Détermination expérimentale de la distribution des vitesses d'un jet moléculaire rétrodiffusé par une surface

Y. Lejay, J. Lapujoulade, G. Armand

► To cite this version:

Y. Lejay, J. Lapujoulade, G. Armand. Détermination expérimentale de la distribution des vitesses d'un jet moléculaire rétrodiffusé par une surface. *Revue de Physique Appliquée*, 1973, 8 (2), pp.207-217. 10.1051/rphysap:0197300802020700 . jpa-00243676

HAL Id: jpa-00243676

<https://hal.science/jpa-00243676>

Submitted on 1 Jan 1973

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.

Classification
Physics Abstracts
16.20 — 23.00

DÉTERMINATION EXPÉRIMENTALE DE LA DISTRIBUTION DES VITESSES D'UN JET MOLÉCULAIRE RÉTRODIFFUSÉ PAR UNE SURFACE

Y. LEJAY, J. LAPUJOLADE et G. ARMAND

Service de Physique Atomique, Section d'Etudes des Interactions Gaz-Solides
CEN-Saclay, BP n° 2, 91190 Gif-sur-Yvette, France

(Reçu le 17 octobre 1972, révisé le 7 février 1973)

Résumé. — Nous décrivons un appareillage permettant d'étudier en ultra-vide la réflexion d'un jet de molécules neutres d'énergie thermique par une surface propre.

Le générateur délivre un faisceau sensiblement monocinétique et le faisceau réfléchi est analysé par méthode de temps de vol et échantillonnage à l'aide d'un analyseur multicanal.

On calcule les différents moments de la distribution de vitesse, desquels on déduit le lobe de réflexion, la vitesse et l'énergie moyenne et une estimation de la forme et de la largeur de la distribution.

On donne ensuite les premiers résultats concernant la réflexion de l'hélium sur la face (111) du nickel qui permettent d'apprécier les performances de l'appareil.

Abstract. — An apparatus to study the scattering of a neutral particle beam from a clean surface under ultra-high vacuum conditions is described.

The incident beam is approximately monoenergetic and the reflected beam is analysed by sampling the time of flight distribution using a multichannel analyser.

The reflected lobe, the speed and average energy of the reflected particles are deduced from the calculated moments of the speed distribution. An estimation of the form and width of the distribution may be made.

The performance of the apparatus is illustrated by the preliminary results for the reflection of He from a (111) nickel face.

1. Introduction. — La collision d'un atome ou d'une molécule neutre avec un cristal est l'un des phénomènes les plus simples que l'on puisse envisager parmi les mécanismes d'interaction gaz-solides. Son étude devrait permettre d'atteindre d'une part les grandeurs caractéristiques de la dynamique superficielle d'un réseau cristallin et d'autre part le potentiel d'interaction gaz-solide. Les expérimentateurs se sont tout d'abord intéressés au transfert d'énergie par la mesure du coefficient d'accommodation thermique global. Cette grandeur est malheureusement par trop intégrale et ne permet pas d'entrer très finement dans le mécanisme de l'interaction. Aussi dans les dix dernières années sont apparues, stimulées vigoureusement par la recherche aérospatiale, des expériences de diffusion de jets moléculaires par des surfaces solides. Ces expériences envisagées du point de vue de la compréhension de l'interaction gaz-solides présentaient souvent deux défauts :

1) Du fait des buts immédiatement utilitaires poursuivis, les surfaces étudiées étaient des surfaces techniques assez mal définies du point de vue mécanique et physico-chimique (surfaces rugueuses, polycristal-

lines, contaminées par des oxydes ou des couches adsorbées).

2) Généralement seule la distribution spatiale des particules réfléchies était mesurée mais pas la distribution énergétique. La première grandeur est une intégrale de la seconde et cette dernière est l'information la plus fine qui puisse être obtenue.

C'est pourquoi nous avons entrepris la réalisation d'un appareillage ne présentant pas ces limitations, c'est-à-dire permettant la mesure des distributions spatiales et énergétiques des particules réfléchies par une surface parfaitement caractérisée (face de monocristaux physico-chimiquement propre).

La première condition impose une mesure de temps de vol des particules réfléchies. Pour réaliser la deuxième il faut obtenir un vide très poussé dans la chambre d'expérience, ce qui oblige celle-ci à être entièrement étuvable. Ceci ne va pas sans problèmes technologiques assez délicats.

Nous décrivons dans une première partie le matériel expérimental réalisé. Nous exposerons ensuite la méthode qui permet de passer des résultats bruts de

l'expérience aux grandeurs intéressantes caractérisant l'interaction faisceau-surface et nous donnerons enfin les premiers résultats obtenus sur le système He-Ni (111) qui permettent d'apprécier les performances de l'appareillage.

2. Appareillage expérimental. — **2.1 MONTAGE MÉCANIQUE.** — Le schéma de principe est représenté sur la figure 1. On y a rassemblé un certain nombre de paramètres fixant les dimensions du système. L'ensemble est réalisé en acier inoxydable.

Le faisceau moléculaire est créé par une source type Kantrovitz et Grey modifiée [1], de conception plus simple, la tuyère étant constituée par un tube capillaire ($\varnothing 0,1$ mm ; $L = 10$ mm) ; deux diaphragmes en parois minces servent à définir le faisceau et délimitent deux chambres de pompage différentiel évacuées par des pompes turbomoléculaires.

La distance entre la tuyère et le premier diaphragme est réglable pendant le fonctionnement. Cette distance ainsi que la pression en amont de la tuyère ont été optimisées par tâtonnement pour chaque gaz en vue d'obtenir le flux maximal.

L'axe du faisceau est horizontal et son ouverture angulaire est de 1° environ.

La chambre d'expérience (ch 4) est également évacuée par un pompage turbomoléculaire. Après étuvage à 300°C pendant 48 h, la pression résiduelle est de 5×10^{-7} Pa, l'atmosphère contenant essentiellement de l'hydrogène (50 %), de la vapeur d'eau (40 %) et un peu d'oxyde de carbone (5 %) ; le reste est constitué par du méthane et quelques traces de gaz rares.

Lorsque le faisceau est injecté dans la chambre, la pression dans celle-ci s'élève jusqu'à $3,5 \times 10^{-6}$ Pa. Cette élévation de pression, compte tenu de la vitesse de pompage (1 200 l/s) permet d'estimer que le flux total du faisceau moléculaire est d'environ 10^{15} atomes/s pour l'hélium. La section droite du faisceau au niveau de l'échantillon étant d'environ 1 cm^2 , il en résulte que le flux sur celui-ci est de 10^{15} atomes/s. cm^2 . Le flux parasite sur l'échantillon provenant de la pression totale dans la chambre est dans ces conditions de $2,5 \times 10^{13}$ atomes/s. cm^2 . Cette valeur est petite devant la précédente.

L'échantillon (disque circulaire $\varnothing 20$ mm, épaisseur 1 mm) est monté sur un support, de telle façon que le diamètre vertical de la face cible soit confondu avec l'axe central de l'enceinte, autour duquel il peut tourner. Une rotation de 90° permet de passer de l'incidence normale à l'incidence rasante. L'échantillon peut, en outre, être chauffé jusqu'à $1\,500\text{ K}$ par un canon à électrons monté sur le même support.

Le faisceau est détecté par une jauge à ionisation sensible à la densité. Elle est placée dans le plan défini par l'axe du faisceau incident et la normale à l'échantillon et peut explorer un secteur de 180° autour de l'axe de l'enceinte.

L'angle solide, centré sur l'échantillon et intercepté par la jauge, a une ouverture de 4° .

2.2 PRINCIPE DE LA MESURE — Pour mesurer la distribution de vitesse des particules réfléchies, il faut utiliser une méthode de mesure par temps de vol. Mais alors le signal à mesurer est très faible devant le signal donné par la pression moyenne régnant dans

FIG. 1.

l'enceinte et, de plus, il est noyé dans un bruit provenant de diverses sources :

— Fluctuations statistiques de la pression dans le détecteur.

— Bruit propre des amplificateurs et appareils de mesure.

— Microphonie induite dans les câbles de liaison par les vibrations mécaniques du montage.

Le rapport signal/bruit peut être de l'ordre de 10^{-1} à 10^{-3} suivant les cas.

La méthode de mesure par temps de vol se prête très bien à une amélioration du rapport signal/bruit par échantillonnage et accumulation.

On introduit donc une modulation du faisceau à l'aide d'un hacheur mécanique. Le signal délivré par le détecteur passe dans un amplificateur à large bande, est échantillonné et chaque échantillon est ensuite envoyé dans le canal correspondant de la mémoire d'un analyseur multicanal.

En répétant l'opération N fois et en ajoutant à chaque passage le signal reçu au signal existant dans la mémoire, on démontre que si le bruit est aléatoire (Loi de Poisson), le rapport signal/bruit est amélioré par un facteur $\sqrt{N}$.

L'ensemble des canaux permet de reconstituer la forme du signal arrivant dans le détecteur.

Comme il n'existe pas, à notre connaissance, de moteur fiable pouvant à la fois tourner sous vide et être étuvé, nous avons dû entraîner le hacheur par un moteur extérieur démontable et donc placer ce hacheur sur le trajet du faisceau incident.

La transmission du mouvement s'effectue à l'aide d'un accouplement magnétique étuvable. Le disque

hacheur est percé de trous carrés de 12 mm de côté, centrés sur un diamètre de 140 mm. Il est entraîné par un moteur à hystérésis alimenté par un générateur à fréquence variable (de 40 à 64 Hz). Ceci permet de déterminer par tâtonnement la fréquence qui minimise le bruit. On s'affranchit ainsi notamment des parasites induits par le secteur.

On réalise l'alignement mécanique de la tuyère, des différents diaphragmes, du hacheur, de l'échantillon et du détecteur en remplaçant le faisceau de particules par un faisceau laser passant à travers la tuyère et matérialisant l'axe du faisceau.

2.3 DÉTECTION DU SIGNAL. ELECTRONIQUE DE MESURE. — Le système de mesure est représenté sur les figures 2a et 2b.

Les paquets successifs de particules ionisées dans le détecteur sont collectés par le convertisseur d'un multiplicateur d'électrons qui délivre, à la sortie, un courant proportionnel à la densité des particules dans le détecteur. Ce courant est étalonné par rapport à la pression totale, ce qui permet de s'affranchir des fluctuations éventuelles du gain du multiplicateur.

Pour sortir ce courant de l'enceinte étuvable, nous avons été amenés à fabriquer des câbles coaxiaux à faible taux de dégazage. Ils sont constitués par une âme en fil de cuivre isolée par deux gaines concentriques en fibre de verre. Le tout est ensuite recouvert d'une tresse en cuivre servant de blindage et d'une dernière gaine en fibre de verre isolant ce blindage de la masse générale constituée par l'enceinte. La longueur du câble est relativement grande ($\approx 1,50$ m) et malgré tout le soin apporté à sa fabrication, il présente une microphonie importante. En effet, l'âme peut se dépla-

G_1 = grille d'entrée à +150 V

E = enveloppe extérieure de la source
longueur 40 mm }
 $\varnothing$ 25 mm } 0 V

G_2 = grille extraction des électrons à +70 V

F = filament émetteur

G_3 = grille de sortie à -150 V

C = cone de focalisation à 0 V

FIG. 2a.

FIG. 2b.

cer par rapport à la gaine coaxiale sous l'influence des vibrations de l'enceinte. L'impédance interne du multiplicateur étant pratiquement infinie, cet effet est très important. Dans ces conditions on recueille, à la sortie, un bruit très élevé synchrone de la rotation du hacheur que notre système de mesure ne peut donc pas éliminer.

Pour améliorer cette situation, nous avons placé à la sortie du multiplicateur et sur son bras support un préamplificateur adaptateur d'impédance de gain 10 et dont l'impédance de sortie est $50\ \Omega$, diminuant ainsi considérablement la microphonie induite dans les câbles de liaison. Cet amplificateur est constitué de résistances et de transistors étuvables à $300\ ^\circ\text{C}$. Il peut donc, sans inconvénients, supporter les étuvages de l'enceinte. De plus, il est enfermé dans une petite enceinte étanche remplie d'huile servant de fluide amortisseur.

Le signal sorti de l'enceinte est alors repris par un amplificateur à faible bruit et à large bande puis envoyé dans l'analyseur pour traitement.

Ce dernier appareil a été développé dans notre laboratoire et a déjà fait l'objet d'une publication [2]. Le schéma de principe en est donné figure 2b. Après soustraction d'un niveau continu de référence rajouté par les amplificateurs d'entrée, facilité permettant d'éviter la saturation rapide de la mémoire par le niveau continu, les échantillons successifs sont accumulés dans une mémoire digitale de 64 canaux de 28 bits.

Le temps de codage est de $18,5\ \mu\text{s}$. Lorsque l'intervalle de temps entre deux échantillons successifs est inférieur à cette valeur, les 64 canaux sont remplis au cours de 4 passages par entrelacement des canaux.

Le signal peut être suivi constamment au cours de l'accumulation sur un écran d'oscilloscope. Il peut également sortir en analogique sur un enregistreur XY ou en digital sur machine Télétape. Le ruban perforé obtenu permet un traitement ultérieur sur ordinateur IBM 360-91.

3. Traitement des résultats bruts. — 3.1 On appelle « Fonction de hacheur » la fonction traduisant la variation de la section de passage laissée au faisceau par l'ouverture du hacheur au cours de son déplacement.

Nous l'avons mesurée en remplaçant le faisceau de neutres par un faisceau lumineux détecté à l'aide d'un photomultiplicateur dont le courant de sortie est envoyé dans la chaîne de mesure décrite ci-dessus.

La courbe obtenue est donnée par la figure 3 avec les différents paramètres permettant de la situer en temps par rapport à une origine, celle-ci étant fournie par la cellule photoélectrique pilotant l'électronique de mesure.

FIG. 3.

Le dernier diaphragme et le hacheur possédant des ouvertures carrées, la fonction de hacheur doit être, en principe, un trapèze isocèle. On constate que la courbe observée expérimentalement n'en diffère que très peu.

On appellera « Fonction de temps d'arrivée » la fonction correspondant à l'onde de pression créée par le faisceau haché dans le détecteur ; c'est encore la courbe restituée par l'analyseur multicanal.

La fonction de hacheur a pour dimension une surface et la fonction de temps d'arrivée, une densité.

On passe de l'une à l'autre par un produit de convolution.

3.2 Soit (Fig. 4) $S(t)$ la fonction de hacheur, $N_s(\tau)$ la fonction de temps d'arrivée, l la longueur de vol entre le hacheur et le détecteur, $p(c)$ de la distribution de vitesse, en volume, des particules du faisceau avec

$$\int_0^\infty p(c) dc = 1$$

(pour une maxwellienne :

$$p(c) dc = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \cdot \frac{c^2}{\alpha^3} \cdot \exp\left(-\frac{c^2}{\alpha^2}\right) dc,$$

α étant la vitesse la plus probable), T_0 le temps total d'ouverture du hacheur.

FIG. 4.

L'origine des temps est fixée à l'instant où les premières molécules traversent l'ouverture du hacheur. La fonction de hacheur est nulle en dehors de l'intervalle de temps $(0 - T_0)$.

On montre alors (voir Annexe 1) que la fonction de temps d'arrivée s'écrit :

$$N_s(\tau) = \frac{n_0}{s} \int_0^\tau S(t) \frac{l}{(\tau - t)^2} p\left(\frac{l}{\tau - t}\right) dt, \quad (1)$$

n_0 étant la densité dans le faisceau au niveau du hacheur en régime permanent et s étant la section du faisceau au niveau du détecteur.

Nous avons calculé numériquement les valeurs de la fonction $N_s(\tau)$ pour une distribution de Maxwell et pour différentes valeurs du paramètre $L = l/\alpha T_0$. Le résultat est porté sur la figure 5 en fonction de la variable réduite $\theta = \tau/T_0$, la fonction de hacheur étant celle définie sur la figure 3 (trapèze isocèle).

On voit que, plus L est grand, plus la courbe est étalée et plus son amplitude est faible. Autrement dit, plus L sera grand plus l'analyse en vitesse sera bonne mais plus la sensibilité sera mauvaise. De ce fait, il y a lieu de rechercher un compromis entre les différents paramètres.

3.3 La distribution de vitesse ne peut être obtenue directement par inversion de la courbe de temps d'arrivée que si la fonction de hacheur est réduite à un

FIG. 5.

créneau très bref devant le temps de vol des particules. Compte tenu des dimensions finies du faisceau de particules, ceci n'est pas réalisable et donnerait de toutes façons un signal indétectable.

A moins de supposer *a priori* une fonction de distribution connue dont on ajustera les paramètres, il faut donc, dans le cas le plus général, procéder à une déconvolution de la courbe de temps d'arrivée pour remonter à la fonction de distribution (éq. (1)).

Pour cela, nous utilisons un formalisme déjà décrit par Moran [3] et utilisant la transformation de Laplace.

$S(t)$ ayant la forme d'un trapèze isocèle, il vient (cf. Annexe 2) :

$$p(c) = \frac{saT_0}{n_0 S_0} \cdot \frac{t^2}{l} \cdot \sum_{m=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\infty} \frac{d^2}{dt^2} \times \\ \times [N_s \{ t - (j + (m - j) a) T_0 \}] \\ \times \Gamma \{ t - (j + (m - j) a) T_0 \} \quad (2)$$

$t = l/c$, Γ étant la fonction « échelon unité », S_0 la section du faisceau au niveau du hacheur et (aT_0) l'abscisse du début de la partie horizontale du trapèze représentant la fonction de hacheur.

Par une double dérivation de la courbe $N_s(\tau)$, il serait donc possible de reconstituer la fonction de distribution des vitesses. Ceci n'est malheureusement pas faisable pratiquement car la précision avec laquelle est obtenue la courbe de temps d'arrivée ne permet pas d'effectuer cette double dérivation sans qu'il s'introduise des erreurs prohibitives.

3.4 De ce fait, on est amené à calculer les différents moments de la distribution. Ils sont donnés par :

$$M_p = \int_0^\infty c^p p(c) dc$$

soit, tous calculs fait (cf. Annexe 2)

$$M_p = \frac{sa}{S_0} \cdot \frac{1}{n_0} \cdot T_0 l^p \int_0^\infty N_s(\tau) \sum_{m=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\infty} \times \\ \times \frac{p(p+1)}{[\tau + T_0(j + (m - j) a)]^{p+2}} d\tau \quad (3)$$

ou

$$M_p = \frac{sa}{S_0} \cdot \frac{1}{n_0} \cdot C_p. \quad (3 \text{ bis})$$

La quantité C_p qui ne fait intervenir que l'intégrale de $N_s(\tau)$ est obtenue avec une très bonne précision par un calcul à l'ordinateur, à partir de la courbe $N_s(\tau)$. Les M_p sont calculés à une constante près.

Remarquons que ce calcul s'applique également au faisceau réfléchi dans la mesure où le faisceau incident est monocinétique et où le temps d'interaction est négligeable devant le temps de vol. L'origine des temps est alors prise au moment où les premières particules frappent la cible, ce qui équivaut à un déplacement dans le temps de la fonction de hacheur. Dans ce cas, n_0 est la densité dans le faisceau réfléchi en régime permanent au niveau de l'échantillon, dans la direction de la mesure.

On peut préciser le domaine de validité de l'approximation qui consiste à négliger le temps d'interaction des particules avec la surface.

La résolution de l'analyseur de temps de vol est de l'ordre de l'intervalle minimal séparant deux canaux successifs, soit 10^{-5} s.

A titre de comparaison, le temps de séjour moyen d'un atome d'argon adsorbé sur la surface du nickel à 300 K en supposant une énergie de liaison de 3 000 cal/mole, ne s'élève encore qu'à 10^{-11} s. Cette valeur est tout à fait négligeable devant la résolution de l'analyseur. Cet effet ne pourrait perturber les mesures pour des énergies de liaison gaz-métal importantes (diffusion réactive) ou de très basses températures.

4. Utilisation des résultats. — Les résultats bruts du calcul des moments sont utilisés pour tracer le lobe de réflexion, calculer les moments de flux et estimer la forme de la distribution.

4.1 TRACÉ DU LOBE DE RÉFLEXION. — Le premier moment M_1 est par définition la vitesse moyenne v et l'éq. (3 bis) s'écrit :

$$C_1 = \frac{S_0}{sa} n_0 v = \frac{S_0}{sa} \Phi,$$

Φ étant le flux de particules par unité de surface dans la direction de mesure. Le terme S_0/sa est invariable avec l'angle de réflexion θ_r , et les C_1 calculés pour les différents θ_r sont alors directement proportionnels au flux quelle que soit la direction considérée. Le lobe de réflexion est donné par $C_1(\theta_r)$.

4.2 MOMENTS DE FLUX. — Les différents moments M_p sont calculés à une constante près. Cette constante fait intervenir la densité n_0 que nos conditions expérimentales ne permettent pas de déterminer. De ce fait ils ne sont pas directement utilisables.

Considérons le flux de particules traversant une section droite du faisceau et plus particulièrement la

distribution de flux correspondante. Cette dernière est donnée par :

$$\varphi(c) dc = c p(c) dc$$

avec

$$\int_0^\infty \varphi(c) dc = M_1$$

(facteur de norme).

On définira alors les moments de flux v_φ^p de la même façon que précédemment par la relation :

$$v_\varphi^p = \frac{\int_0^\infty c^p \varphi(c) dc}{\int_0^\infty \varphi(c) dc} = \frac{M_{p+1}}{M_1} = \frac{C_{p+1}}{C_1}$$

et les grandeurs correspondantes seront donc calculées en valeur absolue, la constante ayant été éliminée par la normalisation de la fonction de distribution. Il faut d'ailleurs remarquer que, puisque l'on considère les phénomènes de surface, les grandeurs moyennées sur le flux, et non sur le volume sont bien celles qui présentent un intérêt physique.

On peut alors calculer la vitesse moyenne de flux des particules dans le faisceau $v_\varphi = M_2/M_1$ ainsi que ses projections normale et tangentielle et la vitesse quadratique moyenne de flux $v_\varphi^2 = M_3/M_1$ qui permet de calculer l'énergie des particules, égale à $\frac{1}{2} m v_\varphi^2$, m étant la masse.

Dans le cas d'une distribution de Maxwell, cette dernière grandeur est elle-même égale à $2 kT$, T désignant ici la température absolue du gaz.

4.3 ESTIMATION DE LA FORME DE LA DISTRIBUTION.

— Il faut maintenant, à partir de la connaissance des moments, pouvoir comparer la distribution expérimentale à une distribution théorique. Pour cette dernière, les formes les plus simples sont celles de Dirac ou de Maxwell.

Nous allons alors considérer les « Ecarts moyens d'ordre p sur la vitesse » définis par :

$$\begin{aligned} \frac{\langle (c - v_\varphi)^p \rangle}{(v_\varphi)^p} &= \frac{\int_0^\infty (c - v_\varphi)^p \varphi(c) dc}{(v_\varphi)^p \int_0^\infty \varphi(c) dc} = \\ &= \sum_{n=0}^p (-1)^{(p-n)} C_p^n \frac{(v_\varphi^n)}{(v_\varphi)^n} \end{aligned}$$

les C_p^n étant les coefficients binomiaux.

Pour un faisceau monocinétique, les écarts moyens sont tous nuls. Ils sont donnés dans le tableau I pour une maxwellienne.

Malheureusement, l'erreur de calcul sur les différents termes de la somme alternée pour $p > 2$ est de l'ordre de grandeur du résultat obtenu pour une maxwellienne. De ce fait, l'erreur totale sur le calcul peut être supérieure au résultat final.

TABLEAU I

Valeurs de $\frac{\langle (c - v_\varphi)^p \rangle}{(v_\varphi)^p} = \sum_{n=0}^p (-1)^{p-n} C_p^n \frac{(v_\varphi^n)}{(v_\varphi)^n}$

p	$\frac{\langle (c - v_\varphi)^p \rangle}{(v_\varphi)^p}$
—	—
1	0,0
2	0,131 77
3	0,019 40
4	0,053 12
5	0,024 64
6	0,039 79
7	0,033 72
8	0,047 17
9	0,055 82
10	0,075 56

On se bornera donc à calculer l'écart quadratique moyen, défini par :

$$\frac{\langle (c - v_\varphi)^2 \rangle}{(v_\varphi)^2} = \frac{v_\varphi^2}{(v_\varphi)^2} - 1 = \frac{M_1 M_3^{\frac{1}{2}}}{M_2^2} - 1$$

et on précisera la largeur de la distribution par le calcul des rapports

$$\frac{M_{p+2}}{M_p} \cdot \frac{M_1}{M_3}$$

Ces rapports qui peuvent être déterminés avec une précision suffisante (inférieure à 2 % environ) valent $(p + 3)/4$ pour une maxwellienne et 1 pour une Dirac.

La position relative des quantités calculées pour le faisceau étudié par rapport à 1 et $(p + 3)/4$ permettra d'obtenir une bonne estimation de la forme de la distribution.

Si l'on dispose d'un modèle théorique qui permet de calculer une distribution de vitesse, on déterminera les rapports

$$\frac{M_{p+2}}{M_p} \cdot \frac{M_1}{M_3}$$

correspondant à cette distribution et on les comparera aux valeurs obtenues expérimentalement.

Cette méthode nous semble présenter l'avantage de mettre en évidence jusqu'à quel ordre de moment la distribution théorique est une bonne approximation de la distribution mesurée. Une comparaison directe entre la courbe de temps de vol mesurée et une courbe de temps de vol déduite de la distribution théorique permet beaucoup plus difficilement cette comparaison.

5. Résultats obtenus sur les faisceaux incidents.

— Nous avons déterminé les caractéristiques des faisceaux d'He, Ne, A et H₂ produits par notre système.

La figure 6 montre le signal correspondant à un faisceau d'argon avant son passage dans l'analyseur

FIG. 6.

et sur lequel on a indiqué la fonction de hacheur correspondante.

La figure 7 montre le même signal après accumulation de 10 000 coups et sur lequel on voit que toute trace de bruit a disparu. La vitesse de rotation du hacheur était 2 828 tours/mn.

FIG. 7.

Les résultats sont rassemblés dans le tableau II et sur la figure 8. Ceux-ci nous permettent de dire que

TABLEAU II

Faisceau direct. Résultats expérimentaux

Gaz	$v_\varphi = \frac{M_2}{M_1}$ (cm/s)	$\sqrt{\langle v_\varphi^2 \rangle} = \sqrt{\frac{M_3}{M_1}}$ (cm/s)	$\frac{\langle (c - v_\varphi)^2 \rangle}{(v_\varphi)^2}$	Energie $\frac{1}{2} m v_\varphi^2$
He	$1,21 \times 10^5$	$1,24 \times 10^5$	0,051	733 (cal/mole)
Ne	$6,23 \times 10^4$	$6,36 \times 10^4$	0,047	968
A	$4,66 \times 10^4$	$4,76 \times 10^4$	0,044	1 084
H ₂	$1,69 \times 10^5$	$1,74 \times 10^5$	0,061	723

FIG. 8a.

FIG. 8b.

les faisceaux sont sensiblement monokinétiques. Nous les considérons comme tels, avec une vitesse égale à la vitesse du flux $v_{\phi i}$.

6. Faisceau réfléchi. — **6.1 PRÉPARATION DE L'ÉCHANTILLON.** — Après polissages mécanique puis électrochimique destinés à obtenir une surface macroscopiquement plane, et non écrouie, l'échantillon est placé dans l'enceinte expérimentale (nickel face (111)).

Le nettoyage s'effectue par une succession de cycles d'oxydo réduction sous atmosphère d'oxygène puis d'hydrogène, l'échantillon étant maintenu à 1 100 °C.

On estime la propreté de la surface en mesurant la réflexion d'un faisceau d'hélium sous une incidence de 45°, la cible étant maintenue à 850 °C. En effet, Weinberg et Merrill [4] ont montré, en utilisant un faisceau moléculaire et une technique de spectroscopie Auger, que le lobe de réflexion d'hélium est d'autant plus spéculaire que la surface est propre.

6.2 RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX. — La figure 9 donne le résultat final. On y a également porté le lobe obtenu par Smith *et al.* [5] pour le même système. A l'angle d'incidence près, les résultats sont très sensiblement identiques. Smith utilisait une surface de Ni (111) régénérée en permanence par croissance épitaxiale, donc propre, en principe.

La figure 10 donne le coefficient d'accommodation α_θ défini par :

$$\alpha_\theta = \frac{E_{r\theta} - E_i}{2RT - E_i}$$

avec $E_{r\theta}$ = énergie moyenne des atomes réfléchis dans la direction θ

$$(E_{r\theta} = \frac{1}{2} m v_\phi^2)$$

FIG. 10.

E_i = énergie moyenne des atomes incidents (733 cal/mole),

$2 RT$ = énergie moyenne des atomes complètement accommodés (4 490 cal/mole à 850 °C),

et la figure 11, les coefficients d'échange de vitesse normale et tangentielle, définis par $\sigma = 1 - (\mathbf{v}_{\theta r\theta} / \mathbf{v}_{\theta i})_i$, les vitesses moyennes de flux étant prises respectivement avec leurs composantes normale et tangentielle.

FIG. 11.

L'échange de vitesse tangentielle est faible dans la région correspondant au maximum du lobe de réflexion, c'est-à-dire pour environ 75 % des particules ré-emises en accord avec les hypothèses couramment introduites dans les théories actuelles. Par contre, l'on voit que cette hypothèse n'est plus valable dès que l'on s'écarte du maximum du lobe.

Le coefficient d'accommodation est très faible, avec des variations importantes dans des directions bien définies. Les mêmes accidents se retrouvent sur les courbes donnant les coefficients d'échange.

La figure 12 donne les rapports

$$\frac{M_{p+2}}{M_p} \cdot \frac{M_1}{M_3}$$

pour les différents angles.

Les valeurs relevées sont un peu inférieures à celles correspondant au faisceau direct, sauf dans la direction correspondant à une variation importante du coefficient d'accommodation, où l'on note une aug-

FIG. 12.

mentation de la valeur de ces rapports. Ceci correspond à un élargissement de la fonction de distribution des vitesses.

6.3 EFFET DE LA TEMPÉRATURE, POLLUTION DE LA SURFACE. — Nous avons vu que la spécularité du lobe de réflexion était très sensible à l'état de propreté de la surface.

La figure 13 donne l'amplitude du faisceau réfléchi dans la direction spéculaire en fonction de la température de l'échantillon. La mesure est faite en température décroissante, 15 mn après avoir atteint la température désirée pour chaque point.

Le flux dans la direction spéculaire décroît rapidement lorsque la température diminue en dessous de 800 °C, traduisant le fait que le lobe devient de plus en plus diffus à mesure que la surface se pollue. Ce phénomène est d'autant plus important que le palier de température est plus long. On peut supposer que cette contamination est due à l'adsorption de l'oxyde de carbone provenant de l'atmosphère résiduelle de l'enceinte. Le flux d'impuretés provenant du faisceau lui-même étant négligeable devant celui-là compte tenu de la pureté du gaz injecté (99,999 5 % d'hélium).

Nous avons estimé la population de ce gaz sur la surface à l'équilibre à partir de la pression partielle de CO dans l'enceinte au cours de la mesure (5×10^{-8} Pa) et des résultats obtenus par Degras [6] sur la face (110) du nickel. Il est raisonnable de penser que les valeurs pour la face (111) ne seront pas éloi-

gnées de celles prises pour ce calcul qui permettra de fixer l'ordre de grandeur du phénomène.

A l'équilibre, on a :

$$\frac{n\bar{v}}{4}\sigma = \frac{n_s}{\tau}$$

avec n = densité de CO en phase gazeuse, $\bar{v}$ = vitesse thermique moyenne, σ = coefficient de capture, n_s = concentration de CO sur la surface, τ = temps de collage.

D'après l'équation d'Arrhénius, il vient :

$$\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{E}{RT}\right)$$

avec d'après Degras [6] $\tau_0 = 6,3 \times 10^{-11}$ s et $E = 46,7$ kcal/mole.

Les résultats sont portés sur la figure 13. La monocouche est complète avec 10^{15} molécules sur la surface.

FIG. 13.

Remarquons néanmoins que ces valeurs sont calculées à l'équilibre. Le flux incident sur la surface est de l'ordre de 2×10^{11} molécules/s.cm² et l'équilibre n'est atteint qu'au bout d'un temps assez long (plusieurs centaines de secondes) dès que la température descend en dessous de 600 °C.

Il en résulte que les populations réelles sont certainement inférieures aux populations ainsi calculées. Cette

estimation permet de voir que la proportion de particules réfléchies dans la direction spéculaire est très sensible à la présence de très faibles quantités de particules adsorbées en surface.

Un chauffage à 1 100 °C sous atmosphère d'hydrogène pendant environ 1 h suffit à redonner un lobe identique à celui de la figure 9. Au-dessus de 800 °C nous n'avons noté aucune diminution de l'intensité dans la direction spéculaire au cours d'une période de 24 h. Il est donc possible en travaillant au-delà de cette température d'étudier la rétrodiffusion d'un jet moléculaire sur une surface de nickel propre.

7. Conclusion. — Nous avons développé un appareil permettant de mesurer les paramètres de la réflexion d'un jet de particules neutres par une surface propre et en particulier de calculer à partir de la courbe de temps d'arrivée, les différents moments de la distribution de vitesse des molécules réfléchies.

Le premier moment permet de tracer le lobe de réflexion. Les différents moments de la distribution permettent de calculer l'écart quadratique moyen, les échanges de vitesse et d'énergie entre la surface et le faisceau de particules, et d'estimer la largeur et la forme de la distribution des vitesses.

Ces dernières grandeurs constituent l'information fine de l'interaction, permettant éventuellement de mettre en évidence des effets localisés, par opposition à la mesure du flux qui est une grandeur intégrale.

Enfin, nous avons vu que l'interaction était fortement influencée par l'état de propreté de la surface et qu'une quantité relativement faible (inférieure au 1/100 de monocouche) de gaz adsorbé suffit à élargir le lobe de réflexion dans le cas de l'hélium.

Remerciements. — Il nous est agréable de remercier MM. Degras, Schram, Boiziau, Lecante pour de fructueuses discussions au cours de ce travail, le groupe électronique de Mme Jeudon qui a développé et mis au point l'électronique de mesure et en particulier l'analyseur multicanal ; et enfin, M. Lefort qui a exécuté le travail expérimental de mise au point avec beaucoup de compétence.

Annexe 1

Au temps t (voir Fig. 4 et § 3.2) la section de passage est $S(t)$. Le nombre de particules dont la vitesse est comprise entre c et $c + dc$ et passant à travers la section $S(t)$ pendant le temps dt est égal à :

$$n_0 \cdot c \cdot S(t) p(c) dc \cdot dt$$

n_0 densité en volume dans le faisceau.

Au bout d'un temps τ tel que $\tau = t + l/c$, ces particules parviennent dans la source et y déterminent une variation de pression égale à :

$$d(N_c)_s = \frac{n_0 \cdot c \cdot S(t) p(c) dc \cdot dt}{cs dt} = \frac{n_0 S(t) p(c) dc}{s}$$

s = section de la source ionisante, comme $c = l/\tau - t$, $(\tau - t)$ il vient :

$$d(N_t)_s = n_0 \cdot \frac{S(t)}{s} \cdot \frac{l}{(\tau - t)^2} p\left(\frac{l}{\tau - t}\right) dt.$$

La densité dans la source au temps τ sera alors égale à la somme de toutes les contributions apportées par les particules ayant traversé le plan du hacheur entre les temps 0 et τ et arrivant dans la source au temps τ . Soit

$$N_s(\tau) = \frac{n_0}{s} \int_0^\tau S(t) \frac{l}{(\tau - t)^2} p\left(\frac{l}{\tau - t}\right) dt$$

si $\tau > T_0$, $S(t) = 0$ et la borne supérieure est alors T_0 .

Annexe 2

1. Calcul de la fonction de distribution. — Soit $N_s(p)$ la transformée de Laplace de $N_s(\tau)$. $N_s(\tau)$ étant obtenue par une intégrale de convolution, il vient :

$$N_s(p) = \frac{n_0}{s} \mathcal{L}[S(t)] \cdot \mathcal{L}\left[\frac{l}{t^2} p\left(\frac{l}{t}\right)\right].$$

Compte tenu de la forme de $S(t)$ (§ 3.2), il vient

$$\mathcal{L}[S(t)] = \frac{S_0}{aT_0 p^2} (1 - e^{-paT_0}) \cdot (1 - e^{-pT_0} e^{paT_0})$$

et

$$\begin{aligned} \mathcal{L}\left[\frac{l}{t^2} p\left(\frac{l}{t}\right)\right] &= \frac{N_s(p)}{\mathcal{L}[S(t)]} \frac{s}{n_0} \\ &= \frac{saT_0}{n_0 S_0} p^2 \sum_{j=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} \times \\ &\quad \times [N_s(p) e^{-pT_0(j+(m-j)a)}] \end{aligned}$$

car

$$\begin{aligned} (1 - e^{-paT_0}) (1 - e^{-pT_0} e^{paT_0}) &= \\ &= \sum_{j=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} e^{-pT_0(j+(m-j)a)} \end{aligned}$$

par application du théorème du retard, il vient :

$$\begin{aligned} \mathcal{L}\left[\frac{l}{t^2} p\left(\frac{l}{t}\right)\right] &= \frac{saT_0}{n_0 S_0} p^2 \sum_{j=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} \times \\ &\quad \times \mathcal{L}[N_s\{t - (j + (m - j)a)T_0\}] \end{aligned}$$

et en posant $l/t = c$:

$$\begin{aligned} p(c) &= \frac{saT_0}{n_0 S_0} \cdot \frac{t^2}{l} \sum_{j=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{d^2}{dt^2} \times \\ &\quad \times [N_s\{t - (j + (m - j)a)T_0\}] \\ &\quad \times \Gamma\{t - (j + (m - j)a)T_0\}, \end{aligned}$$

Γ étant la fonction « échelon unité ».

2. Calcul des moments. — Les moments sont donnés par :

$$M_p = \int_0^\infty c^p p(c) dc$$

soit en posant $c = l/t$

$$M_p = \int_0^\infty \frac{l^{p+1}}{t^{p+2}} p\left(\frac{l}{t}\right) dt$$

soit en tenant compte de l'équation donnant $p(c)$:

$$\begin{aligned} M_p &= \frac{saT_0}{n_0 S_0} l^p \int_0^\infty \sum_{j=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{dt}{t^p} \frac{d^2}{dt^2} \times \\ &\quad \times [N_s\{t - (j + (m - j)a)T_0\}] \\ &\quad \times \Gamma\{t - (j + (m - j)a)T_0\}. \end{aligned}$$

On intègre 2 fois par partie. En tenant compte que, pour la limite inférieure d'intégration la fonction est nulle par définition ($\Gamma\{\} = 0$) ou parce que cela correspond à une vitesse infinie et que pour la borne supérieure, la fonction est toujours nulle, ainsi que ses dérivées ; et en posant :

$$x = t - T_0(j + (m - j)a),$$

il vient

$$\begin{aligned} M_p &= \frac{sa}{n_0 S_0} T_0 l^p \int_0^\infty N_s(x) \sum_{j=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} \times \\ &\quad \times \frac{p(p+1)}{[x + T_0(j + (m - j)a)]^{p+2}} dx. \end{aligned}$$

Bibliographie

- [1] KANTROWITZ, A. and GREY, J., *Rev. Sci. Instrum.* **22** (1951) 328.
- [2] FÉLIX, J. P., FERNANDÈS, C. et JEUDON, H., Echantillonneur numérique ultra-rapide pour l'étude des phénomènes élémentaires dans les gaz ionisés (5th Symposium of Fusion Technology, Oxford (England), (July 1968)).
- [3] MORAN, J. P., Ph. D. Thesis MIT 1968 (AFOSR-0319).
- [4] WEINBERG, W. H. and MERRILL, R. P., *Adsorption-Desorption Phenomena*. F. Ricca Editor (Academic Press), 1972 p. 151.
- [5] SMITH, J. N., SALTSBURG, H. and PALMER, R. L., *6th Rarefied Gas Dynamics Symposium*. L. Trilling, H. Y. Wachman Editors (Academic Press) 1969, p. 1141.
- [6] DEGRAS, D. A., Thèse à la Faculté des Sciences de Paris (1966). Rapport CEA-R 3123.