des électrons, une même orbitale moléculaire peut être "occupée" au maximum par deux électrons (qui ont alors un nombre quantique de spin différent). Pour un système contenant un nombre pair d'électrons, l'état fondamental est uniquement constituée à partir d'orbitales doublement occupées. Par analogie avec les états atomiques, on dit alors que l'état moléculaire est à couche complète.

Dans le cadre de cette description, il reste à déterminer les orbitales moléculaires φ_i . Pour cela on développe les fonctions φ_i sur un ensemble de N fonctions de base $\{\phi_\mu\}_N$

$$\varphi_i = \sum_{\mu=1}^N C_{\mu i} \phi_\mu \quad [1.3]$$

Les coefficients du développement $C_{\mu i}$ sont alors déterminés par résolution de l'équation de Shrödinger par la méthode variationnelle.

1.1.3.2 - Le calcul Hartree-Fock (HF)

Soit la fonctionnelle

$$E(\psi) = \frac{\int \psi^* \hat{H} \psi \partial\tau}{\int \psi^* \psi \partial\tau} ;$$

les valeurs propres de l'hamiltonien \hat{H} sont les extréma de cette fonctionnelle (théorème de Ritz).

Ainsi, pour la "meilleure" description de l'état fondamental nous avons

$$\frac{\partial E(\psi)}{\partial C_{\mu i}} = 0 \quad \forall \mu, i \quad [1.4]$$

ROOTHAAN et HALL [1,2] ont montré que la méthode des variations, pour un état moléculaire décomposé sur les fonctions de base $\{\phi_n\}$ est équivalent à la diagonalisation de \hat{H} dans le sous-espace sous tendu par les fonctions ϕ_n .

Pour un système à couche complète (c'est le cas des agrégats d'hydrogène H_n^+ , n impair), les équations de Roothaan-Hall s'écrivent

$$\sum_{\nu=1}^N (F_{\mu\nu} - \epsilon_i S_{\mu\nu}) C_{\nu i} = 0 \quad \mu = 1, 2, \dots, N \quad [1.5]$$

avec les conditions de normalisation
$$\sum_{\mu=1}^N \sum_{\nu=1}^N C_{\mu i}^* S_{\mu\nu} C_{\nu i} = 1. \quad [1.6]$$

ϵ_i est l'énergie d'un électron de l'orbitale moléculaire ψ_i
. $S_{\mu\nu}$ sont les éléments de la matrice de recouvrement ($N \times N$)

$$S_{\mu\nu} = \int \phi_{\mu}^*(1) \phi_{\nu}(1) \partial x_1 \partial y_1 \partial z_1 \quad [1.7]$$

et $F_{\mu\nu}$ sont les éléments de la matrice Fock ($N \times N$)

$$F_{\mu\nu} = H_{\mu\nu}^{\text{coeur}} + \sum_{\lambda=1}^N \sum_{\sigma=1}^N P_{\lambda\sigma} [(\mu\nu|\lambda\sigma) - \frac{1}{2} (\mu\lambda|\nu\sigma)] \quad [1.8]$$

Dans cette expression, $H_{\mu\nu}^{\text{coeur}}$ est une matrice représentant l'énergie d'un seul électron dans le champ moyen du noyau. Ces éléments sont

$$H_{\mu\nu}^{\text{coeur}} = \int \phi_{\mu}^*(1) \hat{H}^{\text{coeur}} \phi_{\nu}(1) dx_1 dy_1 dz_1 \quad [1.9]$$

$$\hat{H}^{\text{coeur}}(1) = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) - \sum_{A=1}^M \frac{Z_A}{r_{1A}}$$

Z_A est le nombre atomique de l'atome A, et la sommation est effectuée sur tous les atomes.

Les quantités $(\mu\nu|\lambda\sigma)$ apparaissant dans l'équation [1.8] sont des intégrales de répulsion entre deux électrons:

$$(\mu\nu|\lambda\sigma) = \int \int \phi_{\mu}^*(1) \phi_{\nu}(1) \left(\frac{1}{r_{12}} \right) \phi_{\lambda}^*(2) \phi_{\sigma}(2) dx_1 dy_1 dz_1 dx_2 dy_2 dz_2 \quad [1.10]$$

Ils sont multipliés par les éléments de la matrice densité pour un électron, $P_{\lambda\sigma}$,

$$P_{\lambda\sigma} = 2 \sum_{i=1}^{\text{occ}} C_{\lambda i}^* C_{\sigma i} \quad [1.11]$$

où occ signifie que la sommation est effectuée uniquement sur les orbitales moléculaires occupées. Le facteur 2 indique que deux électrons occupent chaque orbitale moléculaire, et l'astérisque symbolise la conjugaison complexe (nécessaire si les orbitales moléculaires ne sont pas des fonctions réelles).

L'énergie électronique, E^{ee} , est maintenant donnée par:

$$E^{ee} = \frac{1}{2} \sum_{\mu=1}^N \sum_{\nu=1}^N P_{\mu\nu} (F_{\mu\nu} + H_{\mu\nu}^{\text{coeur}}) \quad [1.12]$$

qui, en tenant compte de la répulsion internucléaire donne comme expression pour l'énergie totale,

$$E^{\text{rn}} = \sum_A^M \sum_{B < A}^M \frac{Z_A Z_B}{R_{AB}} \quad [1.13]$$

(où Z_A et Z_B sont les nombres atomiques des atomes A et B, et R_{AB} est leur séparation).

Les équations de ROOHTHAAN-HALL ne sont pas linéaires puisque la matrice de Fock $F_{\mu\nu}$ dépend des coefficients $C_{\mu i}$ du développement des orbitales moléculaires sur les fonctions de base, à travers la matrice densité. La résolution par itérations successives est donc nécessaire.

Nous voyons que le choix des fonctions de base et leur nombre est déterminant pour la qualité de la description. Le nombre de fonctions, et donc de coefficients, donne de la flexibilité dans la description de l'état moléculaire. Mais la liberté n'est pas entière si l'ensemble des fonctions de base n'est pas complet. Le choix de l'ensemble des fonctions de base est en pratique limité par les temps de calculs qui en découlent.

De manière générale, plusieurs types de fonction de base ont été utilisées :

- les fonctions de Slater analogues aux fonctions d'onde hydrogénoïdes avec une partie radiale exponentielle et différentes symétries.

$$\begin{aligned} \phi_{1s} &= \left(\frac{\zeta_1^3}{\pi} \right)^{\frac{1}{2}} \exp(-\zeta_1 r) \\ \phi_{2s} &= \left(\frac{\zeta_2^5}{96\pi} \right)^{\frac{1}{2}} r \exp\left(\frac{-\zeta_2 r}{2}\right) \\ \phi_{2p_x} &= \left(\frac{\zeta_2^5}{32\pi} \right)^{\frac{1}{2}} x \exp\left(\frac{-\zeta_2 r}{2}\right) \end{aligned} \quad [1.14]$$

Les constantes ζ déterminent la taille de la région où la fonction n'est pas nulle.

- les fonctions du type gaussien, avec les mêmes symétries que précédemment,

$$\begin{aligned}
g_s(\alpha, r) &= \left(\frac{2\alpha}{\pi}\right)^{\frac{3}{4}} \exp(-\alpha r^2) \\
g_x(\alpha, r) &= \left(\frac{128\alpha^5}{\pi^3}\right)^{\frac{1}{4}} x \exp(-\alpha r^2) \\
g_r(\alpha, r) &= \left(\frac{2048\alpha^7}{225\pi^3}\right)^{\frac{1}{4}} r^2 \exp(-\alpha r^2)
\end{aligned}
\tag{1.15}$$

- les fonctions gaussiennes présentent la possibilité d'évaluer toutes les intégrales sans intégration numérique. Elles sont néanmoins de moins bonnes fonctions de base que les précédentes. Aussi utilise-t-on un troisième type de fonctions de base construites par combinaison linéaire de plusieurs gaussiennes de même symétrie,

$$\phi_\mu = \sum_s d_{\mu s} g_s
\tag{1.16}$$

Les coefficients $d_{\mu s}$ sont fixés au préalable et ne sont pas modifiés au cours du calcul Hartree-Fock.

Ces fonctions de base sont dites fonctions gaussiennes contractées, les fonctions gaussiennes g_s en sont les primitives gaussiennes.

1.1.4 - INTERACTION DE CONFIGURATIONS (I.C.)

Dans un calcul HARTREE-FOCK, l'état moléculaire est donc décrit à partir d'un déterminant de Slater. Indépendamment du choix de l'ensemble des fonctions de base, cette description est inadéquate pour traiter d'une manière complète les corrélations entre les mouvements des différents électrons. En particulier, aucune corrélation entre électrons de spin différent n'est prise en compte. Les corrélations entre électrons de même spin ne sont prises en compte qu'en partie.

Ces limitations font que les énergies calculées sont supérieures à la valeur exacte. Par convention la différence entre les énergies calculées par la méthode HARTREE-FOCK (HF) et l'énergie exacte non relativiste est l'énergie de corrélation,

$$E(\text{exact non relativiste}) = E(\text{HF}) + E(\text{correlation})
\tag{1.17}$$

Le but des méthodes de calcul dites d'interaction de configuration est l'évaluation de cette énergie de corrélation.

Considérons une molécule à n électrons décrite avec un ensemble de N fonctions de base ϕ_μ . Le calcul HF, par diagonalisation de l'hamiltonien dans le sous-espace défini par les N fonctions de base construit N orbitales moléculaires φ_i et donc $2N$ fonctions monoélectroniques χ_i .

Les n fonctions χ_i d'énergies les plus basses, correspondant aux orbitales moléculaires dites "occupées" sont utilisées pour construire le déterminant de Slater ψ_0 .

On peut construire d'autres déterminants de Slater par substitution d'une ou plusieurs fonctions χ_i du déterminant ψ_0 par une autre fonction monoélectronique correspondant à une orbitale moléculaire "vide".

Soient ψ_s les déterminants obtenus par la substitution s . Le calcul d'interaction de configurations consiste à développer l'état moléculaire sur les fonctions ψ_0 et ψ_s ,

$$\psi = a_0 \psi_0 + \sum_s a_s \psi_s \quad [1.18]$$

où la somme \sum_s s'effectue sur les déterminants obtenus par substitution. Les coefficients a_0 et a_s ainsi que l'énergie correspondante sont obtenus par résolution de l'équation de Schrödinger par la méthode variationnelle conduisant à la diagonalisation de l'hamiltonien dans le sous-espace sous-tendu par les fonctions ψ_0 et ψ_s .

Un tel calcul qui prend en compte toutes les substitutions est le plus complet pour résoudre l'équation de Schrödinger avec un ensemble de fonctions de base données. Plus le nombre de fonction de base augmente, plus le résultat du calcul avec interaction de configurations approche la solution exacte de l'équation de Schrödinger. Néanmoins le nombre de fonctions ψ_s ($\frac{2N!}{n!(2N-n)!}$) rend difficile un calcul avec tous les déterminants ψ_s et l'on effectue des calculs d'interaction de configuration limités à certaines substitutions.

D'après le théorème de Brillouin les éléments de matrice de l'hamiltonien entre le déterminant ψ_0 et un déterminant obtenu par une seule substitution sont tous nuls. Le calcul "minimum" de l'énergie de corrélation consiste donc à ne prendre en compte que les déterminants obtenus par double substitution. C'est le calcul d'interaction de configurations avec doubles substitutions (I.C.D.). Le calcul d'interaction de configurations avec simples et doubles substitutions (I.C.D.S.) est un calcul d'ordre supérieur qui fait intervenir les éléments de matrice de l'hamiltonien entre les déterminants obtenus par double substitution et ceux obtenus par simple substitution.

Le calcul d'interaction de configurations limité à certaines substitutions présente l'inconvénient de ne pas être valable quelquesoit la distance entre les atomes constituant la molécule. Ceci se voit facilement sur un exemple simple. Considérons un atome d'hélium. Le calcul Hartree-Fock détermine deux orbitales moléculaires : l'orbitale ψ_0 doublement "occupée" et l'orbitale ψ_1 "vide". La partie spatiale de la fonction I.C.D. a la forme.

$$\psi_{ICD} = 2^{-\frac{1}{2}} (a_0 \psi_0(1)\psi_0(2) + a_1 \psi_1(1)\psi_1(2)) \quad [1.19]$$

où les coefficients a_0 et a_1 sont déterminés par la méthode variationnelle.

Appliquons maintenant la théorie à deux atomes d'hélium infiniment éloignés l'un de l'autre. La partie spatiale de la fonction d'onde de ce système est le produit des fonctions d'onde des deux systèmes isolés.

$$\psi_{HF} = \psi_0^A(1)\psi_0^A(2)\psi_0^B(3)\psi_0^B(4)$$

$$\begin{aligned}
\psi_{ICD} &= (a_0 \psi_0^A(1) \psi_0^A(2) + a_1 \psi_1^A(1) \psi_1^A(2)) (a_0 \psi_0^B(3) \psi_0^B(4) + a_1 \psi_1^B(3) \psi_1^B(4)) \\
&= a_0^2 \psi_0^A(1) \psi_0^A(2) \psi_0^B(3) \psi_0^B(4) + a_0 a_1 \psi_0^A(1) \psi_0^A(2) \psi_1^B(3) \psi_1^B(4) \\
&+ a_1 a_0 \psi_1^A(1) \psi_1^A(2) \psi_0^B(3) \psi_0^B(4) + a_1^2 \psi_1^A(1) \psi_1^A(2) \psi_1^B(3) \psi_1^B(4)
\end{aligned} \tag{1.20}$$

Considérons maintenant ces deux atomes infiniment éloignés l'un de l'autre, comme un système à quatre électrons. La fonction I.C.D. pour le système à quatre électrons contient des termes du même type que les trois premiers mais n'inclue pas de termes du type du quatrième qui correspond à une quadruple substitution. Le calcul d'interaction de configurations appliqué au système à quatre électrons ne donne pas la même fonction d'onde ni la même énergie que le calcul effectué en considérant deux systèmes indépendants à deux électrons.

Pour corriger partiellement cette erreur introduite systématiquement par la méthode d'approximation, nous utiliserons la formule de LANGHOFF et DAVIDSON [3]

$$\delta E_{\text{correction}} = (1 - a_0^2) \delta E_{ICDS} \tag{1.21}$$

où δE_{ICDS} est l'énergie de corrélation calculée en I.C.D.S. et a_0 le coefficient de la fonction H.F. dans le développement de la fonction d'onde dans le calcul d'interaction de configurations. Cette correction ne doit bien sûr pas être effectuée pour un système à deux électrons. Dans ce cas, le calcul I.C.D.S. est équivalent à un calcul complet d'interaction de configurations.

1.2 - OPTIMISATION DES STRUCTURES D'AGRÉGATS D'HYDROGÈNE H_n^+ ($n = 3, 5, 7, 9, 11, 13, 15, 17, 19, 21$)

1.2.1 - PRINCIPE DU CALCUL

Le calcul consiste à rechercher les minima de la surface de potentiel d'un agrégat H_n^+ donné. L'optimisation de la géométrie pour un type de calcul et un ensemble de fonctions de base donné s'effectue de la manière suivante.

Avec une géométrie de départ donnée, on détermine par un calcul Hartree-Fock (avec éventuellement, interaction de configurations) l'énergie totale et la fonction d'onde correspondant. Avec cette fonction d'onde, on calcule les dérivées premières de l'énergie totale par rapport au déplacements des noyaux (gradient de l'énergie). Si le gradient de l'énergie est inférieur à une limite donnée au préalable, la structure de départ est, dans la limite fixée, un extrémum de la surface d'énergie potentielle de l'agrégat considéré.

Si la limite n'est pas atteinte, la géométrie de départ est modifiée, compte tenu du gradient de l'énergie et un nouveau calcul de la fonction d'onde, de l'énergie totale et de son gradient est réalisé pour la nouvelle position des noyaux. Nous avons fixé la limite par rapport à la racine carrée de la somme des carrés des dérivées premières de l'énergie par

rapport au paramètres de la structure à optimiser. Quand cette somme est inférieure ou égale à $3 \cdot 10^{-4}$ hartree/bohr ou /radians, l'optimisation est arrêtée.

La mesure des fréquences d'absorption des agrégats d'hydrogène a mis en évidence des fréquences d'absorption voisines de celles d' H_2 et d' H_3^+ . Aussi, la géométrie de départ est construite à partir d'une nucléation d' H_2 autour d'un H_3^+ . On peut imposer à la structure de conserver un certain nombre de symétries au cours d'un calcul. Le nombre d'intégrales à calculer est alors réduit et le temps de calcul diminué.

L'organigramme des calculs est présenté dans la figure 1.1

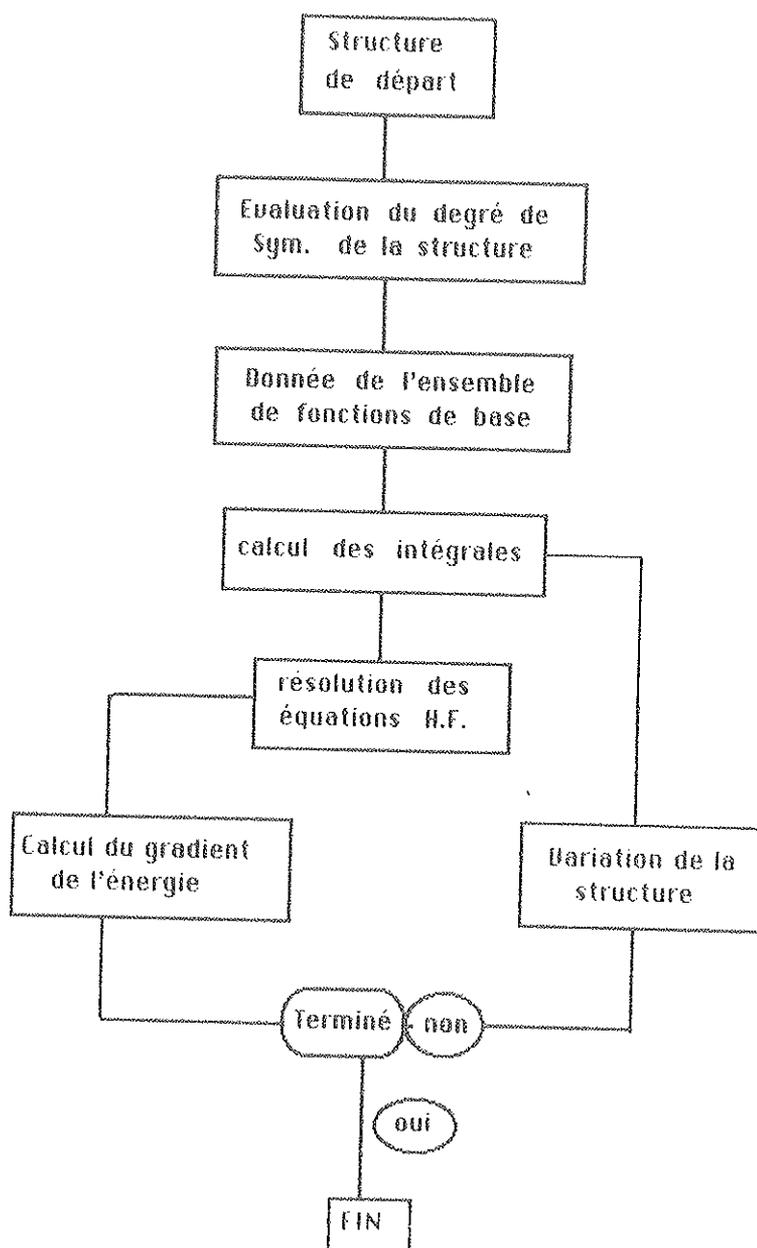


Figure 1.1 : Organigramme de l'optimisation de la géométrie d'une molécule .

Le programme de calcul GAUSSIAN 80 que nous avons utilisé a été réalisé par POPLE et al. [4] et adapté à l'ordinateur I.B.M. du Centre de Calcul de l'Institut National de Physique Nucléaire et des Particules par H. CHERMETTE (Institut de Physique Nucléaire de LYON).

Nous avons ainsi calculé les structures correspondant aux minima de la surface de potentiel des agrégats d'hydrogène H_n^+ ($n = 3, 5, 7, 9, 11, 13, 15, 17, 19, 21$). Dans un premier temps nous allons comparer nos résultats pour H_3^+ et H_5^+ avec ceux obtenus par YAMAGUCHI et al. [5] et HIRAO et al. [6] avec différents ensembles de fonctions de base.

1.2.2 - COMPARAISON DES RESULTATS OBTENUS POUR H_3^+ et H_5^+

Les agrégats d'hydrogène ont une relative simplicité puisqu'il n'y a qu'un électron par atome. L'ensemble de fonctions de base minimum est donc constitué d'une fonction de type s centrée sur chaque proton. Cet ensemble minimum est insuffisant et l'on introduit les ensembles DZ, TZ, QZ, SZ,..., (double dzéta, triple dzéta,...) constitués de 2, 3, 4, 6,..., fonctions de type s centrées sur chaque proton de l'agrégat. L'ensemble de fonction DZ est constitué de fonctions gaussiennes contractées de type s, avec deux fonctions centrées sur chaque protons. Les fonctions sont obtenues par contraction de primitives gaussiennes et sont différentes suivant les auteurs.

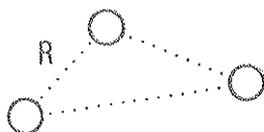
YAMAGUCHI et al. utilisent les fonctions de base d' HUZINAGA [5] Nous avons utilisé comme HIRAO et al., les fonctions de base de POPLE [4].

Les coefficients et les exposants des primitives gaussiennes constituant les fonctions de base sont présentés dans l'annexe 1.

L'utilisation d'un ensemble de fonctions de base de type s uniquement conduit nécessairement à une densité électronique sphérique autour des noyaux. Pour palier à cette difficulté, on introduit des fonctions de symétrie différentes appelées fonctions de polarisation. L'ensemble de fonctions de base DZP est constitué des fonctions de l'ensemble DZ auquel on ajoute pour chaque proton de l'agrégat un groupe de trois fonctions de type p (P_X, P_Y, P_Z) de même exposant. Il en est de même pour l'ensemble TZP. Les ensembles QZP et SZP contiennent respectivement deux et trois groupes de fonctions de type p d'exposants différents.

Nous présentons dans les pages suivantes nos résultats ainsi que ceux de YAMAGUCHI et al. [5] et de HIRAO et al. [6] pour les différents ensembles de fonctions de base utilisés (l'unité atomique d'énergie utilisée est le Hartree (27.21 eV)).

H_3^+ (D_{3h})



H_3^+ FONCTIONS DE BASE DZ			
Calcul	Auteur	Energie(u.a.)	R(Å)
HF	Yamaguchi	-1.275824	0.8497
HF	Hirao	-1.274279	0.8457
HF	Ce travail	-1.274294	0.8443
ICD	Ce travail	-1.304081	0.8550
ICDS	Yamaguchi	-1.305772	0.8606

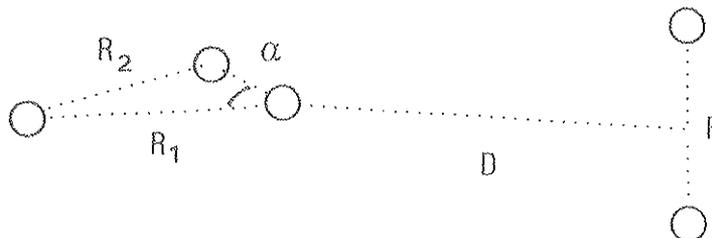
H_3^+ FONCTIONS DE BASE DZP			
Calcul	Auteur	Energie(u.a.)	R(Å)
HF	Yamaguchi	-1.295751	0.8613
HF	Hirao	-1.294451	0.864
HF	Ce travail	-1.293731	0.8556
ICD	Ce travail	-1.332199	0.8602
ICDS	Yamaguchi	-1.334535	0.8670
ICDS	Hirao	-1.332978	0.864

H_3^+ FONCTIONS DE BASE TZ			
<i>Calcul</i>	<i>Auteur</i>	<i>Energie(u.a.)</i>	<i>R(Å)</i>
<i>HF</i>	<i>Ce travail</i>	-1.276538	0.8696
<i>ICD</i>	<i>Ce travail</i>	-1.306623	0.8797

H_3^+ FONCTIONS DE BASE TZP			
<i>Calcul</i>	<i>Auteur</i>	<i>Energie(u.a.)</i>	<i>R(Å)</i>
<i>HF</i>	<i>Ce travail</i>	-1.298529	0.8694
<i>ICD</i>	<i>Ce travail</i>	-1.337063	0.8780

H_3^+ FONCTIONS DE BASE QZP			
<i>Calcul</i>	<i>Auteur</i>	<i>Energie(u.a.)</i>	<i>R(Å)</i>
<i>HF</i>	<i>Yamaguchi</i>	-1.299350	0.8692
<i>ICDS</i>	<i>Yamaguchi</i>	-1.339181	0.8771

H_3^+ FONCTIONS DE BASE SZP			
<i>Calcul</i>	<i>Auteur</i>	<i>Energie(u.a.)</i>	<i>R(Å)</i>
<i>HF</i>	<i>Yamaguchi</i>	-1.299723	0.8683
<i>ICDS</i>	<i>Yamaguchi</i>	-1.340290	0.8752

H_5^+ (C_{2v})


H_5^+ FONCTIONS DE BASE DZ							
Calcul	Auteur	Energie(u.a.)	$R_1(\text{Å})$	$R_2(\text{Å})$	$\alpha(\text{deg})$	$D(\text{Å})$	$P(\text{Å})$
HF	Yamaguchi	-2.40782	0.8697	0.8276	56.82	1.7510	0.7416
HF	Hirao	-2.40503	—	—	—	1.9098	0.7376
HF	Ce travail	-2.40503	0.8579	0.8285	57.74	1.8538	0.7375
ICD	Ce travail	-2.459283	0.8698	0.8381	57.60	1.8102	0.7622
ICDS	Yamaguchi	-2.46231	0.8822	0.8369	56.63	1.7131	0.7562
ICT	Yamaguchi	-2.46315	0.8833	0.8373	56.58	1.7091	0.7573

H_5^+ FONCTIONS DE BASE DZP							
Calcul	Auteur	Energie(u.a.)	$R_1(\text{Å})$	$R_2(\text{Å})$	$\alpha(\text{deg})$	$D(\text{Å})$	$P(\text{Å})$
HF	Yamaguchi	-2.434570	0.9028	0.8250	54.38	1.5375	0.7464
HF	Hirao	-2.432897	0.891	0.838	56.10	1.595	0.747
HF	Ce travail	-2.430485	0.8801	0.8312	57.74	1.6767	0.7758
ICD	Ce travail	-2.503916	0.9512	0.8034	49.96	1.3018	0.7546
ICDS	Yamaguchi	-2.509874	0.9759	0.8035	48.62	1.2622	0.7608
ICDS	Hirao	-2.508200	0.891	0.838	56.10	1.503	0.747
ICT	Yamaguchi	-2.511426	0.9921	0.8003	47.57	1.2287	0.7636

H_6^+ FONCTIONS DE BASE TZ							
Calcul	Auteur	Energie(u.a.)	$R_1(\text{Å})$	$R_2(\text{Å})$	$\alpha(\text{deg})$	$D(\text{Å})$	$P(\text{Å})$
HF	Ce travail	-2.409856	0.9102	0.8319	54.38	1.5660	0.7455
ICD	Ce travail	-2.464888	0.9276	0.8378	53.69	1.5109	0.7604

H_6^+ FONCTIONS DE BASE TZP							
Calcul	Auteur	Energie(u.a.)	$R_1(\text{Å})$	$R_2(\text{Å})$	$\alpha(\text{deg})$	$D(\text{Å})$	$P(\text{Å})$
HF	Ce travail	-2.439228	0.9191	0.8267	53.43	1.49107	0.7506
ICD	Ce travail	-2.516292	0.9947	0.8100	48.05	1.2544	0.7683

$$\delta E_{\text{correction}} = 0.001368 \text{ u.a.}$$

H_6^+ FONCTIONS DE BASE QZP							
Calcul	Auteur	Energie(u.a.)	$R_1(\text{Å})$	$R_2(\text{Å})$	$\alpha(\text{deg})$	$D(\text{Å})$	$P(\text{Å})$
HF	Yamaguchi	-2.441263	0.9102	0.8310	54.32	1.5468	0.7496
ICDS	Yamaguchi	-2.520609	0.9817	0.8098	48.93	1.2831	0.7672
ICT	Yamaguchi	-2.522444	0.9988	0.8131	47.83	1.2466	0.7705

H_6^+ FONCTIONS DE BASE SZP							
Calcul	Auteur	Energie(u.a.)	$R_1(\text{Å})$	$R_2(\text{Å})$	$\alpha(\text{deg})$	$D(\text{Å})$	$P(\text{Å})$
HF	Yamaguchi	-2.442122	0.9098	0.8297	54.26	1.5456	0.7490
ICDS	Yamaguchi	-2.523150	0.9606	0.8174	50.36	1.3387	0.7640

Nous avons représenté dans la figure 1.2, l'énergie totale de H_3^+ et de H_5^+ obtenue par un calcul Hartree-Fock pour différents ensembles de fonctions de base.

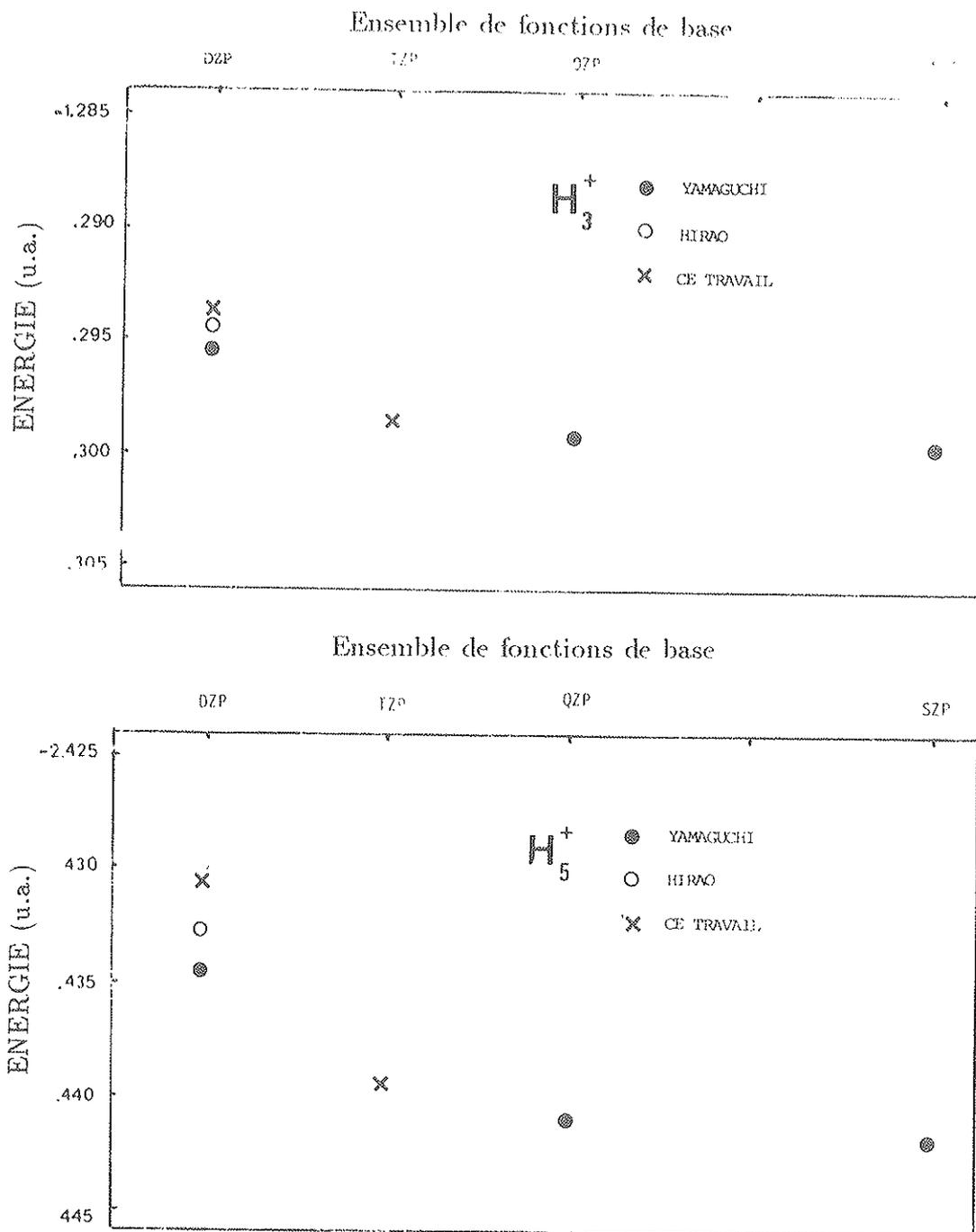


Figure 1.2 : Energie de liaison de H_3^+ (en haut) et H_5^+ (en bas) avec différents ensembles de fonctions de base.

L'énergie totale augmente quand on augmente le nombre de fonctions de base. Mais il y a saturation de cet effet et les résultats obtenus avec l'ensemble QZP relativement à ceux obtenus avec l'ensemble TZP ne montrent qu'une faible amélioration.

Dans les figures 1.3, 1.4, 1.5 sont représentées la distance R de H_3^+ et les distances R_1 et D de H_5^+ obtenues par calcul Hartree-Fock et par calcul I.C.D.S. ou I.C.D. pour les différents ensembles de fonctions de base utilisés.

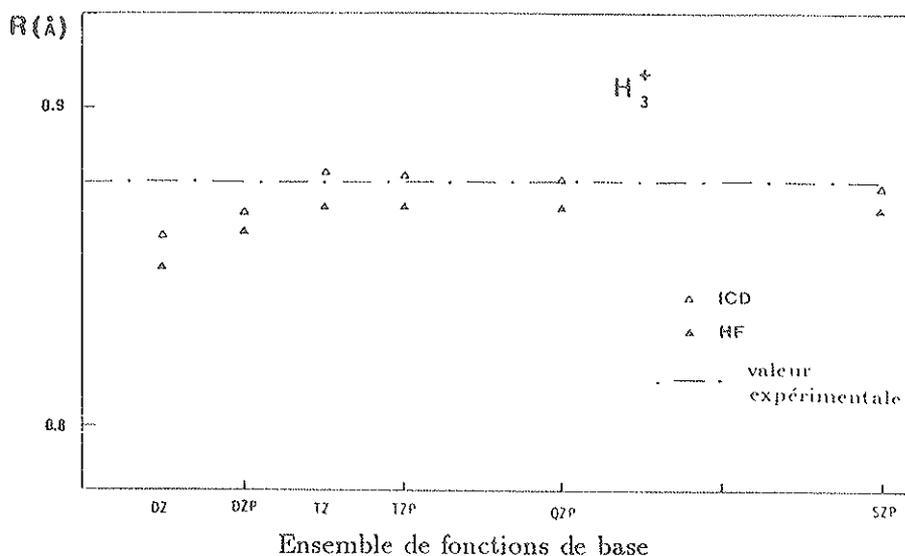


Figure 1.3 : Distance (R) (fig. p.16) dans H_3^+ par calculs HF et ICD avec différents ensembles de fonctions de base (valeur expérimentale [5]).

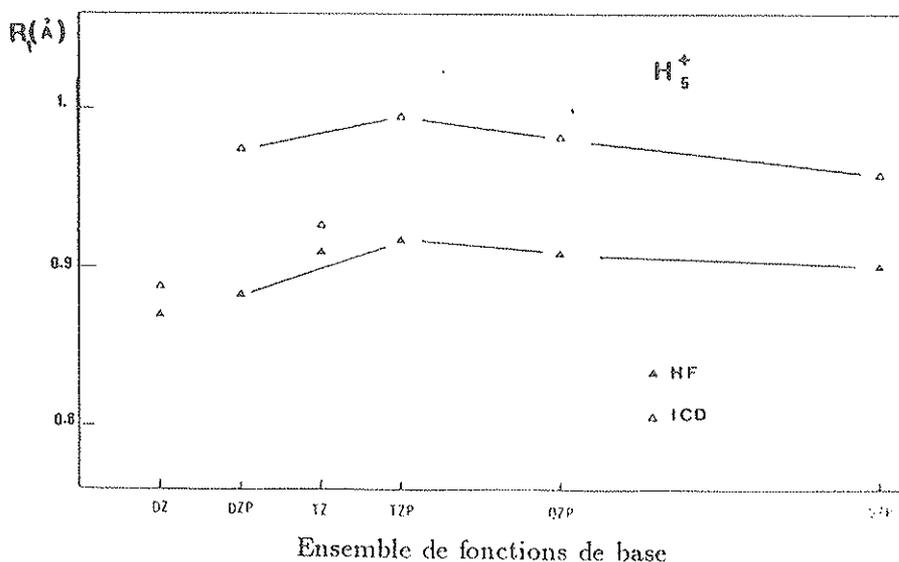


Figure 1.4 : Distance (R_1) (fig. p.18) dans H_5^+ par calculs HF et ICD avec différents ensembles de fonctions de base.

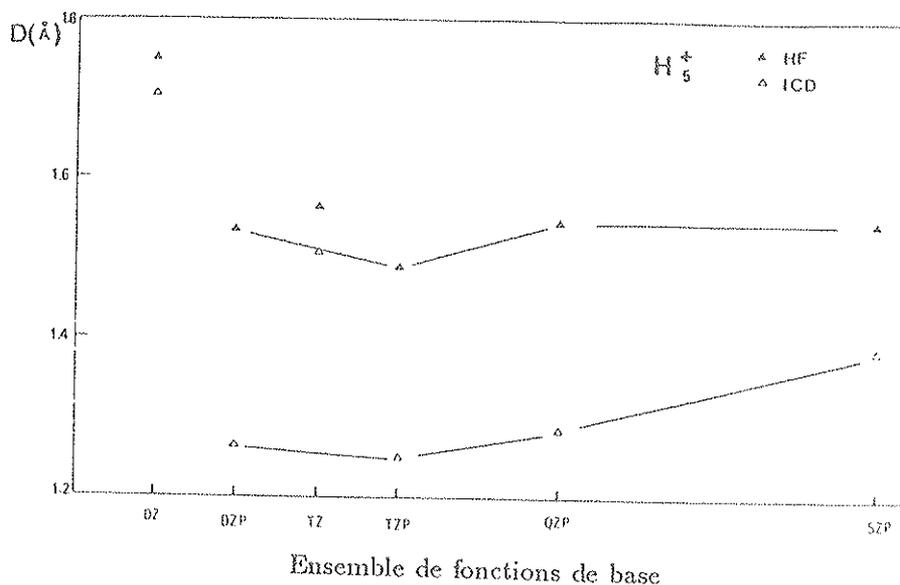


Figure 1.5 : Distance (D) (fig. p.18) dans H_5^+ par calculs HF et ICD avec différents ensembles de fonctions de base.

La distance R étant le seul paramètre dans H_3^+ , elle suit la même évolution que l'énergie totale. L'optimisation avec calcul d'interaction de configurations modifie de manière systématique la valeur de R .

Les distances dans H_5^+ évoluent de manière beaucoup moins systématique d'un ensemble de fonctions de base à l'autre. Ceci est dû à la variation simultanée de plusieurs paramètres. Pour un type de calcul donné (H.F. ou I.C.) la variation d'un ensemble de fonctions de base à l'autre est de l'ordre de 0.05 \AA pour R_1 et de 0.1 \AA pour D . D'autre part, les valeurs obtenues par un calcul avec interaction de configurations avec un ensemble de fonctions de base donné, sont décalées de manière systématique par rapport à celle obtenues par le calcul Hartree- Fock. Avec les ensembles de fonctions de base contenant des fonctions de polarisation, le décalage est de l'ordre $+ 0.07 \text{ \AA}$ pour R_1 et de $- 0.2 \text{ \AA}$ pour D . Le décalage est plus faible s'il n'y a pas de fonctions de polarisation.

L'ensemble de ces résultats situe l'ordre de grandeur de la précision des calculs que nous présentons dans le paragraphe suivant.

1.2.3 - ETUDE DES STRUCTURES DES AGREGATS D'HYDROGENE

H_n^+ ($n = 7, 9, 11, 13, 15, 17, 19, 21$)

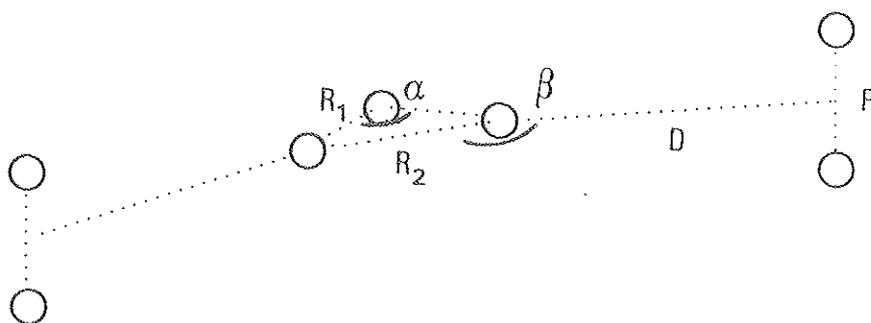
Nous avons par un calcul Hartree-Fock en utilisant l'ensemble de fonctions de base TZP, déterminé les structures correspondant au minimum de la surface de potentiel des agrégats H_7^+ , H_9^+ , H_{11}^+ , H_{13}^+ , H_{15}^+ , H_{17}^+ , H_{19}^+ , H_{21}^+ .

Pour les agrégats H_7^+ , H_9^+ , l'ensemble des paramètres a été optimisé et nous avons effectué un calcul d'interaction de configurations avec doubles substitutions.

Pour les agrégats H_{11}^+ , H_{13}^+ , H_{15}^+ , H_{17}^+ , H_{19}^+ et H_{21}^+ , l'importance des temps de calcul, liés au nombre de fonctions de base (6 fonctions par proton dans l'agrégat) et le nombre de paramètres à optimiser, ne nous a pas permis d'optimiser tous les paramètres. Compte tenu du fait que la distance entre les protons constituant les "H₂" dans l'agrégat varie peu dans H_7^+ et H_9^+ , nous avons dans les calculs qui suivent, fixé cette distance à 0.74 Å. La variation de la structure en fonction de cette distance a été étudié pour l'agrégat H_{15}^+ .

Les résultats sont présentés dans les pages suivantes. Dans les tableaux de résultats, l'astérisque (*) indique que la valeur du paramètre correspondant n'a pas été optimisée.

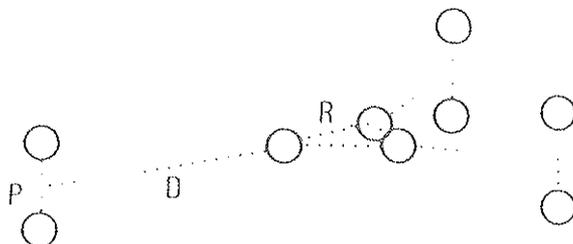
H_7^+ (C_{2v})



H_7^+ FONCTIONS DE BASE TZP							
Calcul	Energie(u.a.)	R_1 (Å)	R_2 (Å)	α (deg)	D (Å)	P (Å)	β (deg)
HF	-3.576700	0.8631	0.9151	64.03	1.6774	0.7453	148.16
ICD	-3.687768	0.8902	0.9352	63.37	1.5627	0.7541	146.90

$\delta E_{\text{correction}} = 0.003788 \text{ u.a.}$

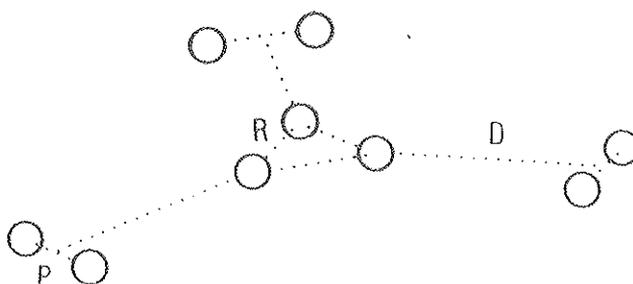
H_9^+ STRUCTURE 1 (D_{3h})



H_9^+ FONCTIONS DE BASE TZP				
Calcul	Energie(u.a.)	R(Å)	D(Å)	P(Å)
HF	-4.713408	0.8766	1.7702	0.7430
ICD	-4.858025	0.8896	1.6584	0.7430

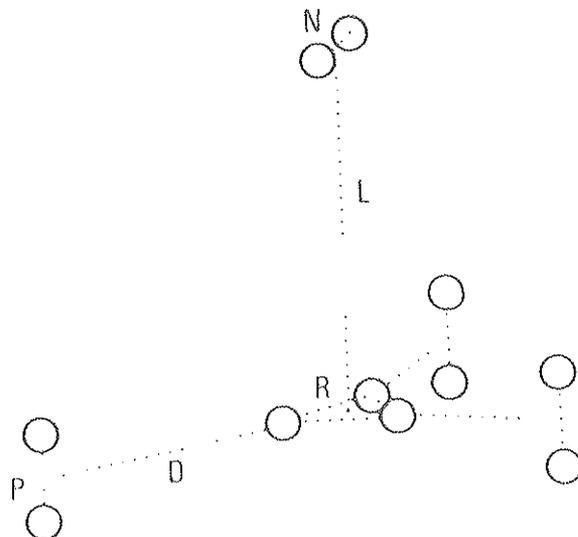
$\delta E_{correction} = 0.007015 \text{ u.a.}$

H_9^+ STRUCTURE 2 (D_{3h}) (plane)



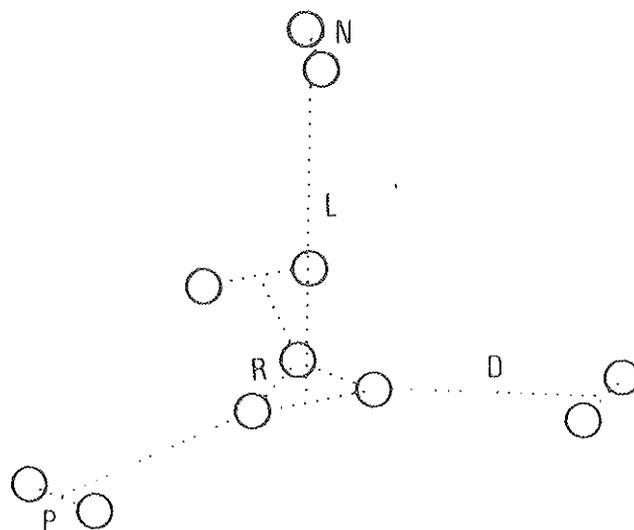
H_9^+ FONCTIONS DE BASE TZP				
Calcul	Energie(u.a.)	R(Å)	D(Å)	P(Å)
HF	-4.713066	0.8759	1.7797	0.7430
ICD	-4.857673	0.8889	1.6676	0.7503

H_{11}^+ STRUCTURE 1 (C_s)



H_{11}^+ FONCTIONS DE BASE TZP						
Calcul	Energie(u.a.)	R(Å)	D(Å)	P(Å)	L(Å)	N(Å)
HF	-5.846942	0.8756	1.7714	0.74 *	2.9689	0.74 *

H_{11}^+ STRUCTURE 2 (C_s)

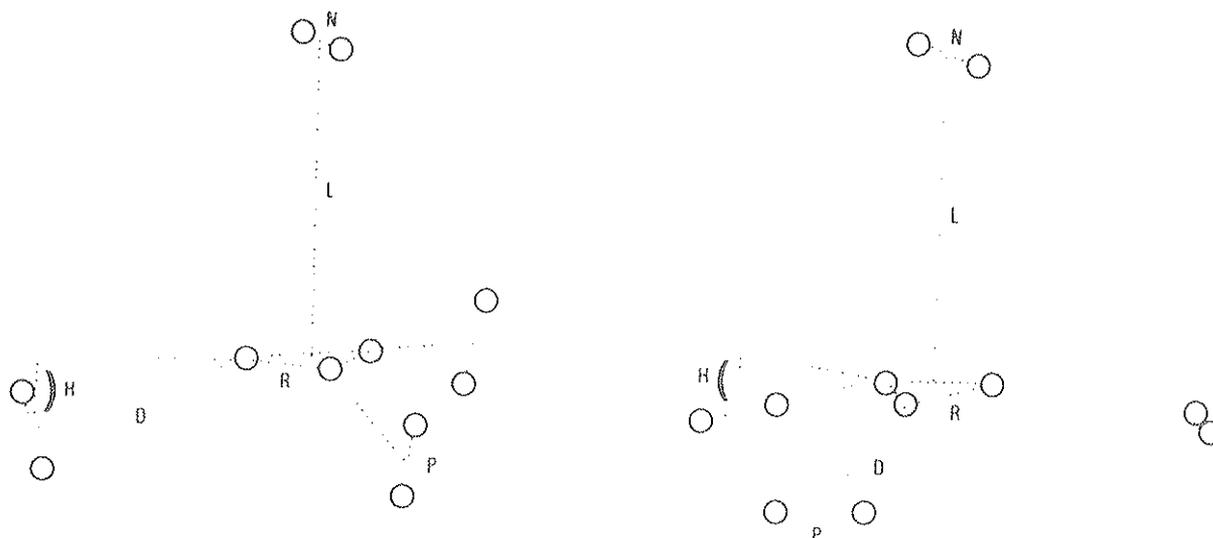


H_{11}^+ FONCTIONS DE BASE TZP						
Calcul	Energie(u.a.)	R(Å)	D(Å)	P(Å)	L(Å)	N(Å)
HF	-5.846482	0.8753	1.7816	0.74 *	3.0026	0.74 *

H_{11}^+

STRUCTURE 1

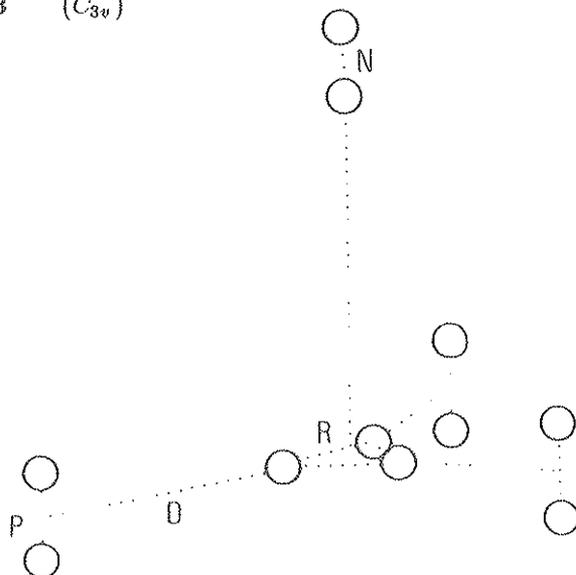
STRUCTURE 2



H_{11}^+ STRUCTURE 1 TZP HF						
$H(\text{\AA})$	Energie(u.a.)	$R(\text{\AA})$	$D(\text{\AA})$	$P(\text{\AA})$	$L(\text{\AA})$	$N(\text{\AA})$
0.	-5.846942	0.8756	1.7714	0.74 *	2.9689	0.74 *
0.01	-5.846944	0.8758	1.7712	0.74 *	2.9697	0.74 *
0.1	-5.84692	0.8757	1.7712	0.74 *	2.9523	0.74 *
0.5	-5.845792	0.8739	1.7422	0.74 *	2.9104	0.74 *

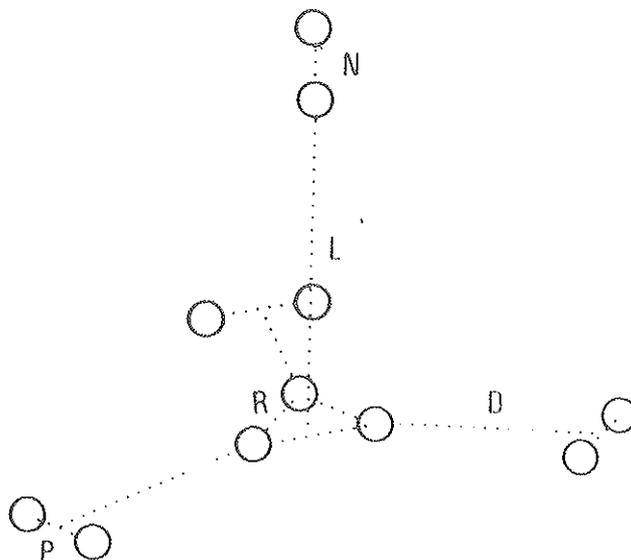
H_{11}^+ STRUCTURE 2 TZP HF						
$H(\text{\AA})$	Energie(u.a.)	$R(\text{\AA})$	$D(\text{\AA})$	$P(\text{\AA})$	$L(\text{\AA})$	$N(\text{\AA})$
0.	-5.846482	0.8753	1.7816	0.74 *	3.0026	0.74 *
0.01	-5.846486	0.8752	1.7818	0.74 *	3.0029	0.74 *
0.1	-5.846470	0.8751	1.7806	0.74 *	2.9826	0.74 *
0.5	-5.845391	0.8734	1.7530	0.74 *	2.9198	0.74 *

H_{11}^+ STRUCTURE 3 (C_{3v})



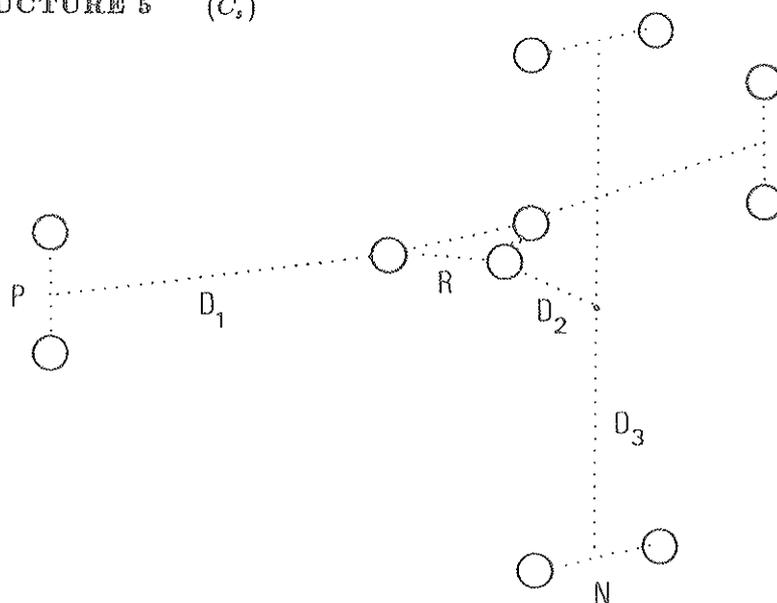
H_{11}^+ FONCTIONS DE BASE TZP						
Calcul	Energie(u.a.)	R(Å)	D(Å)	P(Å)	L(Å)	N(Å)
HF	-5.846062	0.8766	1.7698	0.74 *	2.9234	0.74 *

H_{11}^+ STRUCTURE 4 (C_{3v})



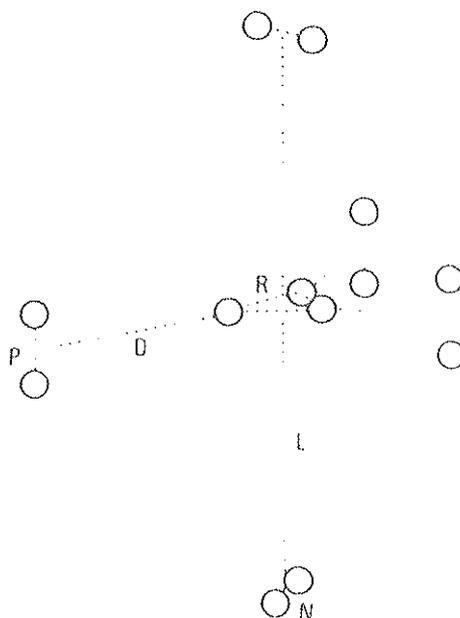
H_{11}^+ FONCTIONS DE BASE TZP						
Calcul	Energie(u.a.)	R(Å)	D(Å)	P(Å)	L(Å)	N(Å)
HF	-5.845600	0.8759	1.7790	0.74 *	3.0458	0.74 *

H_{11}^+ STRUCTURE 5 (C_s)



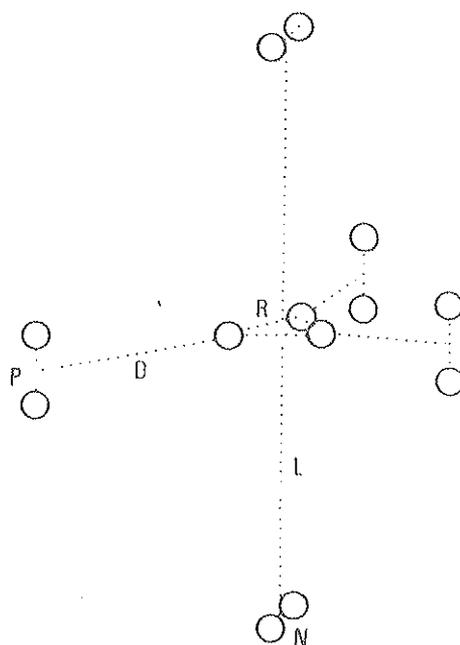
H_{11}^+ FONCTIONS DE BASE TZP								
Calcul	Energie(u.a.)	$R_1(\text{Å})$	$R_2(\text{Å})$	$D_1(\text{Å})$	$P(\text{Å})$	$D_2(\text{Å})$	$D_3(\text{Å})$	$N(\text{Å})$
HF	-5.791453	0.8445	0.8553	1.9325	0.74 *	1.7318	1.6325	0.74 *

H_{13}^+ STRUCTURE 1 (C_2)



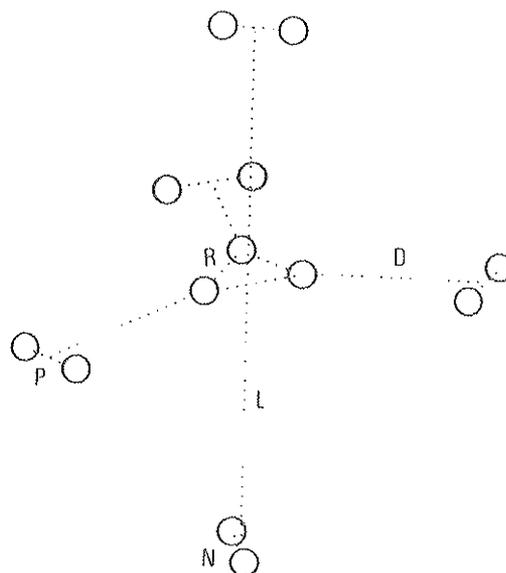
H_{13}^+		FONCTIONS DE BASE TZP				
Calcul	Energie(u.a.)	R(Å)	D(Å)	P(Å)	L(Å)	N(Å)
HF	-6.980490	0.8750	1.7726	0.74 *	2.9674	0.74 *

H_{13}^+ STRUCTURE 2 (C_{2v})



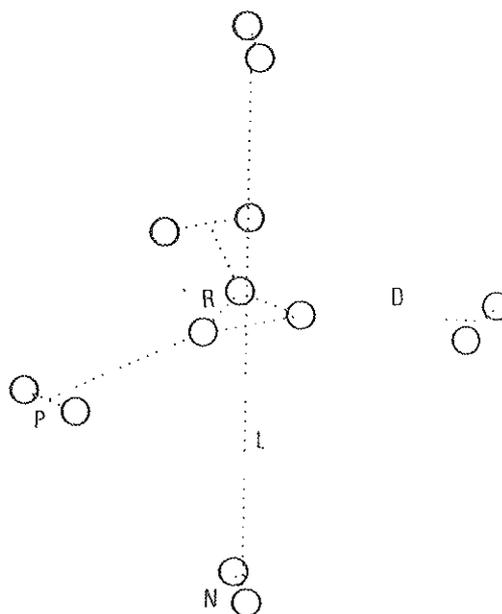
H_{13}^+		FONCTIONS DE BASE TZP				
Calcul	Energie(u.a.)	R(Å)	D(Å)	P(Å)	L(Å)	N(Å)
HF	-6.980490	0,8750	1.7732	0.74 *	2.9663	0.74 *

H_{13}^+ STRUCTURE 3 (C_{2v})



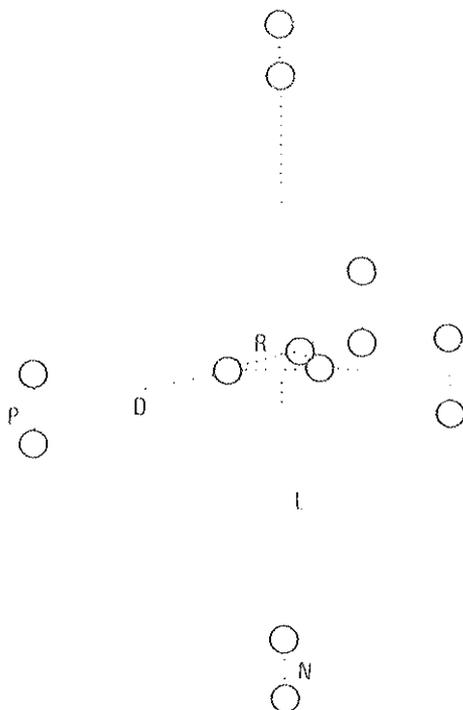
H_{13}^+ FONCTIONS DE BASE TZP						
Calcul	Energie(u.a.)	R(Å)	D(Å)	P(Å)	L(Å)	N(Å)
HF	-6.979945	0.8750	1.7844	0.74 *	2.9821	0.74 *

H_{13}^+ STRUCTURE 4 (C_2)



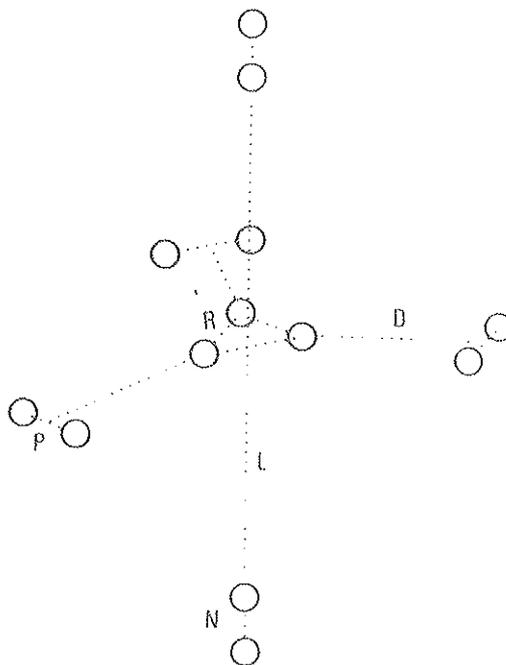
H_{13}^+ FONCTIONS DE BASE TZP						
Calcul	Energie(u.a.)	R(Å)	D(Å)	P(Å)	L(Å)	N(Å)
HF	-6.979945	0.8745	1.7847	0.74 *	2.9829	0.74 *

H_{13}^+ STRUCTURE 5 (D_{3h})

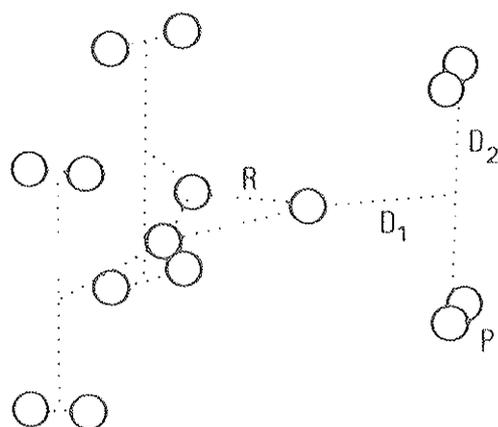


H_{13}^+ FONCTIONS DE BASE TZP						
Calcul	Energie(u.a.)	R(Å)	D(Å)	P(Å)	L(Å)	N(Å)
HF	-6.978731	0.8763	1.7717	0.74 *	2.9196	0.74 *

H_{13}^+ STRUCTURE 6 (D_{3h})



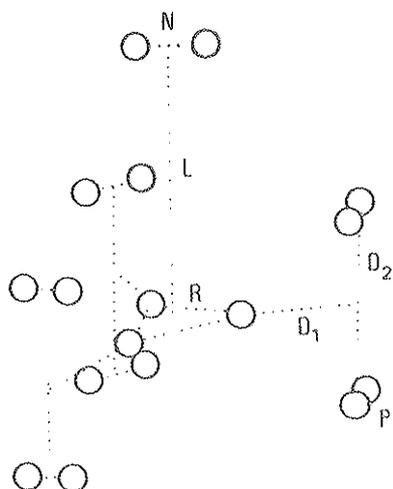
H_{13}^+ FONCTIONS DE BASE TZP						
Calcul	Energie(u.a.)	R(Å)	D(Å)	P(Å)	L(Å)	N(Å)
HF	-6.978156	0.8759	1.7809	0.74 *	3.0249	0.74 *

H_{15}^+ (D_{3h}) 

H_{15}^+ FONCTIONS DE BASE TZP					
Calcul	Energie(u.a.)	R(Å)	D_1 (Å)	D_2 (Å)	P(Å)
HF	-8.109093	0.8672	1.5749	1,5421	0.74 *

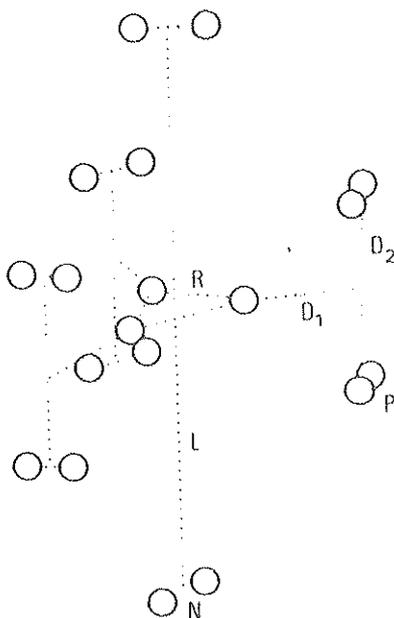
H_{15}^+ FONCTIONS DE BASE TZP					
Calcul	Energie(u.a.)	R(Å)	D_1 (Å)	D_2 (Å)	P(Å)
HF	-8.102354	0.8669	1.5722	1.5373	0.70 *
HF	-8.108808	0.8672	1.5749	1.5421	0.73 *
HF	-8.108539	0.8672	1.5749	1.5421	0.75 *
HF	-8.102327	0.8674	1.5749	1.5493	0.78 *

H_{17}^+ (C_s)



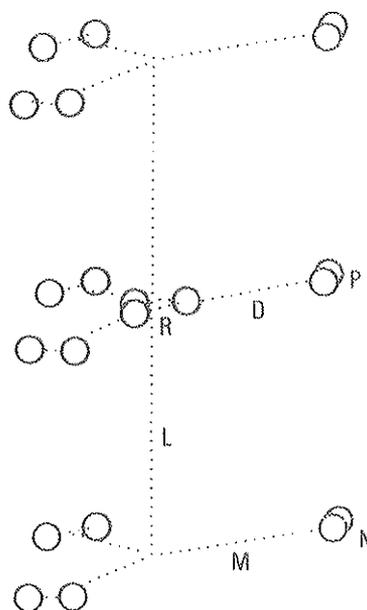
H_{17}^+ FONCTIONS DE BASE TZP							
Calcul	Energie(u.a.)	R(Å)	D ₁ (Å)	D ₂ (Å)	P(Å)	L(Å)	N(Å)
HF	-9.241799	0.8670	1.575	1.541	0.74 *	4.889	0.74 *

H_{19}^+ (C_2)



H_{19}^+ FONCTIONS DE BASE TZP							
Calcul	Energie(u.a.)	R(Å)	D ₁ (Å)	D ₂ (Å)	P(Å)	L(Å)	N(Å)
HF	-10.374504	0.8671	1.5759	1.5397	0.74 *	4.8945	0.74 *

H_{21}^+ STRUCTURE 1 (C_{2v})



H_{21}^+ FONCTIONS DE BASE TZP							
Calcul	Energie(u.a.)	R(Å)	D(Å)	P(Å)	L(Å)	M(Å)	N(Å)
HF	11.510020	0.8759	1.7787	0.74 *	3.5090	2.3077	0.74 *

Nous avons représenté dans la figure 1.6 la superposition des projections dans le plan de l' H_3 des structures de H_5^+ et H_7^+ .

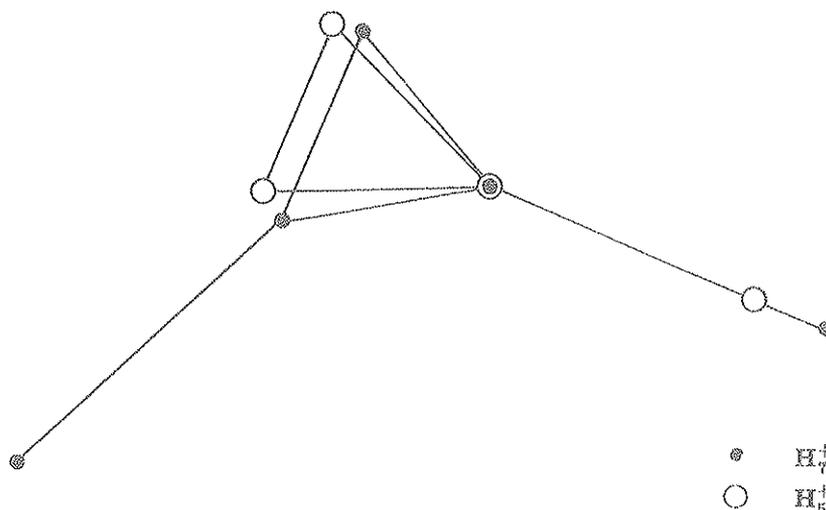


Figure 1.6 : Superposition des projections dans le plan de l' H_3 des structures de H_5^+ et H_7^+ .

Les résultats obtenus pour H_7^+ montrent que la dissymétrie de l' " H_3 " est différente de celle obtenue dans H_5^+ . La distance des H_2 au proton le plus proche, augmentée de 0.21 Å par rapport à celle calculée pour H_5^+ et la valeur de l'angle β obtenue (148 deg) sont liées à la répulsion entre les deux " H_2 ".

Pour H_9^+ , nous avons optimisé deux minima de la surface de potentiel. Comme dans H_5^+ , la structure plane est moins liée que la structure où l' " H_2 " est placé perpendiculairement au plan du " H_3 ". Dans H_9^+ , l'encombrement accentue l'écart en énergie entre ces deux structures (H_9^+ au lieu de pour H_5^+). De même, les " H_2 " sont plus éloignés que dans H_7^+ , de 0.07 Å du proton le plus proche.

Les quatre minima de la surface de potentiel de H_{11}^+ que nous avons étudiés correspondent à deux manières d'approcher un " H_2 " supplémentaire des deux structures d' H_9^+ étudiées précédemment. Les deux structures d'énergies les plus basses sont celles où l'axe du " H_2 " supplémentaire est dans un plan parallèle à celui contenant l' " H_3 ". L'écart entre la structure 1 et la structure 2 est accentué par rapport à celui obtenu dans H_9^+ .

Les trois " H_2 " perpendiculaires au plan du " H_3 " sont à des distances de l'ordre de 2.5 Å du centre de l' " H_3 " alors que le nouvel " H_2 " en est à 3 Å environ. Nous avons étudié des structures où les quatre " H_2 " auraient une situation plus symétrique. Les structures correspondant aux différentes valeurs du paramètre H montrent que l'évolution vers une géométrie plus tétraédrique conduit à une structure moins stable. La structure 5 conduit en effet à une énergie totale beaucoup plus faible.

Dans H_{13}^+ , les deux " H_2 " supplémentaires sont légèrement plus proches du centre du

"H₃" que dans H₁₁⁺. Les résultats obtenus pour les structures 1 et 2 d'une part et les structures 3 et 4 d'autre part indiquent la faible dépendance énergétique des structures avec la position relative des "H₂" dans le plan perpendiculaire au plan du "H₃" à une distance donnée, de part et d'autre de celui-ci.

Dans la structure d' H₁₅⁺ que nous avons étudiée, les six "H₂" sont placés de manière symétrique autour du "H₃". Les "H₂" sont situés à 2.7 Å du centre de l' "H₃", distance intermédiaire entre celles obtenues dans H₁₁⁺ (3 Å et 2.4 Å).

Pour étudier l'influence de la distance P entre les protons des "H₂" sur les structures calculées, nous avons optimisé les structures correspondant à différentes valeurs de P (0.70 Å , 0.73 Å , 0.74 Å , 0.75 Å , 0.78 Å). Les structures obtenues pour P = 0.74 Å , 0.73 Å , 0.75 Å sont identiques.

Les structures de H₁₇⁺ et H₁₉⁺ que nous avons optimisées ont été construites à partir de celle du H₁₅⁺ de la même manière qu'ont été construites celles d' H₁₁⁺ et d' H₁₃⁺ à partir de la structure du H₉⁺. Les "H₂" ajoutés au H₁₅⁺ se trouvent alors placés à des distances de l'ordre de 5 Å du centre de l' "H₃".

La structure proposée pour H₂₁⁺ est construite à partir de celle d'H₉⁺ à laquelle on ajoute trois "H₂" dans des plans parallèles à celui contenant l' "H₃" de part et d'autre de celui-ci.

Dans la figure (1.7), nous avons tracé l'évolution de la distance R entre les protons du "H₃" dans l'agrégat H_n⁺ en fonction de n. Dans H₁₁⁺, H₁₃⁺, H₂₁⁺, la distance R entre les protons de l' H₃ sont très voisines et apparaissent comme caractéristiques du cœur H₉⁺. En effet, dans H₁₅⁺, H₁₇⁺, H₁₉⁺, cette distance est systématiquement inférieure.

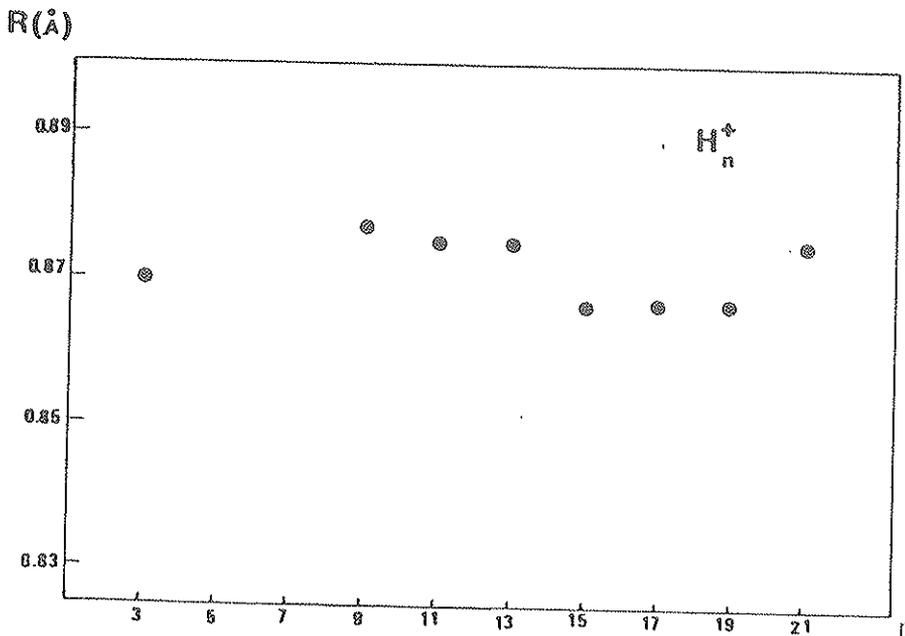


Figure 1.7 : Distance R entre les protons du "H₃" dans l'agrégat H_n⁺ en fonction de n.

Pour comparer la stabilité des différents agrégats dans le cadre de la description que nous avons utilisée (calcul H.F. TZP), nous avons représenté (fig. 1.8) pour chaque agrégat H_n^+ étudié la différence entre l'énergie obtenue et l'énergie du système constitué d'un H_3^+ et de $(n-3)/2$ H_2 infiniment éloignés les uns des autres.

Pour l'énergie de la molécule H_2 , nous avons utilisé la valeur - 1,132490 u.a. obtenue par un calcul H.F. avec l'ensemble de fonctions de base TZP.

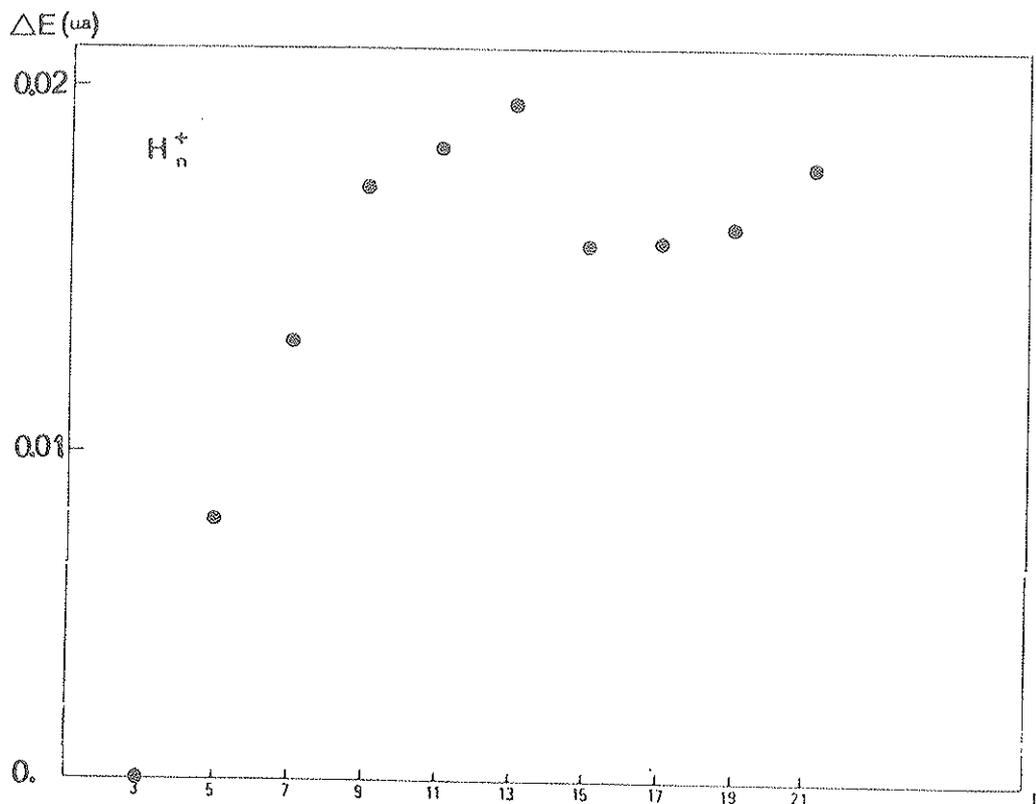


Figure 1.8 : Différence entre l'énergie calculée (HF TZP) pour l'agrégat H_n^+ et l'énergie du système constitué de H_3^+ et de $((n-3)/2)$ H_2 infiniment éloignés.

Dans la fig. 1.8, les points ne s'organisent pas suivant une courbe toujours croissante; on observe un décrochement pour H_{15}^+ . Compte tenu de la valeur obtenue pour H_{21}^+ , ces résultats peuvent conduire à envisager d'autres structures moins symétriques pour H_{15}^+ , H_{17}^+ , H_{19}^+ . Néanmoins, la valeur obtenue pour H_{21}^+ , inférieure à celle obtenue pour H_{13}^+ traduit une prise en compte insuffisante des corrélations. Il faut remarquer que l'insuffisance de la description des corrélations plan à plan est plus critique dans la description des structures d' H_{15}^+ , H_{17}^+ , H_{19}^+ , qui ne contiennent pas un cœur H_9^+ .

Nous n'avons pas développé le calcul des fréquences des modes normaux de vibration correspondant aux structures calculées. Nous envisageons d'effectuer ce calcul qui, relié aux mesures des fréquences d'absorption [7], constitue un test important des structures obtenues.

Comme nous l'avons dit précédemment, nous nous sommes intéressé au calcul des structures des agrégats d'hydrogène H_n^+ afin d'utiliser ces structures dans l'interprétation des expériences réalisées auprès de l'accélérateur d'agrégats d'hydrogène de l'Institut de Physique Nucléaire de LYON. C'est ce que nous allons présenter dans les chapitres suivants.

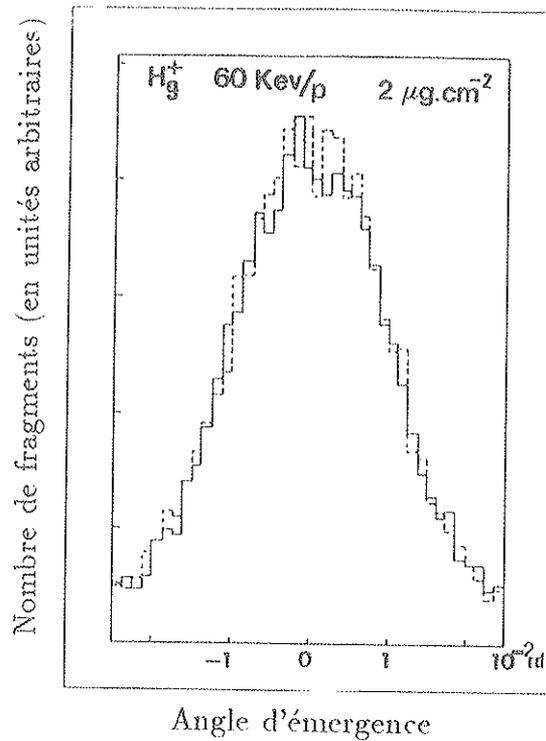
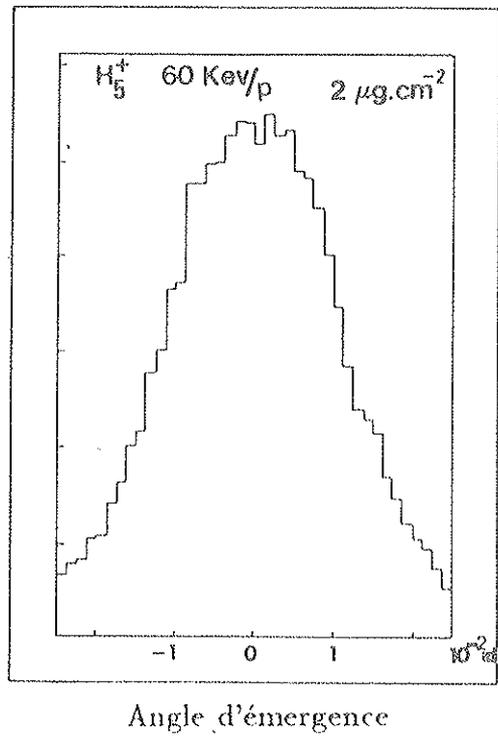
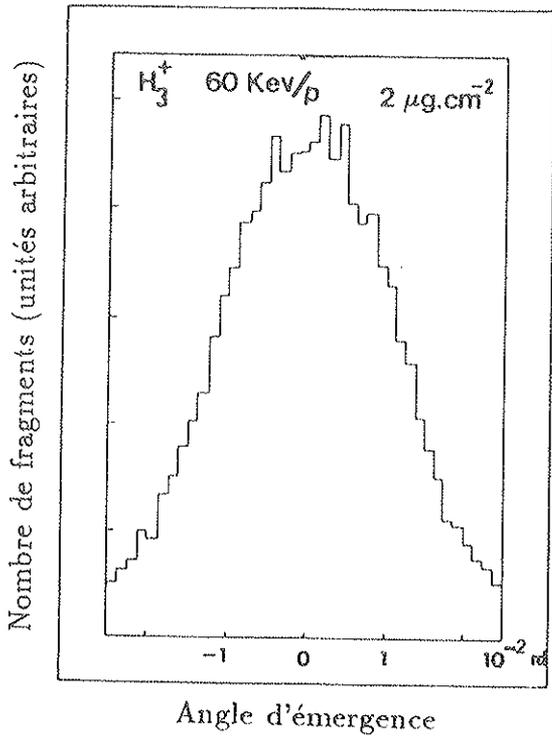
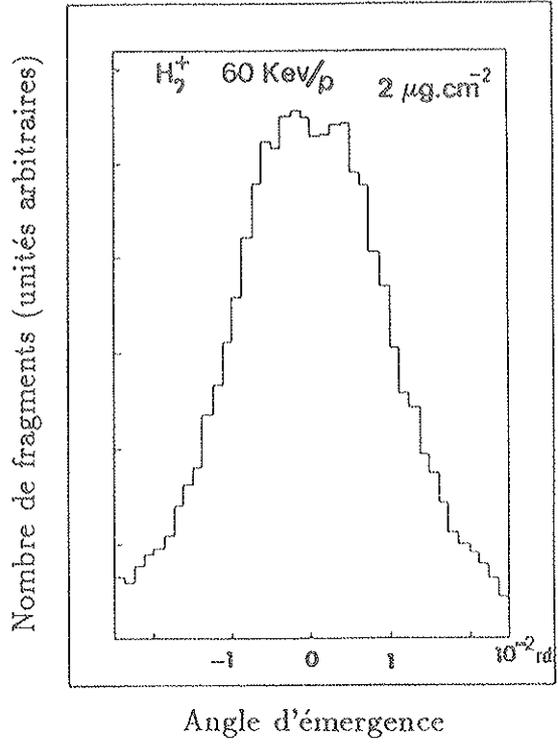
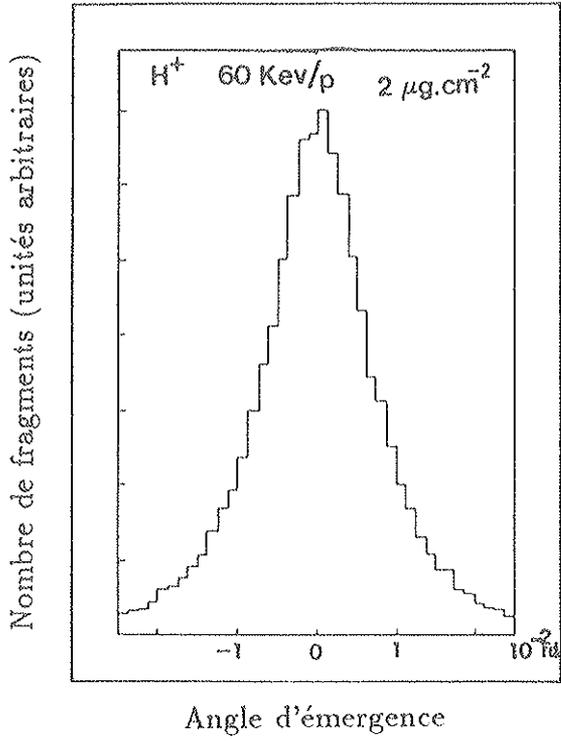
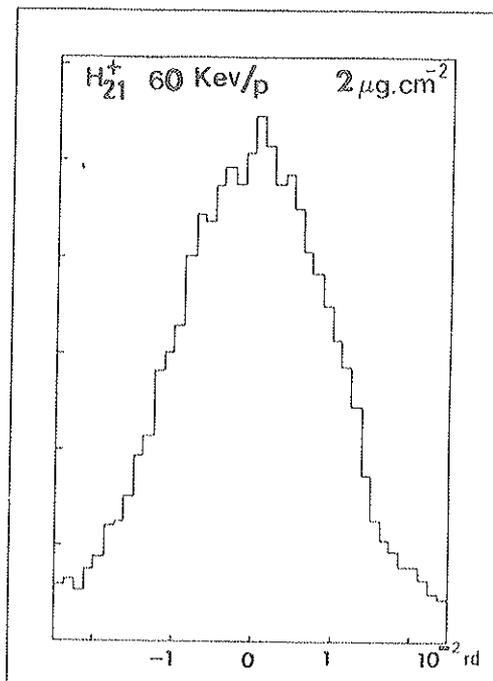
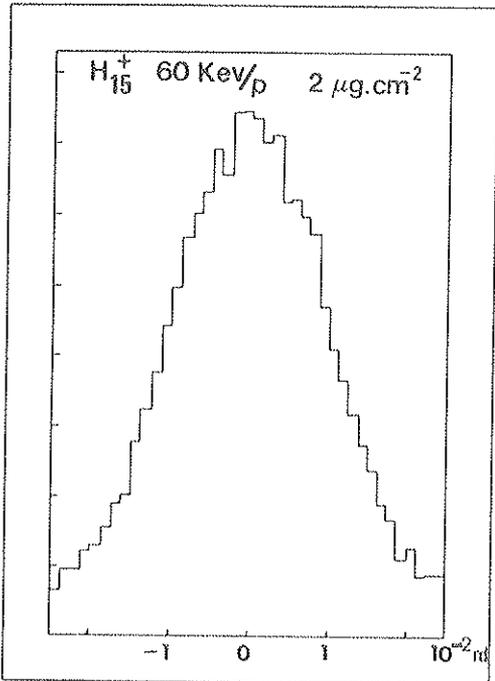
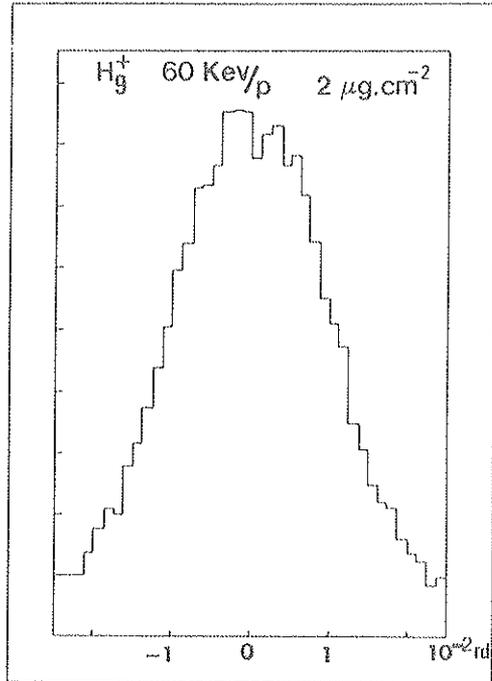
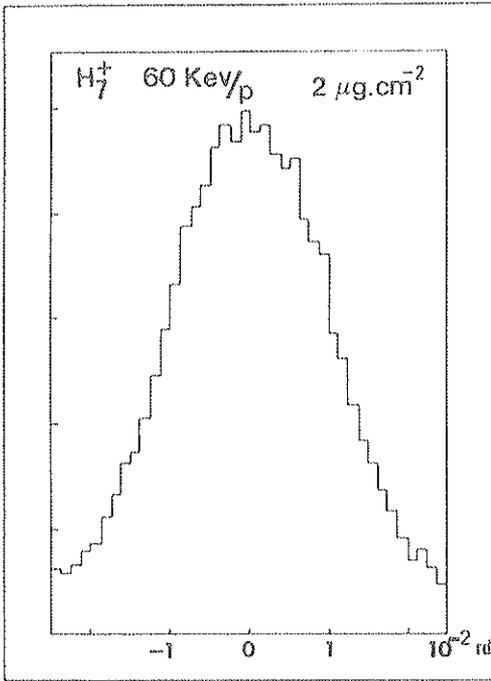


Figure 2.10 : Distributions angulaires des fragments en sortie de la cible (carbone $2\mu g.cm^{-2}$) pour un faisceau d' H_9^+ (60 keV/p) calculées pour la détection suivant (0,x) (trait plein) et pour la détection suivant (0,y) (trait pointillé).

Pour diminuer cette erreur statistique liée au nombre de projectiles lancés dans la simulation, nous sommerons ces deux distributions.

Les distributions ainsi obtenues avec H^+ , H_2^+ , H_3^+ , H_5^+ , H_7^+ , H_9^+ , H_{15}^+ , H_{21}^+ de 60 keV/p sont présentées dans les pages suivantes.





Nous présentons dans la figure 2.20, la comparaison des largeurs à mi-hauteur des distributions calculées avec celles des atomes neutres à l'émergence d'une cible de carbone de $2\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ pour des agrégats incidents de 60 keV/p, mesurées par B. MAZUY et al. [15].

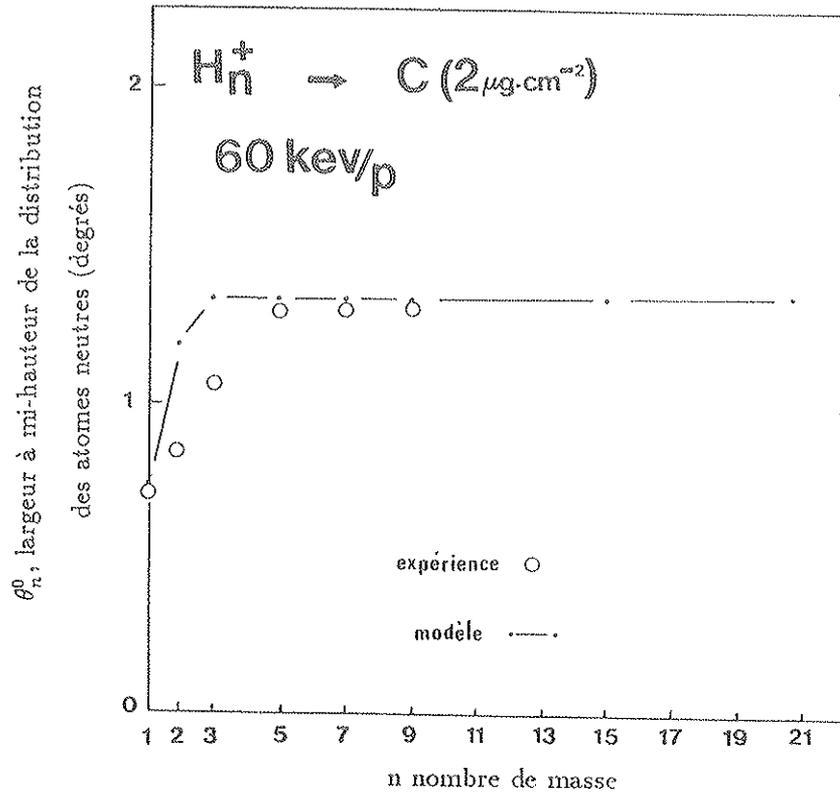


Figure 2.20 : Comparaison des largeurs à mi-hauteur des distributions calculées avec celles des atomes neutres à l'émergence d'une cible de carbone de $2\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ pour des agrégats incidents de 60 keV/p.

Les largeurs calculées pour H_n^+ avec $n \geq 5$ sont en bon accord avec l'expérience. Nous montrons dans un cas typique (figure 2.21) la comparaison de la distribution calculée avec celle obtenue par B. MAZUY et al. [15] pour H_9^+ à 60 keV/p dans une cible de $2\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$.

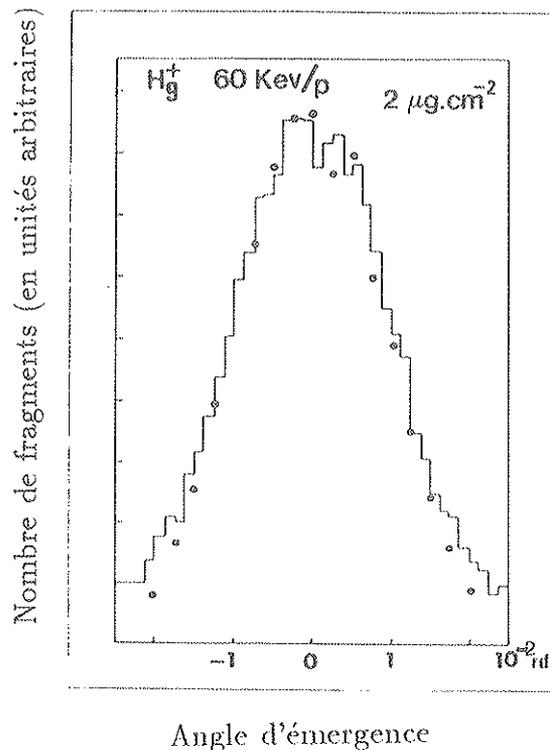


Figure 2.21 : Comparaison de la distribution calculée (trait plein) avec la distribution des atomes neutres obtenue avec un faisceau d'agrégat H_9^+ (points).

Le bon accord avec les résultats expérimentaux pour les agrégats H_n^+ avec $n \geq 5$, valide l'interprétation en terme de répulsion à l'intérieur de la cible. De plus, ces résultats confirment les structures des agrégats d'hydrogène H_n^+ ($n \leq 21$), formées par nucléation d' H_2 autour d'un H_3^+ . Cependant les distributions calculées pour H_2^+ et H_3^+ sont trop larges. Nous allons voir dans le paragraphe suivant que l'on peut interpréter ce résultat en tenant compte de l'état vibrationnel des ions à l'entrée de la cible.

2.5 - INFLUENCE DE L'ETAT VIBRATIONNEL DES PROJECTILES SUR LES LARGEURS DES DISTRIBUTIONS ANGULAIRES D'ATOMES NEUTRES A L'EMERGENCE D'UNE CIBLE SOLIDE

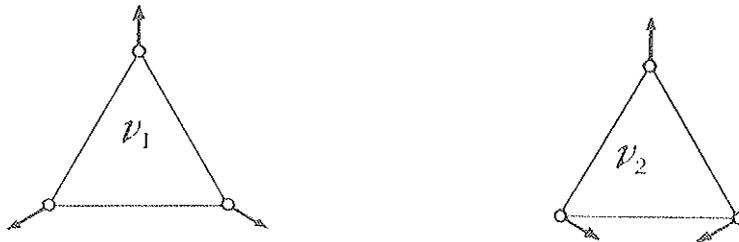
Dans les calculs précédents, nous avons placé à l'entrée de la cible, des agrégats dont la structure est celle calculée ab initio, correspondant à l'état de vibration minimum des

protons. Or du point de vue expérimental, suivant le type de source utilisé les projectiles peuvent être dans un état vibrationnel excité. Pour en tenir compte, nous allons introduire des distributions pour les distances entre les protons à l'entrée de la cible.

Ainsi pour H_2^+ , à l'entrée de la cible, la distance interprotonique R n'est pas la distance calculée pour l'état fondamental (0.7 \AA), mais prend une valeur aléatoire d'un ion du faisceau à l'autre. La distribution de cette distance R est liée à la probabilité d'avoir les protons à une distance R dans un ion H_2^+ dans un état vibrationnel donné et à la distribution des ions H_2^+ du faisceau dans les différents états de vibration. Cette dernière distribution dépend du type de source utilisée

Comme l'a fait E.P. KANTER et al. [19], nous avons introduit une distribution gaussienne des distances entre les protons à l'entrée de la cible. La largeur $\sigma = 0.4 \text{ \AA}$ et le centre $R_{moyen} = 1.3 \text{ \AA}$ de cette distribution gaussienne ont été ajustés à partir de la valeur expérimentale de la largeur de la distribution angulaire obtenue pour H_2^+ à 60 keV/p .

Pour l'agrégat H_3^+ , la situation est compliquée par l'existence de deux modes normaux de vibration ν_1 et ν_2 .



Un traitement complet consisterait à introduire une distribution des distances entre les protons calculée à partir de la distribution des ions du faisceau dans les différents états de vibration de chacun des deux modes et des distributions des distances correspondant aux états de vibration.

Pour simplifier, et comme l'a fait D. GEMMELL et al. [16], nous négligerons le deuxième mode de vibration ν_2 , et nous donnerons de manière aléatoire pour chaque agrégat H_3^+ incident la distance des trois protons au centre de masse de l'agrégat avec une distribution gaussienne. Comme pour H_2^+ , la largeur $\sigma = 0.2 \text{ \AA}$ et le centre $R_{moyen} = 1.2 \text{ \AA}$ de cette distribution gaussienne ont été ajustés à partir de la valeur expérimentale de la largeur de la distribution angulaire obtenue pour H_3^+ à 60 keV/p .

Les distributions angulaires obtenues pour H_2^+ et H_3^+ sont présentées dans la figure 2.22. La prise en compte de la vibration de l'ion incident tend à augmenter la distance entre les protons à l'entrée de la cible et donc à diminuer leur répulsion. Les distributions angulaires sont donc moins larges.

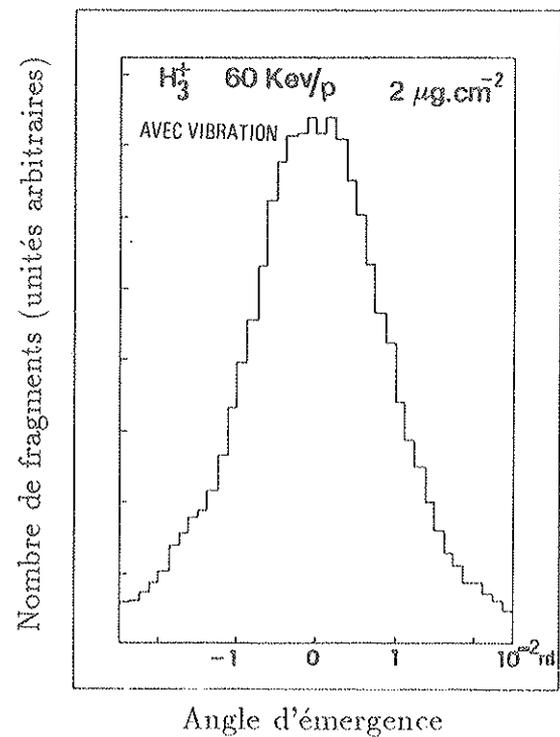
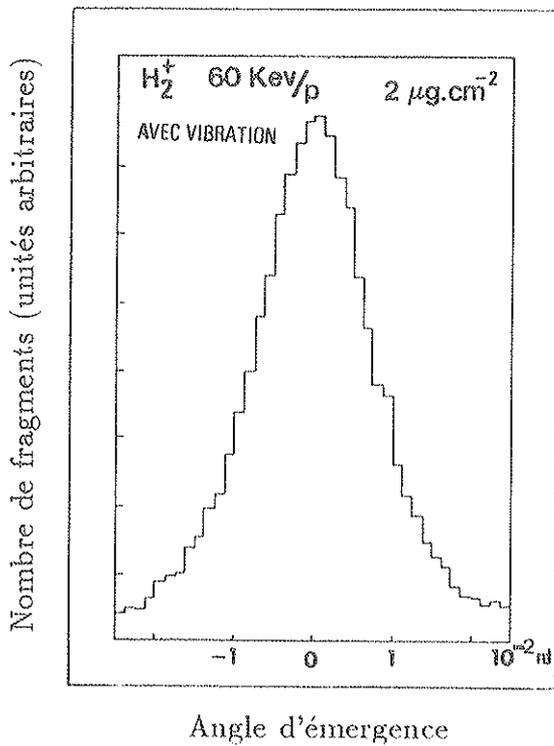
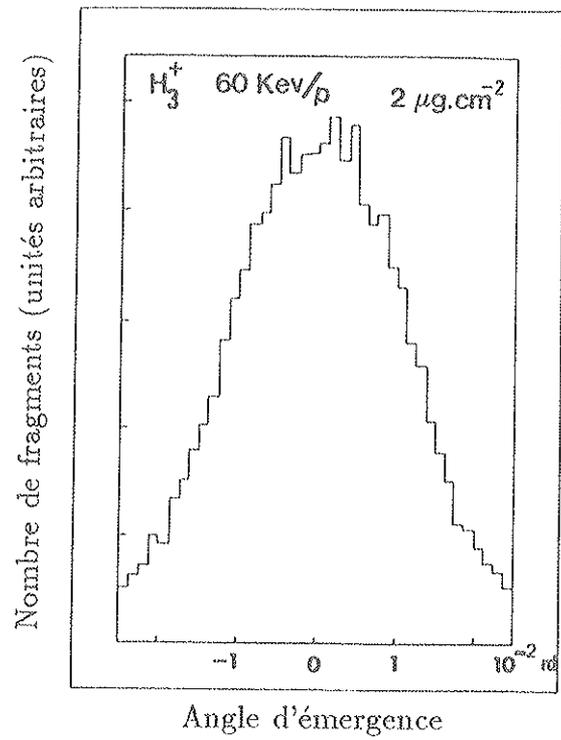
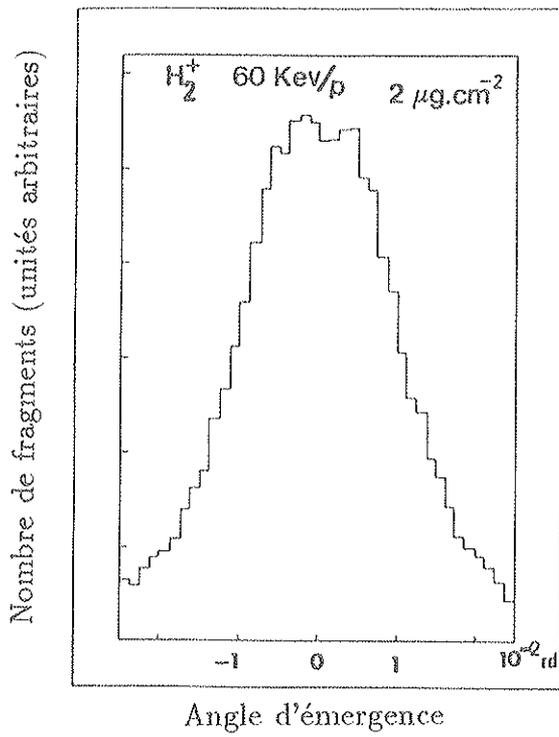


Figure 2.22 : Distributions angulaires des fragments neutres calculées pour H_2^+ et H_3^+ . En haut sans tenir compte de la répartition des ions incidents dans des états vibrationnels élevés. En bas en prenant en compte cet effet.

Sur la figure 2.23 nous présentons l'ensemble des largeurs des distributions angulaires calculées, comparées aux résultats expérimentaux obtenus pour des faisceaux d'agrégats H_2^+ , H_3^+ , H_5^+ , H_7^+ , H_9^+ , H_{15}^+ , H_{21}^+ de 30 keV/p, 40 keV/p, 60 keV/p et 80 keV/p.

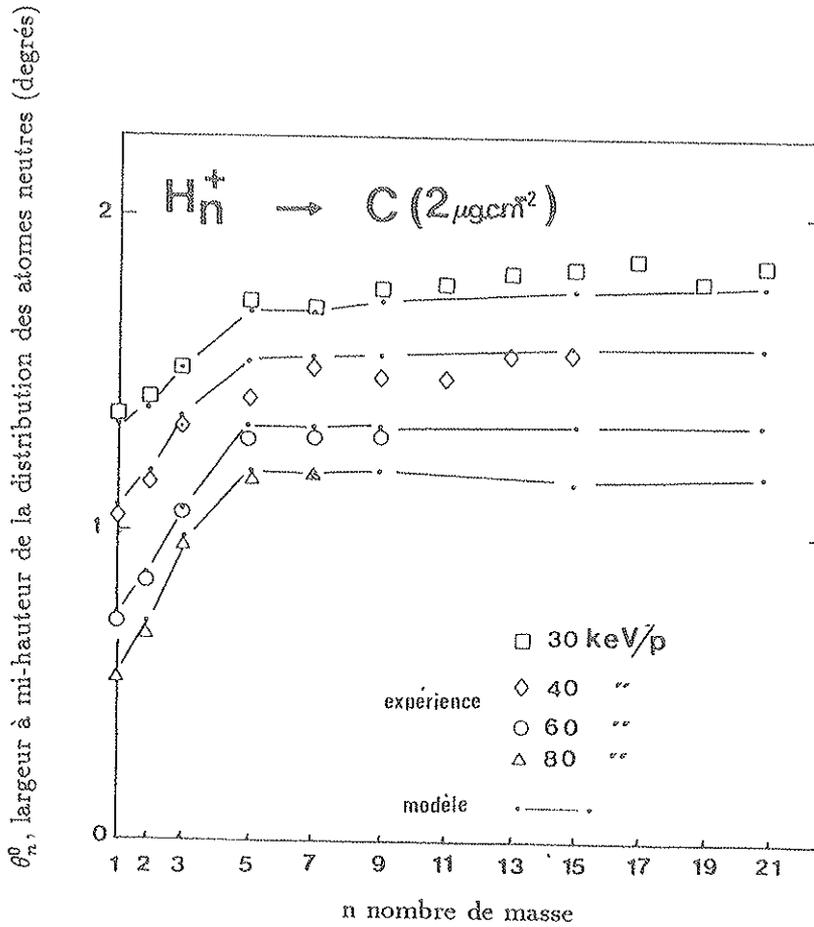


Figure 2.23 : Comparaison des largeurs à mi-hauteur des distributions calculées avec celles des atomes neutres à l'émergence d'une cible de carbone de $2 \mu g . cm^{-2}$ pour des agrégats incidents de 30, 40, 60, 80 keV/p.

On remarque qu'en tenant compte de l'effet de la vibration des protons de H_2^+ et H_3^+ sur les distances à l'entrée de la cible, les largeurs des distributions calculées sont en très bon accord avec les résultats expérimentaux pour l'ensemble des énergies étudiées.

Il n'a pas été introduit d'effets liés à la vibration des projectiles à l'entrée de la cible pour les agrégats H_n^+ , $n \geq 5$. Ceci doit être souligné. Les largeurs des distributions angulaires étant reliées aux plus petites distances interprotoniques à l'entrée de la cible, il apparaît donc que les agrégats d'hydrogène formés par la source de l'accélérateur d'agrégats de l'I.P.N. de LYON sont dans des états vibrationnels tels que les protons, dans les " H_3 " et les " H_2 " qui constituent ces agrégats, sont en moyenne aux distances calculées théoriquement.

Les agrégats d'hydrogène de cet accélérateur sont formés à partir d'hydrogène gazeux dans une source cryogénique refroidie à l'hélium liquide. 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.

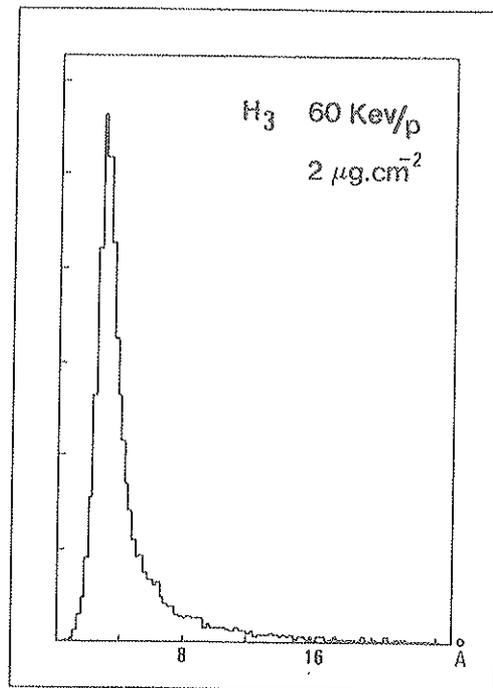
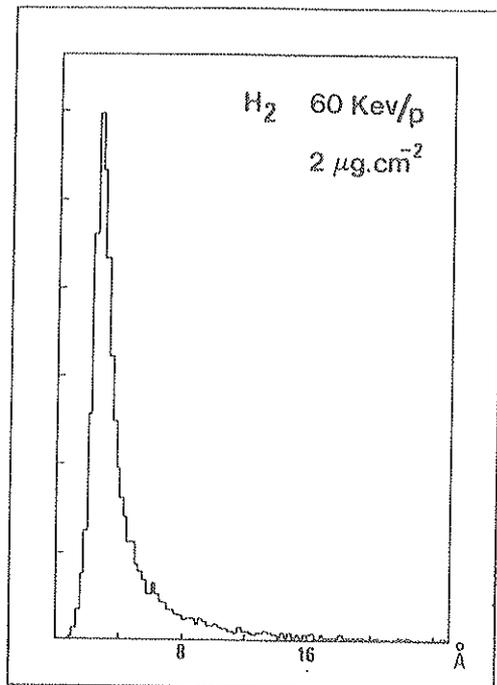
Il faut noter que pour les mesures réalisées avec des faisceaux d'ions H_2^+ et H_3^+ , ceux-ci avaient été obtenus sans refroidir la source à l'hélium liquide. Nous envisageons de reprendre la mesure des distributions angulaires des fragments d'ions H_2^+ et H_3^+ pour comparer les faisceaux obtenus avec la source refroidie avec ceux obtenus avec la source à température ambiante.

2.6 - DISTRIBUTIONS DES DISTANCES ENTRE LES PROTONS D'UN AGREGAT A LA SORTIE D'UNE CIBLE SOLIDE

Nous nous sommes jusque là intéressé uniquement aux vitesses des fragments en sortie. Nous avons aussi calculé dans le cadre de la description présentée dans les paragraphes précédents, les distributions des distances interprotoniques à la sortie de la cible.

Sur la figure 2.24 sont représentées les distributions des distances interprotoniques en sortie de cibles de $2 \mu g.cm^{-2}$ pour des ions H_2^+ et H_3^+ incidents de 60 keV/p. Nous obtenons des distributions dissymétriques autour de la valeur la plus probable comme celle obtenue pour H_2^+ par M. SCHECTMAN et al. [20].

Les calculs ont été effectués d'une part avec les distances théoriques entre les protons à l'entrée de la cible et d'autre part en introduisant les distributions sur ces distances utilisées précédemment (§2.5). Il apparaît que contrairement aux distributions des vitesses en sortie, les distributions des distances interprotoniques ne sont pas modifiées de manière importante par l'introduction des distributions des distances à l'entrée de la cible.



Distance interprotonique

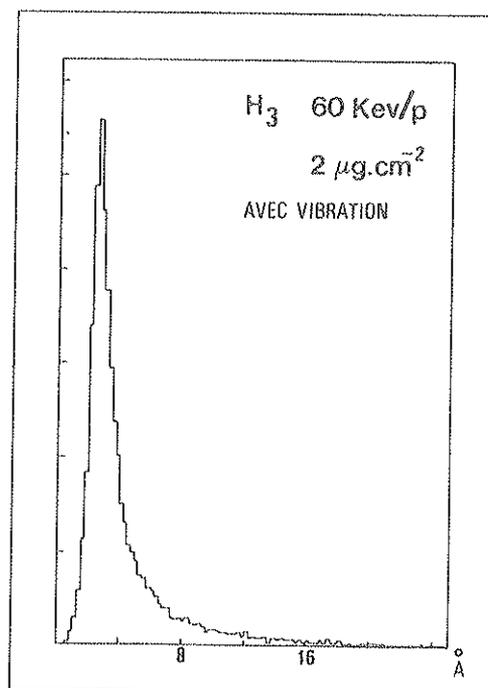
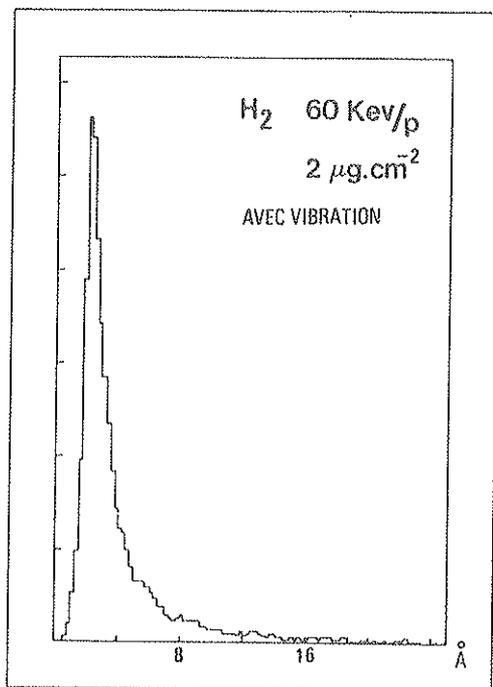
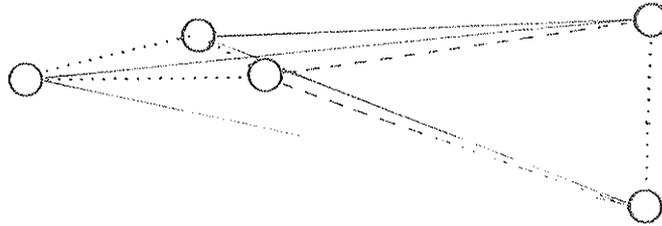
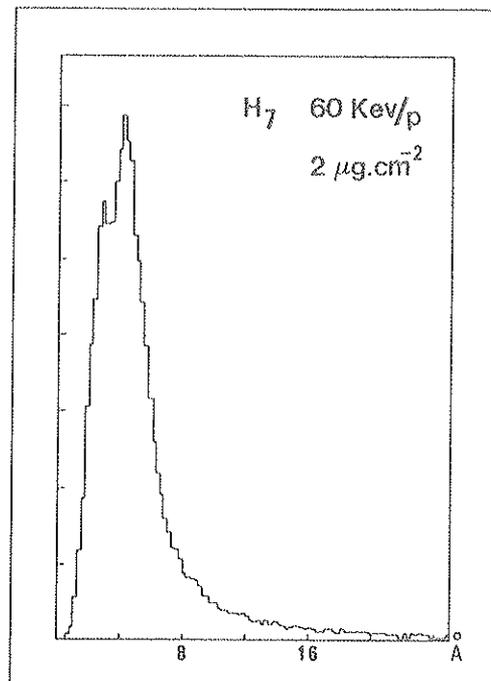
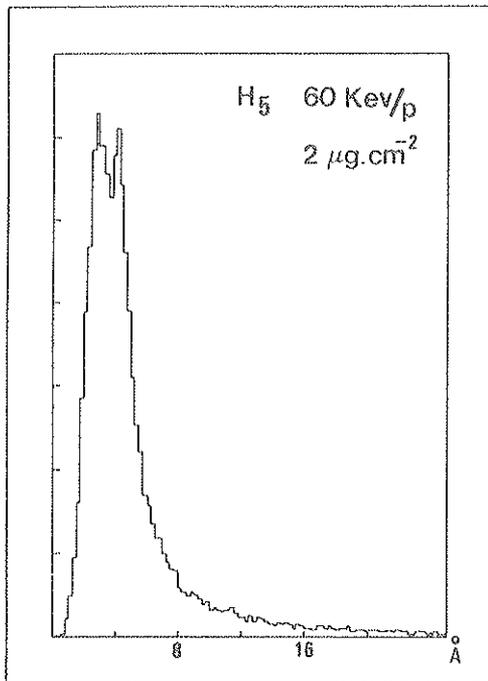


Figure 2.24 : Distributions des distances interprotoniques en sortie d'une cible de $2\mu\text{g.cm}^{-2}$ pour des ions H_2^+ et H_3^+ incidents de 60 keV/p. En haut sans tenir compte de la répartition des ions incidents dans des états vibrationnels élevés. En bas en prenant en compte cet effet.

Les distributions calculées pour H_5^+ , H_7^+ , H_9^+ , H_{15}^+ et H_{21}^+ (figures 2.25 et 2.26) à même vitesse et pour une cible de même épaisseur ont une forme différente. Pour H_5^+ , nous obtenons comme pour H_2^+ et H_3^+ un pic centré sur 3\AA environ. Il correspond aux distances entre les protons de l' H_3 et de l' H_2 tracées en pointillé sur la figure ci-dessous.



Les distances tracées en traits pleins sont à l'origine du deuxième pic obtenu dans la distribution des distances à l'émergence de la cible. Les distances représentées par des tirets sont intermédiaires entre les précédentes. On remarque que ce sont les distances intermédiaires qui deviennent dominantes pour les agrégats H_{15}^+ et H_{21}^+ .



Distance interprotonique

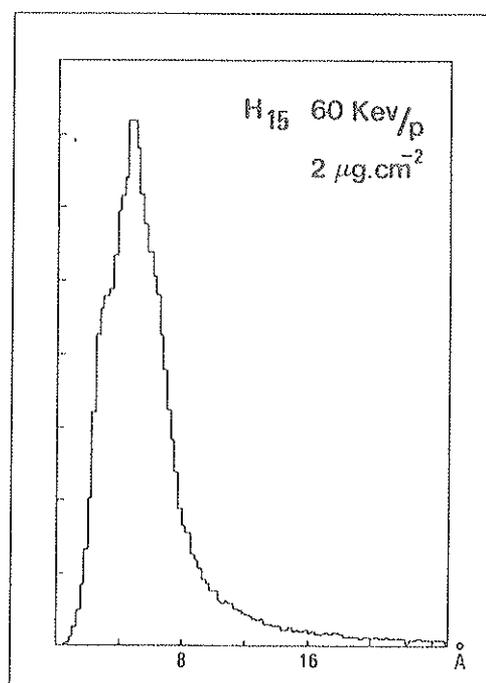
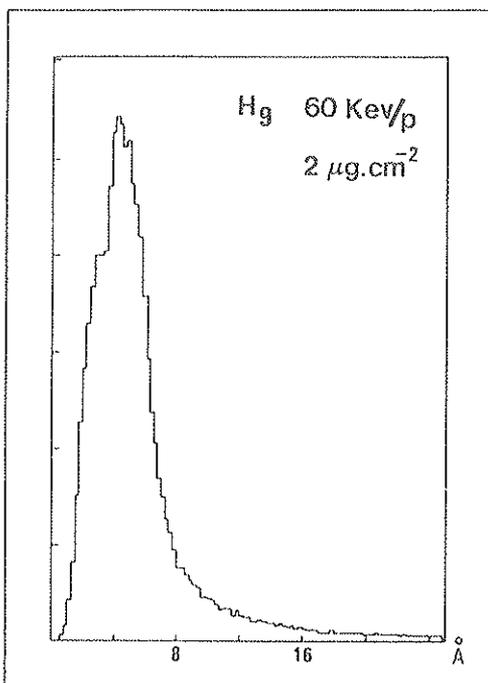
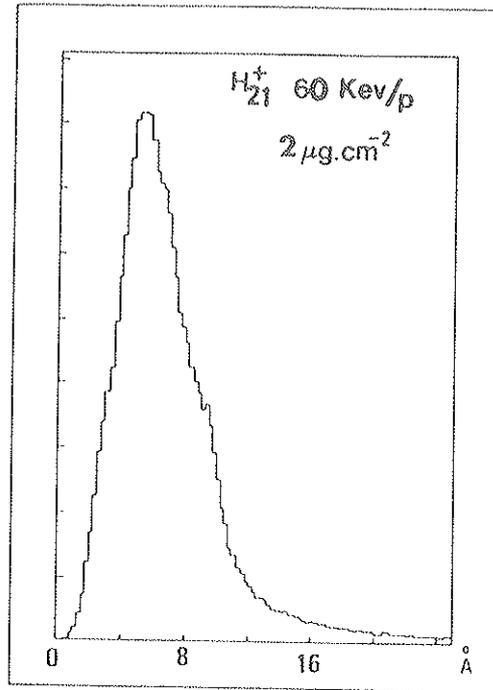


Figure 2.25 : Distributions des distances interprotoniques en sortie de cible de $2\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ pour des agrégats H_5^+ , H_7^+ , H_9^+ , H_{15}^+ incidents de 60 keV/p.



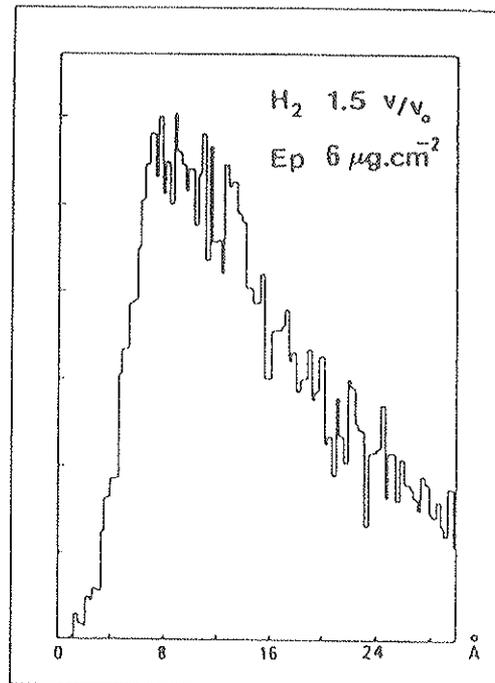
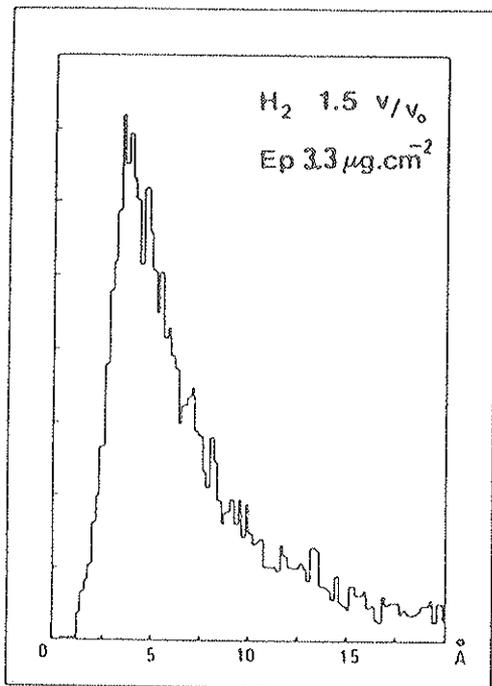
Distance interprotonique

Figure 2.26 : Distribution des distances interprotoniques en sortie de cible de $2 \mu g.cm^{-2}$ pour des agrégats H_{21}^+ incidents de 60 keV/p.

Dans les pages suivantes nous présentons les distributions des distances interprotoniques à la sortie de cibles de $3.3 \mu\text{g.cm}^{-2}$ et de $6 \mu\text{g.cm}^{-2}$ pour des ions H_2^+ et H_3^+ incidents de vitesse de $1.5v_0$ (40 keV) à $6v_0$ (990 keV) (figures 2.27 et 2.28).

Nous observons le déplacement des distributions avec l'épaisseur de cible. D'autre part l'effet de la diffusion multiple diminuant avec la vitesse du projectile, les distributions s'affinent quand la vitesse augmente. On observe cependant une saturation de cet effet dans la cible de $2 \mu\text{g.cm}^{-2}$ pour les vitesses supérieurs à $4 v_0$.

Nous avons interprété les valeurs expérimentales des distributions angulaires des fragments à partir de leurs vitesses à l'émergence de la cible. Par contre, le calcul des positions relatives des protons dans les dernière couches atomiques de la cible va être à la base de l'interprétation des effets collectifs observés sur les échanges de charge des protons dans une cible solide avec des faisceaux d'agrégats.



Distance interprotonique

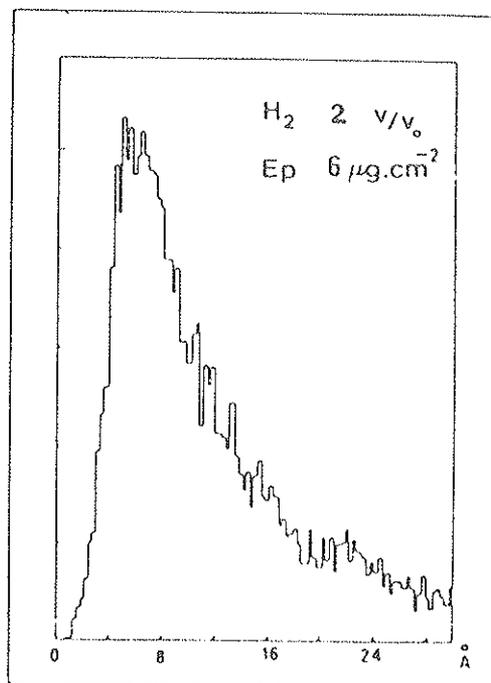
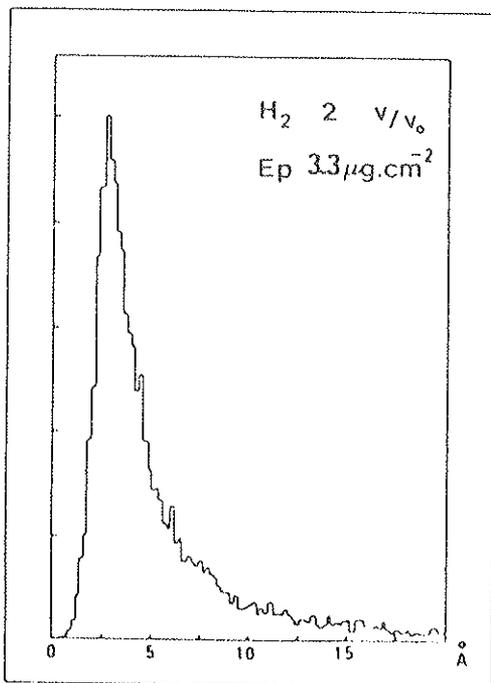
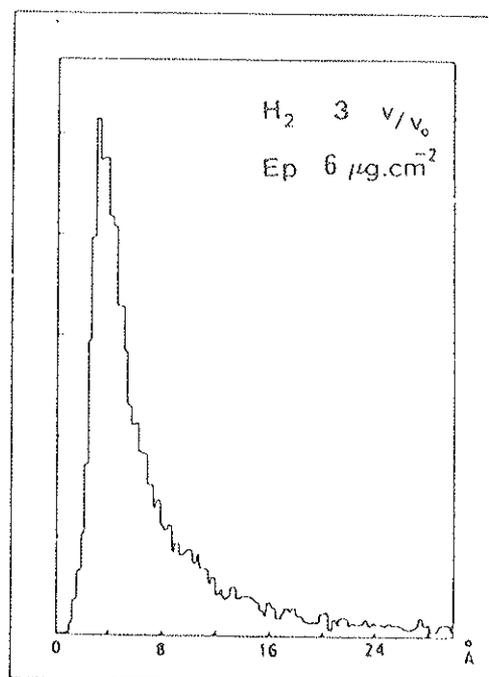
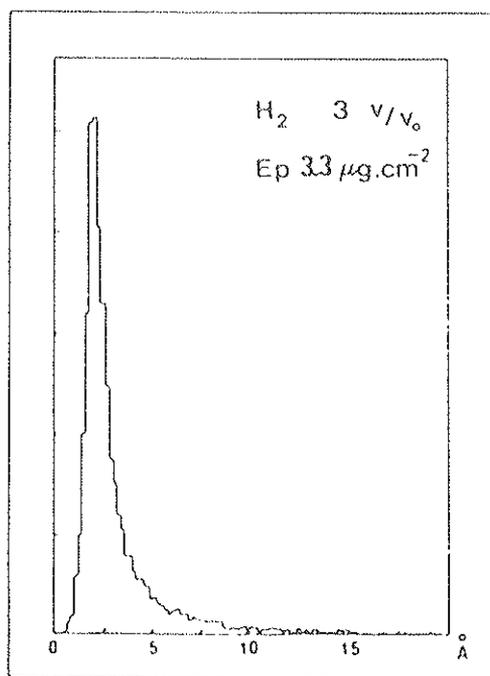
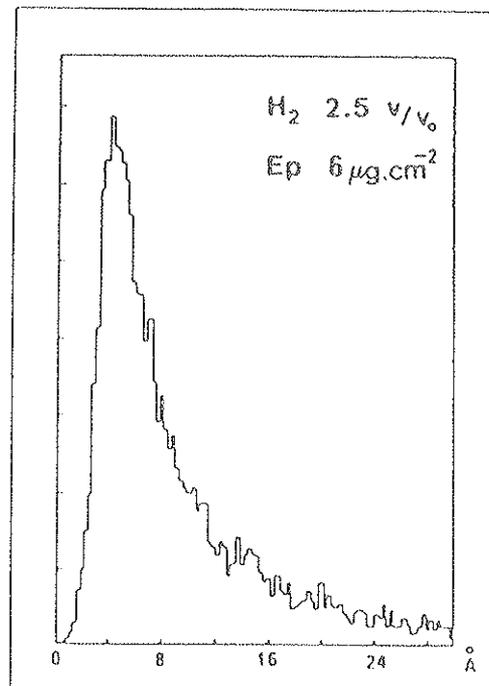
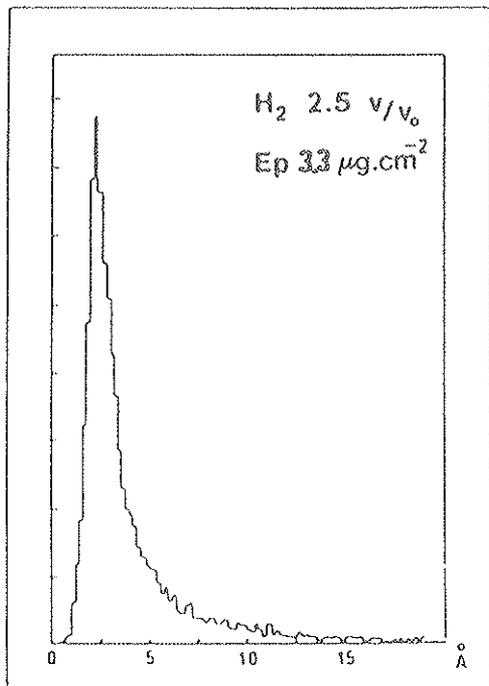
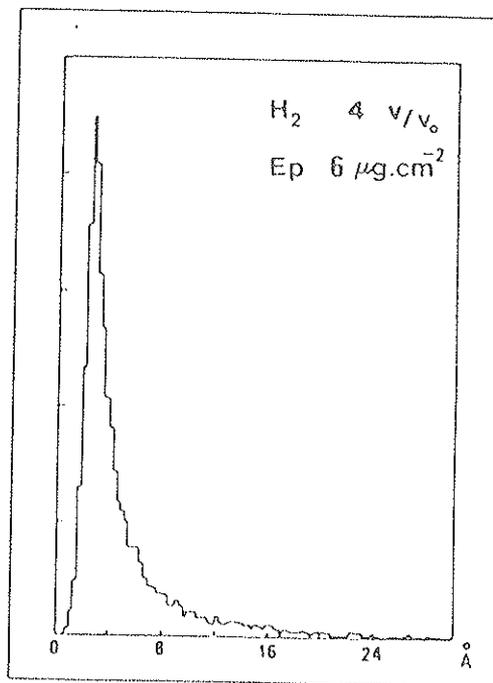
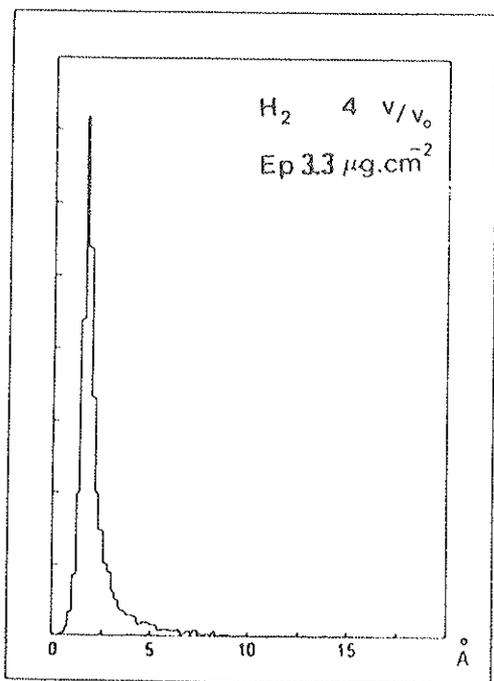
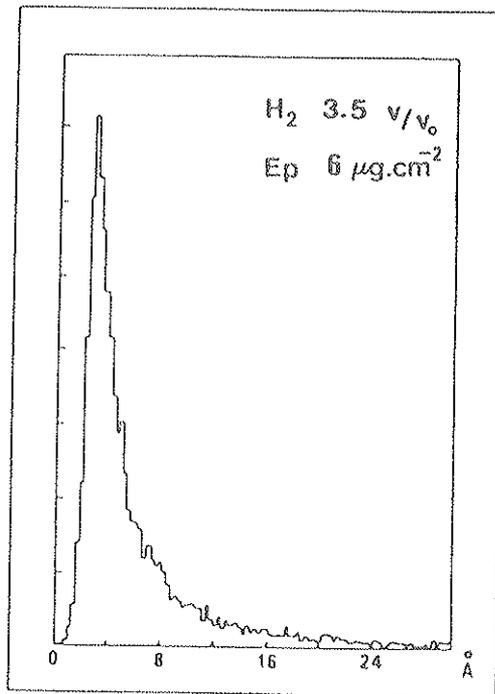
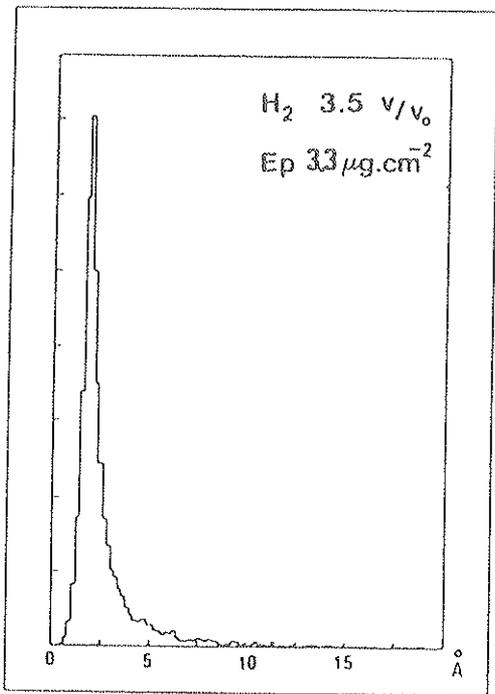
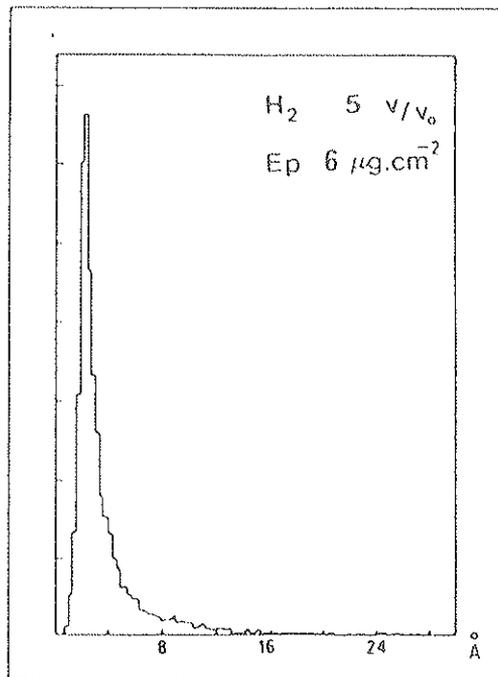
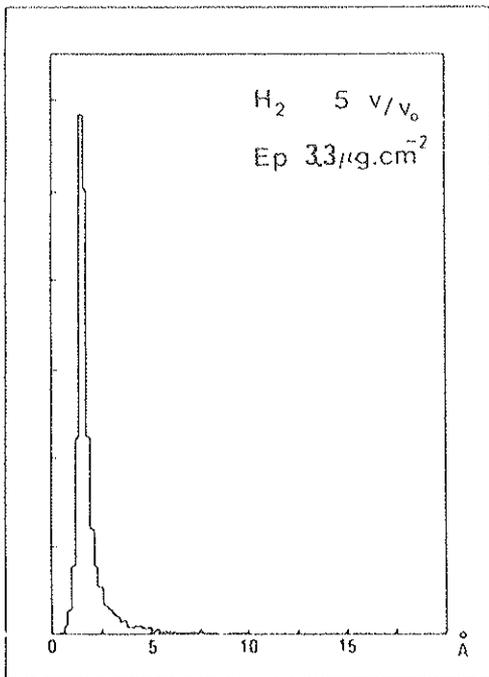
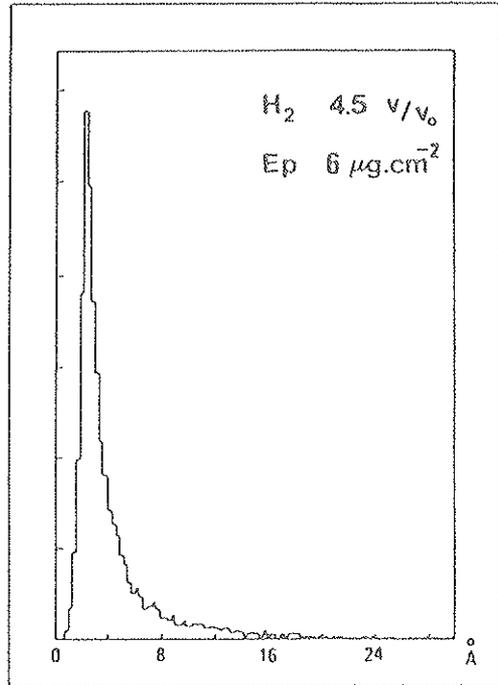
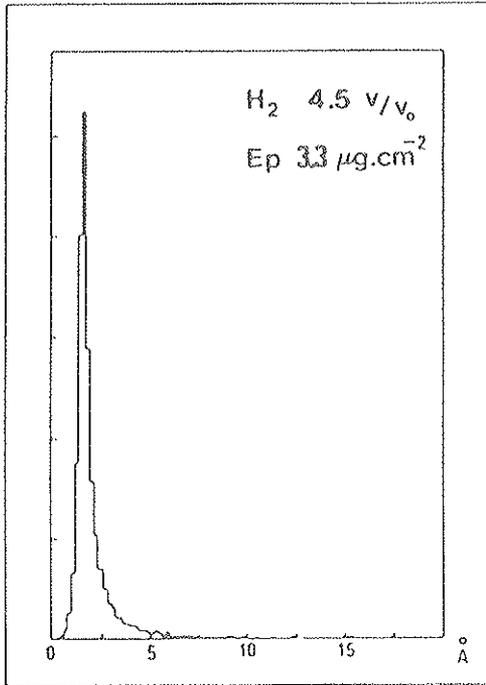


Figure 2.27 : Distributions des distances interprotoniques à la sortie de cibles de $3.3 \mu g \cdot cm^{-2}$ et de $6 \mu g \cdot cm^{-2}$ pour des ions H_2^+ incidents de vitesse de $1.5v_0$ (40 keV/p) à $6v_0$ (990 keV/p).







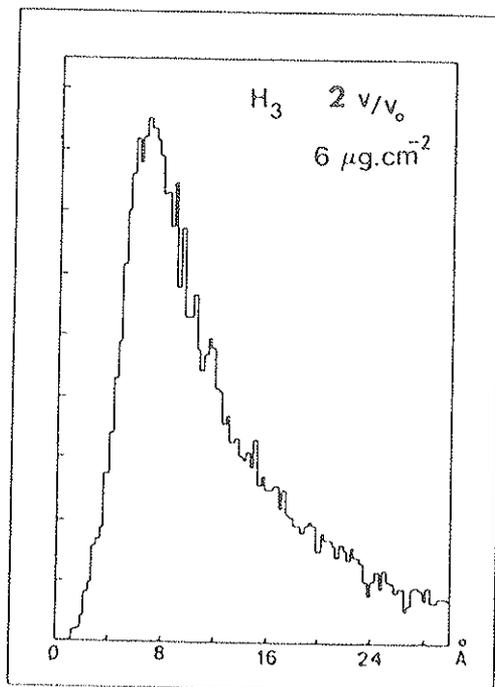
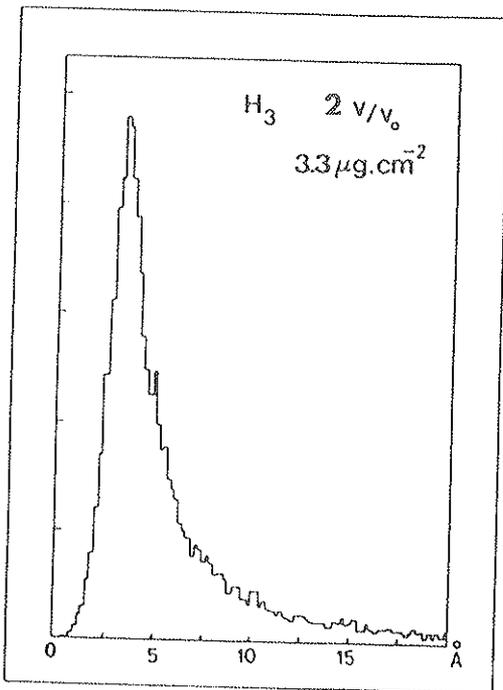
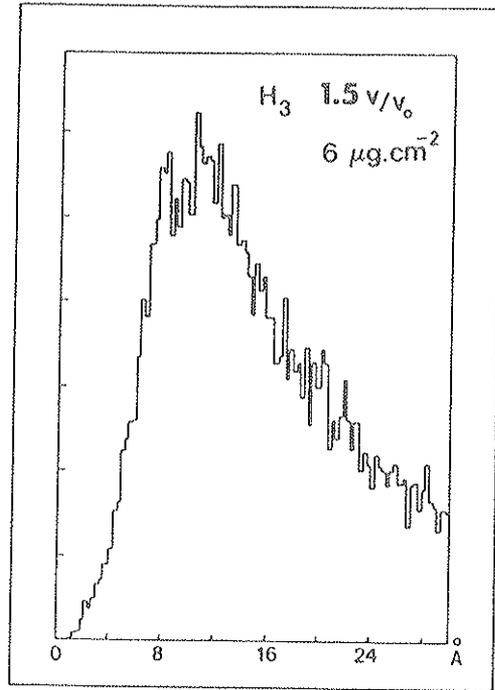
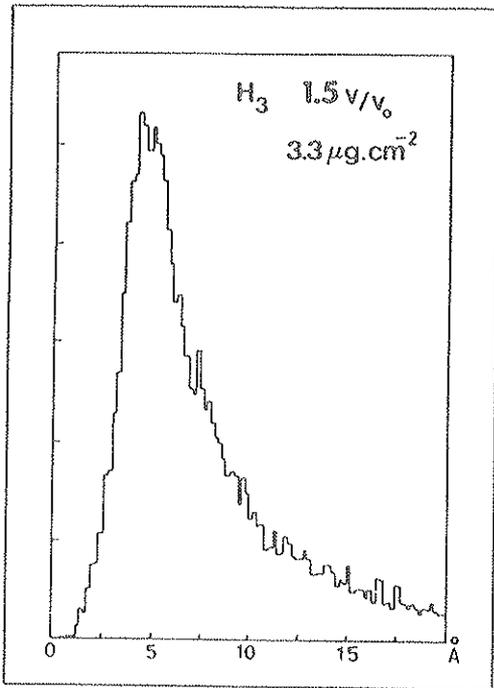
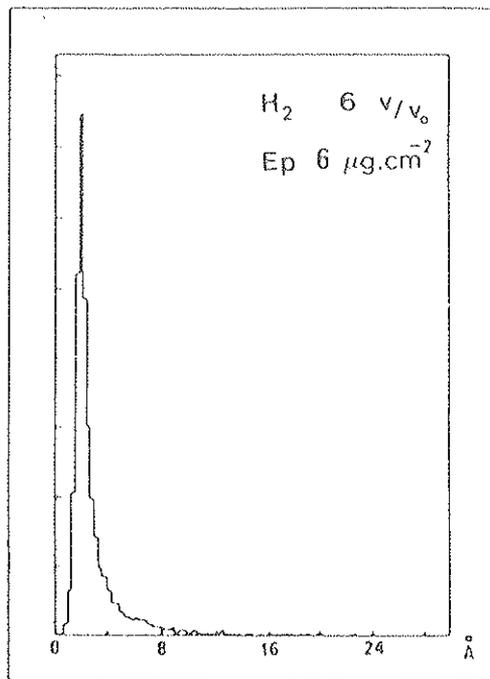
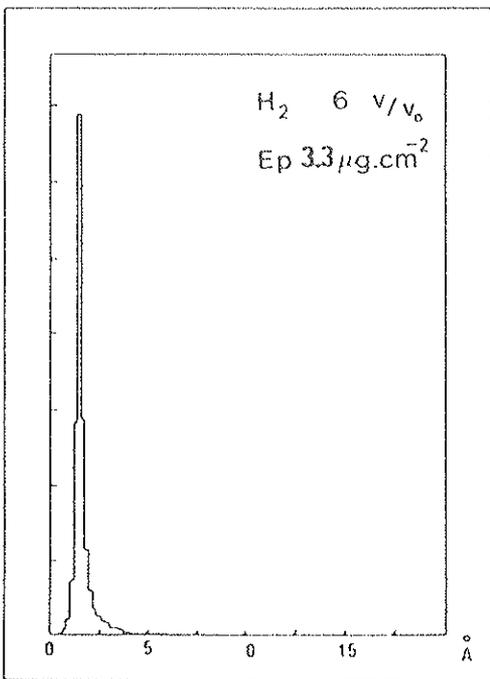
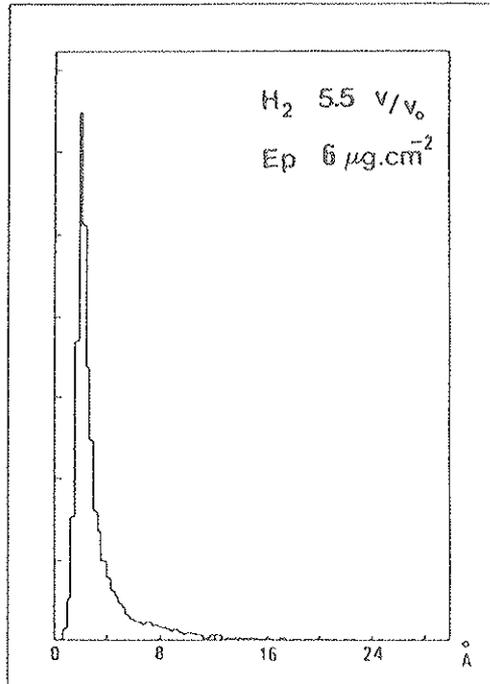
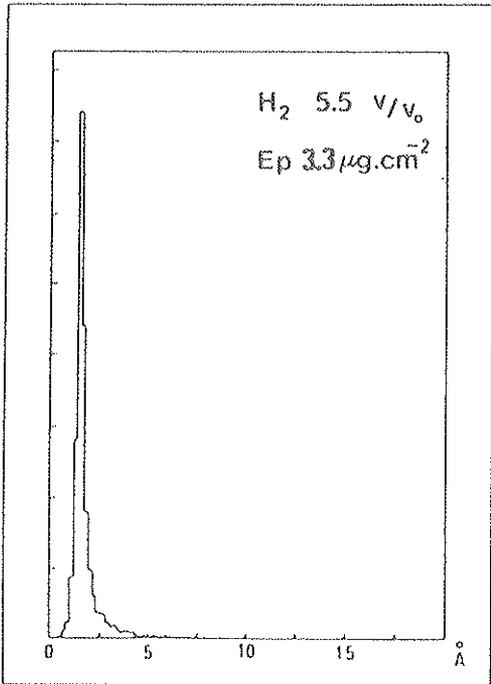
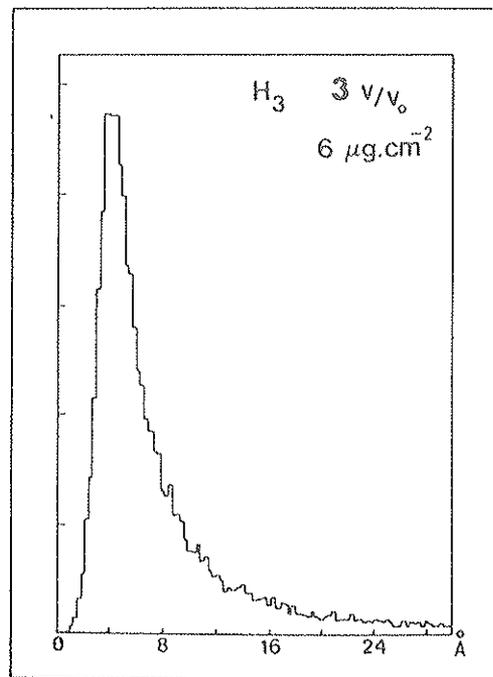
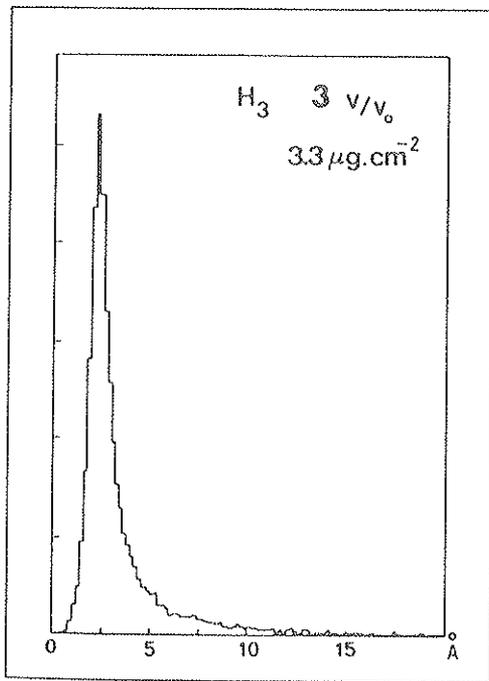
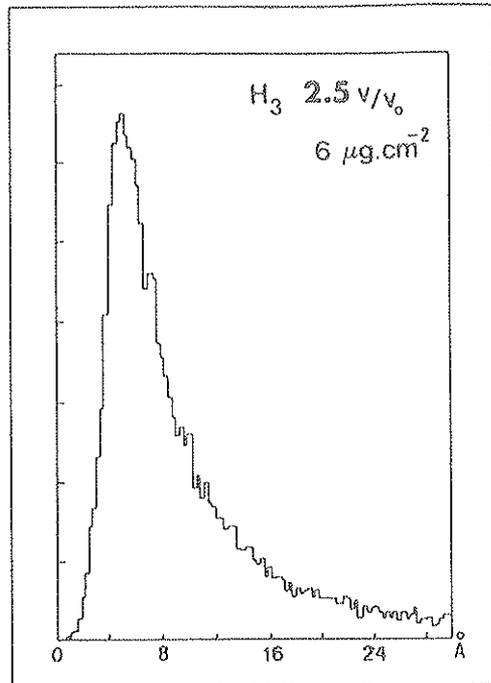
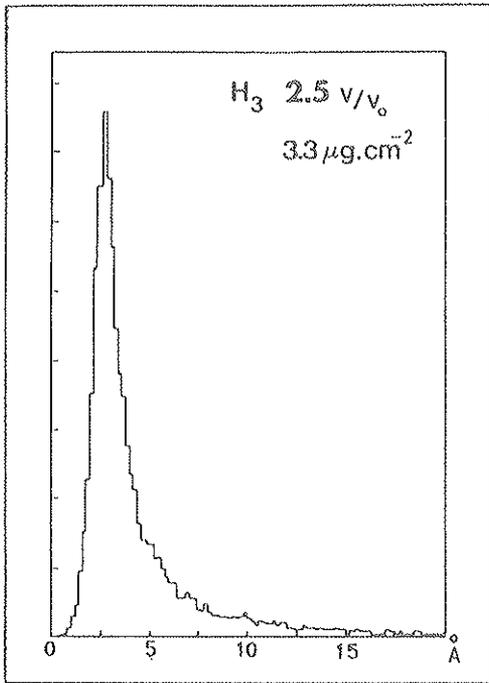
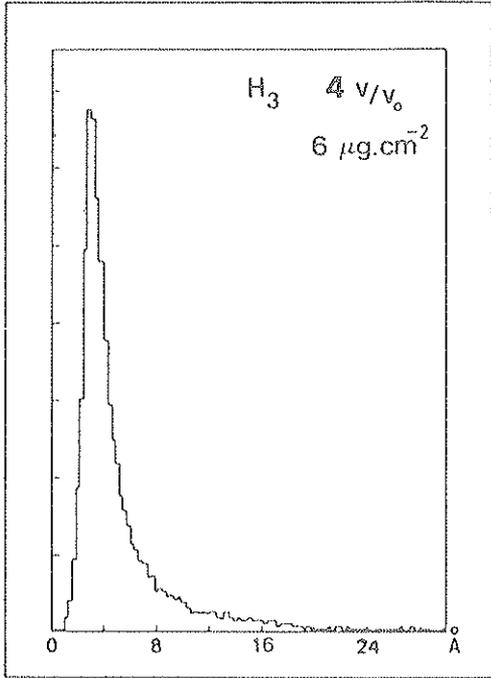
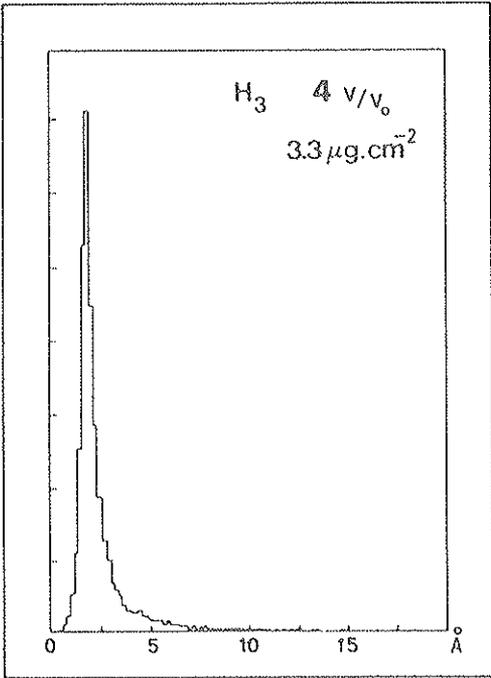
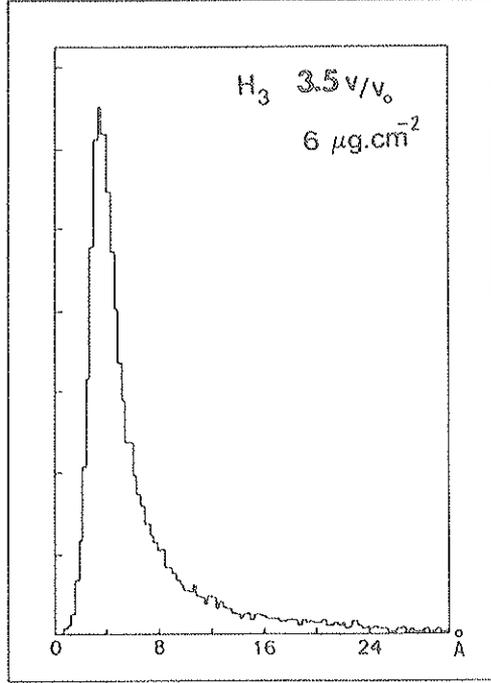
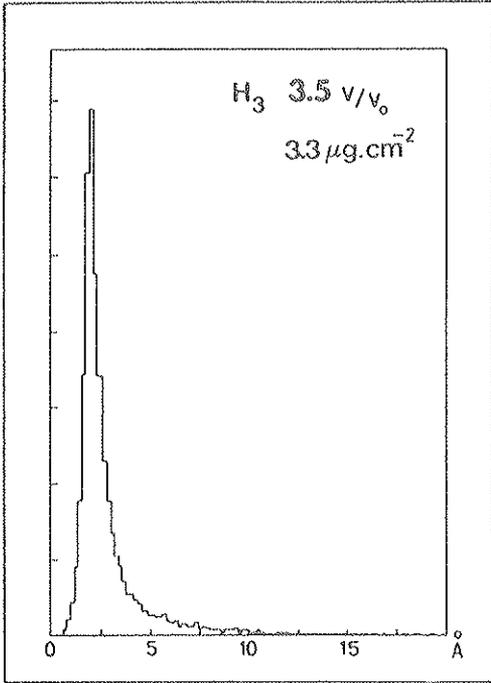
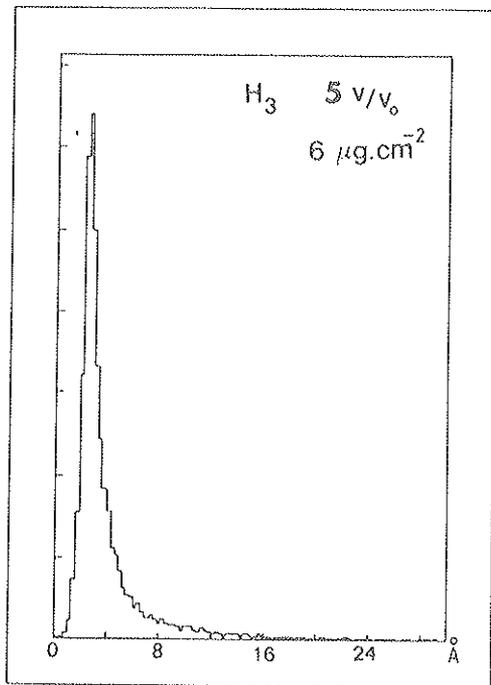
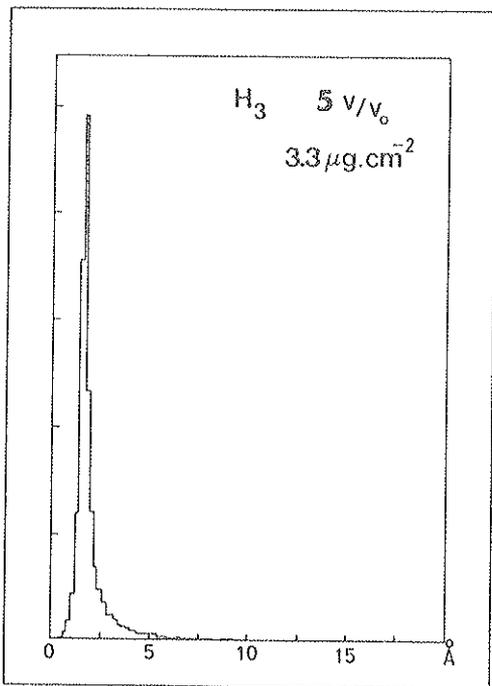
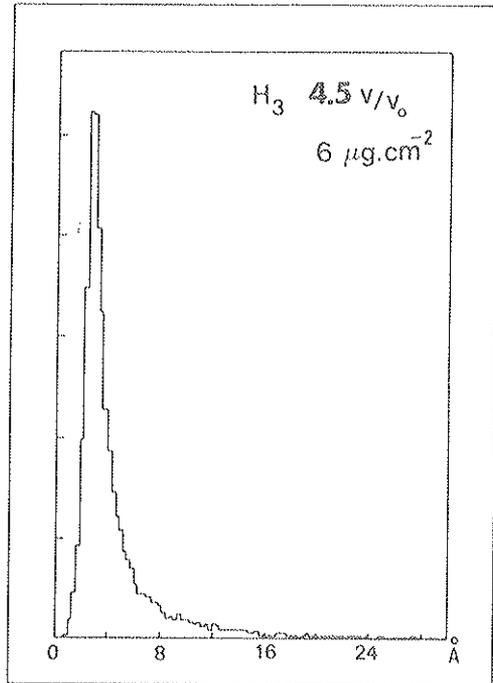
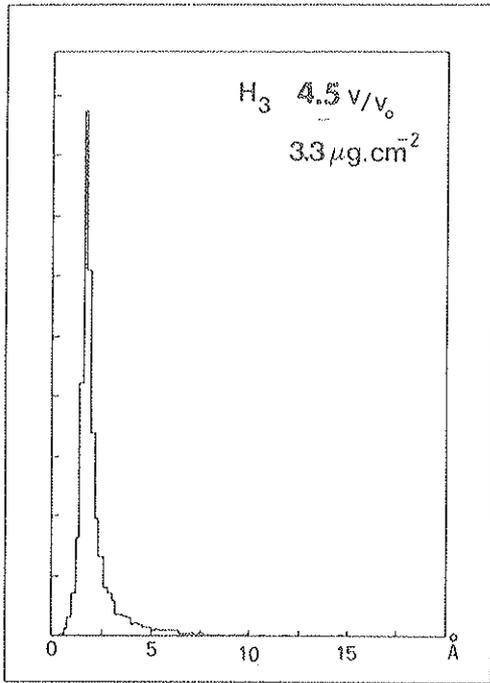


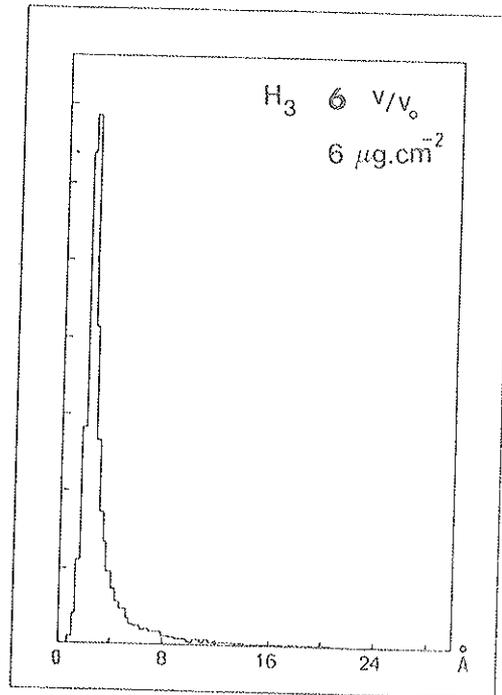
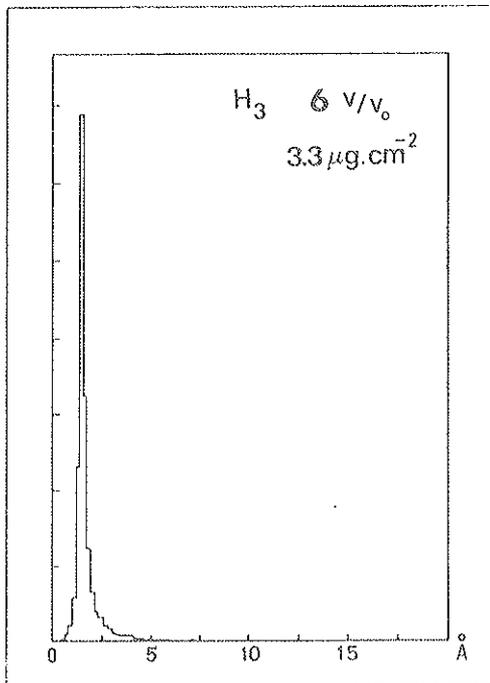
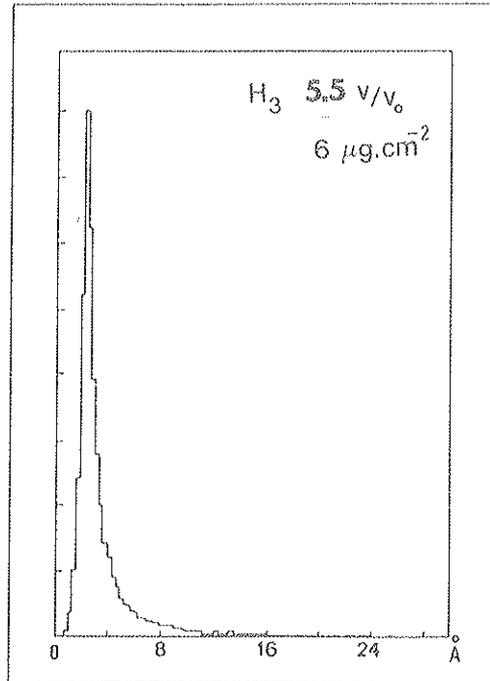
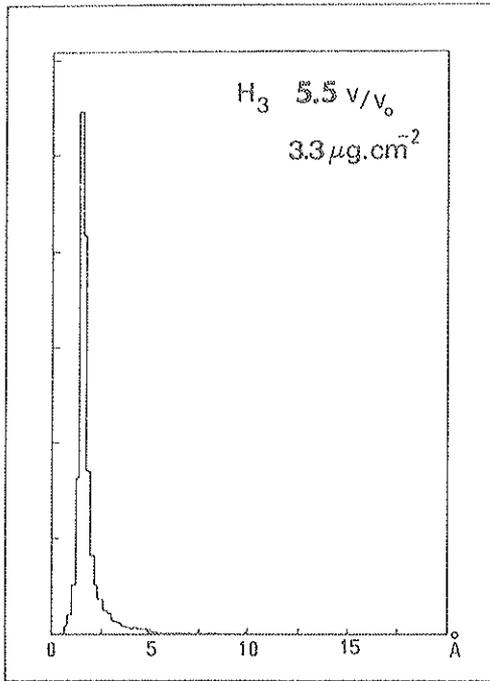
Figure 2.28 : Distributions des distances interprotoniques à la sortie de cibles de $3.3 \mu g.cm^{-2}$ et de $6 \mu g.cm^{-2}$ pour des ions H_3^+ incidents de vitesse comprise entre $1.5v_0$ (40 keV/p) et $6v_0$ (990 keV/p).











CHAPITRE 3

ECHANGE DE CHARGE ET EXCITATION DANS DES CIBLES

SOLIDES DE PROTONS, D'IONS H_2^+ ET D'AGREGATS D'HYDROGENE H_n^+

3.1 - LE PHENOMENE D'ECHANGE DE CHARGE

Lorsqu'un ion ou un atome rapide pénètre dans une cible, il interagit avec les électrons et les noyaux du milieu. Comme nous l'avons vu, ces interactions tendent essentiellement à défléchir sa trajectoire par diffusion multiple et à le ralentir. Elles conduisent aussi à la modification de l'état de charge et d'excitation atomique du projectile par capture et perte d'électron; c'est le phénomène d'échange de charge. Le phénomène d'échange de charge a été étudié pour différents projectiles (ions, atomes, molécules, agrégats) de différentes vitesses dans des cibles gazeuses ou solides. Nous nous intéresserons ici aux échanges de charge lors de l'interaction d'ions hydrogène atomiques, moléculaires et d'agrégats d'hydrogène H_n^+ avec une cible solide. 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. L'état "d'équilibre de charge" est atteint lorsqu'à une vitesse de sortie constante, l'augmentation de l'épaisseur ne modifie plus la distribution des états de charge des projectiles transmis.

3.2 - ECHANGE DE CHARGE DANS UN MILIEU DE FAIBLE DENSITE

Dans un milieu de faible densité, l'intervalle de temps entre deux collisions successives est suffisamment long pour que le projectile puisse se trouver dans un état atomique bien défini avant chaque collision. On peut alors introduire les sections efficaces de transition entre un état atomique lié et un état non lié : section efficace de capture d'un électron et section efficace de perte d'un électron. Ces sections efficaces peuvent être déterminées à partir des mesures des distributions d'état de charge. En effet, la distribution d'état de charge peut être calculée à partir d'un système d'équations couplées faisant intervenir les sections efficaces de perte et de capture au cours de collisions binaires entre projectile et atome cible. Considérons un faisceau d'ions de charge q traversant une cible gazeuse d'épaisseur surfacique x , exprimée en nombre d'atomes de la cible par unité de surface. L'évolution des états de charge du faisceau pendant son passage à travers la cible est décrit par le système différentiel suivant :

$$\frac{\partial \varphi(x)}{\partial x} = \sum_{q' \neq q} (\sigma_{q'q} \varphi_{q'}(x) - \sigma_{qq'} \varphi_q(x))$$

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

$\sigma_{qq'}$ représente la section efficace totale de passage de l'état de charge q à l'état de 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. On peut alors écrire :

$$\sum_{q' \neq q} (\phi_q' \sigma_{q'q} - \phi_q \sigma_{qq'}) = 0$$

Dans le cas de l'hydrogène, à l'émergence de la cible, le projectile 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 nécessite la connaissance de six sections efficaces, trois de capture d'électrons σ_{10} , σ_{1-1} , σ_{01} et trois de perte σ_{-10} , σ_{-11} , σ_{01} . 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 [21] faites à l'équilibre de charge montrent que le rapport ϕ_{-1}/ϕ_0 est de l'ordre de 0,01 pour des protons incidents de 30 keV. Quand l'énergie augmente ce rapport décroît rapidement et la fraction dans l'état de charge $q = -1$ est négligeable par rapport aux autres fractions à l'émergence. Le système d'équations différentielles se simplifie alors considérablement et sa résolution donne pour un faisceau de H^0 incidents,

$$\varphi_0(x) = \frac{\sigma_c}{\sigma_c + \sigma_l} + \frac{\sigma_l}{\sigma_c + \sigma_l} e^{-(\sigma_c + \sigma_l)x}$$

$$\varphi_1(x) = \frac{\sigma_l}{\sigma_c + \sigma_l} \left(1 - e^{-(\sigma_c + \sigma_l)x}\right)$$

où σ_c et σ_l sont les sections efficaces de capture et de perte électronique. A l'équilibre de charge, on peut écrire

$$\frac{\partial \phi_0}{\partial x} = \frac{\partial \phi_1}{\partial x} = 0$$

On obtient :

$$\phi_0 = \frac{\sigma_c}{\sigma_c + \sigma_l} \quad \text{et} \quad \phi_1 = \frac{\sigma_l}{\sigma_c + \sigma_l}$$

La connaissance de ϕ_0 et de ϕ_1 dans le domaine d'équilibre de charge ne permet que la détermination du rapport $\frac{\sigma_c}{\sigma_l}$. La détermination des valeurs de σ_c et σ_l nécessite la mesure de $\varphi_1(x)$ et $\varphi_0(x)$ dans des conditions où le faisceau émergent n'a pas encore atteint l'équilibre de charge. Toburen et al.[22] ont mesuré les sections efficaces de perte et de capture électronique pour des faisceaux d'hydrogène entre 0,1 et 2,5 MeV dans le carbone en phase gazeuse (figure 3.1). Ces résultats ont été obtenus par soustraction à partir des mesures des sections efficaces dans des cibles gazeuses d'H₂, O₂, CO₂, CH₄, C₂H₄, C₆H₆ et C₄H₁₀ en considérant que pour des projectiles de haute vitesse, la cible moléculaire apparaît comme une assemblée d'atomes.

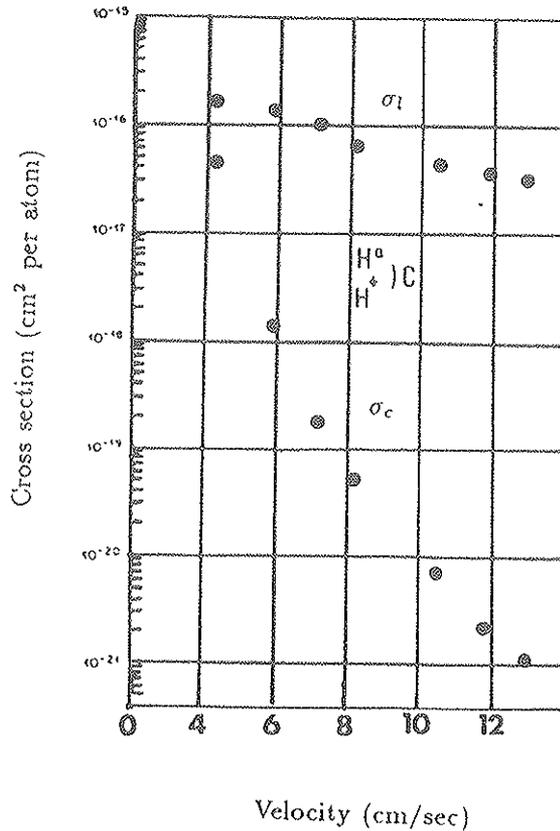


Figure 3.1 : Sections efficaces de capture et de perte électronique pour des faisceaux d'hydrogène dans le carbone en phase gazeuse (d'après L.H. TOBUREN [22]).

3.3 - ECHANGE DE CHARGE DE PROTONS DANS UNE CIBLE SOLIDE

3.3.1 - SECTIONS EFFICACES D'ECHANGE DE CHARGE DANS UNE CIBLE SOLIDE

La description du phénomène d'échange de charge dans une cible solide en terme de sections efficaces de perte et de capture d'un électron lié repose sur l'existence d'un état atomique lié à l'intérieur du solide avant chaque collision. La fréquence des collisions associée à la densité de la cible d'une part, et la présence du gaz d'électrons délocalisés d'autre part, font que l'on peut s'interroger sur l'existence d'un état atomique lié à l'intérieur du solide.

Cependant plusieurs résultats expérimentaux mettent en évidence l'existence d'un état lié dans le solide. Les distributions de charge hors équilibre d'un faisceau d'hydrogène émergeant de cible solide ont été mesurées (A. CLOUVAS [23]) pour différents temps de passage dans la cible (figure 3.2).

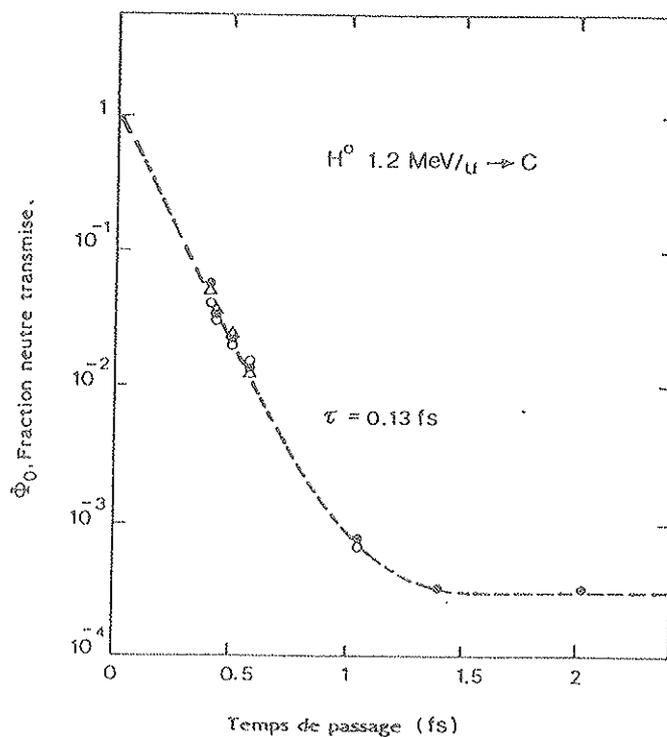


Figure 3.2 : Variation de la fraction ϕ_0 des atomes d'hydrogène H^0 d'énergie 1.2 MeV transmis à travers une cible de carbone en fonction du temps de passage du projectile dans la cible (d'après A. CLOUVAS [23]).

Pour des temps de passage faibles, l'évolution de la fraction de projectiles transmis en fonction du temps de passage peut être décrite par une simple décroissance exponentielle. Le temps caractéristique τ de cette décroissance est de l'ordre de la femtoseconde (10^{-15} s) pour des énergies de l'ordre du MeV. Si l'on suppose que l'état lié H^0 existe à l'intérieur du solide, le temps de décroissance peut être relié à la section efficace de perte électronique σ_l par la relation

$$\sigma_l = (N\tau v)^{-1}$$

où N est le nombre d'atomes cible par unité de volume et v la vitesse du projectile incident. Pour des temps de passage plus longs, la fraction de projectiles transmis atteint une valeur constante qui correspond à l'équilibre de charge .

D'autre part, M.C. CROSS [24] a comparé la fraction neutre ϕ_{solide} mesurée par A. de CHATEAU-THIERRY [25] et J.A. PHILLIPS [26] avec la fraction neutre ϕ_{gaz} mesurée par L.H. TOBUREN [22] (figure 3.3).

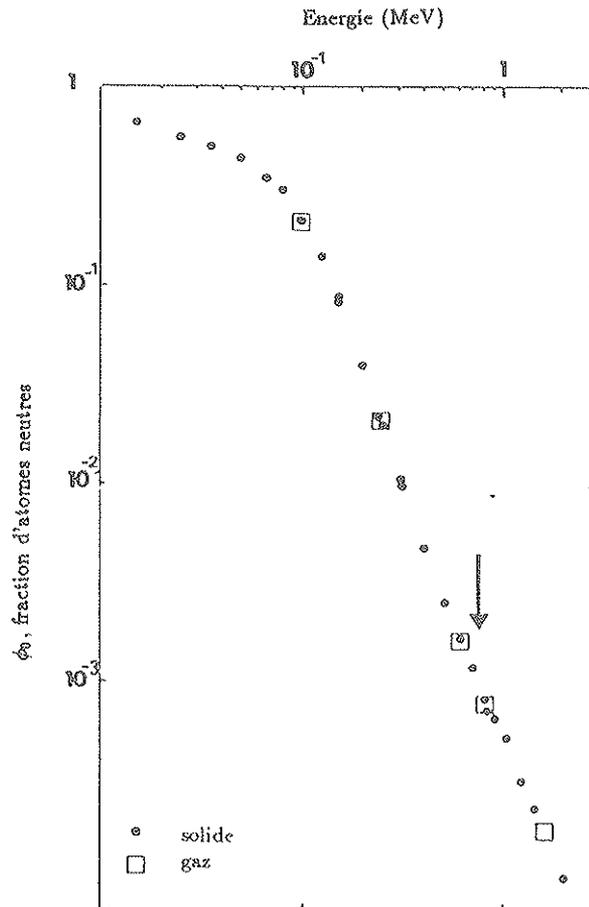


Figure 3.3 : Fraction d'atomes neutres émergeant de cibles de carbone solides ou gazeuses (réf. [22], [23], [24], [25]).

Pour des protons incidents d'énergie supérieure à 100keV les fractions d'atomes neutres sont identiques pour des cibles solides ou gazeuses. De plus les valeurs des sections efficaces de perte et de capture mesurées par A. CLOUVAS [23] coïncident chacune de manière quantitative avec les valeurs de Toburen obtenues avec des cibles de Carbone en phase gazeuse (figure 3.4).

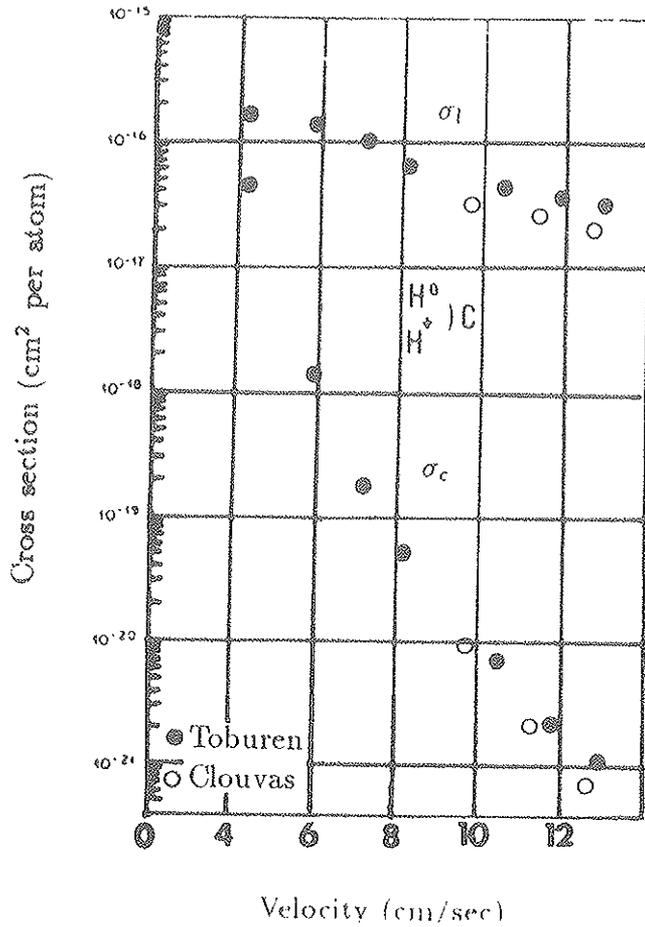


Figure 3.4 : Comparaison des sections efficaces de capture et de perte électronique pour des faisceaux d'hydrogène mesurées dans le carbone en phase gazeuse par L.H. TOBUREN [22] et dans le carbone solide par A. CLOUVAS [23].

D'autre part on remarque sur la courbe représentant la variation avec la vitesse de la fraction d'atomes d'hydrogène émergents un changement de pente pour des énergies de l'ordre du MeV, soit $v \simeq 6v_0$ (figure 3.3). Dans ce domaine de vitesse où la section efficace de capture est très faible par rapport à celle de perte on a $\phi_0 \simeq \frac{\sigma_c}{\sigma_l}$. La section efficace de perte ne variant pas, a priori, de manière particulière autour de $v \simeq 6v_0$, cette cassure dans la variation avec la vitesse correspond à l'effet de couche sur la capture dans le carbone. La section efficace de capture d'un électron est plus importante pour un faible transfert de quantité de mouvement. $6v_0$ est l'ordre de grandeur de la vitesse des électrons de la couche K du carbone. Ainsi quand la vitesse du projectile, supérieure à $6v_0$, diminue, la contribution des électrons de la couche K à la capture augmente, est maximum pour

$v \simeq 6v_0$ et diminue ensuite. L'effet de cette diminution sur la fraction ϕ_0 est masqué par l'augmentation de la capture en couche L. Mais la fraction neutre ϕ_0 résultant de ces deux effets laisse apparaître un changement de pente dans sa dépendance en vitesse. A titre d'exemple nous montrons sur la figure 3.5 l'interprétation de la section efficace de capture par des protons dans le diazote N_2 (V.S. NIKOLAEV [27]).

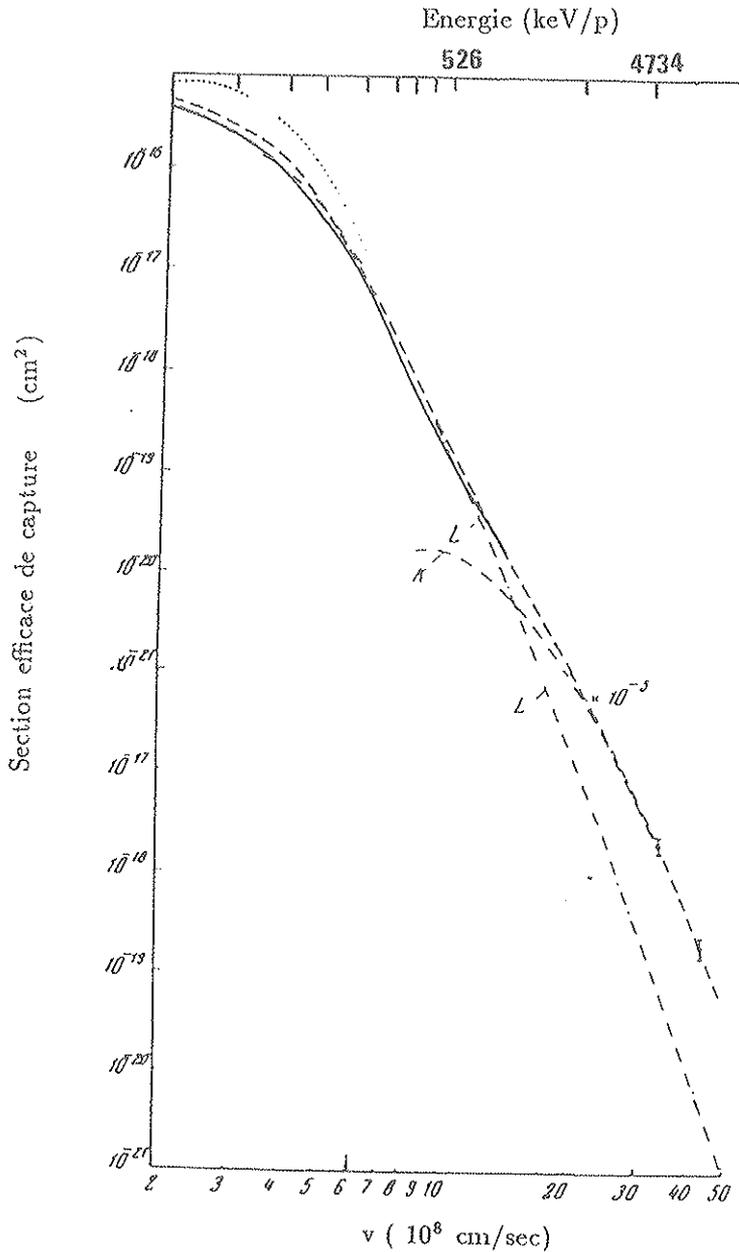


Figure 3.5 : Interprétation de la section efficace de capture par des protons dans le diazote N_2 (effet de couche) (d'après V.S. NIKOLAEV [27]).

L'ensemble de ces résultats expérimentaux nous conduit à penser que la description des échanges de charge dans la cible solide peut être effectuée d'une manière analogue à celle utilisée pour les cibles gazeuses; il existe un état lié de l'hydrogène dans le solide.(M.J.GAILLARD et al. [9 et 11], A.CLOUVAS [22], B.MAZUY et al. [28])

Pour un électron dans le solide en présence d'un projectile, il y a alors quatre types d'états:

- états liés d'un atome cible
- états délocalisés des électrons des atomes de la cible
- états liés du projectile où l'électron est corrélé au projectile à la fois en vitesse et en position; l'électron est localisé autour du projectile
- états du continuum du projectile où l'électron est corrélé en vitesse avec le projectile mais pas en position; l'électron n'est plus nécessairement localisé autour du projectile.

On peut alors introduire une section efficace de capture d'un électron dans l'état lié du projectile σ_c solide et une section efficace de perte d'un électron lié au projectile pour décrire le phénomène d'échange de charge.

On peut d'autre part introduire de même des sections efficaces de capture et de perte d'un électron dans un état du continuum du projectile pour décrire les électrons dit "convoqués" qui ont une vitesse voisine de celle du projectile sans être localisés autour de celui-ci.

Cependant l'existence d'un état lié au projectile dans le solide n'implique pas l'existence de tous les états excités.

Y. BAUDINET et al [29] ont mesuré la fraction relative d'hydrogène dans l'état 2p à l'émergence d'une cible de carbone (figure 3.6). Ils ont obtenu une variation avec la vitesse de la fraction relative d'hydrogène dans l'état 2p identique à celle de la fraction d'atomes neutres pour des vitesses supérieures à $2v_0$. Ce résultat indique que pour $v \geq 2v_0$ environ, du point de vue de la perte et de la capture dans un état excité 2p, le solide se comporte comme un gaz dense: l'état excité 2p de l'hydrogène existe dans le solide.

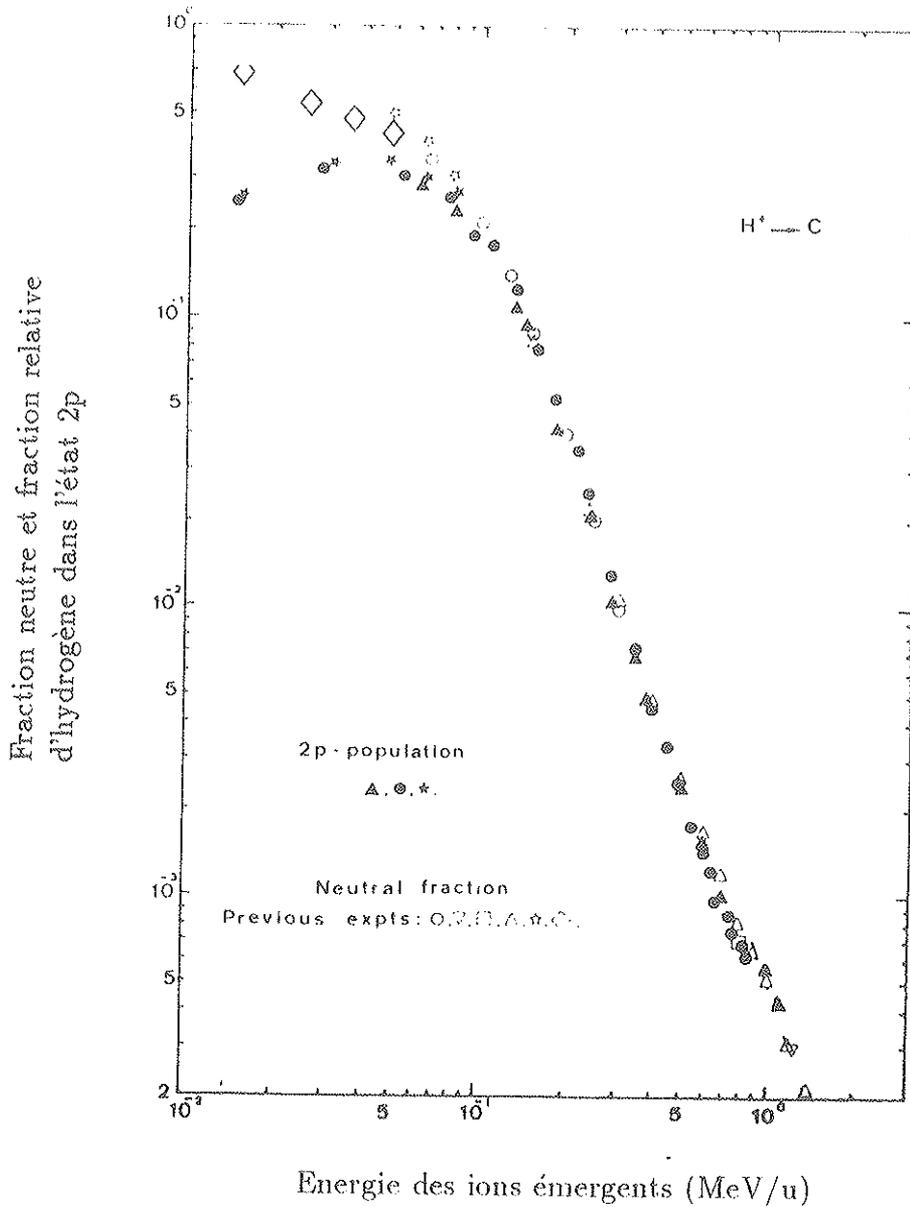


Figure 3.6 : Fraction relative d'hydrogène émergeant dans l'état excité 2p (d'après Y. BAUDINET [29]) et fraction d'atomes neutres (d'après A. de CHATEAU-THIERRY [25] et J.A. PHILLIPS [26]).

B. MAZUY et al. [28] ont mesuré la variation avec la vitesse des populations relatives des états 2p et 4p de l'hélium hydrogénoïde. Ils ont montré que leurs résultats pouvaient être interprétés en considérant que l'état 2p lié existe dans le solide, et que dans le domaine de vitesse considéré, l'état 4p n'existe pas.

3.3.2 - ECARTS SOLIDE-GAZ A BASSE VITESSE ($v \leq 2v_0$)

Soit $\phi_{0\text{solide}}$ la fraction d'hydrogène émergeant d'une cible solide. A l'équilibre de charge, en supposant l'existence d'états liés du projectile dans le solide, nous avons:

$$\phi_{0\text{solide}} = \frac{1}{1 + \frac{\sigma_{l \text{ solide}}}{\sigma_{c \text{ solide}}}}$$

Nous avons calculé ($\frac{\sigma_{c \text{ solide}}}{\sigma_{l \text{ solide}}}$) à partir des résultats sur la fraction d'hydrogène,

$$\frac{\sigma_{c \text{ solide}}}{\sigma_{l \text{ solide}}} = \frac{\phi_{0\text{solide}}}{1 - \phi_{0\text{solide}}}$$

et porté les valeurs sur la figure 3.7 avec celle du rapport $\frac{\sigma_{c \text{ gaz}}}{\sigma_{l \text{ gaz}}}$ obtenues avec du carbone en phase gazeuse [22].

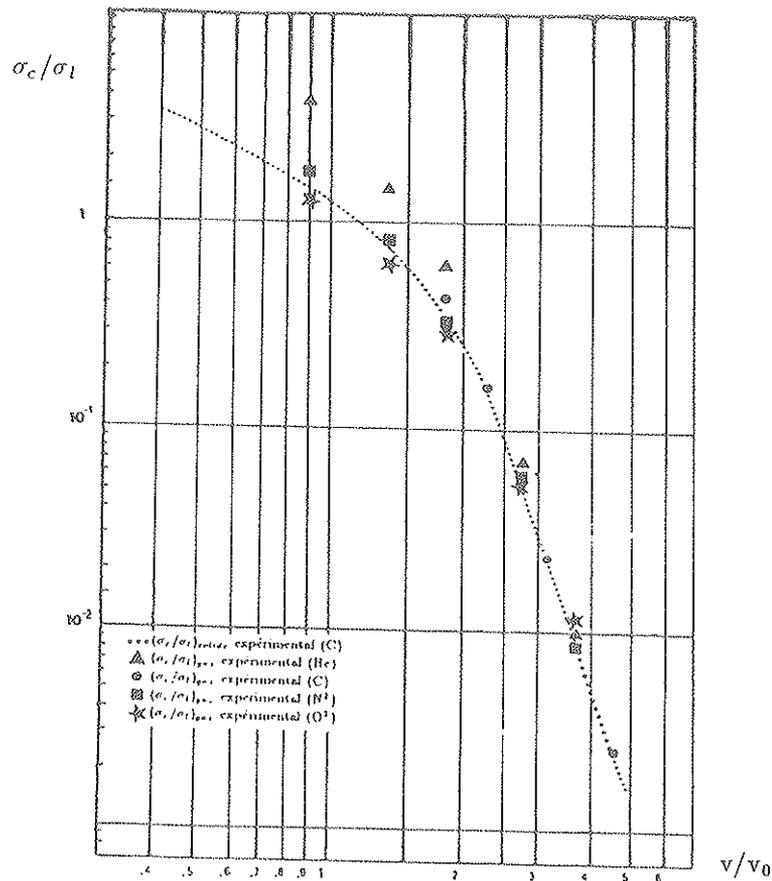


Figure 3.7 : Rapport de la section efficace de capture sur la section efficace de perte pour différentes cibles gazeuses [22].

Comme nous l'avions constaté les résultats en cible solide et en cible gazeuse s'identifient à haute vitesse. Ces sections efficaces dans le carbone en phase gazeuse n'ayant pas été mesurées à basse vitesse nous avons porté les résultats obtenus dans l'hélium, le diazote et le dioxygène. A basse vitesse nous voyons que les rapports $\left(\frac{\sigma_c}{\sigma_l}\right)_{\text{gaz}}$ des sections efficaces mesurées dans les gaz diminuent quand le numéro atomique augmente. Or le rapport $\left(\frac{\sigma_c}{\sigma_l}\right)_{\text{solide}}$ calculé à partir de la fraction d'atomes neutres mesurée à l'émergence d'une cible solide est un peu faible, puisqu'il apparaît inférieur à basse vitesse à celui obtenu à partir des résultats dans une cible d'azote.

De même, les résultats de Y. BAUDINET et al. [29] mettent en évidence une variation avec la vitesse de la fraction relative d'hydrogène dans l'état 2p différente de celle de la fraction neutre.

Ce sont ces résultats expérimentaux que nous allons interpréter à partir d'un modèle simple.

3.3.3 SECTIONS EFFICACES DE PERTE DANS LE SOLIDE A BASSE VITESSE

Pour des vitesses supérieures à $2v_0$ les résultats expérimentaux conduisent à

$$\begin{aligned}\sigma_c^{1s} \text{ solide} &= \sigma_c^{1s} \text{ gaz} \\ \sigma_l^{1s} \text{ solide} &= \sigma_l^{1s} \text{ gaz}\end{aligned}$$

Par contre pour des vitesses plus faibles les résultats avec une cible solide diffèrent de ceux obtenus avec le carbone en phase gazeuse. La fréquence des collisions n'est pas à mettre en cause puisque les résultats obtenus à haute vitesse avec une cible solide s'identifient avec ceux obtenus avec une cible gazeuse. Il nous faut donc considérer l'effet de la présence des électrons délocalisés du solide sur l'échange de charge.

Considérons un atome d'hydrogène en mouvement dans le solide, les électrons délocalisés passent au voisinage du proton et vont, durant leur passage, modifier la profondeur du puits de potentiel dans lequel est lié l'électron et peuvent provoquer la perte de cet électron par le projectile. Aussi cet électron paraîtra en moyenne plus ou moins lié suivant la probabilité pour qu'un électron passe au voisinage du proton un temps suffisamment long pour l'écranter et lui faire perdre son électron lié.

Pour décrire cet effet, il n'est pas question de considérer toutes les trajectoires électroniques. Vis à vis de l'électron capturé, nous décrirons le proton par un puits de potentiel moyen dans lequel la position des niveaux va dépendre de l'effet moyen du passage des électrons autour de l'atome. Nous utiliserons par simplicité un puits de potentiel en

$$\frac{e^{-r/a}}{r}$$

dont la dépendance en vitesse intervient dans la distance écran a ,

$$a = \eta v + a_{TF}$$

et à haute vitesse le proton est décrit, vis à vis d'un électron lié, comme dans les gaz par un potentiel en $1/r$.

F.J. ROGERS et al. [30] ont calculé les niveaux d'énergie de l'électron d'un système hydrogénoïde pour un tel potentiel $\frac{e^{-r/a}}{r}$ en résolvant l'équation de Schrödinger radiale; tous les niveaux sont déplacés vers le continuum, l'énergie de liaison diminuant avec la distance écran (figure 3.8).

$Z_1 D/a_n$	1,	2,	2 _p	3,	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					

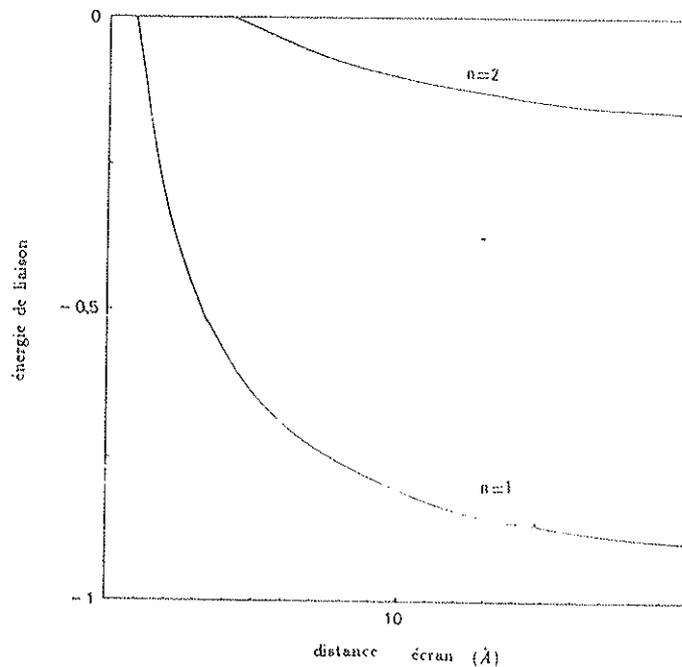


Figure 3.8 : Energie de liaison, en unité de Ry =13.6 eV, d'un électron sur une charge ponctuelle $Z_1 e$, en fonction de la distance écran $D (= A_{TF})$ (d'après F.J. ROGERS [30]).

Cette description en terme d'état plus ou moins lié suivant la vitesse du projectile permet de décrire d'une manière simple l'effet moyen du gaz d'électrons délocalisés sur la section efficace de perte. En considérant alors que plus un électron est lié moins il risque d'être perdu par le projectile, développons au premier ordre la section efficace de perte en fonction de $\left(\frac{1}{I}\right)$, I étant l'énergie d'ionisation de l'électron lié.

Considérons un électron lié dans l'état $1s$ du projectile. Soit I_{solide}^{1s} son énergie d'ionisation dans le solide, soit I_0^{1s} son énergie d'ionisation dans le vide.

A haute vitesse $I_{\text{solide}}^{1s} = I_0^{1s}$

Soient $\sigma_{l \text{ solide}}^{1s}$ la section efficace de perte d'un électron lié dans l'état $1s$ dans le solide, et $\sigma_{l \text{ gaz}}^{1s}$ la section efficace de perte d'un électron lié dans l'état $1s$ dans une cible gazeuse.

De même à haute vitesse nous avons $\sigma_{l \text{ solide}}^{1s} = \sigma_{l \text{ gaz}}^{1s}$

Au premier ordre en $\frac{1}{I_{\text{solide}}^{1s}}$ nous avons donc:

$$\begin{aligned}\sigma_{l \text{ solide}}^{1s} &= \frac{1}{I_{\text{solide}}^{1s}} (I_0^{1s} \sigma_{l \text{ gaz}}^{1s}) \\ &= \frac{\sigma_{l \text{ gaz}}^{1s}}{E_{\text{solide}}^{1s}}\end{aligned}$$

où $E_{\text{solide}}^{1s} = \frac{I_{\text{solide}}^{1s}}{I_0^{1s}}$. (énergie réduite)

En ce qui concerne la capture d'un électron de la cible, celle-ci est nécessairement localisée à proximité d'un atome cible pour que la conservation de la quantité de mouvement dans la collision puisse être réalisée. La densité d'électrons dans le solide n'est pas uniforme dans l'espace interatomique et, malgré l'existence d'électrons délocalisés, est dominante autour des atomes de la cible [31]. Nous négligerons donc au premier ordre l'effet du gaz d'électrons délocalisés sur la section efficace de capture par rapport à son effet sur la perte d'un électron lié au projectile.

Soit $\sigma_{c \text{ solide}}^{1s} = \sigma_{c \text{ gaz}}^{1s}$

Et nous avons alors

$$\frac{\sigma_{c \text{ solide}}^{1s}}{\sigma_{l \text{ solide}}^{1s}} = E^{1s} \frac{\sigma_{c \text{ gaz}}^{1s}}{\sigma_{l \text{ gaz}}^{1s}}$$

On ferait de même pour tous les états excités existant dans le solide. En effet, les atomes d'hydrogène sortent de la cible, soit dans un état fondamental, soit dans un état excité. La fraction émergeant dans un état excité n'a pas été à notre connaissance mesurée de manière absolue. Pour avoir une estimation de la fraction émergeant dans l'état excité, il est nécessaire de connaître la variation avec le nombre quantique principal n des sections efficaces correspondant à la capture dans un état excité d'une part, et à l'excitation directe

d'autre part. J.R. OPPENHEIMER [32] a établi que dans le domaine de vitesse $v \geq v_0$ la section efficace de capture d'un électron par un ion léger dans un état de nombre quantique principal élevé était

$$\sigma_n = \frac{1}{n^3} \sigma_c$$

σ_c étant la section efficace de capture dans l'état fondamental ($n = 1$).

D'autre part, R.E. YAGER et N.F. LANE [33] ont calculé des 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 suit également une loi en $\frac{1}{n^3}$. Il en résulte que les atomes émergents sont pour la plus grande part dans l'état fondamental. Nous négligerons donc la contribution des états excités à la fraction totale d'atomes d'hydrogène.

$$\phi_0 = \phi_{1s}$$

et l'on a donc

$$\frac{\sigma_c \text{ solide}}{\sigma_l \text{ solide}} \sim \frac{\sigma_c^{1s} \text{ solide}}{\sigma_l^{1s} \text{ solide}}$$

$$\frac{\sigma_c \text{ solide}}{\sigma_l \text{ solide}} = E^{1s} \frac{\sigma_c \text{ gaz}}{\sigma_l \text{ gaz}}$$

Ainsi d'après nos hypothèses, le rapport $u = \frac{1}{E^{1s}} \frac{\sigma_c \text{ solide}}{\sigma_l \text{ solide}}$ doit s'identifier avec le rapport des sections efficaces mesurées dans le carbone en phase gazeuse. Pour cela, nous avons ajusté la dépendance en vitesse du potentiel écrané en calculant u avec E^{1s} égal à l'énergie (en unité atomique) de l'état $1s$ dans le puits écrané calculé par Rogers. Les valeurs de u tracées en fonction de la vitesse sur la figure 3.9 sont obtenues pour la dépendance de la constante d'écran avec la vitesse suivante

$$a = \eta \frac{v}{v_0} + a_{TF} \quad \text{avec} \quad \eta = 2,65$$

La prise en compte de la variation de la section efficace de perte associée à la présence du gaz d'électrons délocalisés permet donc d'interpréter l'écart à basse vitesse entre les rapports $\left(\frac{\sigma_c}{\sigma_l}\right)_{\text{solide}}$ et $\left(\frac{\sigma_c}{\sigma_l}\right)_{\text{gaz}}$.

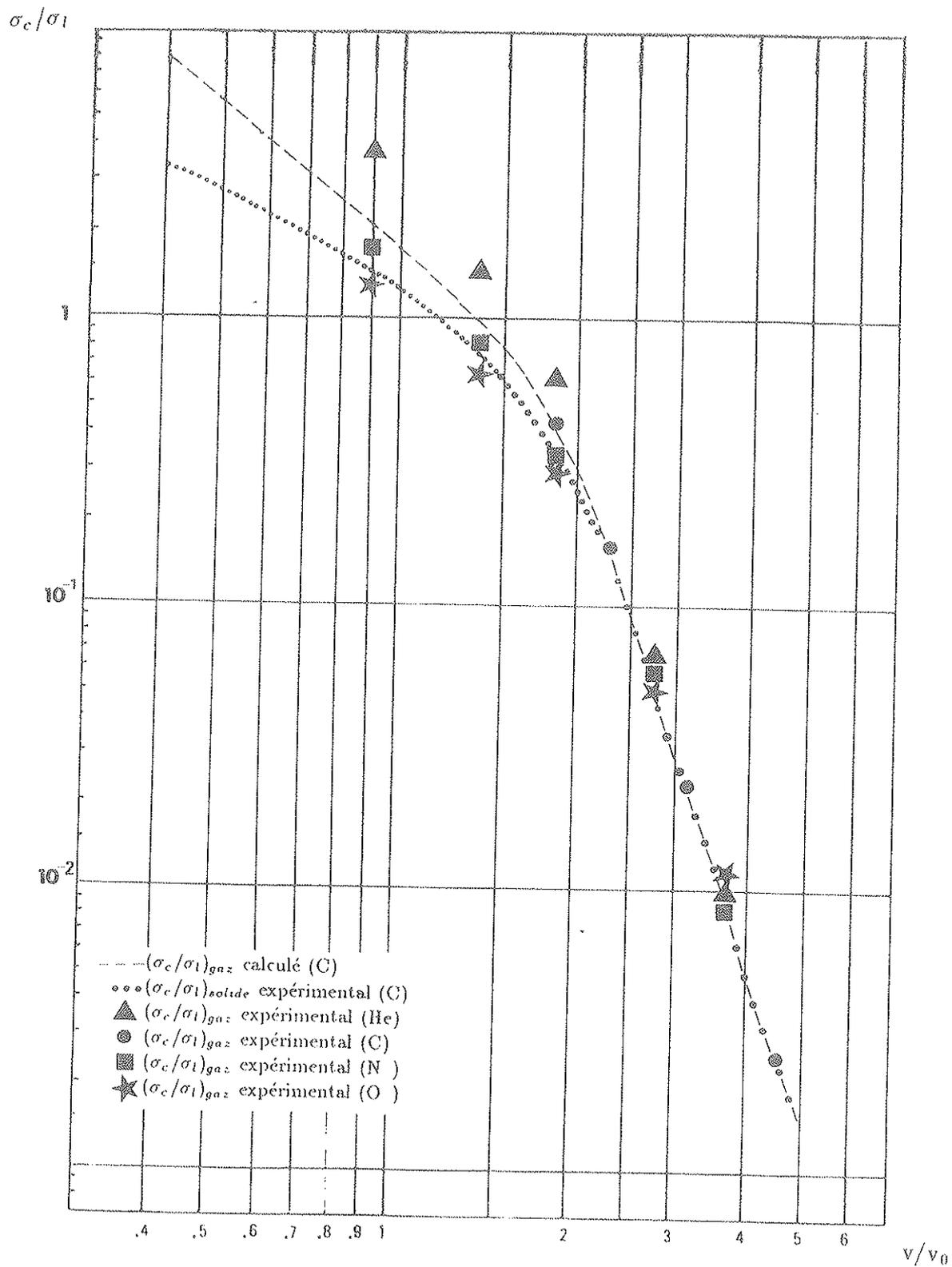


Figure 3.9 : Comparaison du rapport (σ_c/σ_l) calculé avec celui obtenu avec des cibles solides et avec des cibles gazeuses.

3.3.4. - INTERPRETATION DE LA VARIATION AVEC LA VITESSE DE LA FRACTION D'HYDROGENE EXCITE DANS L'ETAT 2P

De même pour les sections efficaces de perte et de capture relatives à l'état 2p, nous supposons:

$$\sigma_c^{2p} \text{ solide} = \sigma_c^{2p} \text{ gaz}$$

$$\sigma_l^{2p} \text{ solide} = \frac{\sigma_l^{1s} \text{ gaz}}{E^{2p}}$$

où E^{2p} est l'énergie d'ionisation d'un électron dans l'état 2p de l'atome d'hydrogène, à l'intérieur du solide. La valeur de E^{2p} est celle pour le puits de potentiel écranté dont la dépendance en vitesse est celle ajustée précédemment.

A l'équilibre de charge, nous avons

$$\phi_{2p} = \frac{1}{1 + \frac{\sigma_l^{2p} \text{ solide}}{\sigma_c^{2p} \text{ solide}}}$$

Les valeurs portées sur la figure 3.10 ont été calculées à une constante multiplicative près égale au rapport $\frac{\phi_{2p}}{\phi_0}$ à haute vitesse. Ceci permet de s'affranchir (au premier ordre) des dépendances en vitesse qui ne sont pas associées à des effets spécifiques à la cible solide.

Il faut noter d'autre part, qu'à notre connaissance la fraction ϕ_{2p} n'a jamais été mesurée de manière absolue.

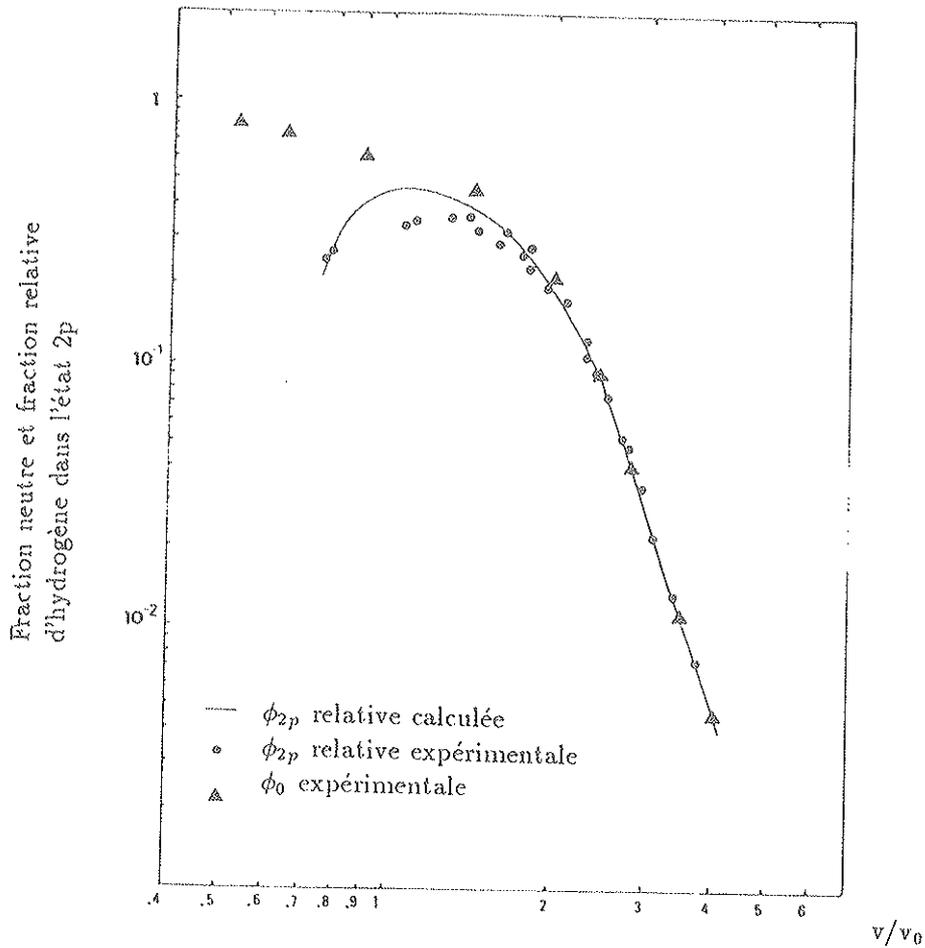


Figure 3.10 : Comparaison de la fraction relative d'hydrogène émergeant dans l'état excité 2p calculée avec celle mesurée par Y. BAUDINET et al..

La fraction ϕ_{2p} calculée est en accord de manière qualitative avec les résultats expérimentaux. La forme exacte de la variation en vitesse de la valeur calculée de la fraction d'hydrogène excité dans l'état 2p est régie par la forme analytique du puits de potentiel et sa variation avec la vitesse.

Notons qu'une autre différence entre une cible solide et une cible gazeuse est l'existence ou non d'une surface, région où la densité électronique décroît progressivement. Nous avons négligé son effet sur les fractions à l'émergence en ne considérant que les effets de volume qui sont dominants.

L'ensemble de ces résultats montre l'importance de la description des phénomènes d'échange de charge spécifiques à la cible solide à partir de la dépendance de la section efficace de perte avec l'énergie d'ionisation des électrons liés au projectile.

3.4 - EFFETS COLLECTIFS SUR LES ECHANGES DE CHARGE DE PROTONS DANS UNE CIBLE SOLIDE

3.4.1 - EFFETS COLLECTIFS SUR LA FRACTION D'HYDROGENE A L'EMERGENCE D'UNE CIBLE SOLIDE

3.4.1.1 - RESULTATS EXPERIMENTAUX ANTERIEURS

Les expériences réalisées avec des faisceaux d'ions H_2^+ et H_3^+ (M.J. GAILLARD et al. [9], N. de CASTRO FARIA et al. [13,14], Y. BAUDINET et al. [29]) et d'agrégat H_n^+ (B. MAZUY et al. [15]) ont montré une surproduction d'atomes d'hydrogène par rapport aux fractions d'atomes neutres obtenues avec des faisceaux de protons.

L'étude expérimentale des variations de cette surproduction d'atomes neutres a montré qu'elle augmente avec la vitesse des projectiles et diminue quand l'épaisseur de la cible augmente (figure 3.11).

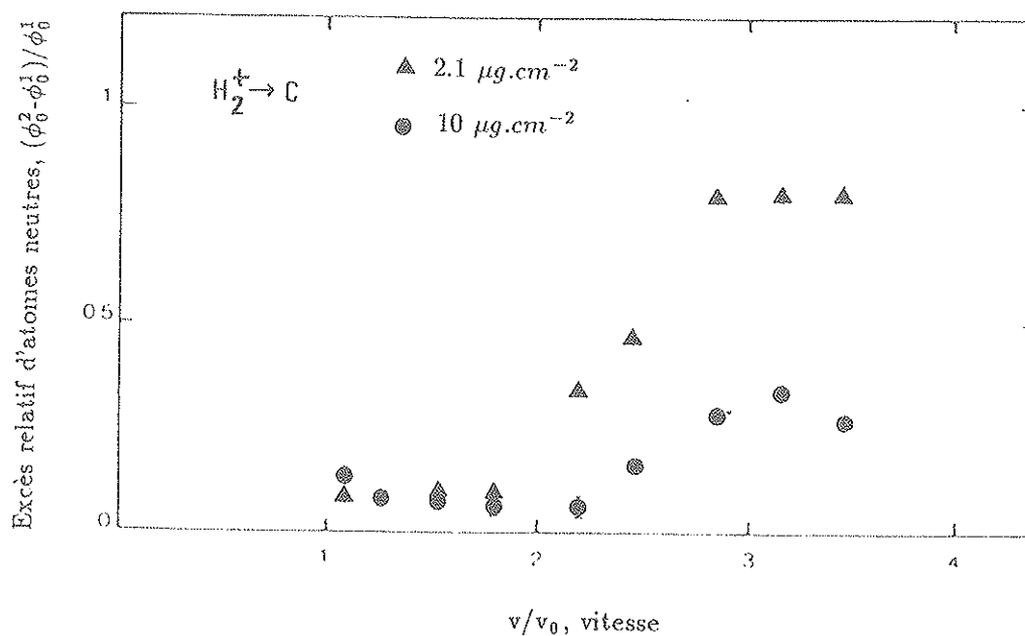


Figure 3.11 : Variation avec la vitesse des fragments de l'excès relatif d'atomes neutres lorsque les ions incidents sont moléculaires [15].

Elle augmente aussi avec le nombre de protons dans le projectile incident (figure 3.12).

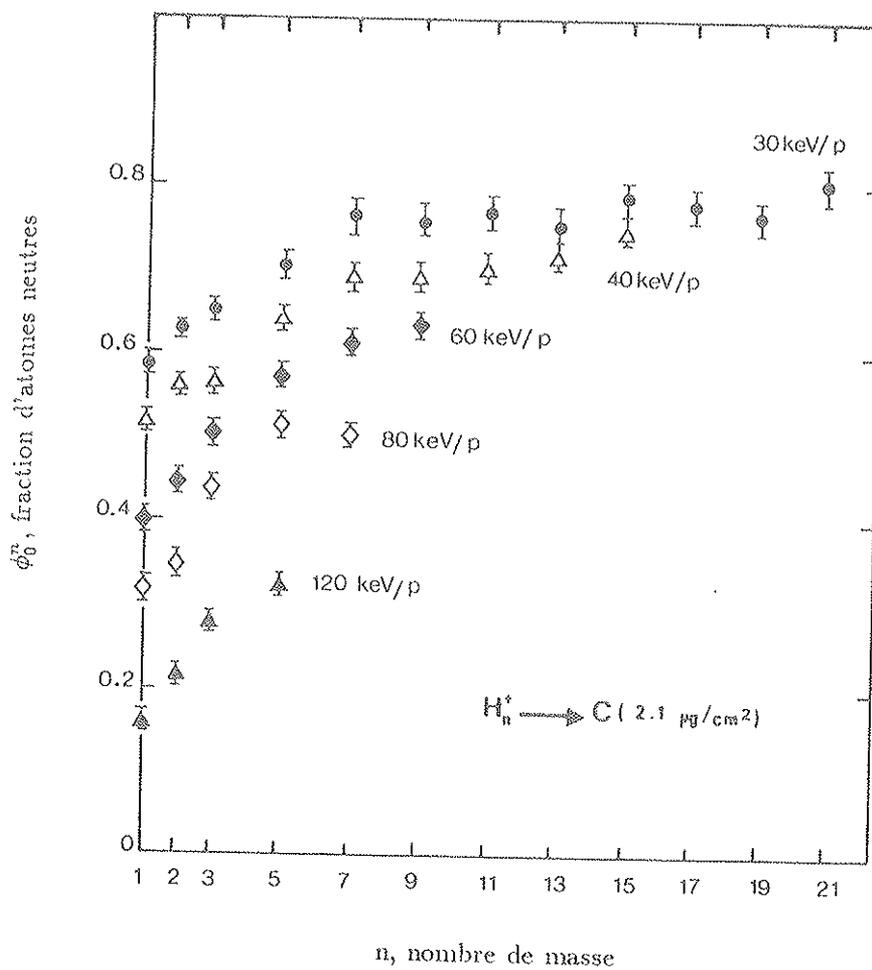


Figure 3.12 : Variation de la fraction d'atomes neutres ϕ_0^n par proton incident en fonction du nombre de masse pour différentes vitesses des projectiles [15].

Ces résultats expérimentaux nous orientent vers un modèle qui prendra en considération les distances entre les fragments à l'émergence de la cible. ([9 et 14])

3.4.2 - INTERPRETATION DES EFFETS COLLECTIFS SUR LA FRACTION D'ATOMES NEUTRES

Quand on envoie un agrégat H_n^+ dans une cible solide, c'est un essaim de protons qui voyage à travers la cible. Chaque proton est entouré de $n-1$ voisins situés à des distances variables régies essentiellement par la répulsion coulombienne écrantée et la diffusion multiple.

La présence de plusieurs protons au voisinage d'un atome d'hydrogène en mouvement dans le solide, au moment d'une collision pouvant provoquer la perte de son électron, va tendre à augmenter l'énergie d'ionisation de cet électron et donc modifier la section efficace de perte électronique. En effet l'électron lié qui masque la répulsion coulombienne entre les protons va être alors plus lié que si l'atome d'hydrogène voyageait seul dans le solide.

Considérons le cas simple d'un atome d'hydrogène dans l'état fondamental en mouvement dans le solide en présence d'un seul proche voisin, et considérons les courbes d'énergie potentielle de H_2^+ et de deux protons ($H^+ + H^+$) dans le vide en fonction de la distance interprotonique (figure 3.13).

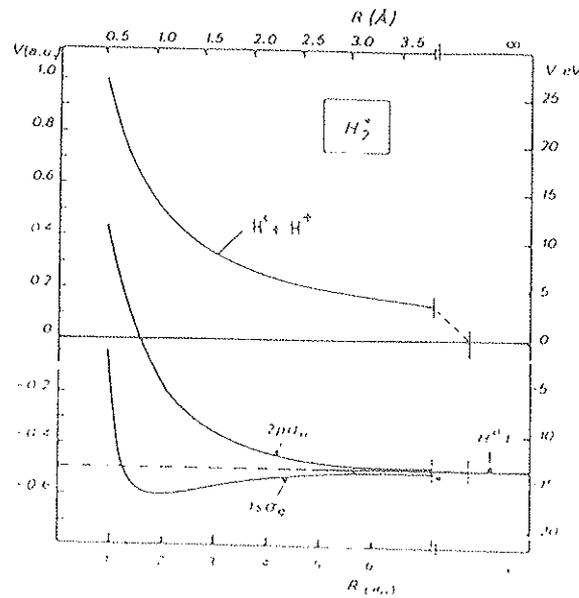


Figure 3.13 : Courbe de potentiel de l'ion H_2^+ .

A un instant donné, les protons étant à une distance R , l'énergie d'ionisation de l'électron, correspondant à la différence d'énergie du système avec et sans électrons, est égale à l'énergie de l'état moléculaire ($1s\sigma_g$ ou $2p\sigma_u$) auquel il faut ajouter l'énergie de répulsion des deux protons ($1/R$).

C'est ce que nous allons généraliser pour un système de n protons à l'intérieur du solide. Ainsi, pour évaluer l'énergie d'ionisation d'un électron dans l'état $1s$ autour proton i considéré dans l'essaim des protons d'un agrégat H_n^+ dans le solide nous écrivons:

$$I_i = \sum_{j=1, j \neq i}^n \frac{\exp -R_{ij}/a}{R_{ij}} + B_{MG}^{1s}$$

Le premier terme décrit la liaison supplémentaire de l'électron correspondant à la répulsion entre les protons dans le solide en l'absence de l'électron.

Le second terme est l'énergie de l'état moléculaire généralisé B_{MG}^{1s} à n protons dans le solide. Cette énergie fonction de la distance interprotonique n'est connue que pour deux protons dans le vide (H_2^+). Or, l'état moléculaire généralisé est l'état d'un système de plusieurs protons avec un ou plusieurs électrons à l'intérieur du solide. Pour limiter le nombre de paramètres à introduire dans le modèle, nous avons considéré B_{MG}^{1s} constante en fonction de la distance interprotonique et donc égale à l'énergie de l'état atomique lié dans le solide correspondant: E_{solide}^{1s} . Ce choix consiste à négliger l'effet collectif sur l'énergie de l'état moléculaire, effet liant ou antiliant (cf. état $1s\sigma_g$ et $2p\sigma_u$ de H_2^+).

Comme précédemment, nous considérons que les effets sont observés à l'équilibre de charge. Cependant les fractions neutres mesurées sont celles qui résultent des échanges de charge dans les dernières couches atomiques de la cible sur une épaisseur de l'ordre du libre parcours moyen ($\lambda \sim 1/N\sigma_l \sim 10$ à 20 \AA) et ce sont les distances interprotoniques dans cette région de la cible qui vont donc intervenir. Les distances interprotoniques calculées dans le chapitre 2 font apparaître que les distances $R_{i,j}$ inférieures à 0.5 \AA sont très peu probables; on observe sur le diagramme des courbes de potentiel d' H_2^+ que ces effets liants ou antiliants mettent en jeu, pour le domaine de distances interprotoniques intervenant, des énergies faibles devant l'énergie potentielle d'interaction des deux protons.

La section efficace de perte d'un électron dans l'état fondamental d'un proton i d'un agrégat H_n^+ s'écrit donc:

$$\sigma_l^{1s,i} \text{ solide} = \frac{\sigma_l^{\text{gaz}}}{E_i^{1s}}$$

avec $E_i^{1s} = I_i / I_0^{1s}$

et dépend ainsi des distances entre le proton i et ses voisins dans l'agrégat.

Comme nous l'avons déjà souligné les électrons du milieu susceptibles d'être capturés sont localisés au voisinage d'un atome cible. Typiquement, les électrons de la couche L d'un atome de carbone sont localisés en moyenne à une distance de l'ordre de $(n^2/Z^2)a_0$ c'est à dire $(1/9)a_0$ du noyau. Cette distance est très inférieure aux distances entre les protons dans les dernières couches atomiques de la cible. Aussi négligerons nous la présence des autres protons de l'agrégat sur la capture électronique et nous écrivons:

$$\sigma_l^{1s,i} \text{ solide} = \sigma_l \text{ solide} = \sigma_l^{1s} \text{ gaz}$$

Pour poursuivre le calcul de la fraction neutre, nous utilisons les résultats de la simulation du mouvement des protons dans la cible. Comme les effets observés résultent des échanges de charges dans les dernières couches atomiques de la cible; nous n'avons pas introduit dans notre programme de simulation de la capture et de la perte dans chaque subdivision de la cible, suivant les sections efficaces développées plus haut. Nous avons associé à chaque proton dans chaque agrégat une probabilité de sortir de la cible avec un électron lié égale à la fraction d'hydrogène à l'équilibre calculée à partir de σ_c et σ_l , la section efficace de perte étant calculée pour chaque proton en fonction des distances avec ses voisins.

Comme précédemment nous assimilons la fraction d'atomes neutres à la fraction émergeant dans l'état fondamental.

Pour obtenir la fraction de neutres à l'émergence pour un faisceau d'agrégats incidents, la probabilité pour un proton de sortir avec un électron dépendant de la géométrie de l'essaim, elle même succession d'un grand nombre d'évènements, nous procédons par tirage au hasard. Ainsi en utilisant la probabilité définie ci-dessus, le proton sort effectivement ou non avec un un électron de la cible suivant le résultat du tirage.

Dans un agrégat donné, nous effectuons le tirage au hasard en commençant par le proton dont l'énergie d'ionisation (I_i) est la plus faible et ainsi de suite pour tous les protons de l'agrégat. Pour tenir compte de l'effet d'écran résultant de la présence effective d'un électron dans un état lié, quand le résultat du tirage indique que le proton sortira avec un électron lié, nous retirons l'effet de ce proton sur la section efficace de perte des autres protons de l'agrégat. L'organigramme correspondant à ce calcul est présenté dans la figure 3.14.

pour un agregat

simulation de l'explosion
coulombienne écrantée et de la
diffusion multiple dans la cible

pour un proton de l'agregat

Calcul des distances avec les autres protons
de l'agregat en sortie de la cible

calcul de la probabilité de sortir avec un électron lié

tirage au hasard

le proton sort effectivement
avec un électron lié

le proton sort sans
électron lié

retrait de l'effet de ce
proton sur la section efficace
de perte des protons suivants

Passage au proton suivant dans l'agregat

Figure 3.14 : Calcul de la fraction d'atomes neutres à l'émergence d'une cible solide après interaction d'un faisceau d'agrégats H_n^+ avec cette cible solide.

Les résultats des calculs sont présentés sur la figure 3.15 pour une épaisseur de cible de $2. \mu g. cm^{-2}$ et des agrégats incidents de 30 keV/p, 40 keV/p, 60 keV/p, 80 keV/p.

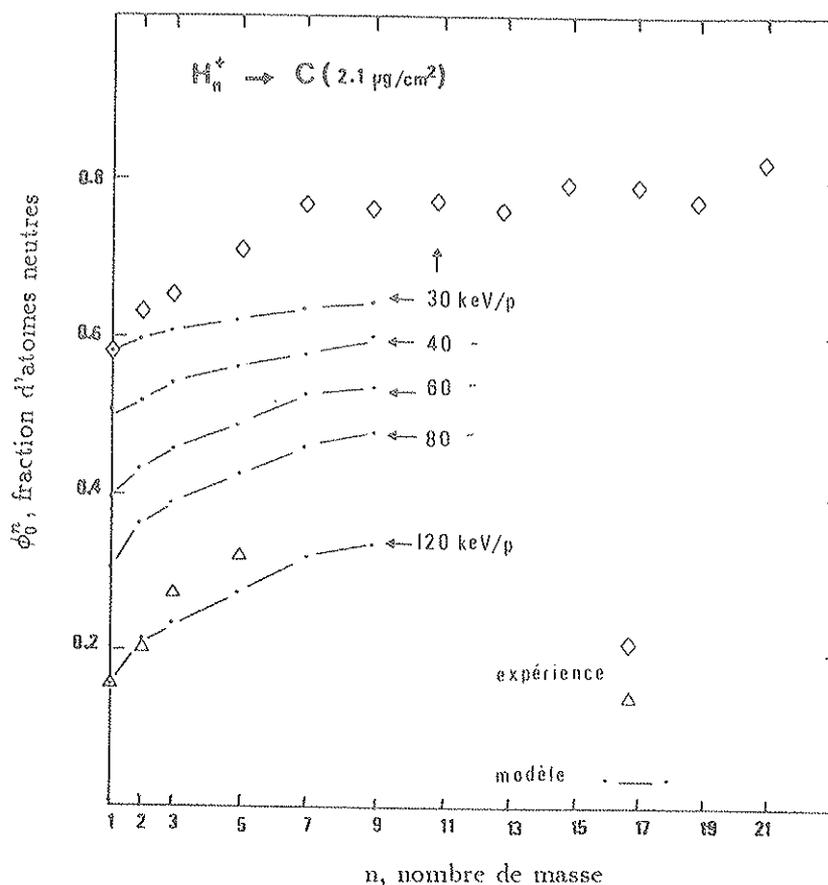


Figure 3.15 : Comparaison des fractions d'atomes neutres calculées avec celles mesurées par B. MAZUY et al. [15].

Cette description reproduit les résultats expérimentaux de manière qualitative. La saturation dans la variation de la fraction de neutre en fonction de l'agrégat incident est obtenue pour les agrégats H_7^+ et H_9^+ . Mais les fractions d'atome neutre calculées sont trop faibles.

Ceci pourrait être la conséquence du choix de l'état moléculaire généralisé, négligeant l'effet liant dû à la présence de protons voisins. Mais comme on le voit sur la figure 3.15 le décalage est plus important à basse vitesse. Or quand la vitesse du projectile diminue, la distribution des distances entre les protons est déplacée vers les grandes distances. Aussi nous avons plutôt modifié la forme du potentiel écranté décrivant le proton dans le solide en lui ajoutant un terme à longue portée pour décrire les effets observés.

Les résultats présentés dans la figure 3.16 ont été obtenus avec le potentiel écranté suivant:

$$\frac{\exp(-R_{ij}/a)}{R_{ij}} (1 + bR_{ij}^2)$$

Energie(keV)	Valeurs de a et b	
	$a = 2.65v/v_0 + a_{TF} (\text{Å})$	b
80	5.35	0.07
60	4.67	0.08
40	3.92	0.1
30	3.50	0.15

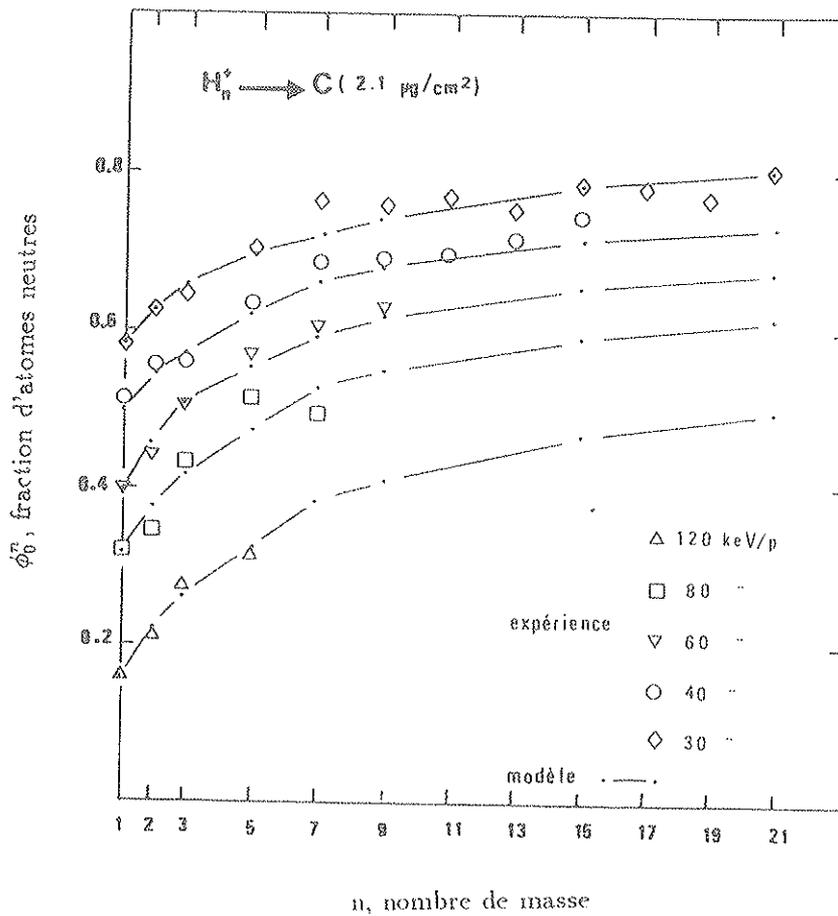


Figure 3.16 : Comparaison des fractions d'atomes neutres calculées avec celles mesurées par B. MAZUY et al. [15].

Sur la figure 3.17 est représentée l'allure de ce potentiel en fonction de la distance entre deux protons pour les valeurs de a et b utilisées à 60 keV. La valeur de a est celle utilisée précédemment et la valeur de b étant faible le terme supplémentaire a une incidence négligeable sur l'énergie de l'état fondamental de l'atome d'hydrogène dans le solide.

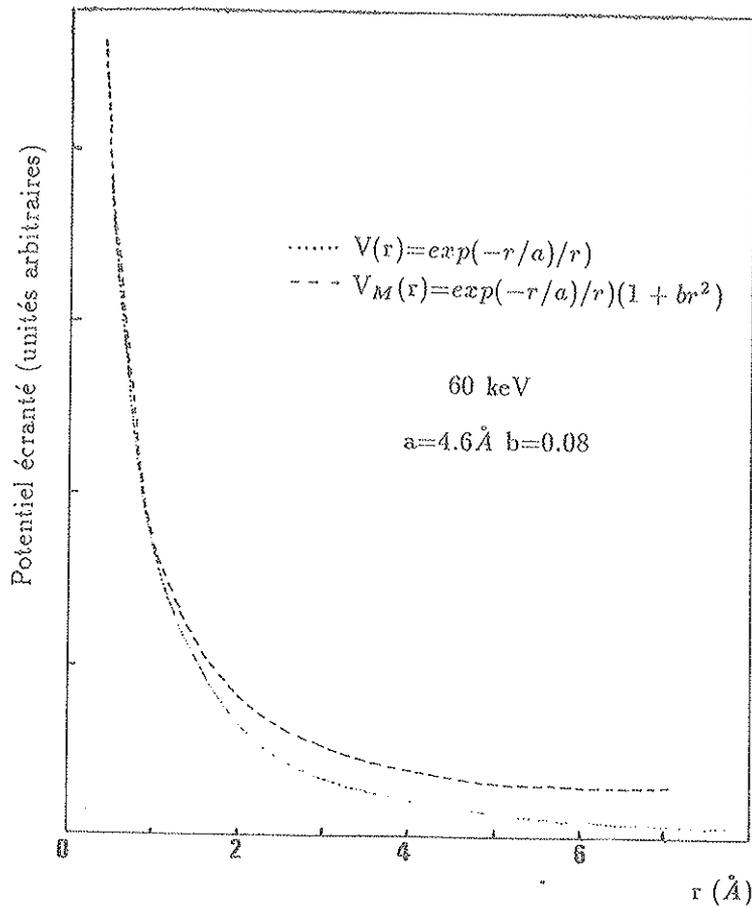


Figure 3.17 : Comparaison des potentiels écranés $V_M(r)$ et $V(r)$ pour des protons de 60 keV.

Les fractions d'hydrogène ont été calculées avec cette même description pour une autre épaisseur de cible ($3.4\mu\text{g.cm}^{-2}$). Ces résultats présentés sur la figure 3.18 comme ceux présentés dans la figure 3.16 sont en très bon accord avec les résultats expérimentaux (épaisseurs de cible connues à 10% près).

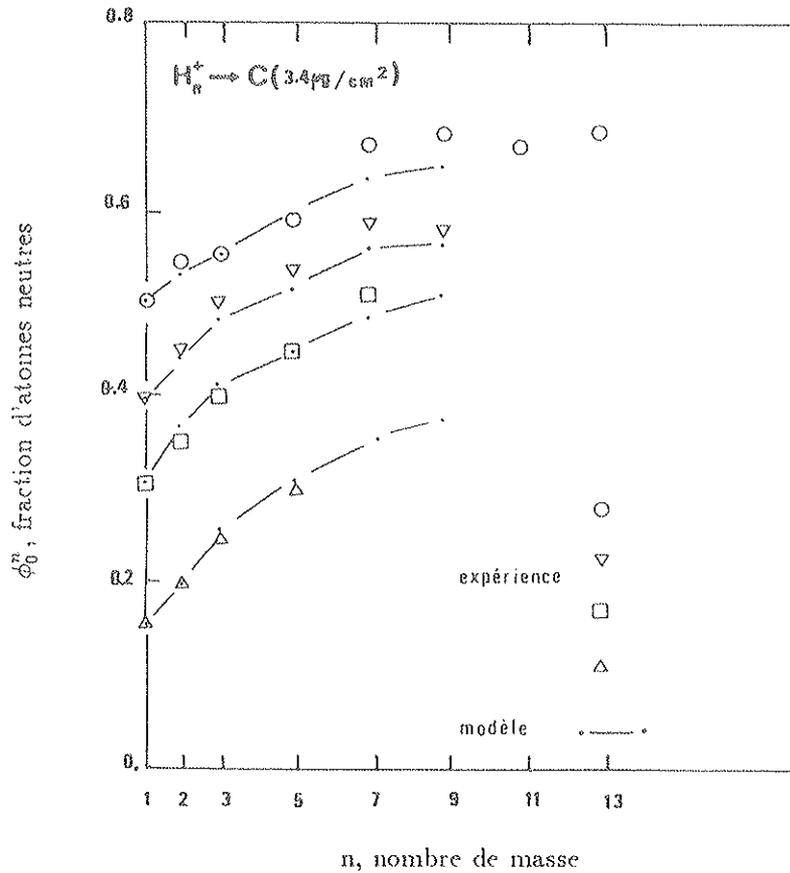


Figure 3.18 : Comparaison des fractions d'atomes neutres calculées avec celles mesurées par B. MAZUY et al. [15].

L'excellent accord avec les résultats expérimentaux montre l'importance dominante de la perte électronique dans les échanges de charge à basse vitesse dans les solides.

Nous n'avons pas tenu compte du phénomène de transmission et de recombinaison moléculaire. Les mesures (B. MAZUY et al.[15]) ont montré qu'elle est négligeable pour les vitesses et les épaisseurs de cible considérées.

Pour des projectiles plus rapides et des épaisseurs plus faibles, le phénomène de recombinaison moléculaire est mesurable (M.J. GAILLARD et al.[11]). Nous pourrions d'ailleurs évaluer le taux de recombinaison moléculaire en comptant le nombre de protons qui sortent effectivement avec un électron lié, ont dans leur voisinage un proton à une distance et une vitesse relative telles pour que le système soit lié à l'extérieur de la cible (calcul de l'énergie potentielle et de l'énergie cinétique du système).

3.4.2 - ETUDE DE LA FRACTION D'ATOMES EXCITES DANS L'ETAT 2P A L'EMERGENCE D'UNE CIBLE SOLIDE POUR UN FAISCEAU D'AGREGATS H_n^+ INCIDENT

L'effet collectif sur la quantité de lumière correspondant à la transition Lyman α ($1s-2p$) de l'hydrogène, émise à l'émergence d'une cible de carbone, a déjà été étudié avec des faisceaux d'ions moléculaires H_2^+ et H_3^+ (A. CLOUVAS[23], R.L. BROOKS et al. [35], Y. BAUDINET et al.[29], G. ASTNER et al.[36], H. KOBAYASHI et al.[37]).

Dans ce paragraphe, nous allons décrire les résultats expérimentaux que nous avons obtenus avec des faisceaux d'agrégats d'hydrogène H_n^+ ($n \leq 61$) d'énergie 10 keV/p, 20 keV/p, 30 keV/p, 40 keV/p, 60 keV/p, 80 keV/p et proposer une interprétation à partir de la description utilisée précédemment.

3.4.2.1 - MESURES ET RESULTATS EXPERIMENTAUX

3.4.2.1.1 - LE FAISCEAU D'AGREGATS D'HYDROGENE

Les faisceaux d'agrégats d'hydrogène H_n^+ ($n \leq 61$) d'énergie comprise entre 60 et 630 keV sont délivrés par l'accélérateur d'agrégats de l'Institut de Physique Nucléaire de Lyon [34,35] (figure 3.19).

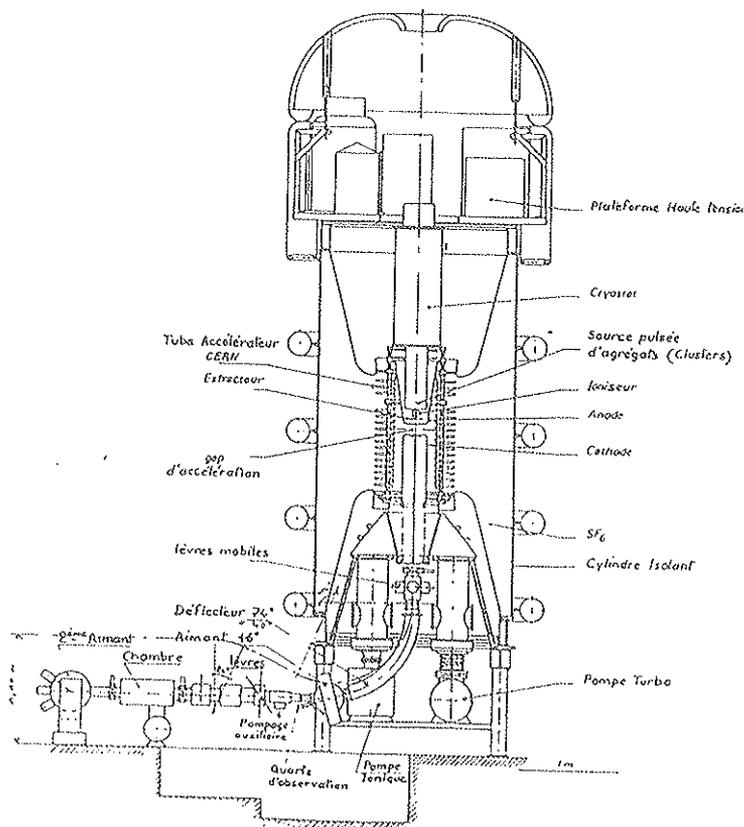


Figure 3.19 : L'accélérateur d'agrégats de Lyon [38,39].

Ces agrégats sont formés à partir d'hydrogène gazeux dans une source cryogénique refroidie à l'hélium liquide que nous avons déjà décrite dans le chapitre 2. Une large distribution de masse d'agrégats ioniques H_n^+ est extraite par une électrode négative. 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 ns et la fréquence de répétition des impulsions doit être assez faible pour que la remontée en pression dans le tube accélérateur pendant la détente soit récupérée, entre deux détentes, par le système de pompage. Au cours de notre expérience, nous avons une impulsion de faisceau de 60 ns toutes les 3 s.

La combinaison d'un analyseur électrostatique et d'un analyseur magnétique permet de sélectionner la masse et l'énergie du faisceau d'agrégats souhaité.

Le système de triplets électrostatique permettant la focalisation du faisceau d'agrégats après séparation électrostatique et magnétique, a été utilisé en mode parallèle. Un doublet de diaphragmes D_1 et D_2 de diamètres respectifs 1 et 2 mm, limitent l'ouverture du faisceau. L'ensemble du dispositif est représenté sur la figure (3.20).

Entre l'analyseur 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^{-6} Torr) conduisant à une dissociation prématurée des agrégats avant qu'ils n'atteignent la cible. A partir des sections efficaces de dissociation d'agrégats d'hydrogène, B. MAZUY [40] a évalué le taux de projectiles dissociés dans le gaz résiduel à moins de 1 %.

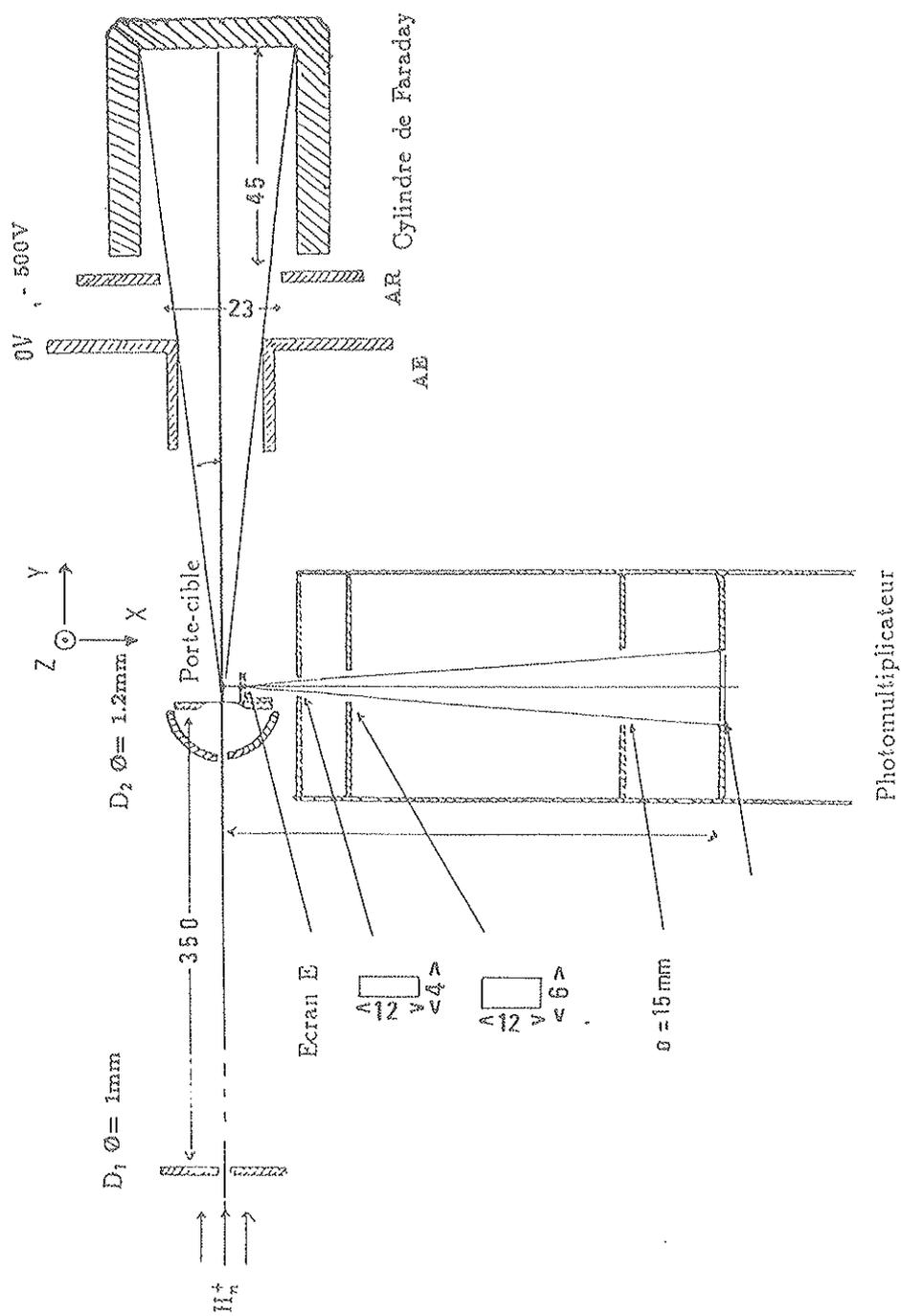


Figure 3.20 : Schéma du dispositif expérimental.

3.4.2.1.2 - DETECTION DES PHOTONS

Nous utilisons un photomultiplicateur (réf GEMCOM G-26E215) dont la courbe de réponse spectrale (cf figure (3.21)) est centrée sur la longueur d'onde de la transition lyman α (120 nm).

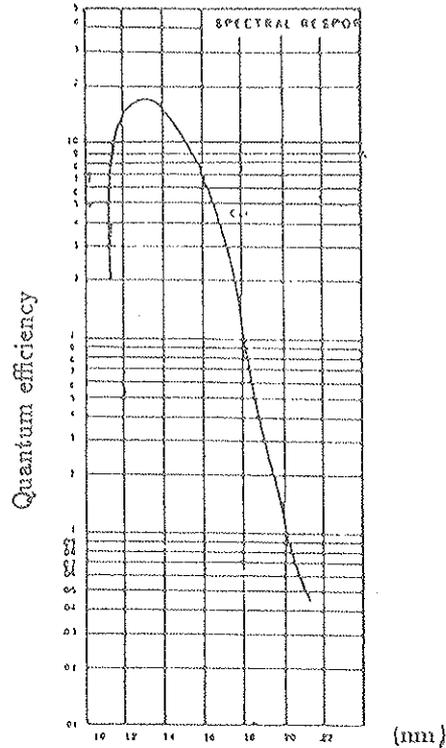


Figure 3.21 : Courbe de réponse spectrale du Photomultiplicateur utilisé.

Compte tenu du fonctionnement de l'accélérateur en régime pulsé à faible cycle utile et de la faible intensité du faisceau, nous avons choisi de ne limiter qu'à 2 mm la distance vue par le photomultiplicateur le long de l'axe afin d'obtenir un taux de comptage suffisant. Cette distance reste inférieure à la distance caractéristique du déclin de l'intensité de la transition de la raie lyman α de l'hydrogène à l'énergie la plus basse utilisée (à 10 keV , $v.\tau = 2.23$ mm). La fenêtre (2 mm \times 5 mm) limitant la zone d'observation est percée dans l'écran (E) placé parallèlement à l'axe du faisceau à une distance de 4 mm. Cet écran (E) est par commodité solidaire du porte-cible.

La photocathode (diamètre : 15mm) est placée à 100 mm de l'axe du faisceau. Les diaphragmes placés entre l'écran et la photocathode limitent l'accès à la photocathode de la lumière parasite. La portion des parois de la chambre d'expérience ainsi que toutes les parties métalliques placées dans le champ du photomultiplicateur ont été noircies avec du carbone pour limiter les réflexions parasites.

3.4.2.1.3 - PRINCIPE DE LA MESURE

Notre but est d'étudier l'effet collectif sur le nombre de photons Lyman α émis par les atomes d'hydrogène issus de la dissociation d'agrégats après traversée d'une cible de carbone.

Nous avons donc comparé les mesures faites à partir de faisceaux d'ions moléculaires ou d'agrégats, à une mesure que l'on obtient avec un faisceau atomique de même vitesse. En fait, pour ne pas modifier le fonctionnement de l'accélérateur, nous avons simulé 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.

Le porte-cibles (figure 3.22) a été étudié pour permettre les mesures successives et dans la même géométrie du nombre de photon émis à l'émergence de la cible double et de la cible simple. Le porte-cibles est monté sur un goniomètre permettant son déplacement suivant la direction perpendiculaire au plan contenant l'axe du faisceau et l'axe de détection du photomultiplicateur (axe X de la figure 3.20). Le porte-cibles permet de placer trois systèmes de cibles parallèlement à l'axe Z. Les cibles sont déposées sur des supports de cuivre percés d'un trou circulaire de 2 mm de diamètre.

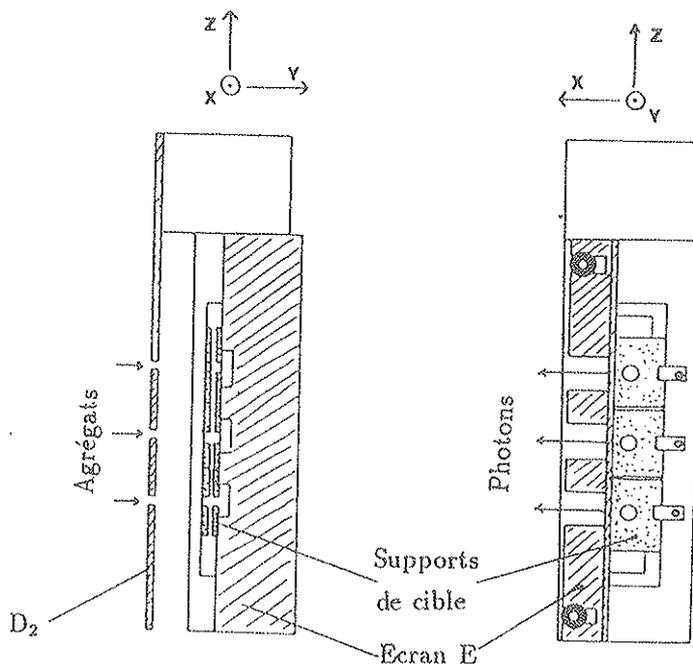


Figure 3.22 : Schéma du porte-cibles.

La cible double est constituée de deux supports sur lesquels les cibles ont été préalablement déposées, disposés l'un sur l'autre, séparés par deux minces bandes d'aluminium et alignés avec le diaphragme D_2 perpendiculairement à l'axe Z.

La cible simple est constituée comme la précédente par deux supports disposés de manière identique. Mais ce n'est que sur le second support qu'a été déposée une cible de carbone.

Dans le troisième emplacement du porte-cible, on place toujours de la même manière deux supports mais cette fois sans aucune cible pour la mesure du bruit en présence du faisceau.

Sur cet ensemble on place l'écran E dans le plan perpendiculaire à l'axe d'observation du photomultiplicateur (axe Y) dans lequel sont percées trois fenêtres identiques (2mm x 4mm) centrées à 1 mm des cibles. Un autre écran E' sur lequel les trois fenêtres sont centrées à 3 mm des cibles a été utilisé. Par déplacement du porte-cible suivant l'axe du faisceau (axe Y) le centre de la fenêtre est placé sur l'axe d'observation. Une fois cet ajustement réalisé, au cours d'une série de mesures avec un écran donné, le porte-cible ne sera translaté que suivant l'axe Z pour mettre successivement dans le faisceau, la cible double, la cible simple et le dispositif sans cible.

3.4.2.1.4 - NORMALISATION DES MESURES

Les comptages de photons ont été réalisés pour un temps donné. Les mesures en cible simple et en cible double ont été réalisées successivement sans modifier le faisceau incident. En supposant le nombre d'agrégats dans le faisceau constant en moyenne sur plusieurs impulsions, on a effectué une normalisation des mesures par rapport au temps de comptage .

Parallèlement, pour des faisceaux d'énergie supérieure ou égale à 30 keV, une deuxième méthode de normalisation a été utilisée. La mesure du nombre de protons émergeant de la cible a été réalisée. En négligeant la production d' H^- et la recombinaison moléculaire [11], cette mesure permet, à partir des fractions d'atomes neutres à l'émergence mesurée par B. MAZUY [40], de déduire le nombre d'agrégats incidents.

Pour effectuer cette mesure, nous avons placé un cylindre de Faraday centré sur l'axe du faisceau. L'acceptance angulaire du cylindre de Faraday est liée à la taille du cône d'explosion des fragments [40] qui augmente quand la vitesse des projectiles diminue. Elle est néanmoins limitée par la nécessité de piéger dans le cylindre les électrons secondaires créés par l'impact des fragments, neutres ou chargés. Pour piéger ces électrons dans le cylindre d'une part et repousser les électrons secondaires émergeant de la cible d'autre part, nous avons placé un anneau repousseur porté à une tension de 500 V (AR).

Entre cet anneau et la cible, nous avons placé un deuxième anneau (AE), relié à la

masse, qui masque la cible et la région d'observation de l'anneau repousseur. Dans ces conditions, nous avons vérifié que la présence de l'anneau repousseur au potentiel de 500 V ne modifie pas la quantité de photons mesurée.

Pour des faisceaux de 10 et 20 keV/p, la fraction importante (80 %) d'atomes neutres à l'émergence de la cible et la divergence angulaire des fragments ont rendu impossible l'utilisation de cette normalisation.

Le dispositif d'acquisition est représenté sur la figure 3.23. L'accélérateur fonctionnant en régime pulsé de faible cycle utile, le comptage n'était autorisé qu'en coïncidence avec le faisceau par un système de porte électronique. La mesure du courant circulant dans le cylindre se fait à l'aide d'un pico-ampèremètre (Keitley 602), utilisé en mode rapide (temps de réponse inférieur à 2 ms), qui délivre une tension analogique (0 - 1 Volt) proportionnelle au courant d'entrée. Les signaux fournis par le photomultiplicateur et par le picoampèremètre étaient visualisés sur un oscilloscope afin de contrôler la bonne synchronisation.

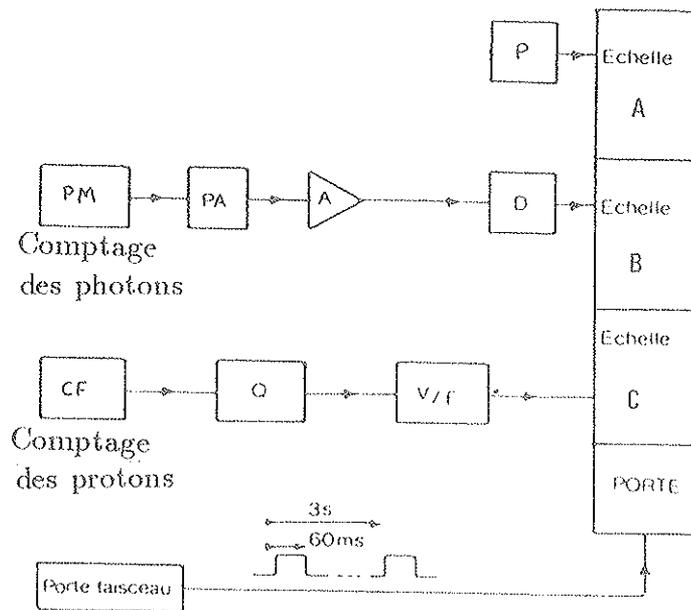


Figure 3.23 : Schéma du dispositif d'acquisition.

3.4.2.1.5 - MESURES DES EPAISSEURS DE CIBLES

Pour mesurer l'épaisseur des cibles utilisées, nous avons employé la méthode développée par B. MAZUY [40] fondée sur la mesure de la largeur de la distribution angulaire résultant de la diffusion multiple d'un faisceau de protons incident (figure 3.24).

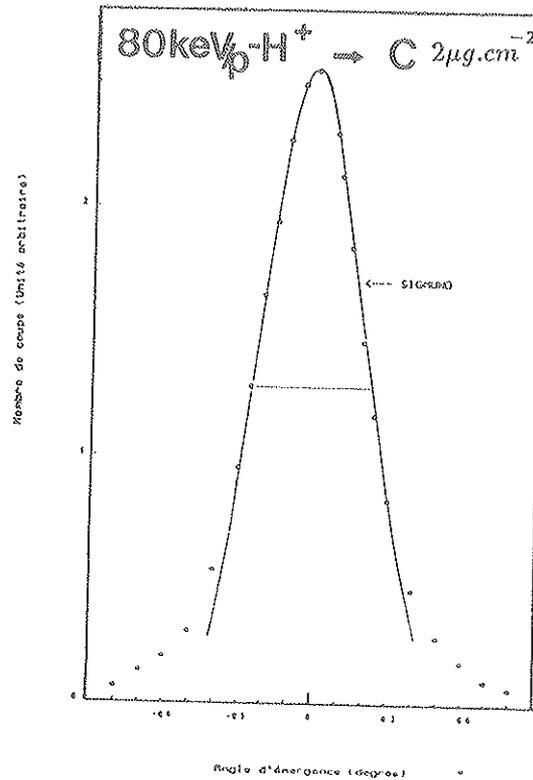


Figure 3.24 : Comparaison des distributions angulaires mesurées avec celles calculées par P. SIGMUND [18].

Pour chaque cible, les distributions angulaires des protons émergents ont été mesurées pour trois énergies incidentes. Les valeurs des largeurs à mi-hauteur obtenues sont présentées dans le tableau suivant.

<i>CIBLE 1</i>		
<i>Energie(keV)</i>	$\theta(\text{deg})$	<i>Energie.θ(keV.deg)</i>
100	0.42	42
80	0.50	40
60	0.58	34.8

<i>CIBLE 2</i>		
<i>Energie(keV)</i>	$\theta(\text{deg})$	<i>Energie.θ(keV.deg)</i>
100	0.74	74
80	0.98	78.4
60	1.12	67.2

Les largeurs des distributions mesurées sont en bon accord avec la dépendance en inverse de l'énergie des protons incidents proposée par P. SIGMUND. Nous déduisons l'épaisseur de cible par comparaison avec les distributions calculées par P. SIGMUND [18].

Nous avons ainsi obtenu:

$$\begin{aligned} \text{CIBLE 1} & \quad 2. \pm 0.1 \mu\text{g.cm}^{-2} \\ \text{CIBLE 2} & \quad 3.8 \pm 0.2 \mu\text{g.cm}^{-2} \end{aligned}$$

On observe cependant un décalage entre les distributions calculées par P. SIGMUND et les distributions expérimentales pour les grands angles de diffusion. En effet P. SIGMUND ne fait intervenir dans sa description de la diffusion multiple que les diffusions avec petits angles de déflexion. Mais comme les diffusions avec grand angle de déflexion sont beaucoup moins probables, elles n'interviennent pas dans la largeur des distributions.

3.4.2.1.6 - RESULTATS EXPERIMENTAUX

Nous noterons N_{2p}^n le nombre de photons mesuré avec un faisceau d'agrégats H_n^+ donné dans la cible simple et N_{2p}^1 le nombre de photons mesuré avec la cible double.

Les rapports N_{2p}^n / N_{2p}^1 mesurés pour différentes énergies avec des faisceaux d'ions H_2^+ et H_3^+ dans les cibles de 2.0 et 3.8 $\mu g.cm^{-2}$ respectivement, présentés sur les figures 3.25 et 3.26 sont en excellent accord avec les résultats expérimentaux obtenus par Y. BAUDINET et al. [29].

Dans la figure 3.27, nous avons tracé le nombre de photons N_{2p}^n obtenu avec la cible simple et N_{2p}^1 le nombre de photons obtenu avec la cible double, avec des faisceaux d'agrégats de 40 keV/p. L'obtention d'un même nombre de photons émis après émergence de la cible double quel que soit le faisceau d'agrégats H_n^+ incident valide la technique utilisée pour simuler le faisceau de proton. Cette technique introduit néanmoins une erreur systématique liée à la perte d'énergie des protons dans la deuxième cible. Cette correction de perte d'énergie, faible, n'a pas été introduite dans les résultats présentés.

Les rapports N_{2p}^n / N_{2p}^1 obtenus avec des faisceaux de 10, 20, 30, 40, 60 et 80 keV/p dans des cibles de 2 $\mu g.cm^{-2}$ et 3.8 $\mu g.cm^{-2}$ sont présentés dans les figures 3.28-3.31. Sur ces figures, nous avons porté aussi, ce même rapport mais obtenu avec l'écran E'.

Le rapport signal sur bruit est supérieur à 10^2 dans l'ensemble des mesures et les taux de comptage de photons par mesure sont de l'ordre de 10^3 . L'erreur statistique sur le comptage des photons n'est pas à l'origine des fluctuations des résultats expérimentaux.

Nous observons sur les figures (3.28-3.31) que le rapport N_{2p}^n / N_{2p}^1 augmente avec le nombre de protons dans l'agrégat. L'effet augmente avec la vitesse du projectile mais diminue avec l'épaisseur de cible.

Ces résultats sont à comparer à ceux obtenus pour les fractions d'atomes neutres à l'émergence d'une cible de carbone de même épaisseur mesurées par B. MAZUY [40] (figure 3.31). L'allure générale des courbes est très différente et pourrait conduire à rechercher une interprétation à partir de phénomènes autres que le phénomène d'échange de charge dans la cible.

En effet à l'extérieur de la cible, la présence de plusieurs atomes neutres à proximité pourrait intervenir sur l'émission (F.W. CUMMINGS [41], H. BLANCK [42], G. KURISKI [43]) modifiant le diagramme de rayonnement et le déclin de l'intensité en fonction de la distance après la cible. D'autre part la présence de plusieurs protons peut aussi intervenir en perturbant les états atomiques après la sortie de la feuille (G. KURIZKI [44], R.L. BROOKS [45], W.S. BICKEL [46], G. GABRIELSE [47]). Cependant ces effets sont faibles et les résultats que nous avons obtenu avec l'écran E', montrent que notre expérience ne permet pas de les mettre en évidence.

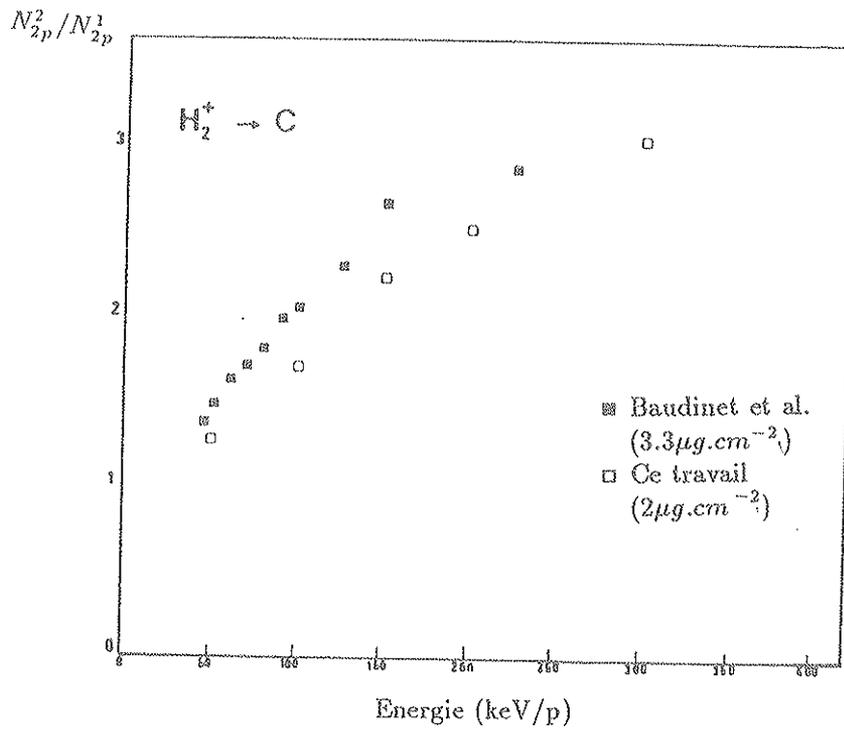


Figure 3.25 : Nombre de photons (1s-2p) obtenu avec des ions H_2^+ divisé par celui obtenu avec des ions H^+ pour différentes énergies incidentes.

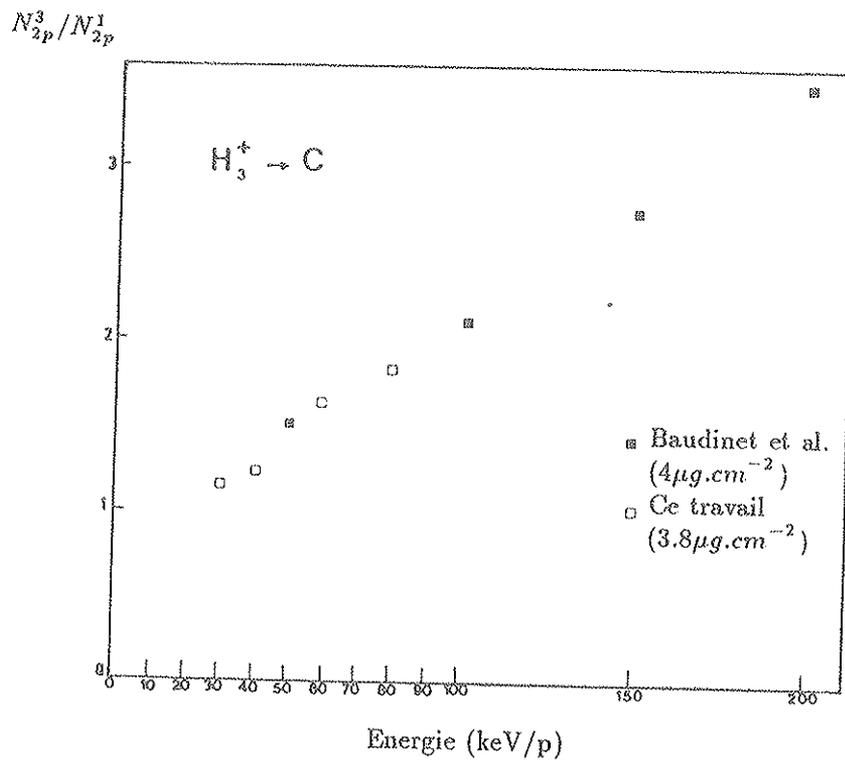


Figure 3.26 : Nombre de photons (1s-2p) obtenu avec des ions H_3^+ divisé par celui obtenu avec des ions H^+ pour différentes énergies incidentes.

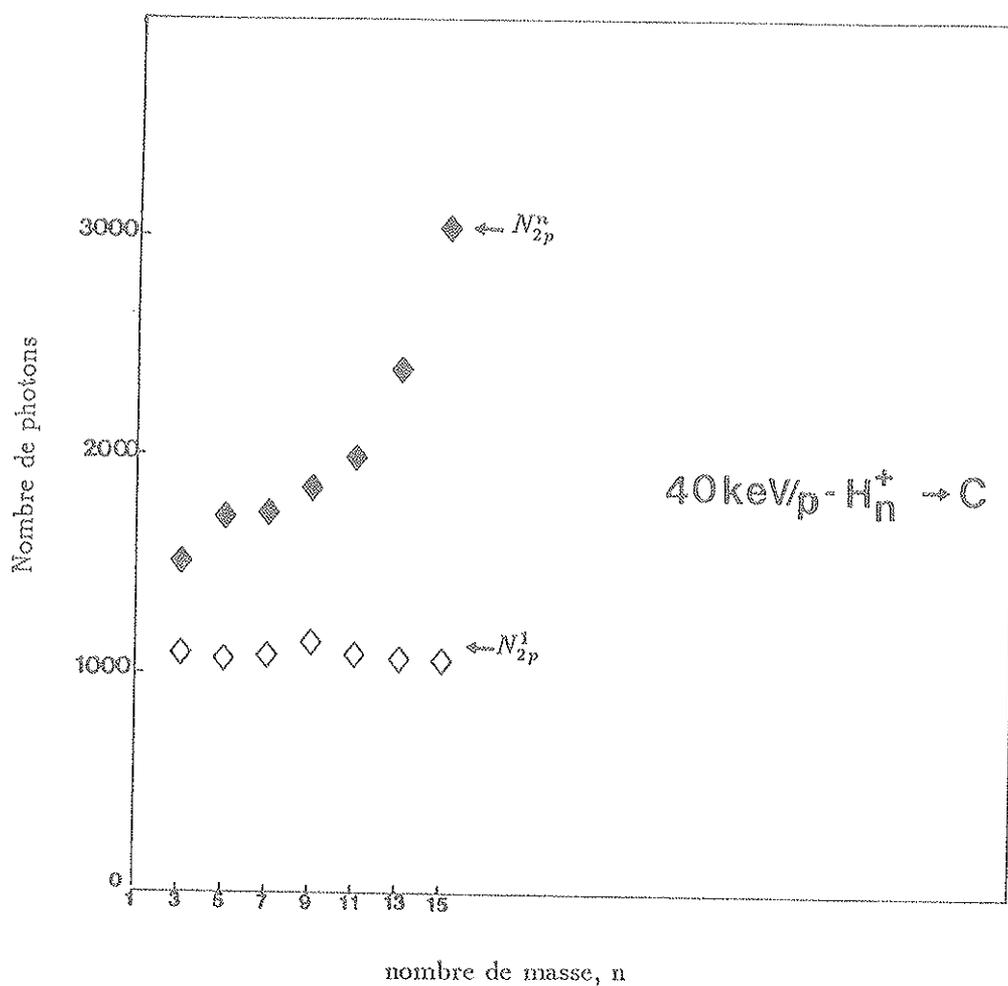


Figure 3.27 : Validité de la technique de la cible double. Comparaison du nombre de photons (1s-2p) mesuré avec la cible simple N_{2p}^n et du nombre de photons (1s-2p) mesuré avec la cible double N_{2p}^1 .

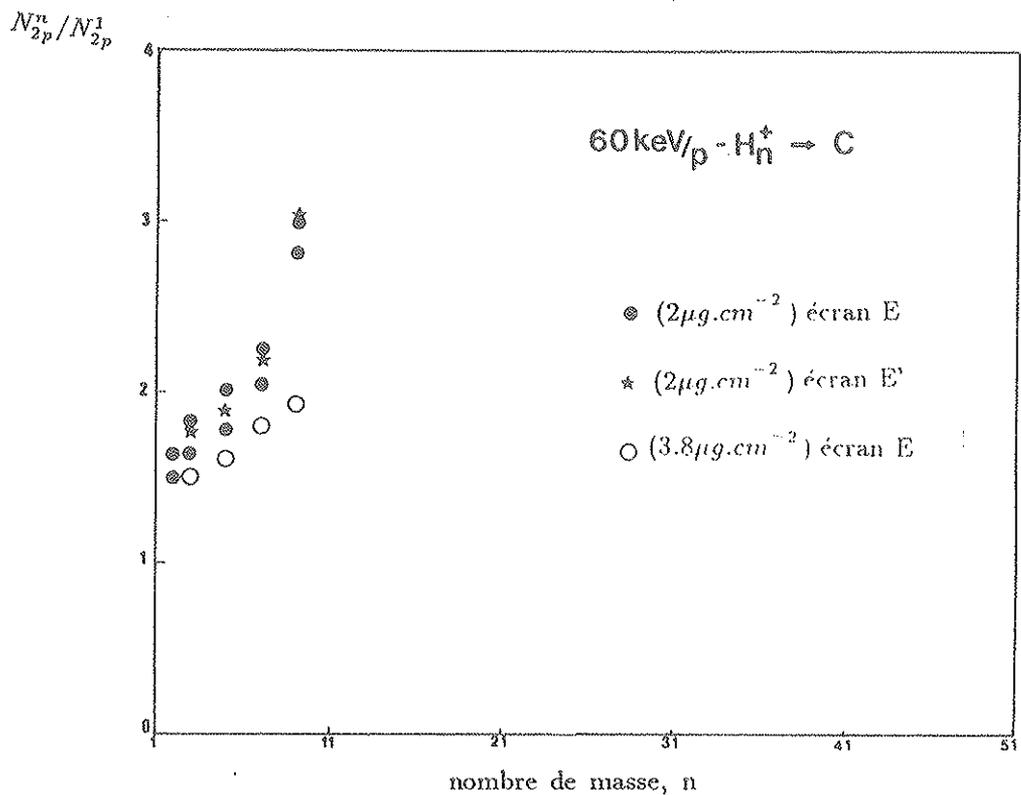
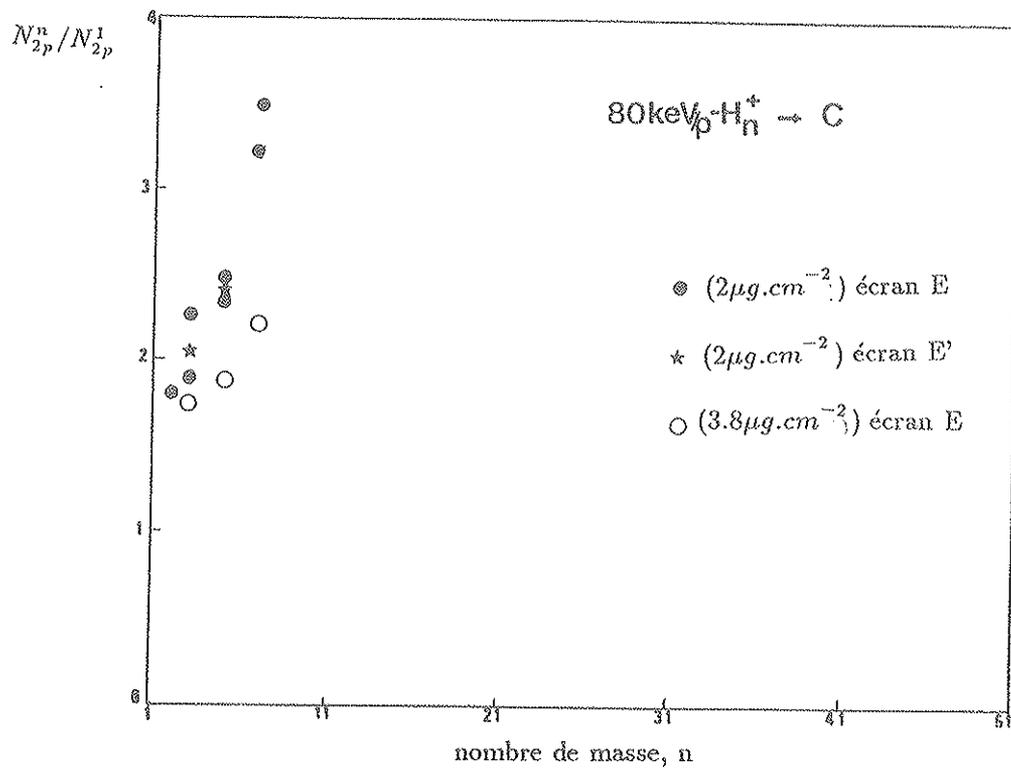


Figure 3.28 : Rapport du nombre de photons (1s-2p) mesuré avec la cible simple N_{2p}^n sur le nombre de photons (1s-2p) mesuré avec la cible double N_{2p}^1 , en fonction du nombre de protons dans l'agrégat incident, pour des cibles de carbone de $2 \mu\text{g.cm}^{-2}$ et $3.8 \mu\text{g.cm}^{-2}$, les écrans E et E' et pour des énergies incidentes de 60 keV/p et 80 keV/p.

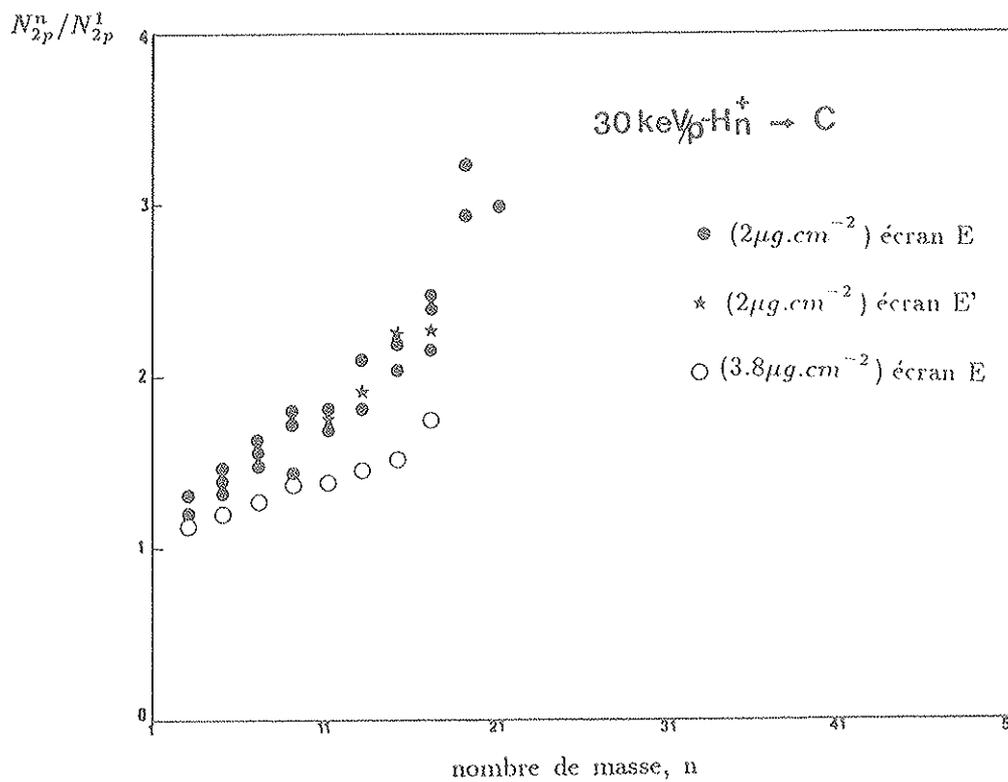
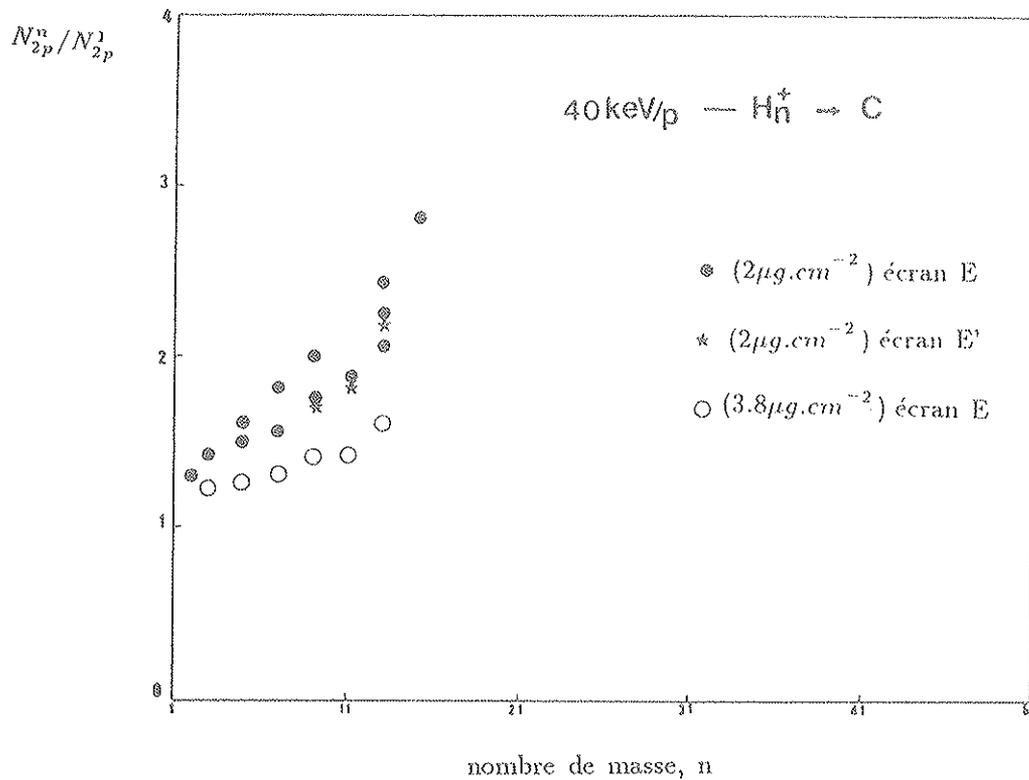


Figure 3.29 : Rapport du nombre de photons (1s-2p) mesuré avec la cible simple N_{2p}^n sur le nombre de photons (1s-2p) mesuré avec la cible double N_{2p}^1 , en fonction du nombre de protons dans l'agrégat incident, pour des cibles de carbone de $2 \mu\text{g.cm}^{-2}$ et $3.8 \mu\text{g.cm}^{-2}$, les écrans E et E' et pour des énergies incidentes de 30 keV/p et 40 keV/p.

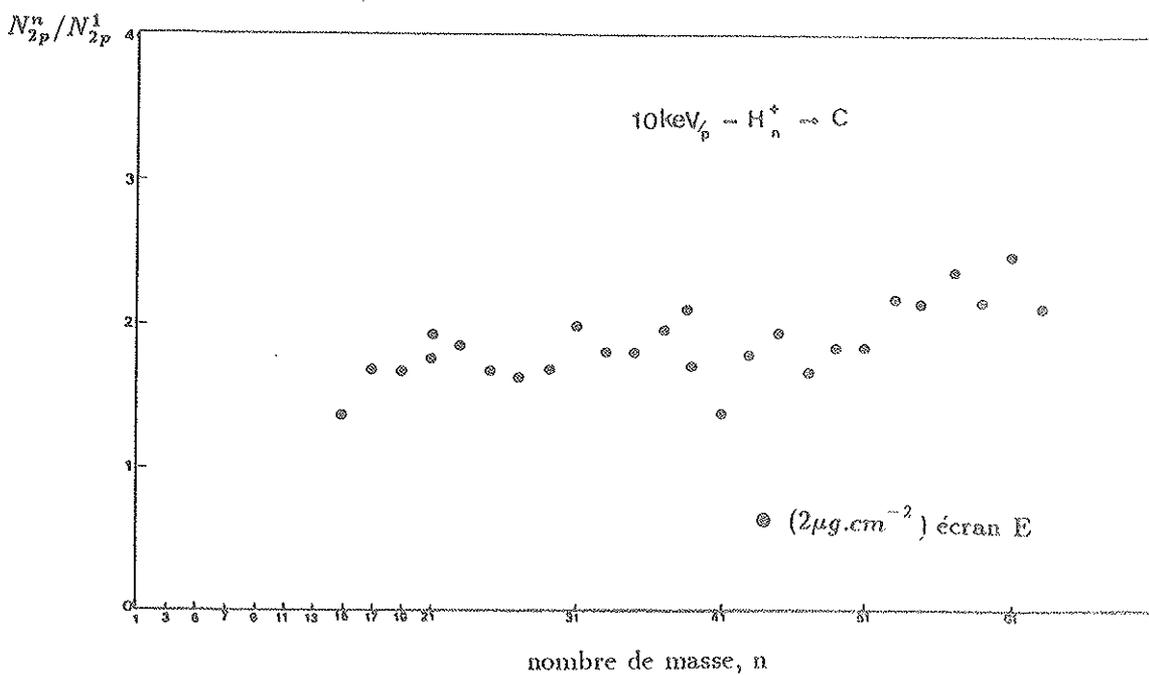
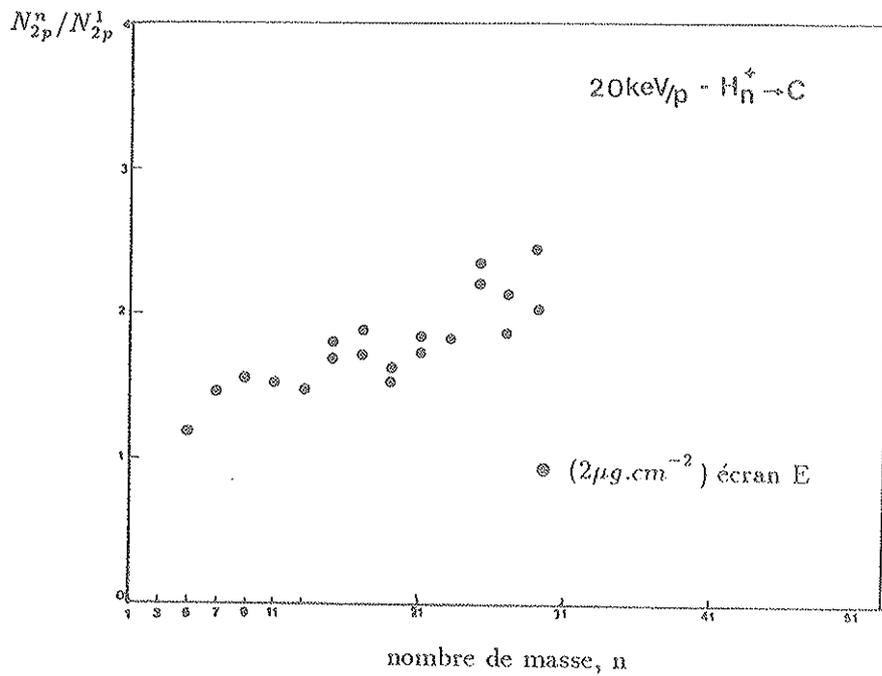


Figure 3.30 : Rapport du nombre de photons (1s-2p) mesuré avec la cible simple N_{2p}^n sur le nombre de photons (1s-2p) mesuré avec la cible double N_{2p}^1 en fonction du nombre de protons dans l'agrégat incident, pour une cible de carbone de $2\mu g.cm^{-2}$, l'écran E et pour des énergies incidentes de 10 keV/p et 20 keV/p.

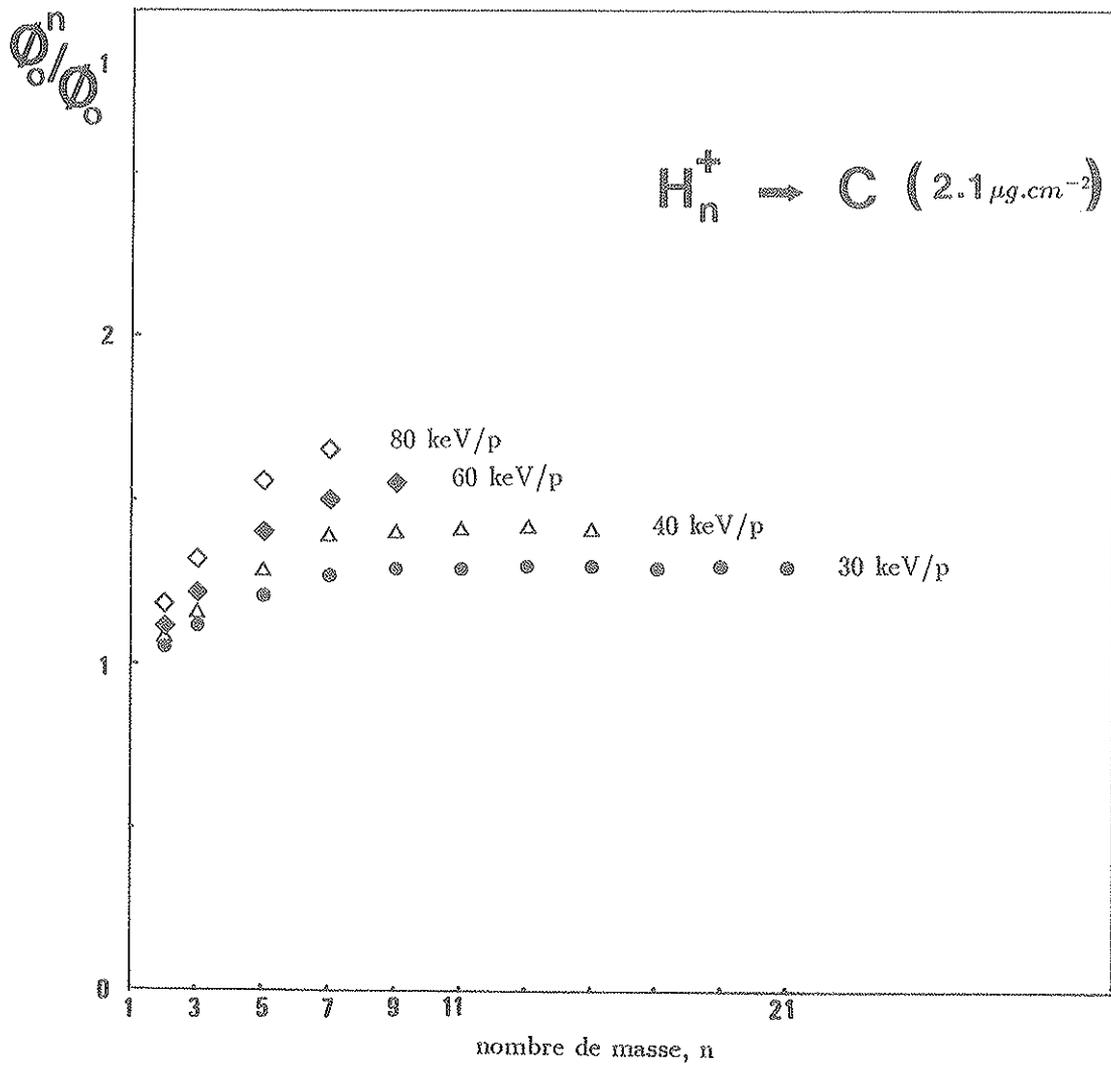


Figure 3.31 : Rapport des fractions d'atomes neutres émergeant d'une cible de carbone de $2.1 \mu g.cm^{-2}$ obtenues avec un faisceau d'agrégats avec celles obtenues avec un faisceau de protons de même vitesse en fonction du nombre de protons dans l'agrégat incident (pour différentes vitesses).

Pour interpréter ces résultats, nous allons généraliser la description utilisée précédemment pour le calcul du rapport de la fraction ϕ_{2p}^n d'atomes excités dans l'état 2p à l'émergence d'une cible solide pour un faisceau d'agrégats H_n^+ incident par rapport à la fraction ϕ_{2p}^1 obtenue avec un faisceau de proton de même vitesse.

Dans ce cadre:

$$\phi_{2p}^n = \frac{1}{1 + \frac{\sigma_{l\ solide}^{2p,n}}{\sigma_{c\ solide}^{2p,n}}}$$

où $\sigma_{l\ solide}^{2p,n}$ et $\sigma_{c\ solide}^{2p,n}$ sont les sections efficaces de perte et de capture pour l'état 2p d'un proton d'un agrégat H_n^+ incident, à l'intérieur du solide. Pour la section efficace de capture, nous écrivons comme précédemment:

$$\sigma_{c\ solide}^{2p,n} = \sigma_{c\ solide}^{2p} = \sigma_{c\ gaz}^{2p}$$

Dans le chapitre précédent nous avons obtenu le rapport des sections efficaces de capture et de perte à partir de la valeur expérimentale de la fraction d'atome neutre obtenue avec des faisceaux d'agrégats. Le rapport des sections efficaces de capture et de perte intervient de manière absolue dans les résultats expérimentaux.

Nous utiliserons, pour l'état 2p, le résultat obtenu par OPPENHEIMER :

$$\sigma_{c\ gaz}^{2p} = \sigma_{c\ gaz}^{1s} / 2^3$$

Pour la section efficace de perte d'un électron dans l'état 2p par un proton i situé à des distances $R_{i,j}$ des autres protons d'un agrégat H_n^+ , nous écrivons,

$$\sigma_{l\ solide}^{2p,i} = \frac{\sigma_{l\ gaz}^{1s}}{E_i^{2p}}$$

où $E_i^{2p} = I_i^{2p} / I_0^{2p}$.

I_i^{2p} est l'énergie d'ionisation de l'électron lié au proton i dans l'état 2p dans le solide.

$$I_i^{2p} = \sum \frac{\exp \frac{a}{R_{ij}}}{R_{ij}} (1 + bR_{ij}^2) + B_{MG}^{2p}$$

où B_{MG}^{2p} est l'énergie de l'état moléculaire généralisé correspondant à l'état atomique $n = 2$ quand les protons sont à grande distance les uns des autres.

Pour l'état fondamental, nous avons négligé l'effet liant ou antiliant sur l'état moléculaire généralisé dû à la présence d'un ou plusieurs protons à proximité.

En reprenant le diagramme représentant les courbes de potentiel de l'ion H_2^+ (figure 3.32), nous voyons qu'il ne peut en être de même pour l'état moléculaire généralisé correspondant à l'état excité $2p$. Les états moléculaires de l'ion H_2^+ correspondant à l'état $2p$ sont tous antiliants et l'effet antiliant, compte-tenu des distributions des distances entre les protons en sortie (chapitre 2), ne peut être négligé.

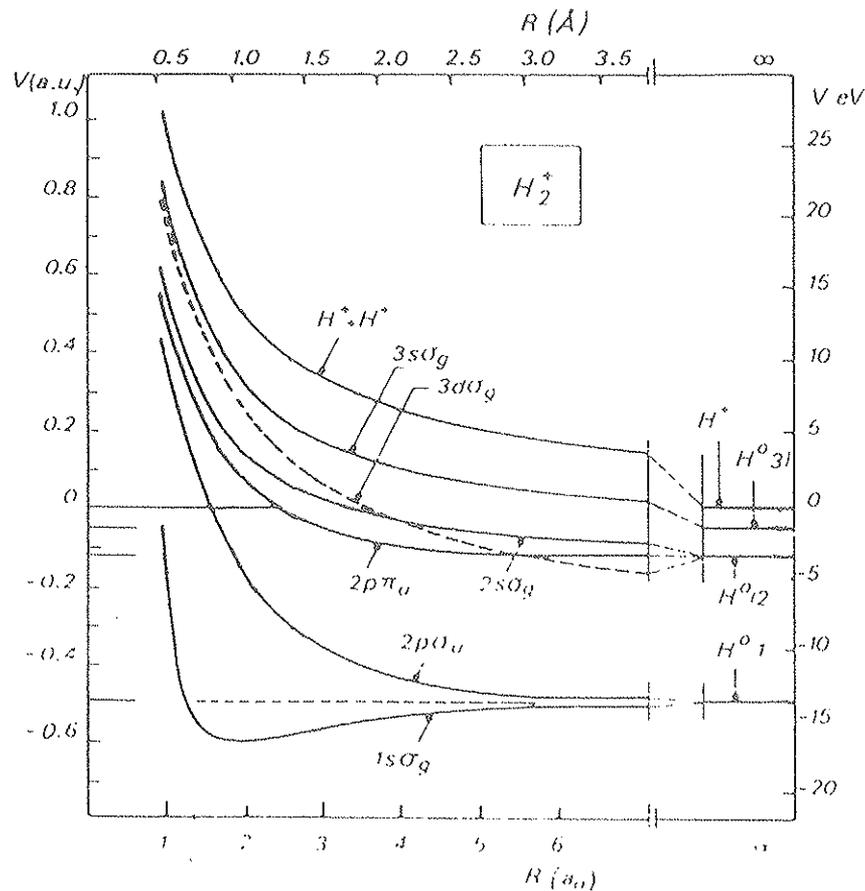


Figure 3.32 : Courbes de potentiel de l'ion moléculaire H_2^+ [33].

Il est difficile d'évaluer de manière quantitative cet effet antiliant. Pour en faire apparaître la conséquence sur la fraction émergente dans l'état excité $2p$, nous avons choisi la description simplificatrice suivante:

L'effet antiliant sur l'énergie de l'état moléculaire généralisé est supposé inversement proportionnel à la distance entre le proton i considéré et le proche voisin j .

Par ailleurs, cet effet n'apparaît que pour des distances inférieures à une distance de coupure $R_{coup.}$.

Nous écrirons alors l'effet antiliant sous la forme:

$$E_{AL}^i = - K.(R_{i,j} - R_{coup.})$$

L'effet d'un autre voisin est décrit de manière identique et nous sommerons les contributions:

$$E_{AL}^i = - \sum_j K.(R_{i,j} - R_{coup.})$$

Pour l'énergie de l'état moléculaire généralisé, nous avons alors pour le proton i :

$$B_{MG}^{2p} = E^{2p} + E_{AL}^i.$$

Avec ces hypothèses simplificatrices, nous avons calculé le rapport $\phi_{2p}^n / \phi_{2p}^i$, en utilisant la méthode employée pour obtenir la fraction d'atome neutre.

Les résultats pour $K = 0.055$ au et $R_{coup.} = 8 \text{ \AA}$ sont présentés dans les figures 3.33 et 3.34 en comparaison avec les résultats expérimentaux.

Le bon accord avec les mesures, malgré le caractère sommaire de la description, montre que le phénomène d'échange de charge est à la base des effets observés. La différence de comportement de la fraction d'atome neutre et de la fraction d'atome excité correspond à l'effet antiliant sur l'état excité créé par la présence de protons à proximité de l'atome d'hydrogène dans le solide.

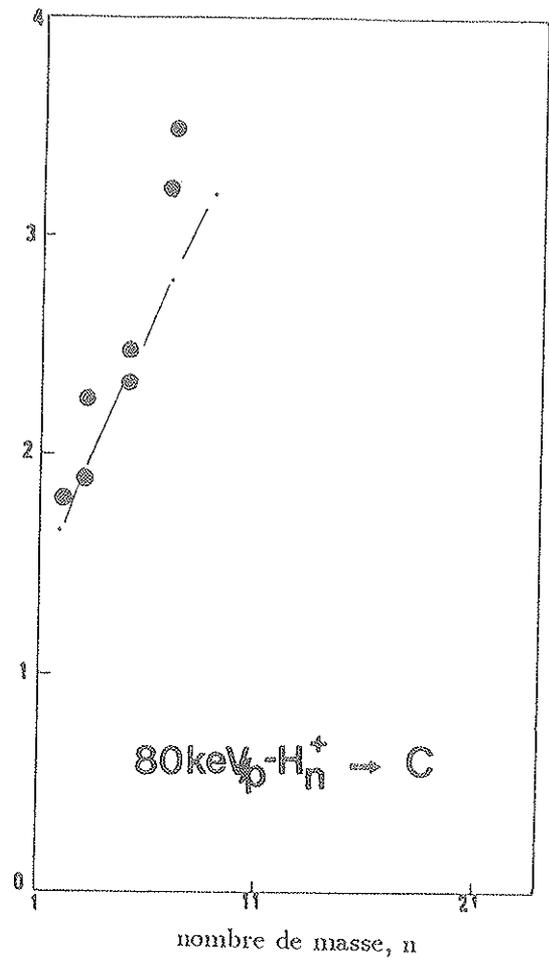
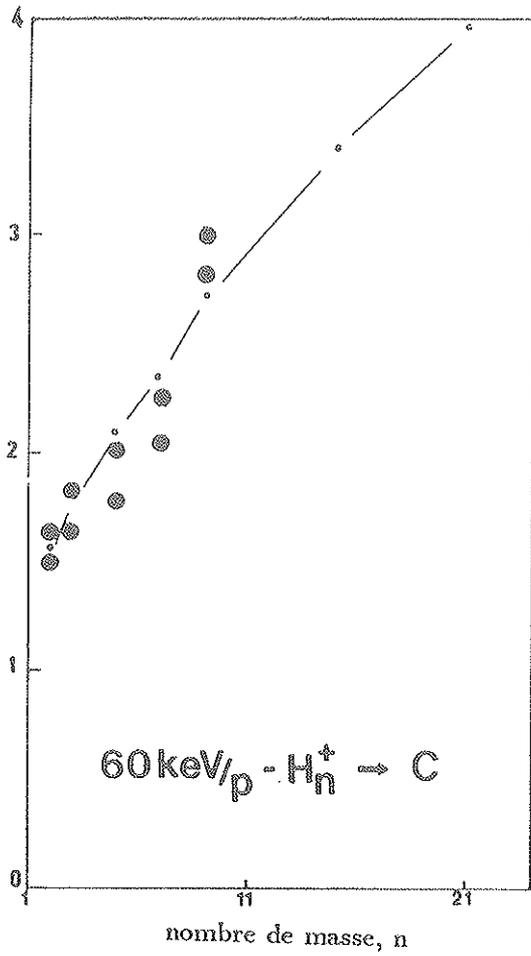


Figure 3.33 : Comparaison du rapport des fractions d'atomes excités ϕ_{2p}^n/ϕ_{2p}^1 calculées avec le rapport des nombres de photons N_{2p}^n/N_{2p}^1 mesurés pour 60 keV/p et 80 keV/p (cible de $2\mu g.cm^{-2}$).

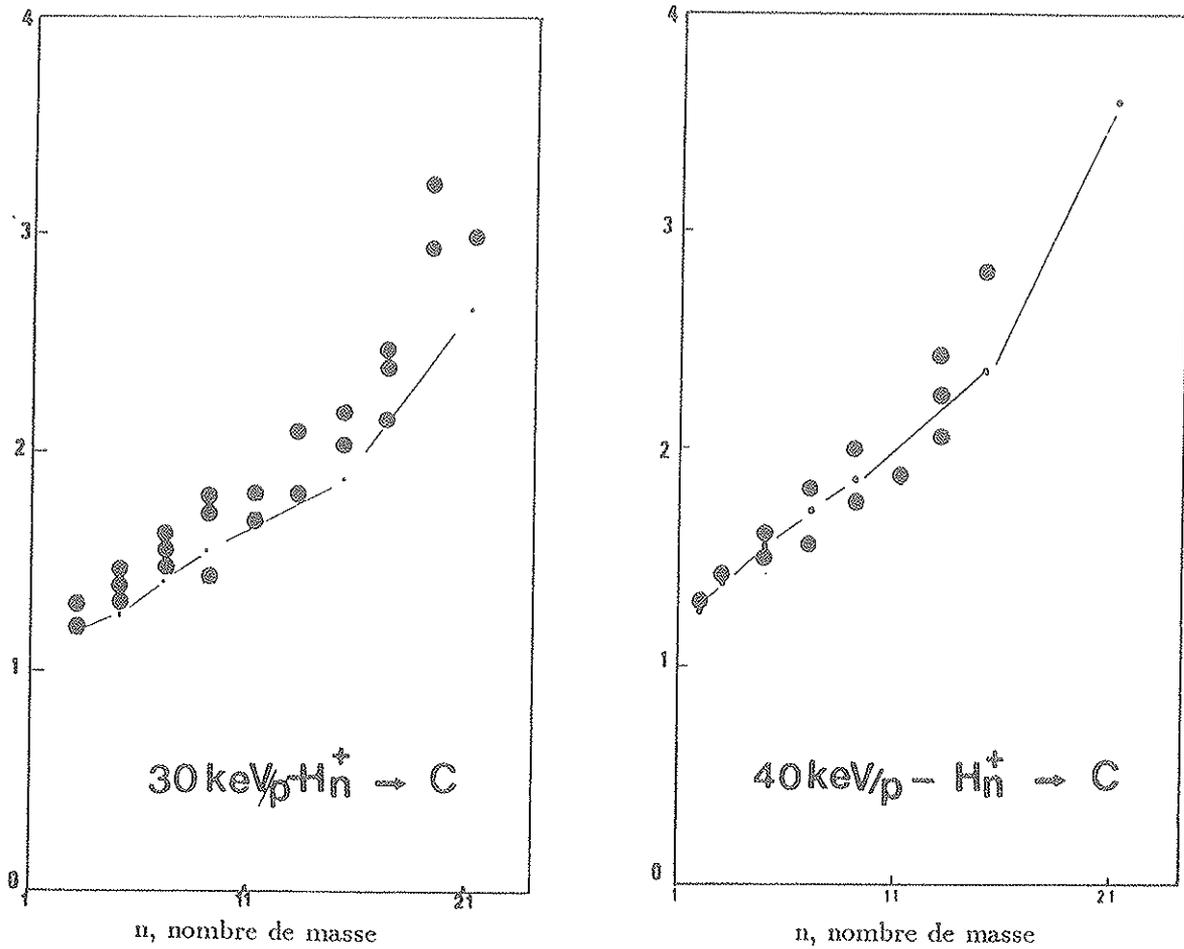


Figure 3.34 : Comparaison du rapport des fractions d'atomes excités ϕ_{2p}^n/ϕ_{2p}^1 calculées avec le rapport des nombres de photons N_{2p}^n/N_{2p}^1 mesurés pour 30 keV/p et 40 keV/p (cible de $2\mu\text{g.cm}^{-2}$).

CONCLUSION

L'étude théorique des structures des agrégats d'hydrogène effectuée par calculs "ab initio", la fonction d'onde de l'état moléculaire étant décomposée sur un ensemble de fonctions de base contenant trois fonctions de type s et un groupe de fonction de polarisation par proton de l'agrégat, a apporté des informations nouvelles.

Ainsi le calcul HARTREE-FOCK avec interaction de configuration limité aux doubles substitutions effectué pour les agrégats H_7^+ et H_9^+ nous a permis d'améliorer la précision du calcul de leur structure.

Nous avons aussi optimisé par un calcul HARTREE-FOCK de l'énergie, les structures des agrégats H_{11}^+ H_{13}^+ H_{15}^+ H_{17}^+ H_{19}^+ H_{21}^+ , construites avec une nucléation d' H_2 autour d'un H_3^+ .

L'étude de l'agrégat H_{11}^+ a montré que la structure constituée d'un H_9^+ et d'un H_2 placé dans un plan parallèle au plan contenant l' H_3 est plus stable qu'une structure où les quatre H_2 auraient une situation plus symétrique. En conséquence nous avons obtenus dans H_{11}^+ et H_{13}^+ , deux valeurs de distances des H_2 au centre de l'agrégat.

La présence de six H_2 autour du H_3^+ dans H_{15}^+ conduit à une structure plus symétrique. Les distances des H_2 au centre obtenues sont intermédiaires à celles obtenues dans H_{13}^+ , mais les H_2 sont moins liés dans H_{15}^+ que dans H_{13}^+ .

Les structures des agrégats H_{17}^+ et H_{19}^+ optimisées ont été construites par analogie avec celles d' H_{11}^+ et H_{13}^+ à partir de la structure d' H_{15}^+ . La structure de l'agrégat H_{21}^+ optimisée a été construite avec un cœur H_9^+ .

La comparaison des distances entre les protons du H_3^+ central montre que cette dis-

tance est systématiquement plus faible dans H_{15}^+ , H_{17}^+ et H_{19}^+ , que celle obtenue dans les structures d' H_{11}^+ , H_{13}^+ et d' H_{21}^+ qui contiennent un cœur H_9^+ .

La comparaison de la différence entre l'énergie obtenue et l'énergie du système constitué d'un H_3^+ et de $(n-3)/2$ H_2 infiniment éloignés les uns des autres montre la nécessité d'améliorer la prise en compte des corrélations plan à plan dans la description des structures des plus gros agrégats.

Nous n'avons pas abordé le calcul des fréquences des modes propres de vibration des agrégats étudiés; ce travail a été réalisé pour nous permettre d'interpréter les résultats expérimentaux obtenus par interaction des agrégats d'hydrogène avec des cibles de carbone. L'étude des fréquences de vibrations que nous réaliserons ultérieurement, reliée à l'étude des fréquences d'absorption constitue cependant un test important des structures calculées.

Le programme que nous avons réalisé simulant le faisceau d'agrégat et son interaction avec une cible solide, nous a permis de relier de manière quantitative les structures des agrégats incidents aux distributions angulaires des fragments à l'émergence de la cible.

Pour les vitesses des agrégats disponibles actuellement à l'accélérateur d'agrégats de LYON, la diffusion des protons de l'agrégat sur les atomes de la cible domine sur leur répulsion mutuelle et une grande part de l'information sur la structure initiale est perdue.

Cependant, nous avons montré que les largeurs des distributions angulaires des fragments neutres mesurées par B. MAZUY pour les agrégats H_5^+ , H_7^+ , ..., H_{21}^+ incidents sont en très bon accord pour l'ensemble des vitesses étudiés, avec celles obtenues à partir des structures des agrégats calculées précédemment. L'accord avec les résultats expérimentaux est obtenu sans faire intervenir d'effets liés à la vibration des protons. Ce n'est pas le cas des distributions mesurées avec H_2^+ et H_3^+ obtenues sans que la source n'ait été refroidie avec de l'hélium liquide (ce refroidissement n'est nécessaire que pour la formation des agrégats H_n^+ , $n \geq 5$). Pour interpréter ces distributions, nous avons introduit une distribution des distances interprotoniques à l'entrée de la cible centrée sur une valeur moyenne supérieure aux distances calculées. Cette analyse montre donc que les agrégats formés dans la source cryogénique de l'accélérateur d'agrégats de LYON sont dans des états vibrationnels proches de l'état fondamental. La source de l'accélérateur d'agrégats de LYON est donc particulièrement bien adaptée à l'étude de leur structure.

L'installation d'un nouveau système de post-accélération permettant d'obtenir des faisceaux d'agrégats jusqu'à 5 MeV est à l'étude à l'Institut de Physique Nucléaire de LYON. Nous disposerons alors d'agrégats de vitesse suffisante pour que l'effet de la diffusion multiple sur les atomes cibles soit négligeable par rapport à la répulsion des protons dans la cible comme c'est le cas pour l'ion H_2^+ dans l'exemple présenté dans la figure C.1 ci-dessous.

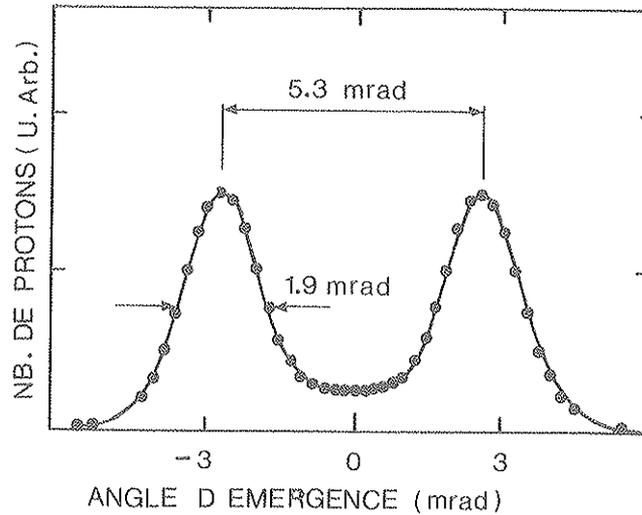


Figure C1 : Distribution angulaire des protons à l'émergence mesurée par D. GEMMEL avec des faisceaux d'ions H_2^+ d'énergie 1.4 MeV/p dans une cible de $1.6\mu g.cm^{-2}$.

La mesure des distributions des vitesses des protons à l'émergence d'une cible solide, reliées de manière quantitative à la structure des agrégats incidents par notre programme de simulation, permettra de progresser de manière importante dans la connaissance des structures des agrégats d'hydrogène.

L'étude expérimentale du nombre de photons émis par les atomes d'hydrogène émergeant d'une cible solide dans l'état excité $2p$, pour des agrégats incidents H_n^+ , $n = 2, 3, 5, \dots, 61$, de vitesse 10 keV/p, 20 keV/p, 30 keV/p, 40 keV/p, 60 keV/p, 80 keV/p, que nous avons réalisé, a mis en évidence une augmentation du nombre de photons émis avec le nombre de protons dans l'agrégat. Avec une cible plus épaisse, l'effet collectif observé est plus faible. Cependant la variation de cet effet collectif est différente de celle de l'effet collectif observé sur la fraction d'atomes neutres par B. MAZUY et al..

Pour interpréter les effets collectifs observés nous avons d'abord repris les résultats expérimentaux obtenus avec des protons.

Le caractère analogue des résultats expérimentaux sur les échanges de charge de protons de vitesse supérieure à $2v_0$ dans des cibles solides et dans des cibles gazeuses montre

que pour ces vitesses, un état atomique lié de l'hydrogène existe dans le solide. La fraction d'atomes neutres est alors interprétée en terme de section efficace de capture et de perte d'un électron lié. A basse vitesse ($v \leq 2v_0$), le rapport de la section efficace de capture sur la section efficace de perte obtenu à partir de la fraction d'atomes neutres mesurée à l'équilibre de charge diffère du rapport des sections efficaces mesurées avec des cibles gazeuses. D'autre part, la variation avec la vitesse de la fraction d'atomes neutres excités dans l'état 2p identique à celle de la fraction d'atomes neutres à haute vitesse, est différente à basse vitesse.

Ces résultats ont été interprétés en tenant compte de la présence du gaz d'électrons délocalisés dans le solide, qui pour des protons de basse vitesse peuvent en écrantant le proton pendant un temps suffisamment long, provoquer la perte d'un électron lié. Cet effet a été pris en compte en décrivant le proton dans le solide par un potentiel moyen dans lequel l'électron est plus ou moins lié suivant la vitesse du projectile, et en introduisant une dépendance de la sections efficace de perte d'un électron lié avec l'énergie de liaison de cet électron.

Nous avons étendu cette description à l'interprétation des effets collectifs sur les échanges de charge. La présence de plusieurs protons autour d'un atome d'hydrogène rend l'électron plus lié. La section efficace de perte dépend alors des distances entre les protons de l'agrégat à l'intérieur de la cible. Notre programme de simulation nous a permis d'introduire de manière quantitative cet effet sur la section efficace de perte et les fractions d'atomes neutres calculées sont en excellent accord avec les résultats expérimentaux pour l'ensemble des agrégats aux différentes énergies et pour les deux épaisseurs de cibles étudiées.

Nous avons interprété la différence de comportement de la fraction d'atomes excités dans l'état 2p avec le nombre de protons dans l'agrégat par rapport à celui de la fraction totale d'atomes neutres en considérant, par analogie avec l'ion moléculaire H_2^+ , l'effet antiliant sur l'état excité provoqué par la proximité de protons voisins.

L'ensemble de ces résultats montre l'importance de notre programme de simulation qui s'est avéré un outil indispensable dans l'analyse des résultats expérimentaux. Nous nous sommes intéressés dans cette étude aux effets collectifs sur la fraction totale d'atomes neutres et sur la fraction d'atomes excités à l'émergence de cibles solides. Dans la même optique, des effets collectifs sur la recombinaison moléculaire, la production d'ions H^- et sur l'ensemble des phénomènes observés lors de l'interaction de protons avec une cible solide (perte d'énergie, électrons convoyés, etc.) peuvent être étudiés. Leur analyse avec notre programme permettra de mettre en évidence les phénomènes dominants à l'origine des effets observés.

ANNEXE 1

DZP 4 31G* réf [4] (utilisé dans ce travail)

Exposant	Coefficients <i>fonction de type s</i>	Coefficients <i>fonction de type p</i>
13.0077	0.0334946	0.
1.96208	0.234727	0.
0.444529	0.813757	0.
0.121949	1.	0.
1.1	0.	1.

DZP (4s1p/2s1p) réf [48] (utilisé par Yamaguchi et al. [5])

Exposant	Coefficients <i>fonction de type s</i>	Coefficients <i>fonction de type p</i>
13.3615	0.032828	0.
2.0133	0.231208	0.
0.4538	0.817238	0.
0.1233	1.	0.
1.	0.	1.

TZP 6 311G* réf [4] (utilisé dans ce travail)

Exposant	Coefficients <i>fonction de type s</i>	Coefficients <i>fonction de type p</i>
33.8650	0.0254938	0.
5.09479	0.190373	0.
11.5879	0.852161	0.
0.325840	1.	0.
0.102741	1.	0.
0.750	0.	1.

QZP (6s3p/4s2p) (utilisé par Yamaguchi et al.[5])

Exposant	Coefficients <i>fonction de type s</i>	Coefficients <i>fonction de type p</i>
non publié		
0.85	0.	1.
0.15	0.	1.

SZP (8s3p/6s3p) réf [49] (utilisé par Yamaguchi et al.[5])

Exposant	Coefficients <i>fonction de type s</i>	Coefficients <i>fonction de type p</i>
293.5708	0.0211365	0.
43.93024	0.1659989	0.
9.891184	0.8732985	0.
2.7651790	1.	0.
0.886632	1.	0.
0.3152780	1.	0.
0.1236550	1.	0.
0.0525423	1.	0.
1.8	0.	1.
0.6	0.	1.
0.2	0.	1.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] - C.C.J ROOTHAAN, Rev. Mod Phys., **32**, 179 (1960).
- [2] - G.C. HALL, Proc. Roy. Soc. (London), **A205**, 541 (1951).
- [3] - S.R. LANGHOFF et E.R. DAVIDSON, Int. Quantum Chem., **8**, 61 (1974).
- [4] - a W.J. HEHRE, L.RADOM, P.R. SCHLEYER, J.A. POPLE, AB INITIO MOLECULAR ORBITAL THEORY, John Wiley & Sons (1986).
- b QUANTUM CHEMISTRY PROGRAM EXCHANGE QCPE PROGRAM No 525, INDIANA UNIVERSITY DEPARTEMENT OF CHEMISTRY.
- [5] - Y. YAMAGUCHI, J.F. GAW, R.B. REGMINGTON et H.F. SCHAEFER III, J. Chem. phys., **86**, 9 (1987).
- [6] - K. HIRAO et S. YAMABE, Chem. Phys., **80**, 237 (1983).
- [7] - M. OKUMURA, L.I. YEH et Y.T. LEE, J. Chem. Phys., **88**, 1 (1988).
- [8] - B.T. MEGGIT, K.G. HARRISON et M.W. LUCAS, J. Phys. B, **6**, L-362 (1973).
- [9] - M.J. GAILLARD, J.C. POIZAT, A. RATKOWSKI, J. REMILLIEUX et M.AUZAS,

- Phys. Rev. A, **16**, 2323 (1977).
- [10] - W.H. ESCOVITZ, T.R. FOX et R. LEVI-SETTI, Trans. Nucl. Sci., **26**, 1149 (1979).
- [11] - M.J. GAILLARD, J.C. POIZAT, A. RATKOWSKI, J. REMILLIEUX, Nucl. Instr. Meth. , **132**, 69 (1976).
- [12] - D. MAOR, P.J. COONEY, A. FAIBIS, E.P. KANTER, W. KOENIG et B.J. ZABRANSKY, Phys. Rev. A, **32**, 105 (1985).
- [13] - N.V. de CASTRO FARIA, F.L. FREIRE, E.C. MONTENEGRO et A.G. de PINHO, J. Phys. B, **17**, 321 (1986).
- [14] - N.V. de CASTRO FARIA, F.L. FREIRE, E.C. MONTENEGRO et A.G. de PINHO, J. Phys. B, **19**, 1781 (1986).
- [15] - B. MAZUY, A.BELKACEM, M.CHEVALLIER, M.J. GAILLARD, J.C. POIZAT, et J. REMILLIEUX, Nucl. Instr. Meth. B, **28**, 497 (1987).
- B. MAZUY, A.BELKACEM, M.CHEVALLIER, M.J. GAILLARD, J.C. POIZAT, et J. REMILLIEUX, Nucl. Instr. Meth. B, **38**, 345 (1988).
- [16] - D.S. GEMMELL, Chem. Rev., **80**, 301 (1980).
- [17] - N.V. de CASTRO FARIA et R.J.A. LEVESQUE, Nucl. Instr. Meth., **40**, 541 (1967).
- [18] - P.SIGMUND et K.B. WINTERBON, Nucl. Instr. Meth., **119**, 541 (1974).
- [19] - E.P. KANTER, P.J. COONEY, D. GEMMELL, K.O. GROENEVELD, W.J. PIETSCH, A.J. RATKOWSKY, Z. VAGER et B.J. ZABRANSKY, Phys. Rev. A, **20**, 834 (1979).
- [20] - R. SCHECTMAN et W.D. RUDEN, Nucl. Instr. Meth., **194**, 295 (1982).
- [21] - Y.M. FOGEL, Krupnik. Safronov. Skur. Ehsptl. Teort. fiz, **28**, 589 (1955).
- [22] - L.H. TOBUREN, M.Y. NAKAI et R.A. LANGLEY, Phys. Rev., **171**, 114 (1968)
- [23] - A. CLOUVAS, Thèse d'état, Lyon (1985).

- [24] - M.C. CROSS, Phys. Rev. B, **15**, 602 (1977).
- [25] - A. de CHATEAU-THIERRY et A.GLADIEUX, Nucl. Instr. Meth., **132**, 553 (1976).
- [26] - J.A. PHILLIPS, Phys. Rev., **97**, 404 (1955).
- [27] - V.S. NIKOLAEV, Sov. Phys. Jept., **24**, 847 (1967).
- [28] - B. MAZUY, A.BELKACEM, M.CHEVALLIER, M.J. GAILLARD, J.C. POI-ZAT, J. REMILLIEUX, et J.DESEQUELLES, Nucl. Instr. Meth. B, **31**, 382 (1988).
- [29] - Y. BAUDINET-ROBINET et P.D. DUMONT, Phys. Rev. A, **29**, 1825 (1982).
- [30] - F.J. ROGERS, H.C. CRABOSKE, J.R. et D.J. HARWOOD, Phys. Rev. A, **1**, 1577 (1970).
- [31] - J.A. GOLOVCHENKO, D.E. COX et A.N. GOLAND, Phys. Rev. B, **26**, 2335 (1982).
- [32] - J.R. OPPENHEIMER, Phys. Rev., **31**, 349 (1928).
- [33] - R.E. YAGER et N.F. LANE, J. Phys. B, **2**, 1060 (1969).
- [34] - J. REMILLIEUX, in Radiation Research (Academic, New-York, 1975) p302.
- [35] - R.L. BROOKS et H.G. BERRY, Phys. Rev. A, **25**, 161 (1982).
- [36] - G. ASTNER, S. MANNERVIK et E. VEJE, Phys. Rev. A, **25**, 828 (1976).
- [37] - H. KOBAYASHI et N. ODA, J. Phys. Soc. Jpn., **51**, 2715 (1982).
- [38] - H.O. MOSER, J. MARTIN et R. SALIN, J. Phys., **38**, 215 (1977).
- [39] - Y. CHANUT, J. MARTIN et H.O. MOSER, J. Phys., **38**, 215 (1977).
- [40] - B. FARIZON-MAZUY, Thèse de Doctorat, Lyon (1987).
- [41] - F.W. CUMMINGS, Phys. Rev. A, **33**, 3 (1986).

- [42] - H. BLANK, M. BLANK, K. BLUM et A. FADANI, Phys. Rev. A, **42**, 320 (1981).
- [43] - G. KURIZKI et A. BEN-REUVEN, Phys. Rev. A, **32**, 2560 (1985).
- [44] - G. KURIZKI et A. BEN-REUVEN, Nucl. Instr. Meth. B, **13**, 184 (1986).
- [45] - R.L. BROOKS et H.G. BERRY, Phys. Rev. A, **25**, 161 (1982).
- [46] - W.S. BICKEL, Phys. Rev. A, **5**, 1801 (1975).
- [47] - G. GABRIELSE, Phys. Rev. A, **23**, 775 (1981).
- [48] - H. DUNNING, J. Chem. Phys., **53**, 2823 (1970).
- [49] - C.E. DYKSTRA, A.S. GGAYLORD, W.DD. GWINN, W.C. SWOPE et H.F SCHA-
EFER III, J. Chem. Phys., **68**, 3951 (1978).

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION

CHAPITRE 1: ETUDE THEORIQUE DES STRUCTURES DES AGRE-
GATS D'HYDROGENE H_n^+ ($n = 3,5,7,9,11,13,15,17,19,21$)

1.1 - METHODE D'APPROXIMATION DE LA CHIMIE QUANTIQUE

1.1.1 - DESCRIPTION D'UNE MOLECULE

1.1.2 - L'APPROXIMATION ADIABATIQUE

1.1.3 - LE CALCUL HARTREE-FOCK

1.1.3.1 - Modélisation de l'état moléculaire

1.1.3.2 - Le calcul Hartree-Fock (H.F.)

1.1.4 - INTERACTION DE CONFIGURATION (I.C.)

1.2 - OPTIMISATION DES STRUCTURES D'AGREGATS D'HYDROGENE

H_n^+ ($n = 3,5,7,9,11,13,15,17,19,21$)

1.2.1 - PRINCIPE DU CALCUL

1.2.2 - COMPARAISON DES RESULTATS OBTENUS POUR H_3^+ ET H_5^+

1.2.3 - ETUDE DES STRUCTURES DES AGREGATS D'HYDROGENE
 H_n^+ ($n = 7,9,11,13,15,17,19,21$)

**CHAPITRE 2: ANALYSE QUANTITATIVE DE LA DISSOCIATION
D'AGREGATS D'HYDROGENE DANS UNE CIBLE SOLIDE**

2.1 - INTRODUCTION

2.2 - DESCRIPTION DU FAISCEAU INCIDENT

**2.3 - DESCRIPTION DE LA REPULSION ECRANTEE DES PROTONS
DANS LA CIBLE**

2.4 - DIFFUSION MULTIPLE

2.4.1 - MODELISATION

*2.4.2 - COMPARAISON AVEC LES DISTRIBUTIONS ANGULAIRES DES
FRAGMENTS NEUTRES EMERGEANT D'UNE CIBLE SOLIDE*

2.5 - INFLUENCE DE L'ETAT VIBRATIONNEL DES PROJECTILES SUR LES LARGEURS DES DISTRIBUTIONS ANGULAIRES D'ATOMES NEUTRES A L'EMERGENCE D'UNE CIBLE SOLIDE

2.6 - DISTRIBUTIONS DES DISTANCES ENTRE LES PROTONS D'UN AGREGAT A LA SORTIE D'UNE CIBLE SOLIDE

CHAPITRE 3: ECHANGE DE CHARGE ET EXCITATION DANS DES CIBLES SOLIDES DE PROTONS, D'IONS H_2^+ ET D'AGREGATS D'HYDROGENE H_n^+

3.1 - LE PHENOMENE D'ECHANGE DE CHARGE

3.2 - ECHANGE DE CHARGE DANS UN MILIEU DE FAIBLE DENSITE

3.2 - ECHANGE DE CHARGE DE PROTONS DANS UNE CIBLE SOLIDE

3.3.1 - *SECTIONS EFFICACES D'ECHANGE DE CHARGE DANS UNE CIBLE SOLIDE*

3.3.2 - *ECARTS SOLIDE-GAZ A BASSE VITESSE ($v \leq 2v_0$)*

3.3.3 - *SECTIONS EFFICACES DE PERTE DANS LE SOLIDE A BASSE VITESSE*

3.3.4 - *INTERPRETATION DE LA VARIATION AVEC LA VITESSE DE LA FRACTION D'HYDROGENE EXCITE DANS L'ETAT 2P*

3.4 - EFFETS COLLECTIFS SUR LES ECHANGES DE CHARGE DE PROTONS DANS UNE CIBLE SOLIDE

3.4.1 - EFFETS COLLECTIFS SUR LA FRACTION D'HYDROGENE A L'EMERGENCE D'UNE CIBLE SOLIDE

3.4.1.1 - Résultats expérimentaux antérieurs

3.4.1.2 - Interprétation des effets collectifs sur la fraction d'atomes neutres

3.4.2 - ETUDE DE LA FRACTION D'ATOMES EXCITES DANS L'ETAT 2P A L'EMERGENCE D'UNE CIBLE SOLIDE POUR UN FAISCEAU D'AGREGATS H_n^+

3.4.2.1 - Mesures et résultats expérimentaux

3.4.2.1.1 - *Le faisceau d'agrégats d'hydrogène*

3.4.2.1.2 - *Détection des photons*

3.4.2.1.3 - *Principe de la mesure*

3.4.2.1.4 - *Normalisation des mesures*

3.4.2.1.5 - *Mesures des épaisseurs de cible*

3.4.2.1.6 - *Résultats expérimentaux*

CONCLUSION

ANNEXE 1

BIBLIOGRAPHIE

TABLE DES MATIERES

