

**Interaction d'atomes et de molécules  
d'hydrogène avec des glaces d'eau à très  
basse température:**

**Formation de H<sub>2</sub> dans le milieu interstellaire**

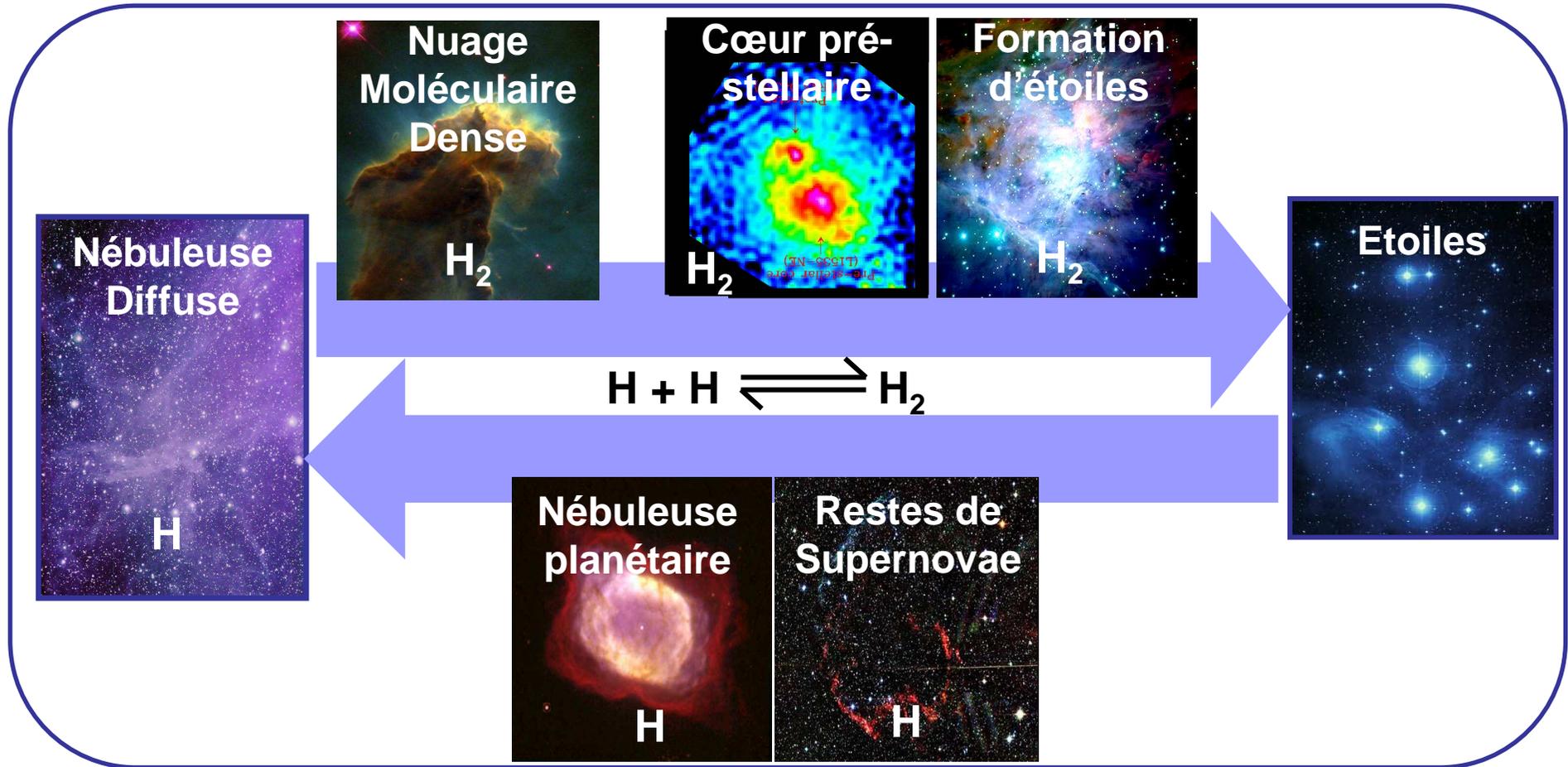
Lionel Amiaud

LERMA – Oct.2003- Sept.2006

Université de Cergy-Pontoise, Moniteur

# Pourquoi étudier la formation de H<sub>2</sub>?

Hydrogène = **90%** matière visible de l'univers



Efficacité  
de la réaction ?

Énergie fournie  
par la réaction ?

**Incertitudes dans la description du milieu interstellaire**

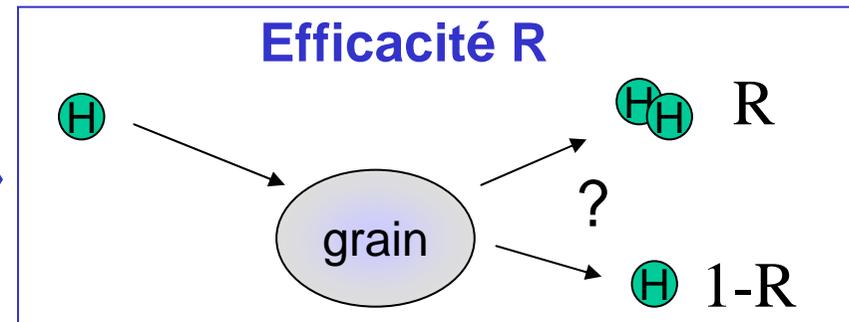
# Efficacité de la réaction : mécanismes

Efficacité formation  
en phase ~~gazeuse~~ : **NON**

Efficacité formation  
sur **grains de poussière** : **OUI**

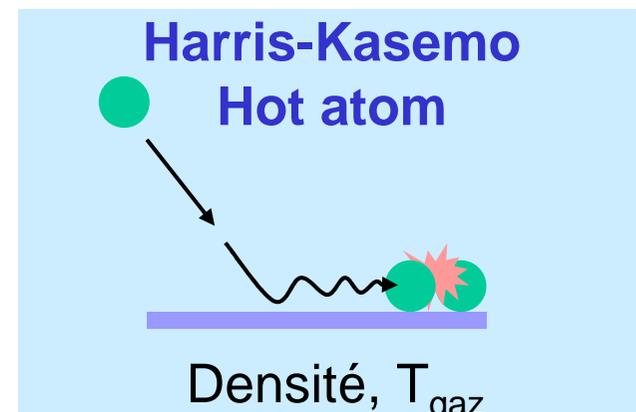
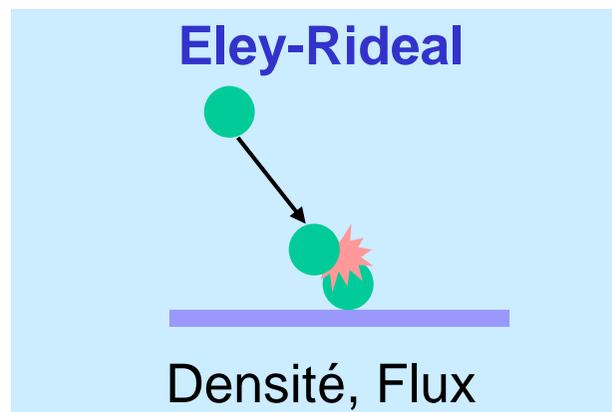
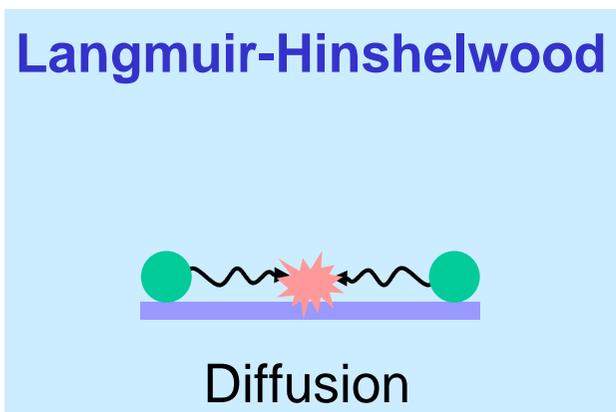
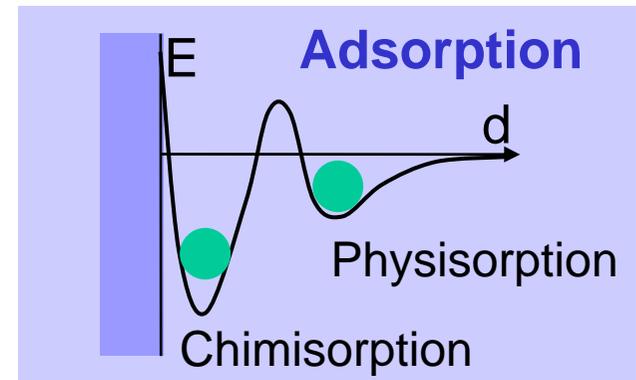
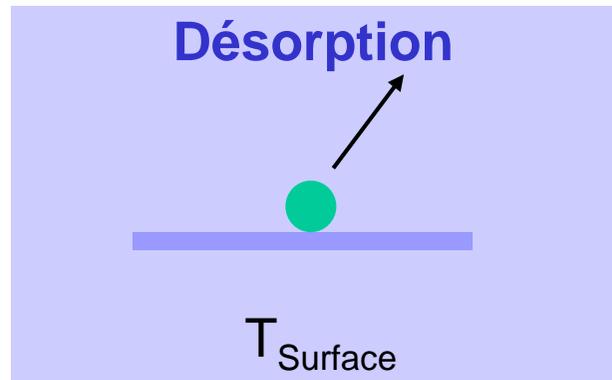
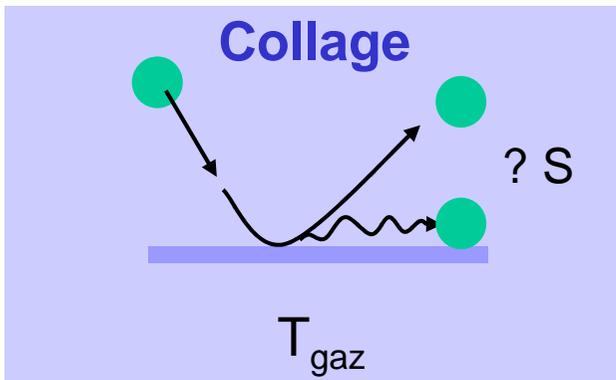


Nombre de collisions H-grain x R



1<sup>er</sup> ordre : collage/désorption

2<sup>ème</sup> ordre : mécanismes réactionnels



# Effacité de la réaction : dépendance au milieu

## Diffus



$R \sim 0.3$

Destruction de  $H_2$  très efficace (UV)

$H \gg H_2$

## Dense

$R \sim 0.3$

Destruction peu efficace (r. cosmique)

$H \ll H_2$

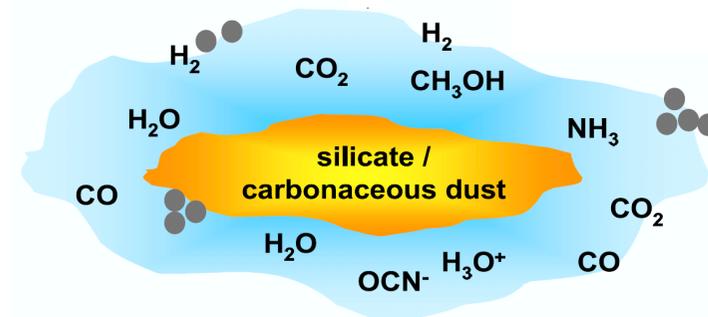


## Grains de poussière nus



Si  $T_s > 20 \text{ K}$   $\rightarrow$  physisorption trop faible  $\rightarrow$  1 atome chimisorbé

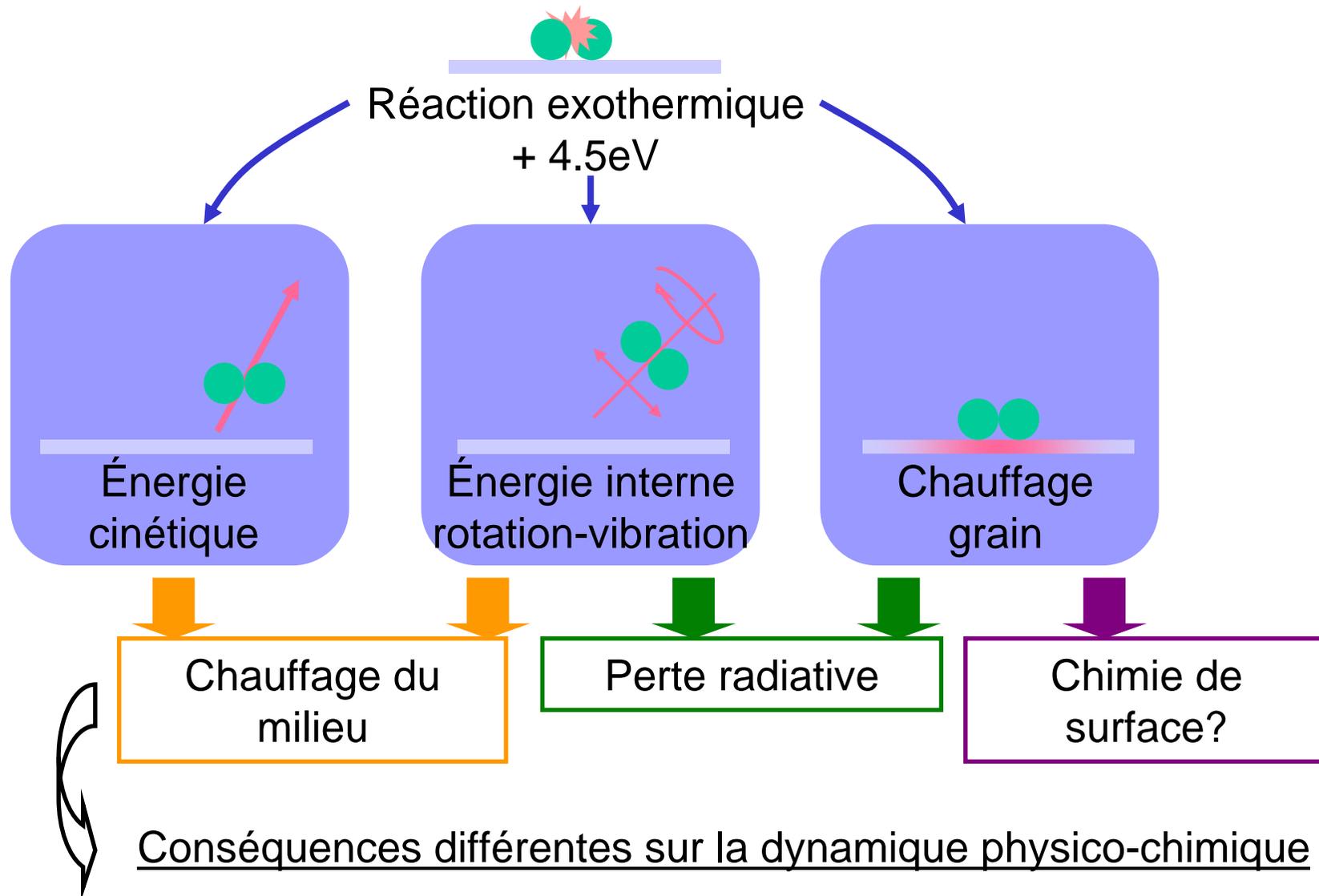
## Manteau de glace



$T \sim 10 \text{ K}$   $\rightarrow$  Physisorption  
Présence de  $H_2$  adsorbé

# Énergie fournie par la réaction

## Formation



→ Importance de la détermination du bilan énergétique

## Objectifs de la thèse

---

Caractériser la réaction de **formation de H<sub>2</sub>** sur les **manteaux de glace**.

Quelles propriétés sont déterminantes ?

- Efficacité de la réaction
- Bilan énergétique

L'approche choisie : **expérience de laboratoire**

1.Principe des expériences

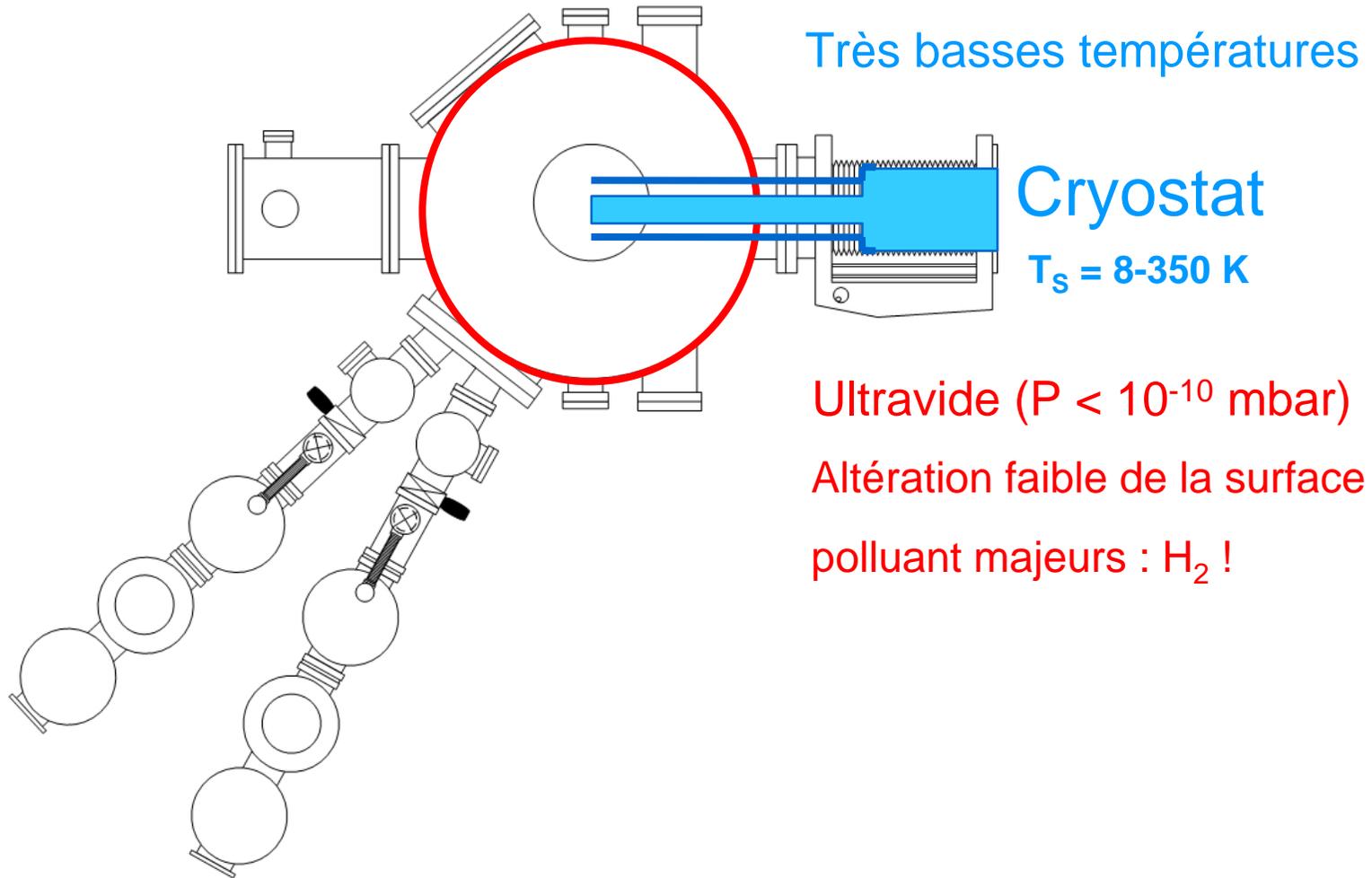
2.Résultats sur l'adsorption de molécules

3.Résultats sur la formation de molécules

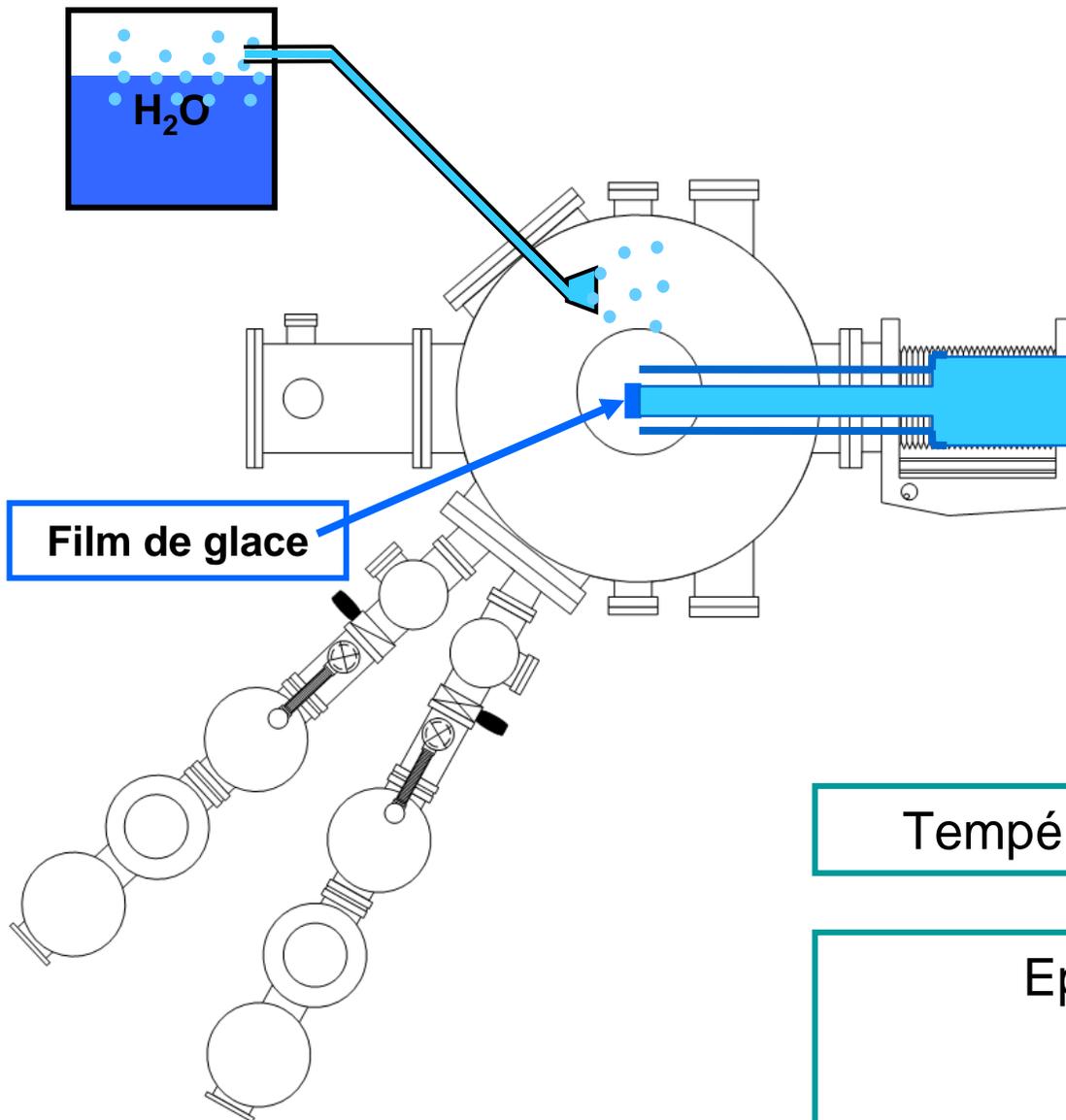
Perspectives

# Expérience FORMOLISM

## FORMation de MOLécules dans le Milieu Interstellaire (ISM)



# Dépôt film de glace d'eau

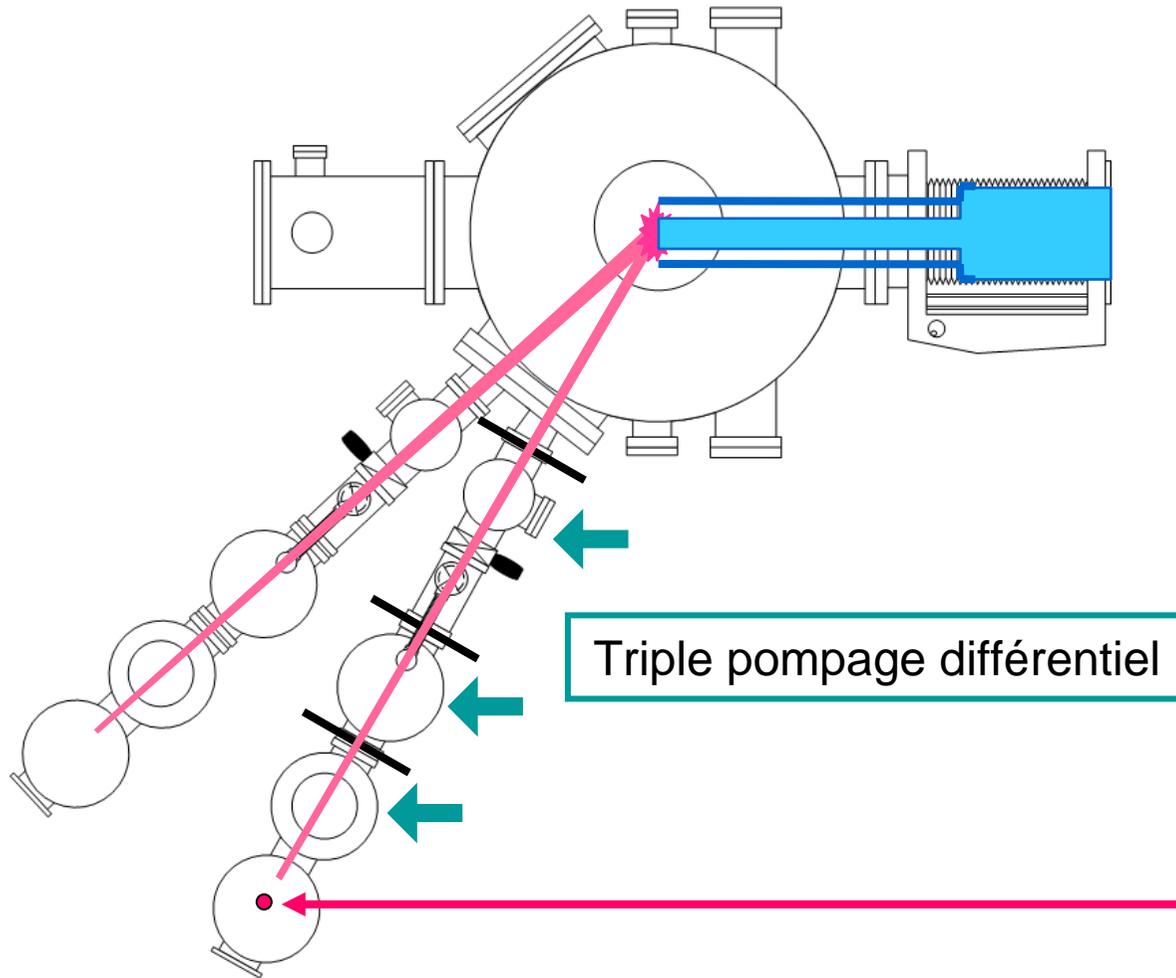


Température de la surface régulée

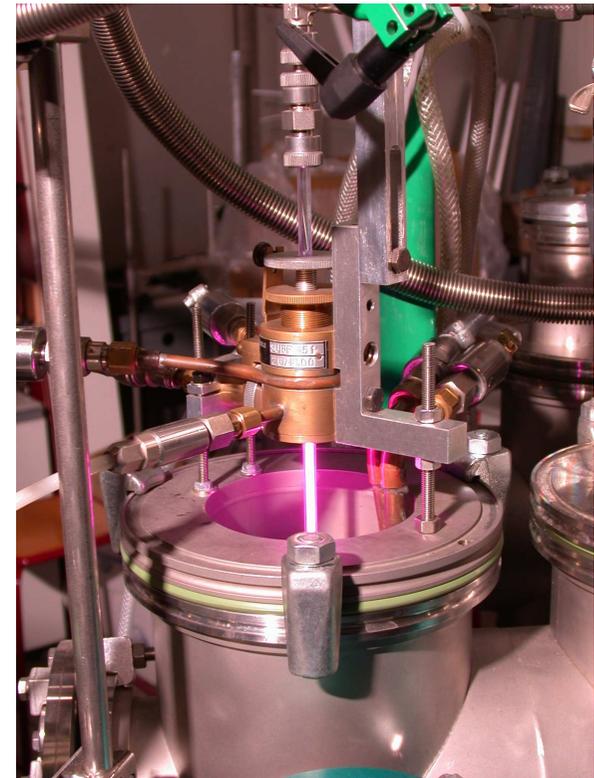
Épaisseur totale du film:  
150 – 300 ML  
~100 nm

# Jets atomiques ou moléculaires

Hydrogène ou Deutérium (isotope)

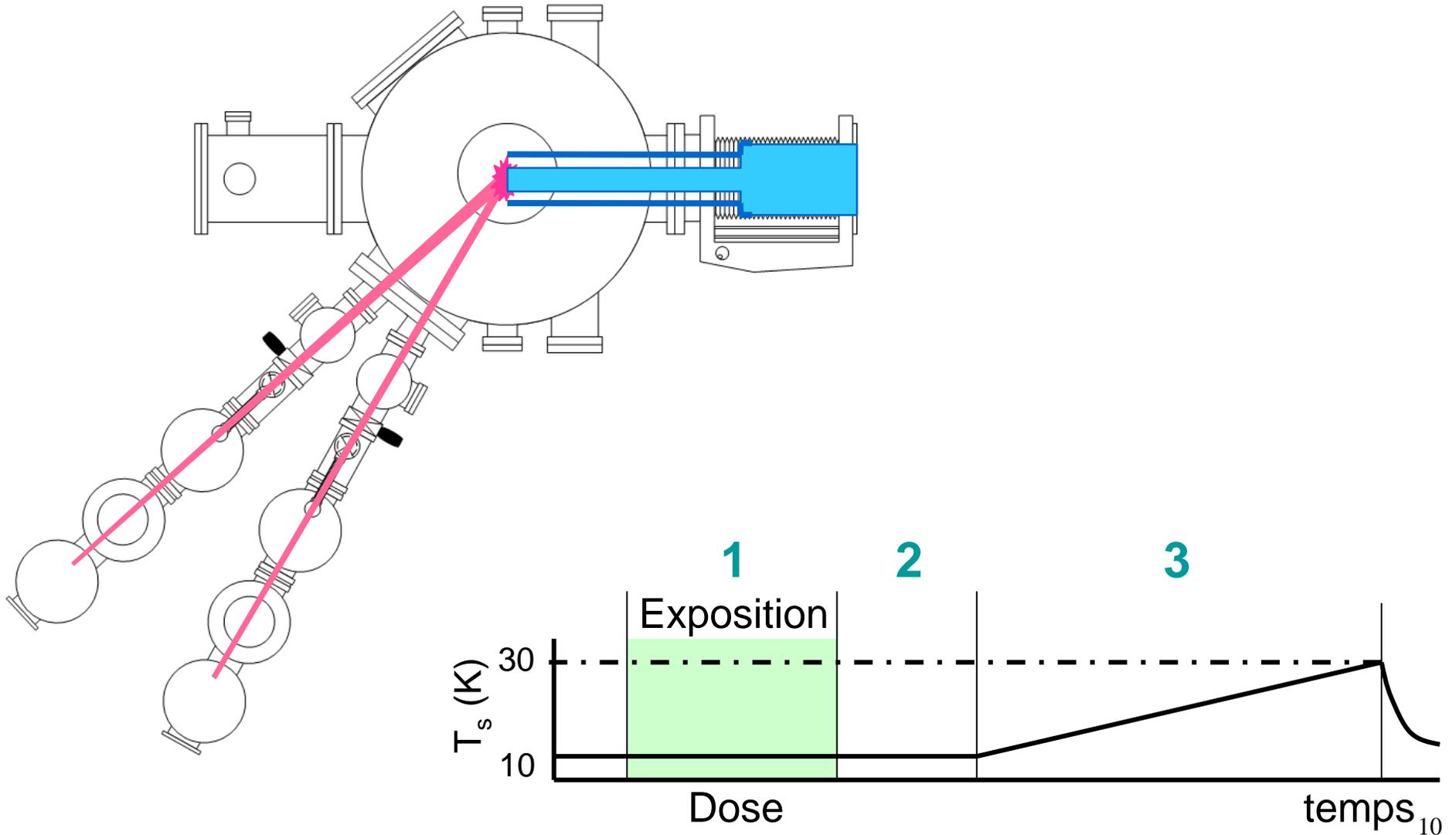


Dissociation par  
décharge micro-onde



# Expérience TPD (Désorption Programmée en Température)

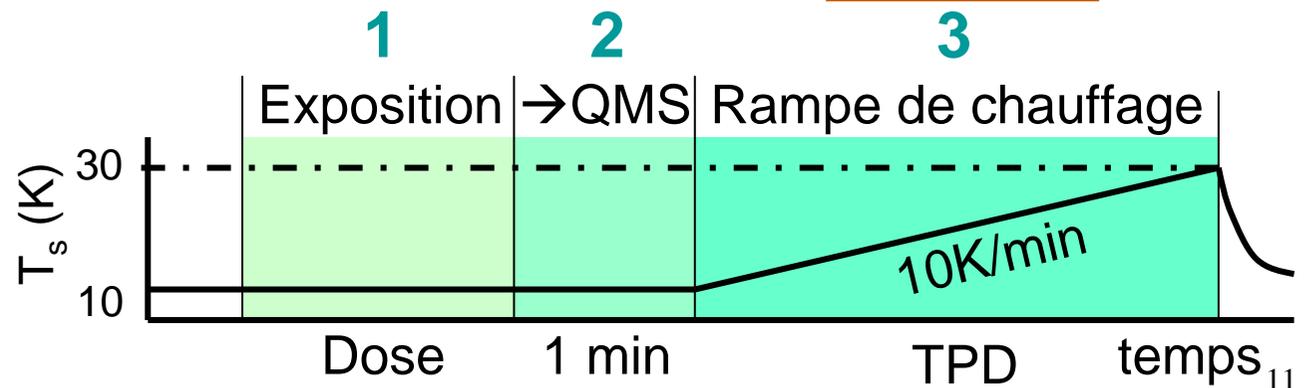
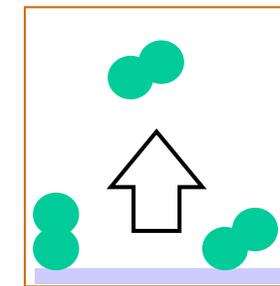
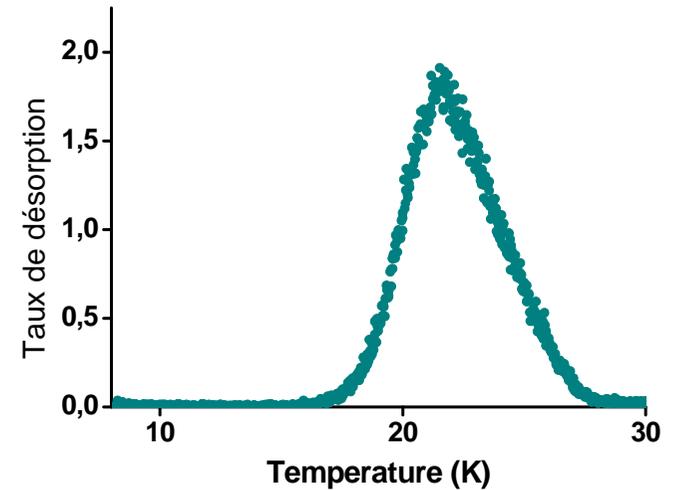
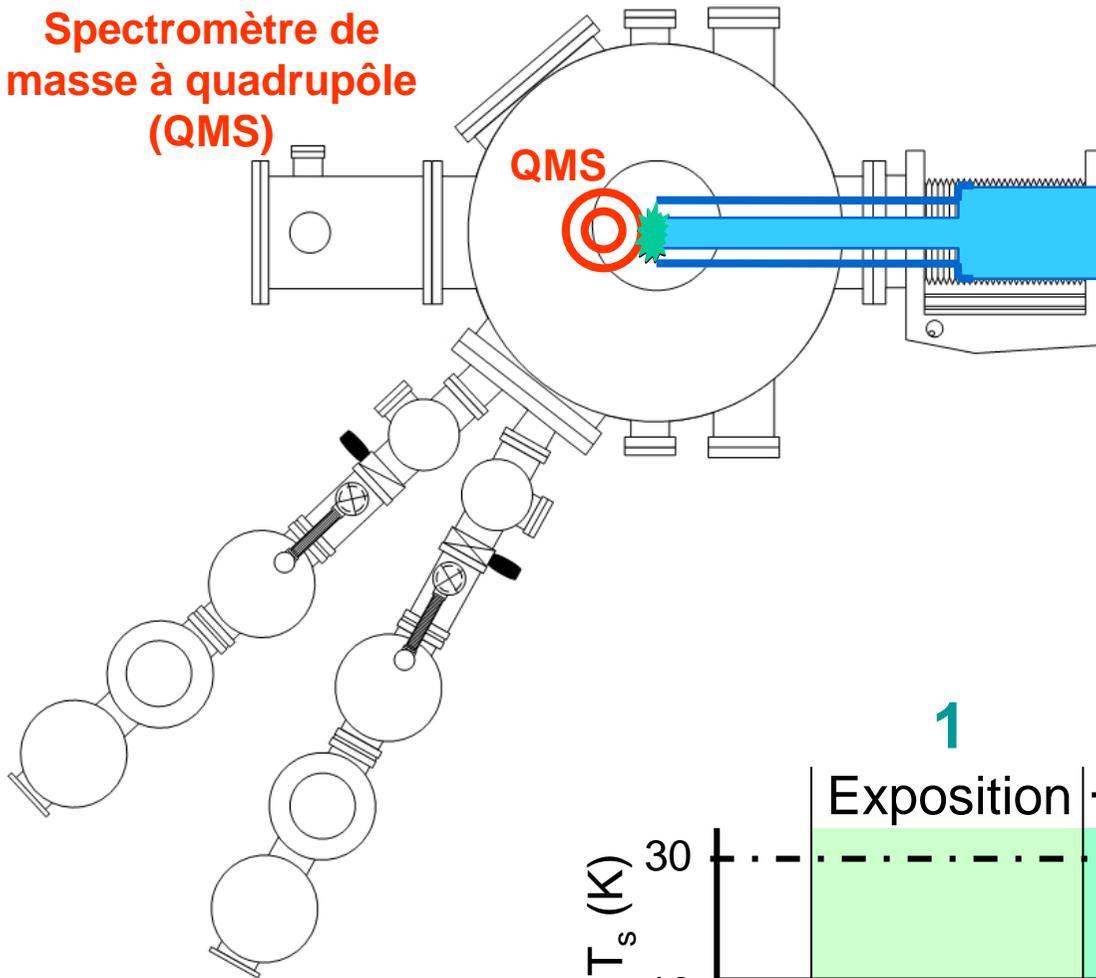
## 1 Exposition à l'Hydrogène atomique ou moléculaire



# Expérience TPD (Désorption Programmée en Température)

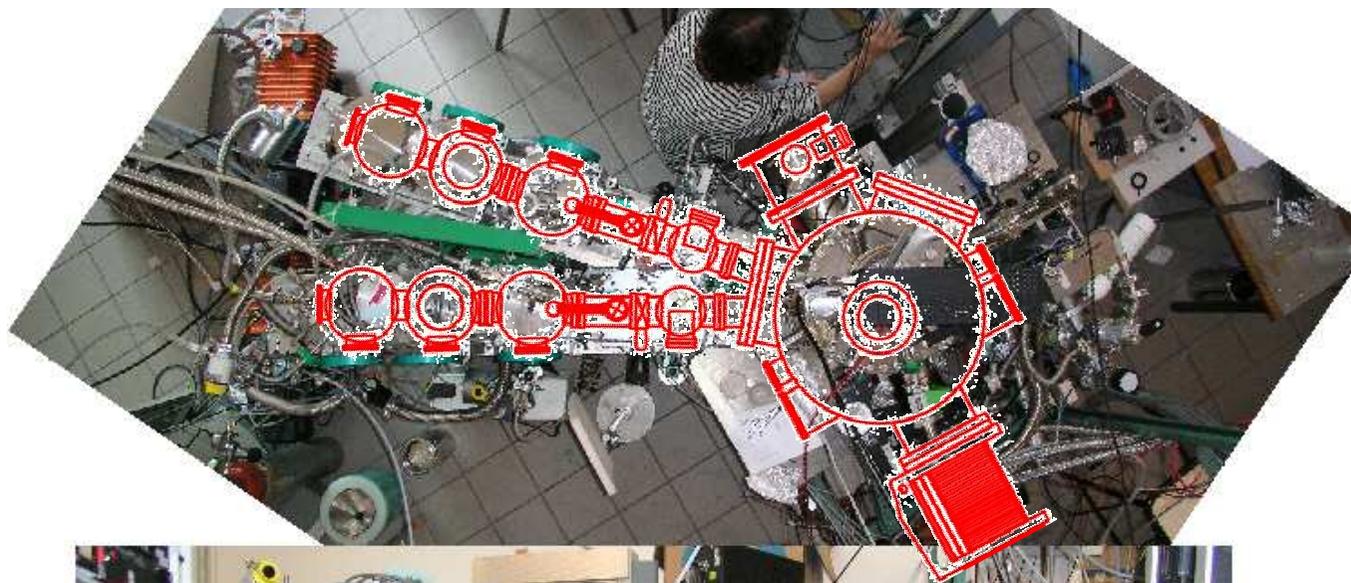
- 1 Exposition à l'Hydrogène atomique ou moléculaire
- 2 Approche du QMS
- 3 Observer les molécules qui désorbent de la surface

Spectromètre de  
masse à quadrupôle  
(QMS)



# Expérience FORMOLISM

---



# Introduction

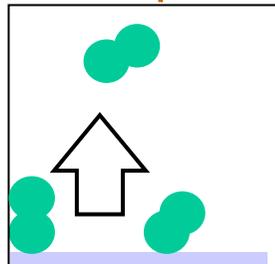
## 1.Principe des expériences

## 2.Résultats sur l'adsorption de molécules

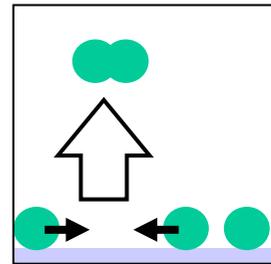
## 3.Résultats sur la formation de molécules

# Perspectives

Désorption

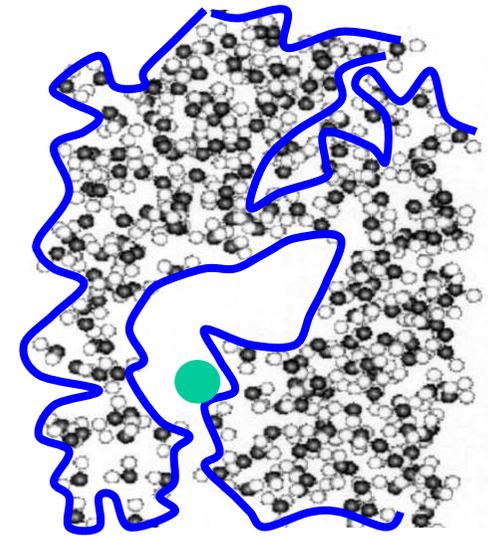
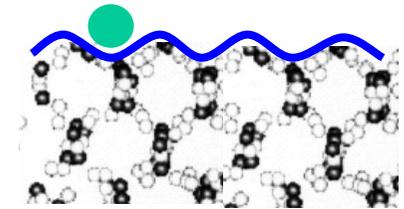
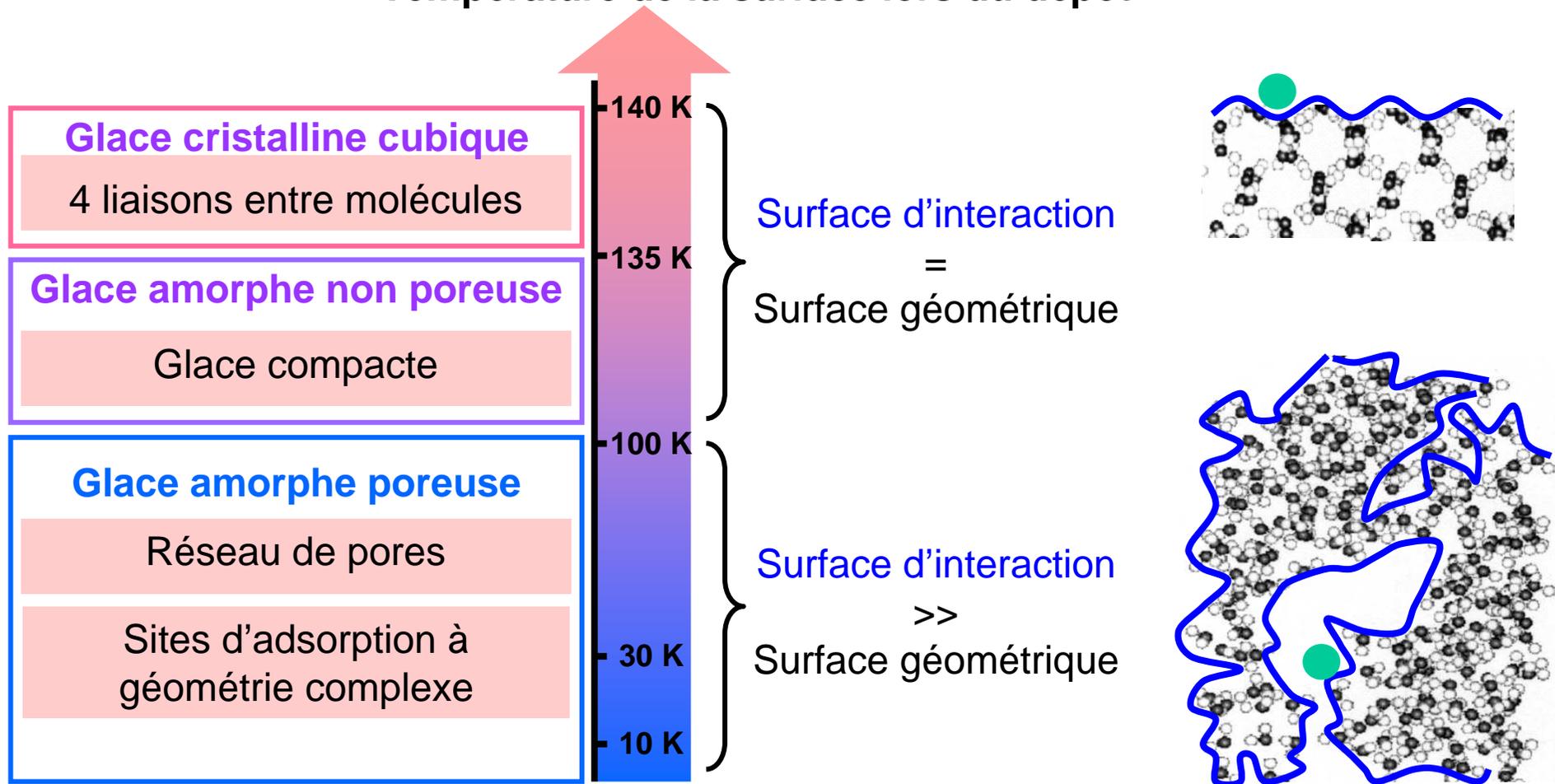


Formation



# Morphologie et propriétés associées des glaces

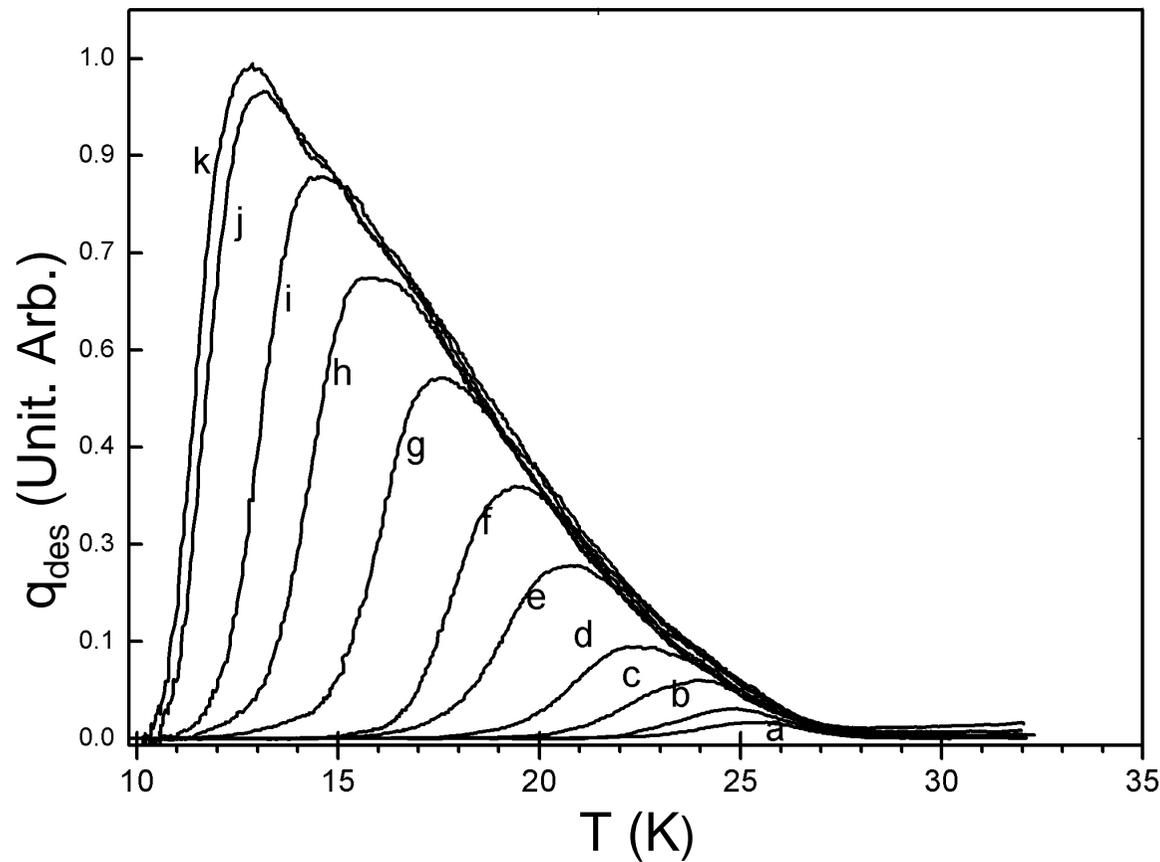
Température de la surface lors du dépôt



Guillot et al. 2004

Recuit provoque la transition irréversible entre les morphologies

# D<sub>2</sub> sur H<sub>2</sub>O ( poreuse, 10 ML, 10 K)



Désorption : large gamme de température

**Hétérogénéité** de la surface  
E n'est pas unique

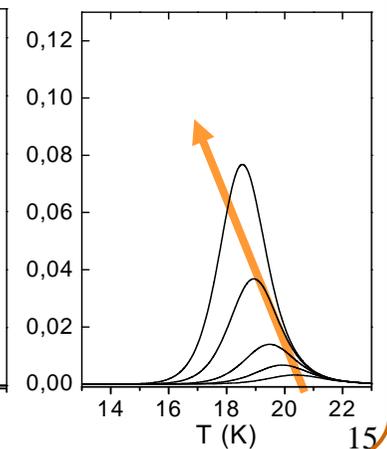
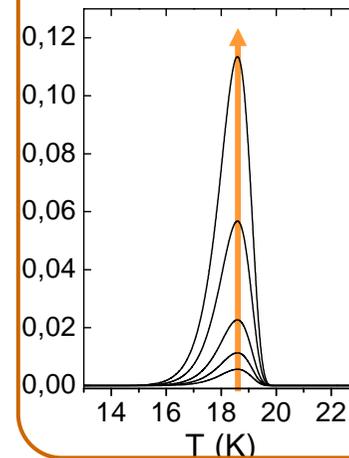
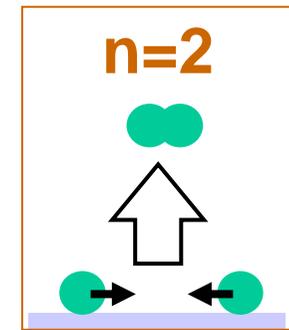
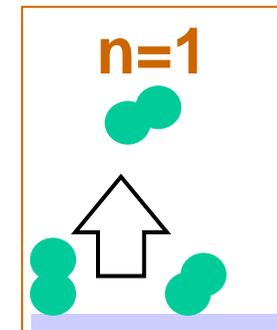
**Quantités adsorbées ?**

Collage constant → saturation

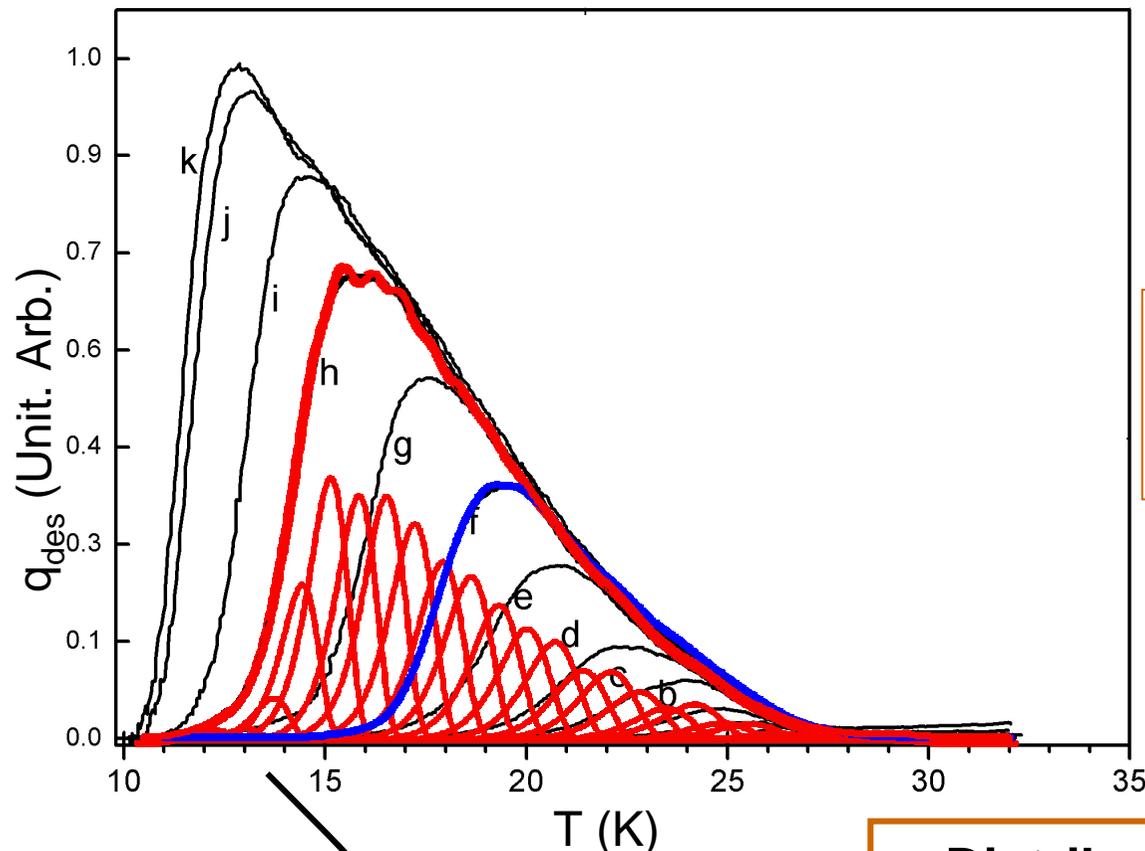
Grande surface effective

**Mécanisme de désorption ?**

$$q_{des} = -\frac{dN}{dt} = AN^n e^{-E/kT}$$

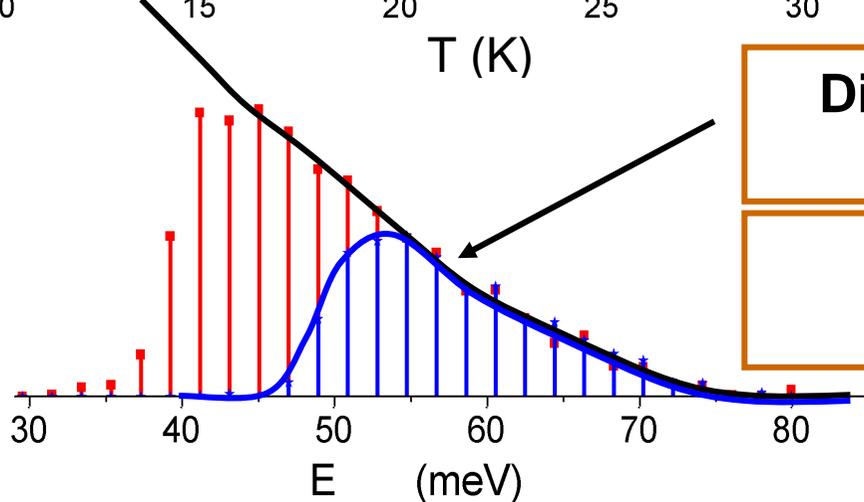


# Caractériser la désorption de D<sub>2</sub>



$$q_{des} = -\frac{dN}{dt} = AN e^{-E/kT}$$

A fixé arbitrairement  $\nu=10^{13} \text{ s}^{-1}$   
 → Inversion par décomposition

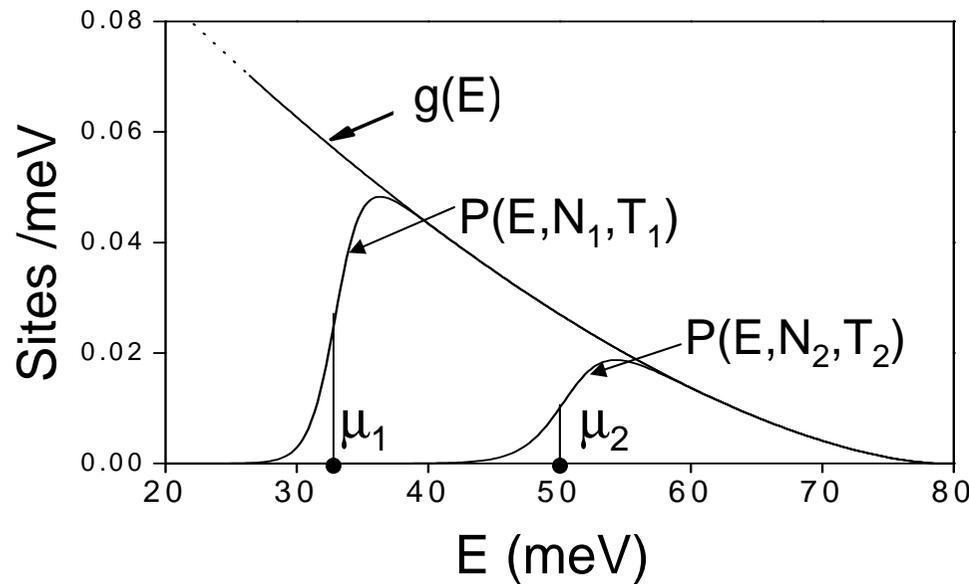


Distribution d'énergie pour les sites d'adsorption

Peuplement des sites depuis les grandes énergies → mobilité

Décrire la population ?

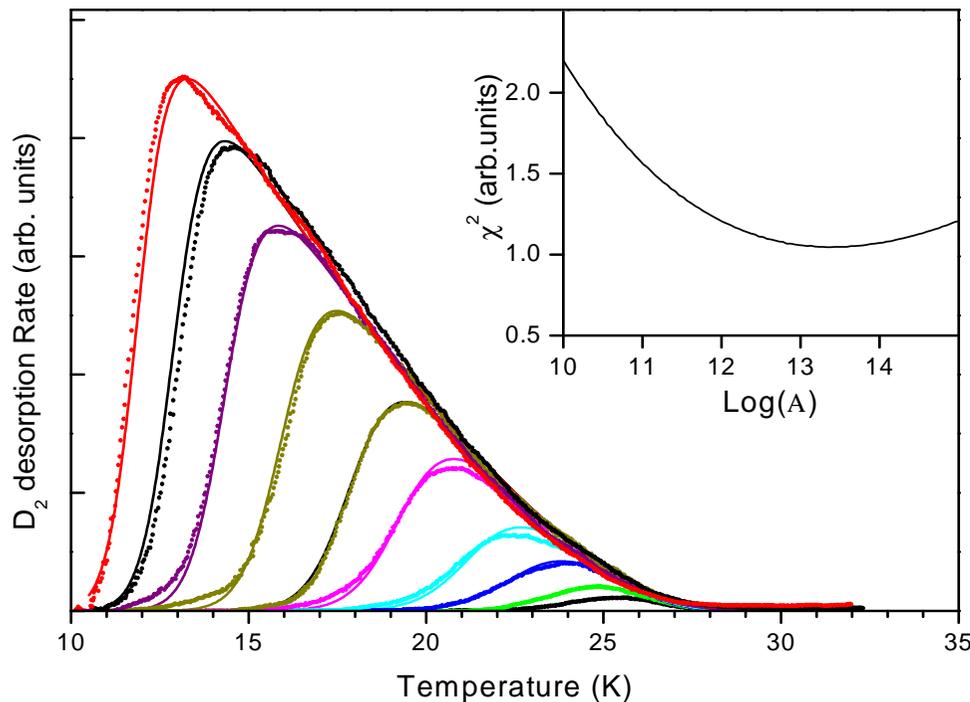
# Modéliser la désorption



Population P:

$$P(E) = g(E) \underbrace{\left\{ 1 + e^{(E-\mu)/kT} \right\}^{-1}}_{\text{Fermi-Dirac}}$$

$$N = \int_E P(E, \mu, T) dE$$



Modèle:

- 4 paramètres: A et ( a,  $E_0$ , b)

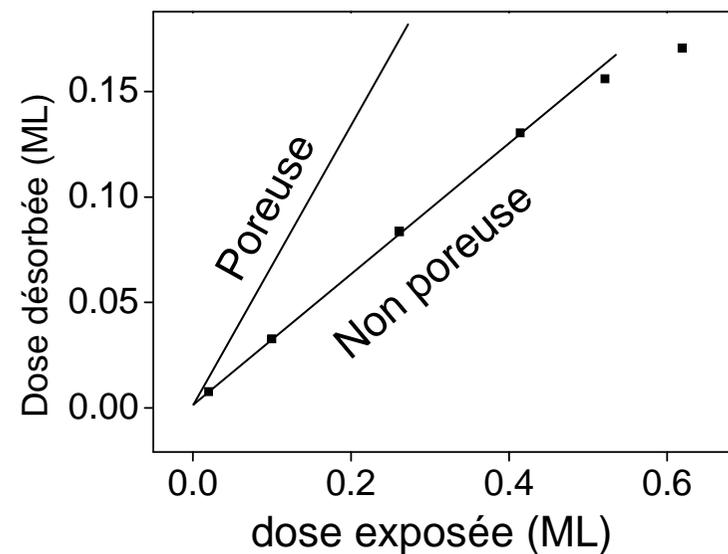
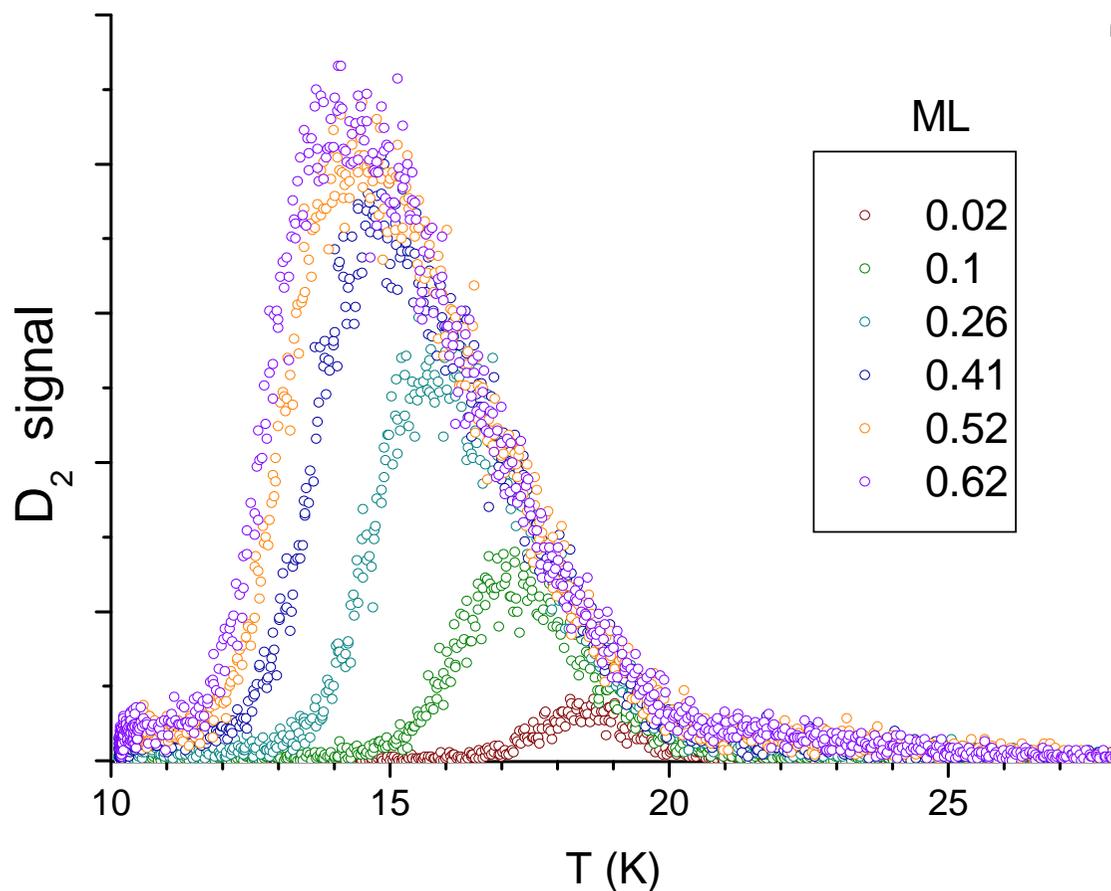
$$q_{des} = A \int_E P(E) e^{-E/kT}$$

Description correcte de la désorption

Energie d'adsorption : 30-80 meV

# Impact du type de glace ?

Désorption depuis une  
glace non poreuse



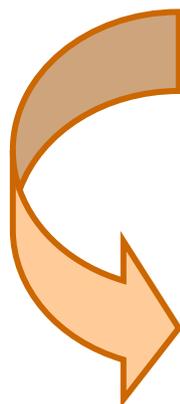
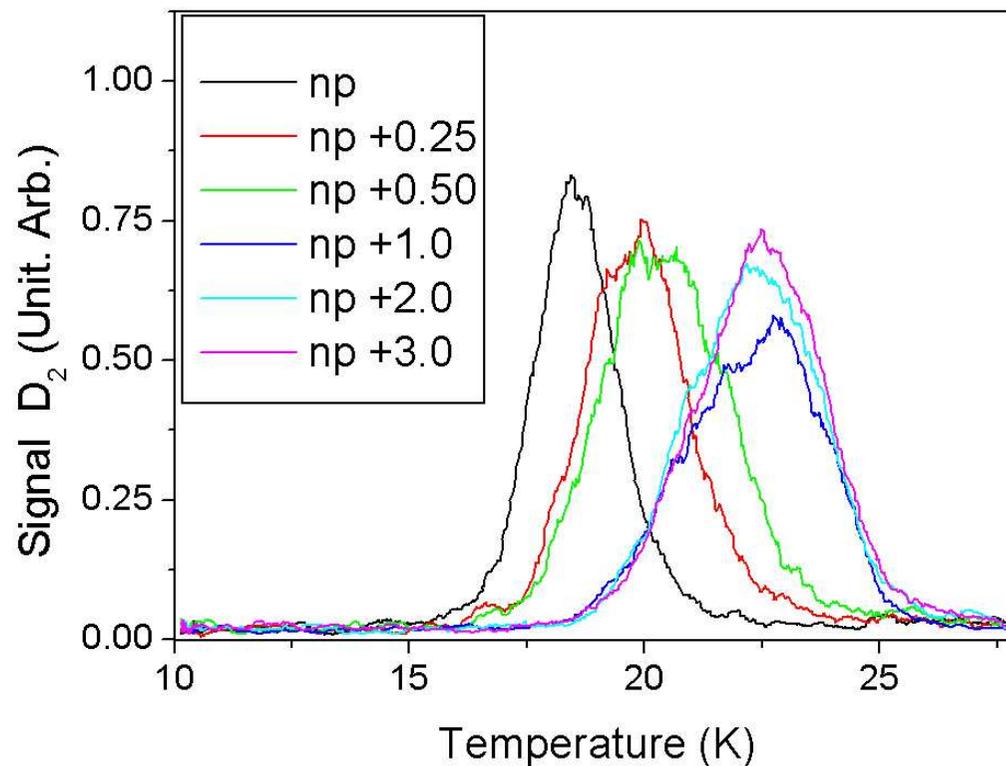
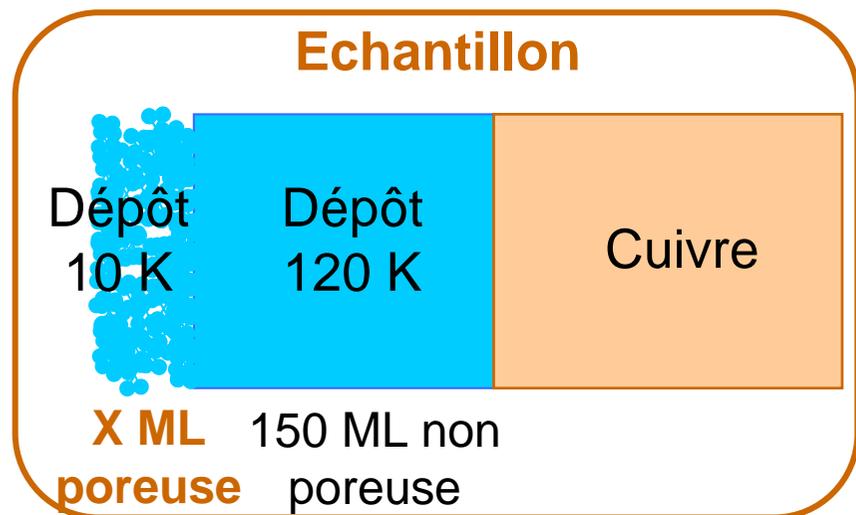
$$S_{np} = \frac{1}{2} S_p$$

Distribution d'énergies

$E \sim 30 - 45 \text{ meV}$

Différencier les 2  
morphologies

## Différentes épaisseurs : conséquences sur la desorption ?

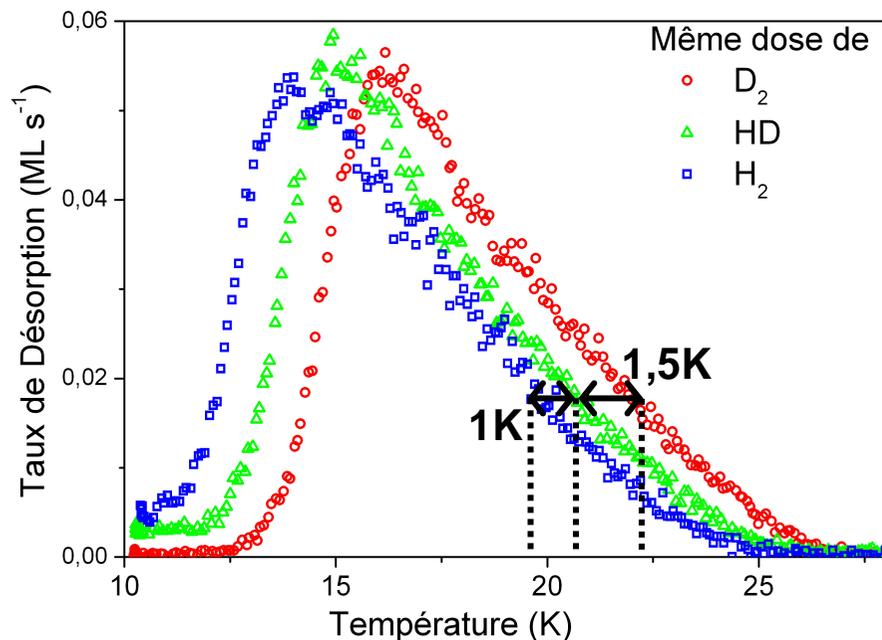


Energies de la « **glace poreuse** »  
à partir de 1 ML

**Géométrie complexe** des sites  
d'adsorption > porosité

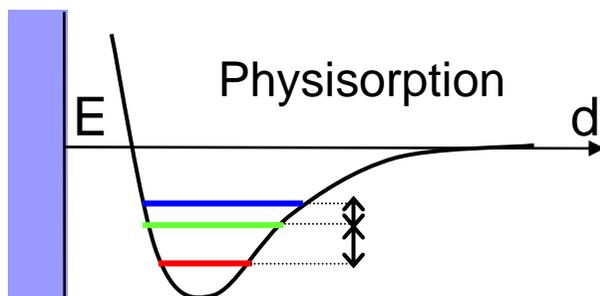
# Adsorptions de H<sub>2</sub>, HD et D<sub>2</sub> sur 10 ML, glace poreuse

## Isotopes séparés

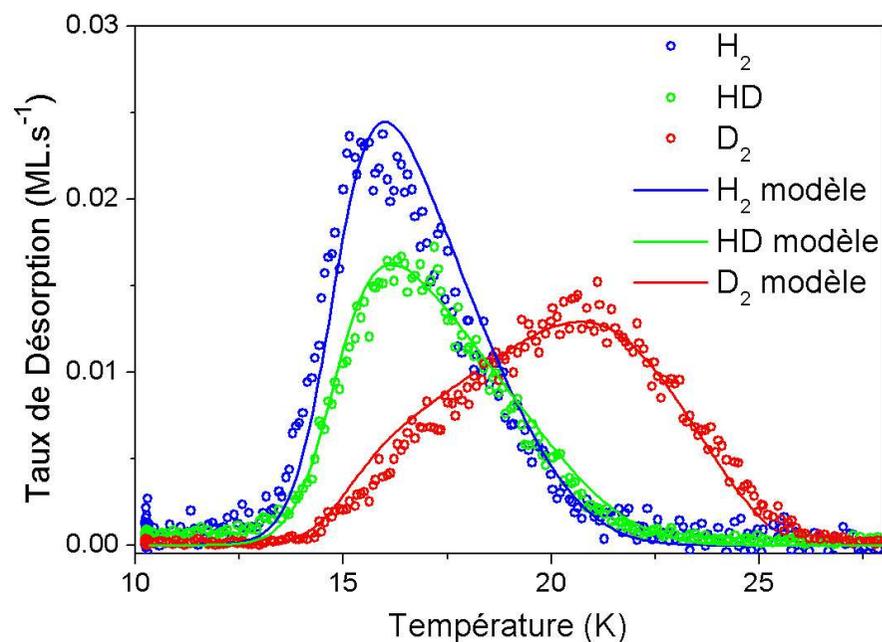


Ecart d'énergie d'adsorption

→ Différence d'énergie de point zéro (masse)



## Isotopes mélangés

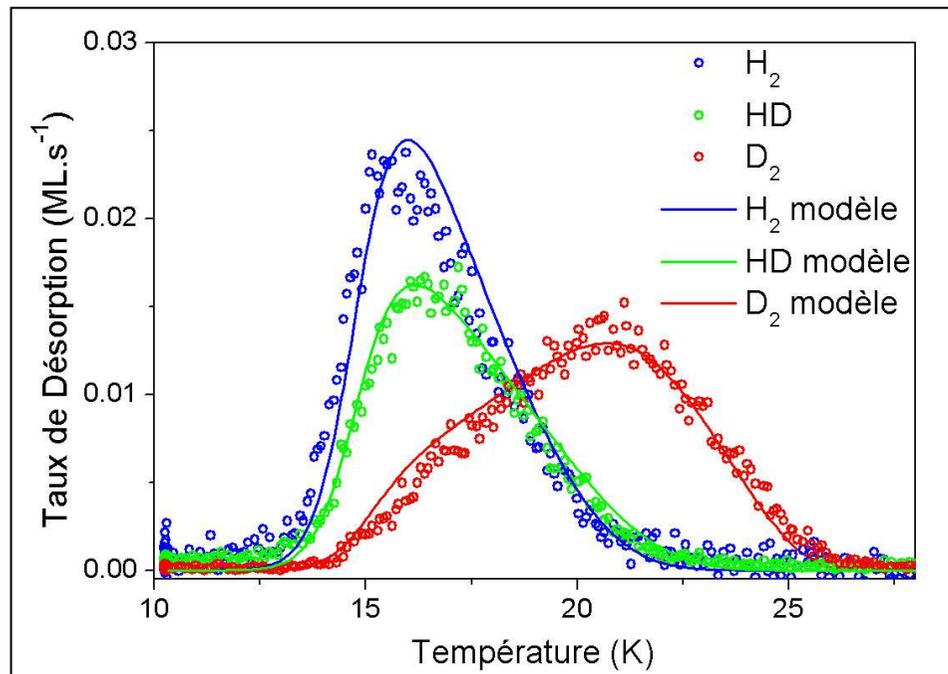


Ségrégation isotopique :

→ D<sub>2</sub> pousse HD et H<sub>2</sub>  
→ HD et H<sub>2</sub> désorbent depuis les sites les moins liants



# Mélange de H<sub>2</sub> et D<sub>2</sub>



30 expériences

proportions H<sub>2</sub>:HD:D<sub>2</sub> différentes

Modèle : ajustement simultané des 9 paramètres décrivant les 3 distributions d'énergies

## Conclusion intermédiaire

### Désorption de l'hydrogène moléculaire

- Ordre 1
- Grande mobilité : statistique de Fermi-Dirac
- Ségrégation isotopique
- Energie typique « glace poreuse » dès 1 ML
- Vaste gamme d'énergie (~30 – 80 meV)

### Temps de résidence

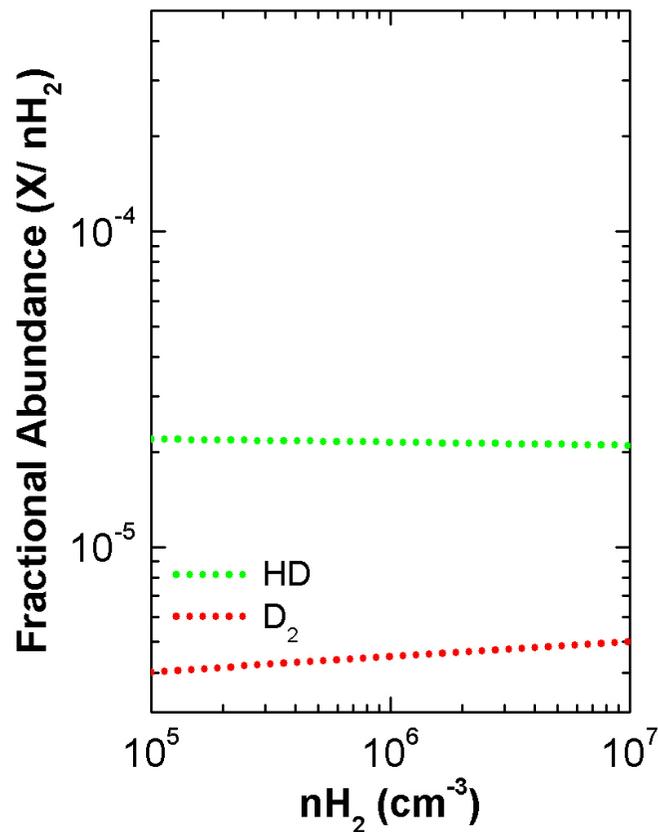
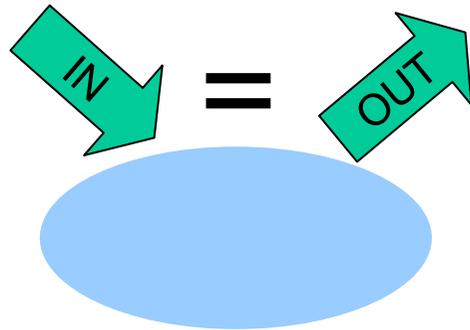
T = 10 K et A = $10^{13} \text{ s}^{-1}$			
$E_a$ (meV)	30	40	70
$t_{\text{res}}$	130 s	160 j	$10^{14}$ ans

Large distribution  
d'énergie

Ségrégation  
isotopique

Quelle **quantité d'hydrogène moléculaire**  
sur les **manteaux de glace** ?

# Application au régime stationnaire



Flower et al. 2004

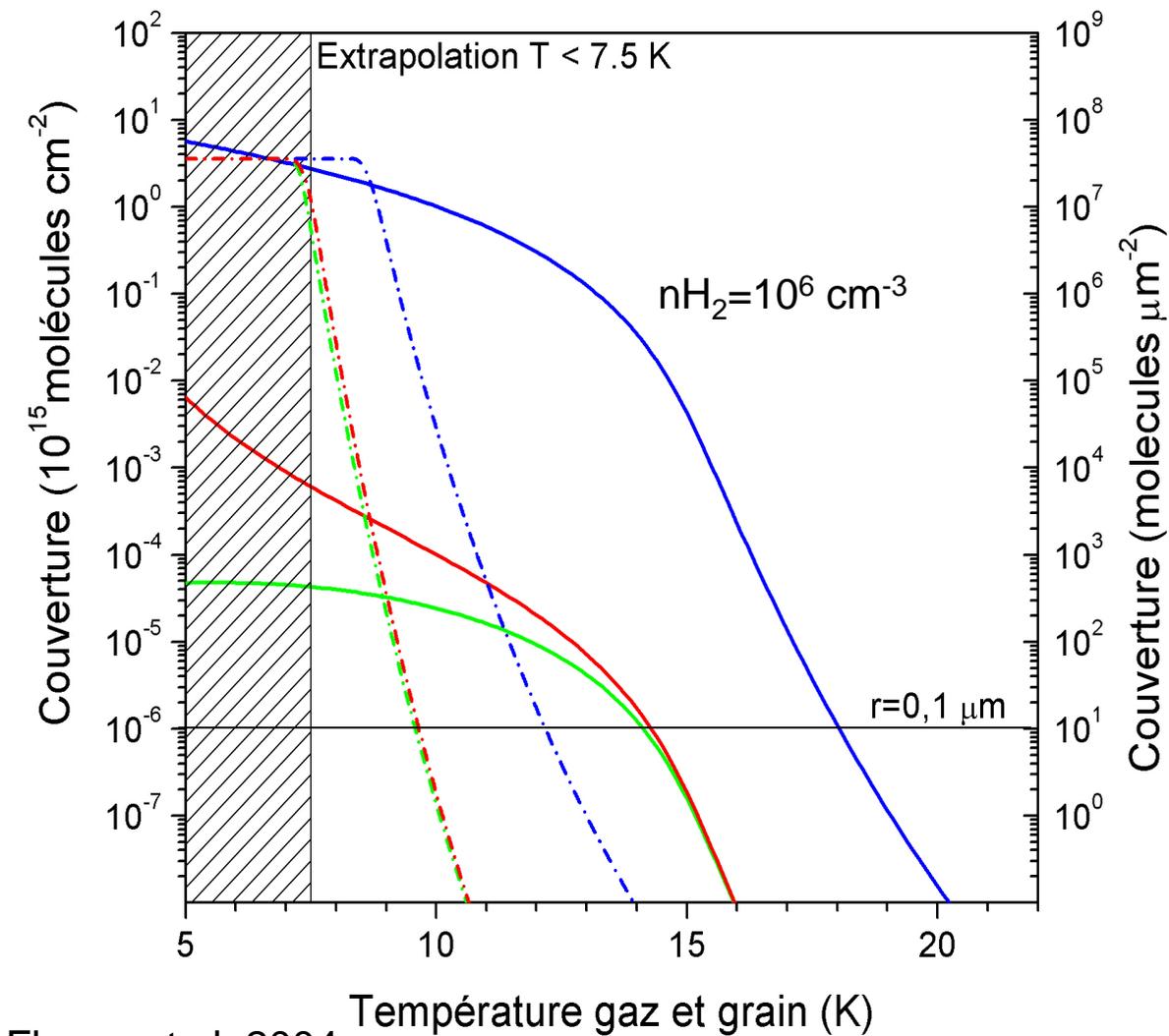
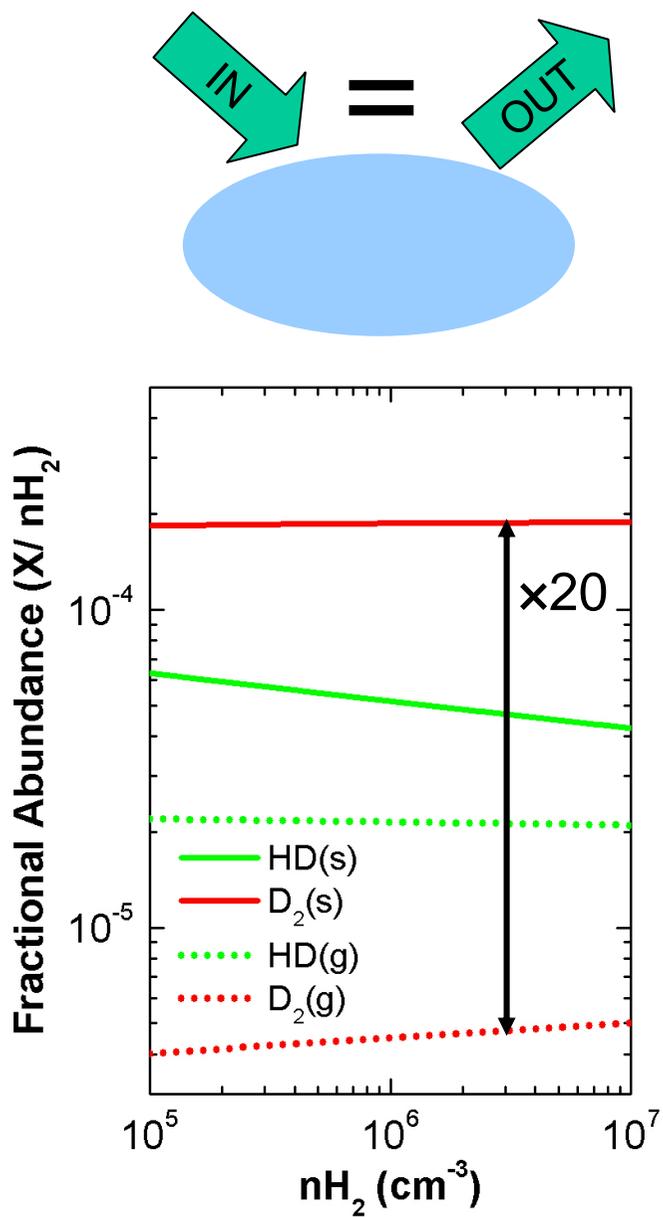
## Hypothèses

Collage identique pour les trois isotopes

Autres sources de desorption négligées (photodésorption ...)

Manteau de glace: 10 ML de glace d'eau poreuse déposée à 10 K

# Application au régime stationnaire



Flower et al. 2004

Enrichissement en D<sub>2</sub>

# Introduction

1.Principe des expériences

2.Résultats sur l'adsorption de molécules

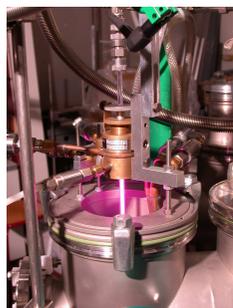
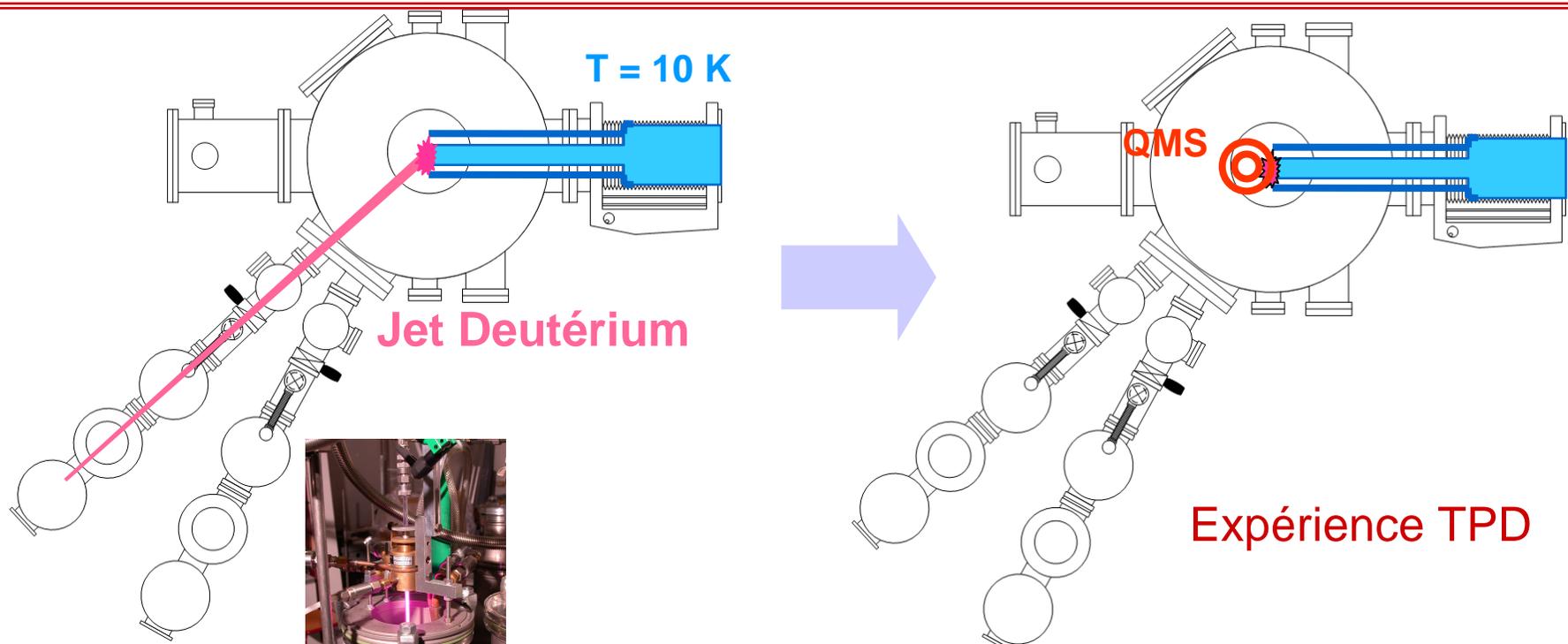
3.Résultats sur la formation de molécules

Formation sur la glace non poreuse

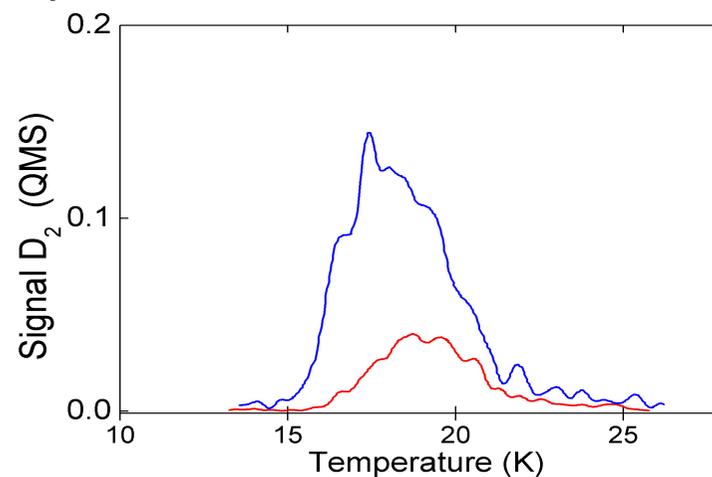
Formation sur la glace poreuse

Perspectives

# Formation sur la glace non poreuse: TPD

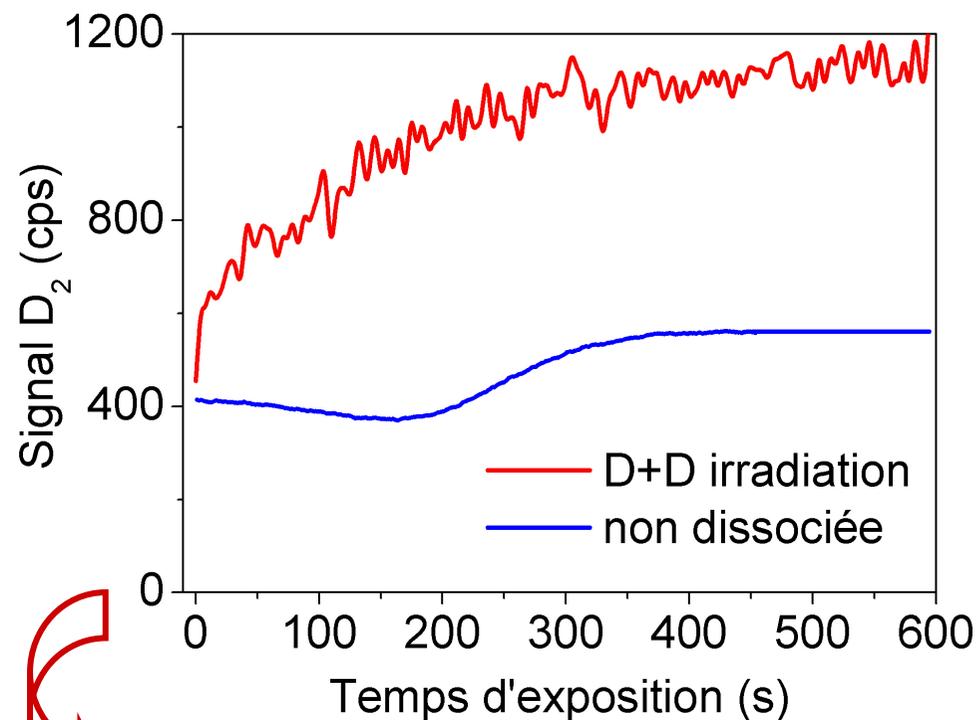
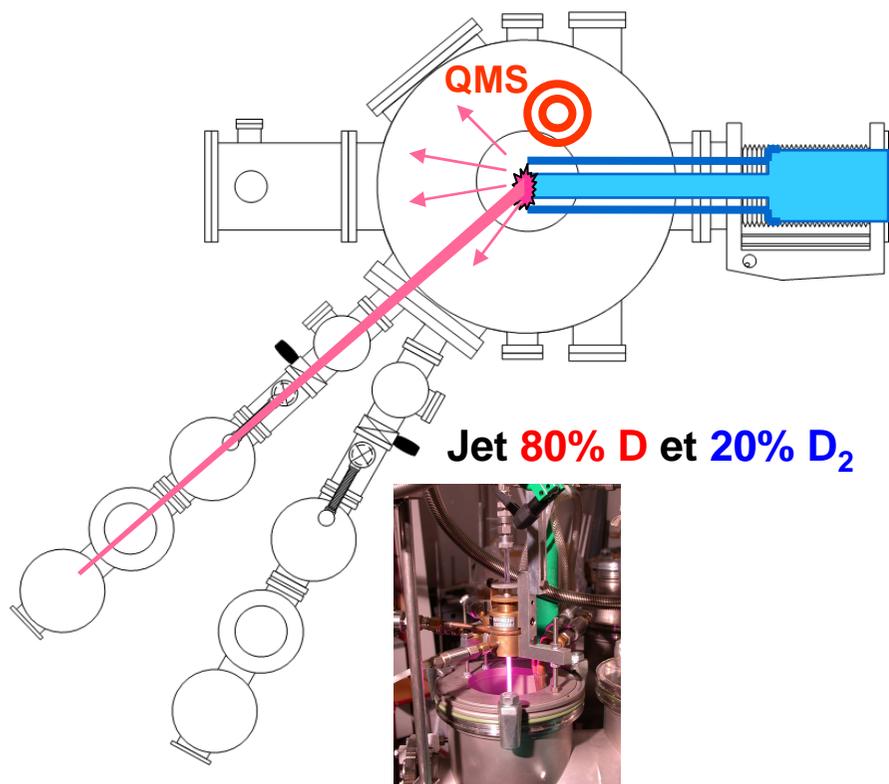


Jet 100%  $D_2$   
Jet 70% D + 30%  $D_2$   
Efficacité de formation  
 $R = 0\%$



**Aucune molécule formée au cours du TPD n'est détectée !**

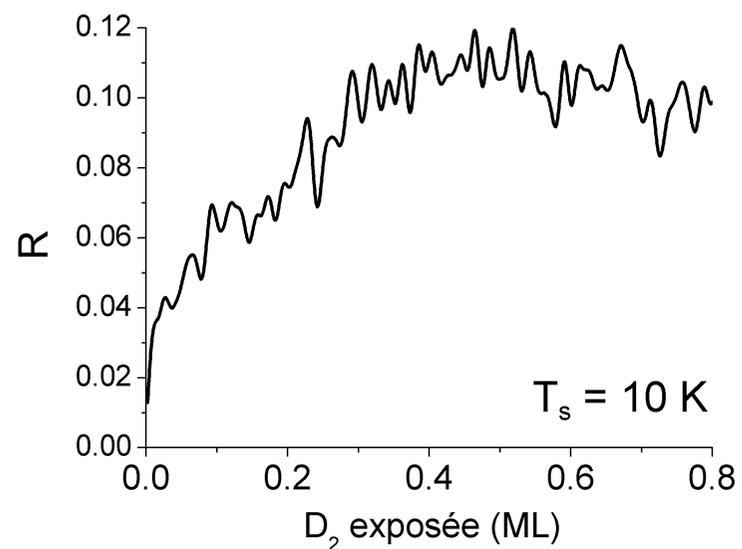
# Formation pendant l'irradiation



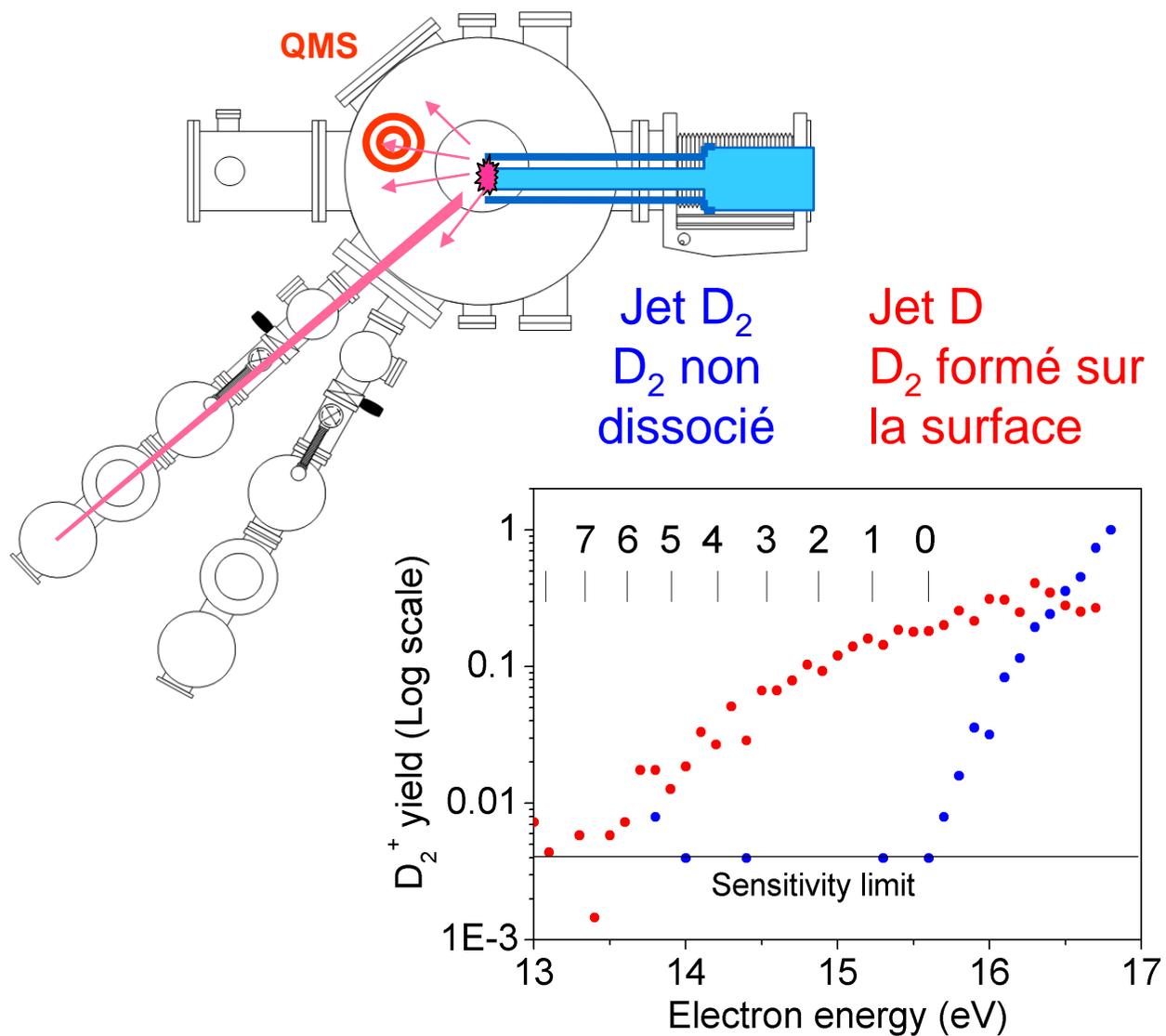
Formation **efficace** à  $T_s = 10$  K

Faible taux de couverture en atome  
→ **Langmuir-Hinshelwood**

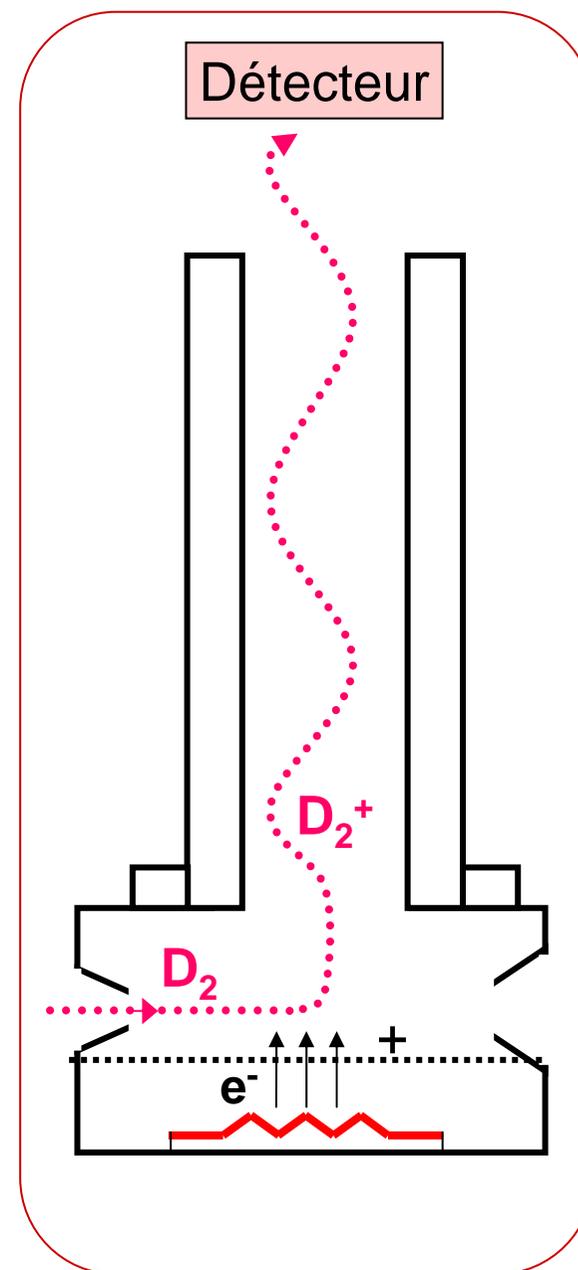
Efficacité gouvernée par le **taux de couverture en molécules**



# Energie interne des molécules formées



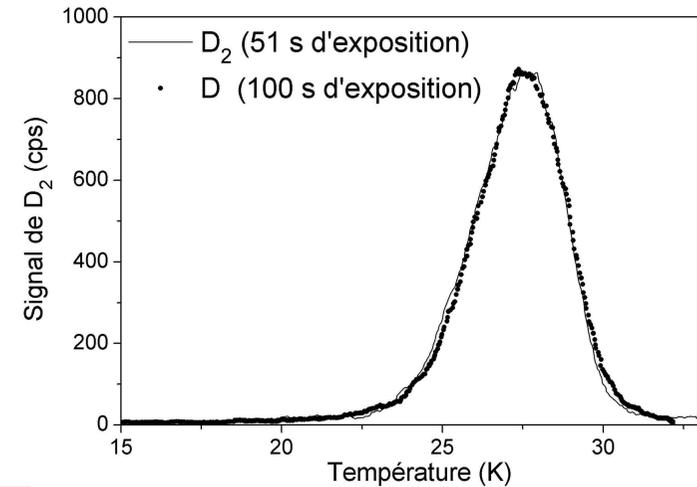
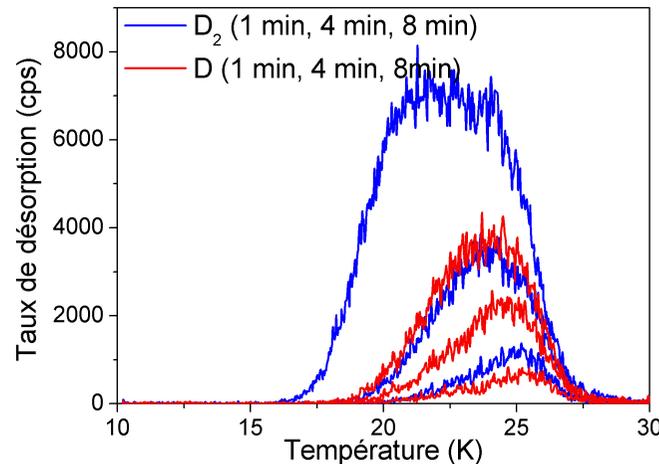
Détection d'état de vibration jusqu'à  $v=7$



# Formation sur glace poreuse

Expérience TPD:

Jet  $D_2$   
Jet D+D



1<sup>ère</sup> analyse : Efficacité

Molécules formées observées lors du TPD

$R \sim 0.3$

constant à faible couverture (<10%)

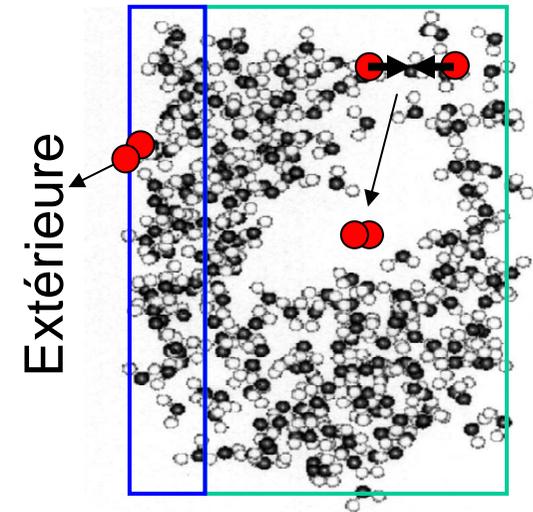
2<sup>ème</sup> analyse : Mécanisme

Courbes de désorption identiques

→ Désorption à l'ordre 1

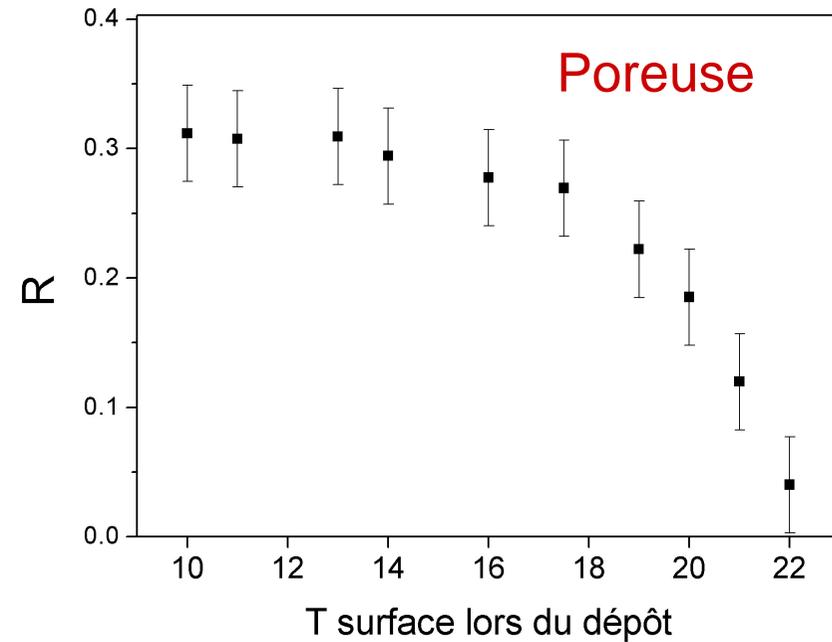
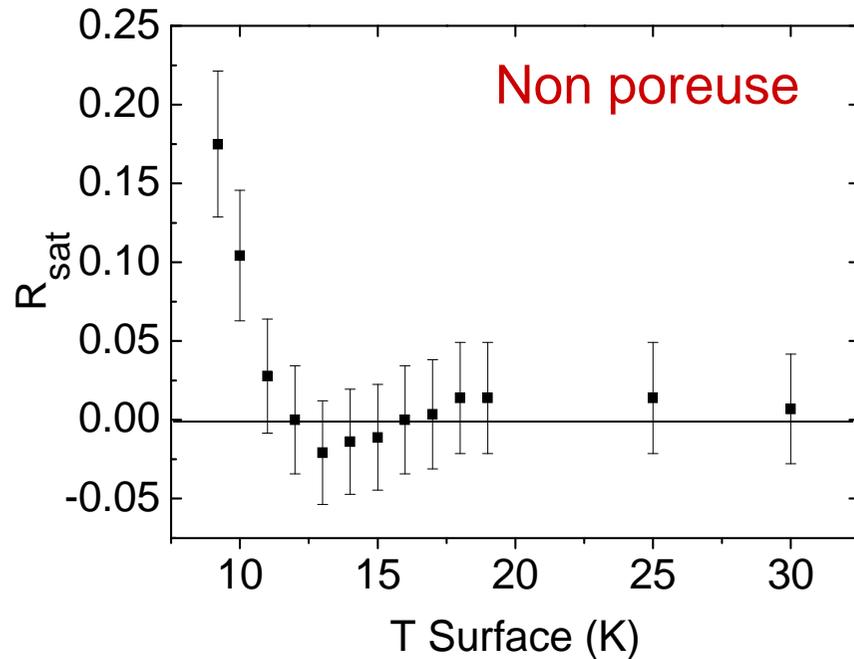
→ Formation avant la désorption

→ Existe un processus efficace de recapture



Energie de la réaction  
transférée à la surface

## Variation de l'efficacité avec T surface



Formation efficace pour  $T_s < 13$  K

Formation efficace pour  $T_s < 22$  K

**Compétition** entre **désorption** et **diffusion**:

Formation  $\rightarrow$  temps de résidence > temps de rencontre

**Non Poreuse**

$\rightarrow$  Efficacité dès la première seconde:

$\rightarrow$  E adsorption des atomes < 33 meV

**Poreuse**

$\rightarrow$  E adsorption des atomes ?

$\rightarrow$  Utiliser le modèle de S. Cazaux

# Conclusion **formation** d'hydrogène moléculaire

## Glaces poreuses

H (D) diffuse à 10 K

- Réactions d'hydrogénation actives à basse température
- Gamme d'efficacité étendue

4,5 eV transférée à la surface

## Glaces non poreuses

H (D) diffuse à 10 K

- Réaction « rapide »

- Couverture en D<sub>2</sub> favorable

Molécules excitées

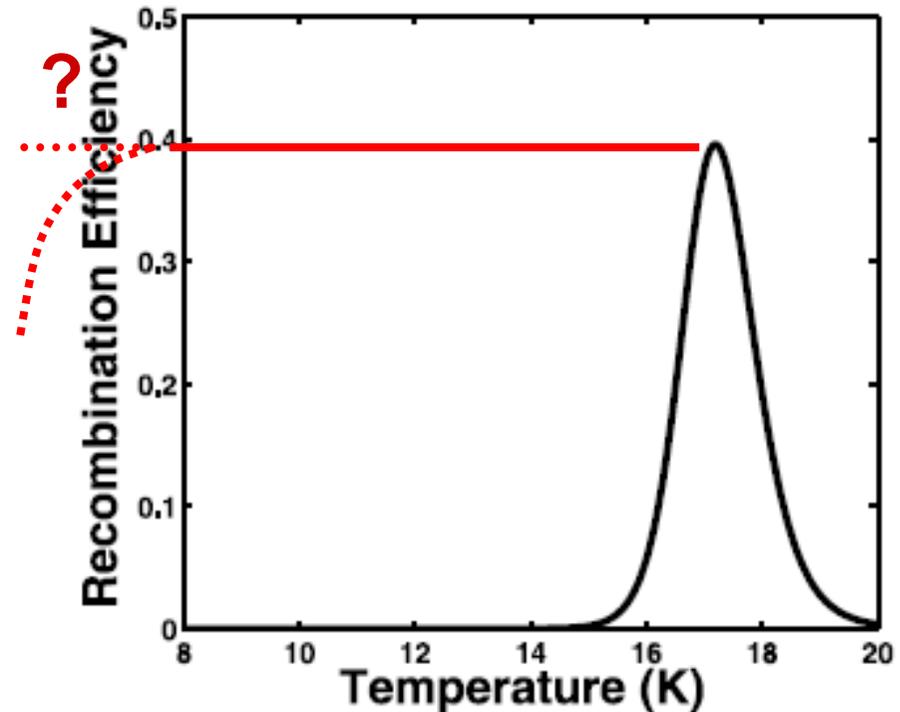
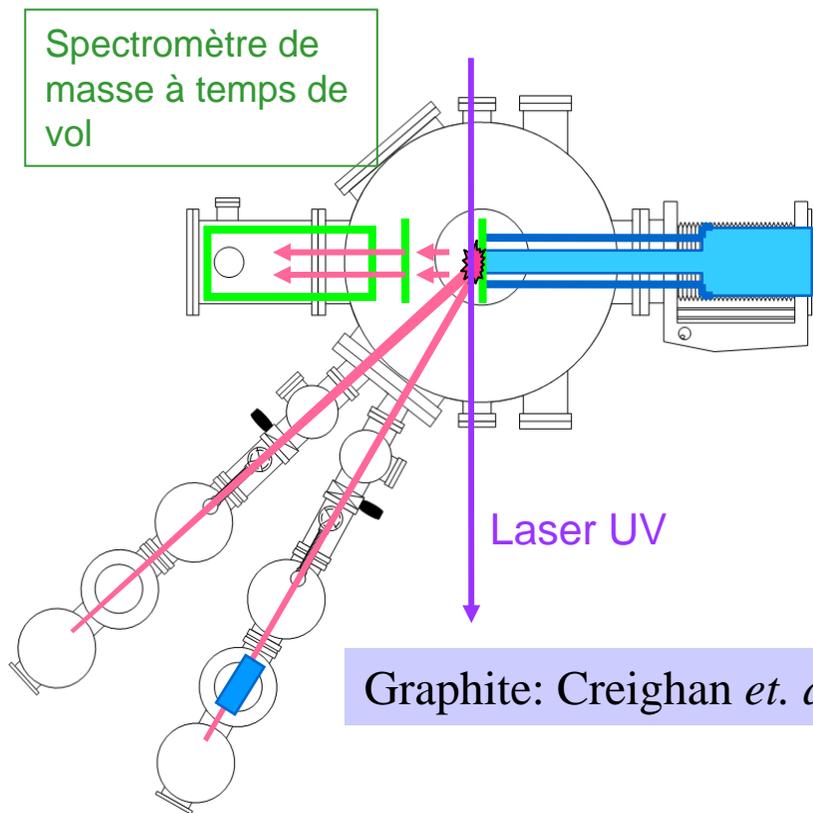


FIG. 10.—Recombination efficiency of molecular hydrogen at steady state on HDI vs. the temperature  $T$  (K), using the parameters obtained from experimental measurements of HD desorption curves. The flux is the same as in Fig. 8.

Vidali *et al.* J. Phys : Conf Ser. (2005)

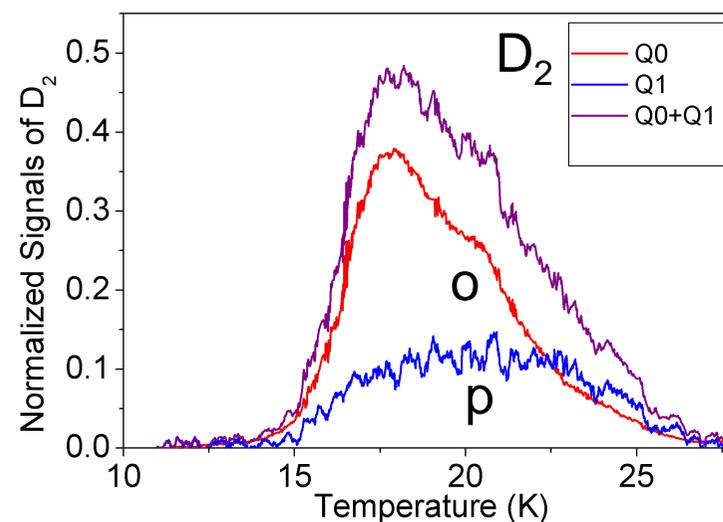
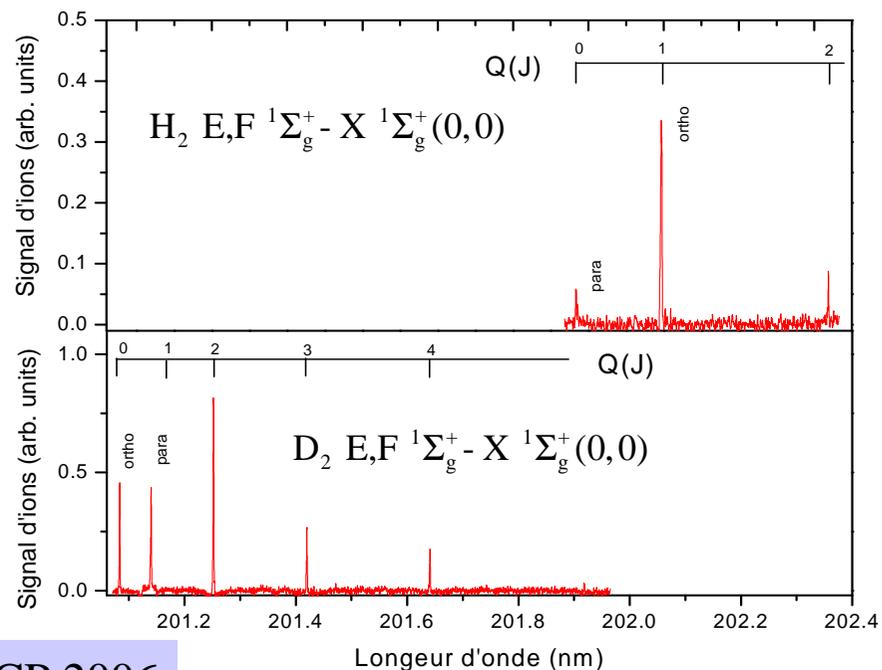
# Perspective: Détection résolue en niveau de rotation-vibration



Graphite: Creighan *et. al* , JCP 2006

TPD résolu en excitation ro-vibrationnelle

→ Différence d'énergie d'adsorption **ortho-para**



# Perspective:

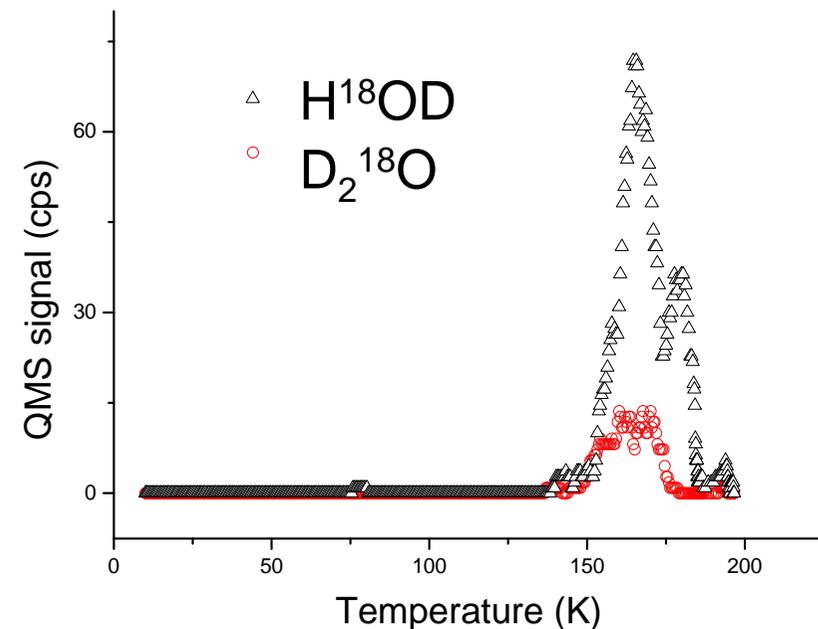
---

## Mécanismes réactionnels:

- Evolution de R en fonction de l'épaisseur de la glace
- Quelle épaisseur ? → molécules excitées  
→ recapture des molécules
- Variation de R avec  $T_{\text{jet}}$  (Collage)

## Formation d'autres molécules:

- Mécanisme réactionnel et efficacité ?
- Jet Oxygène
- Morphologie de l' $\text{H}_2\text{O}$  formée par réaction sur la surface ?



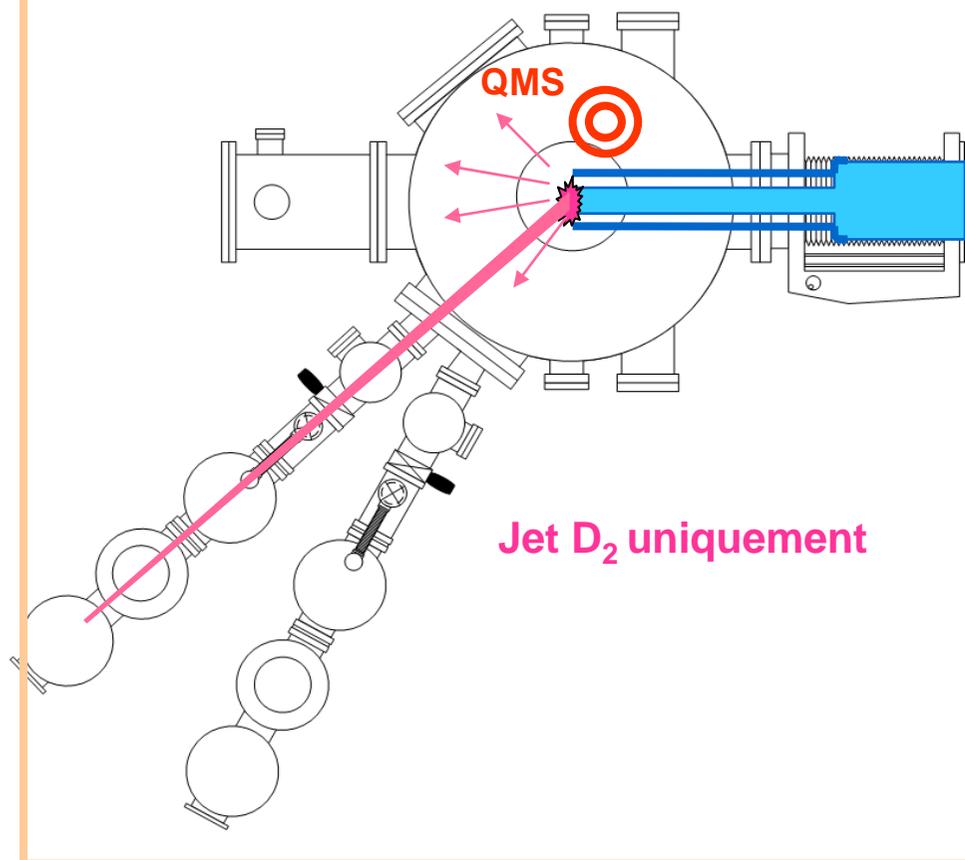
**Merci**



Laboratoire d'Étude du Rayonnement et de la Matière en Astrophysique

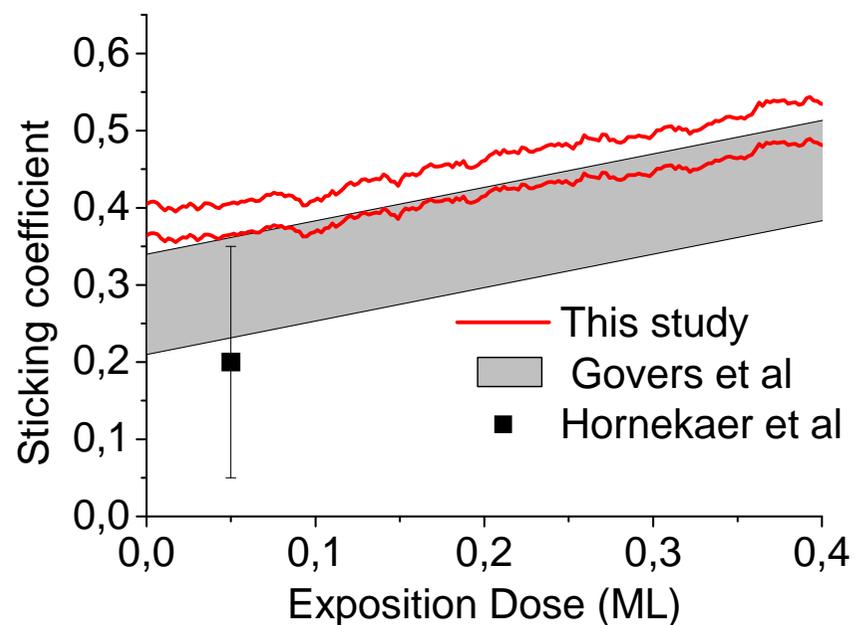
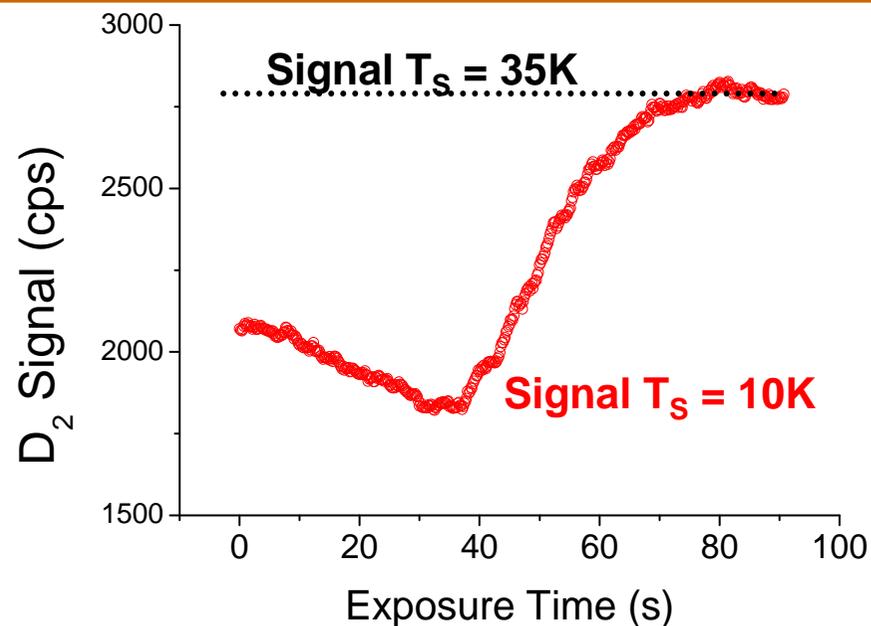
# Collage D<sub>2</sub> sur glace non poreuse ?

Mesure pendant l'irradiation



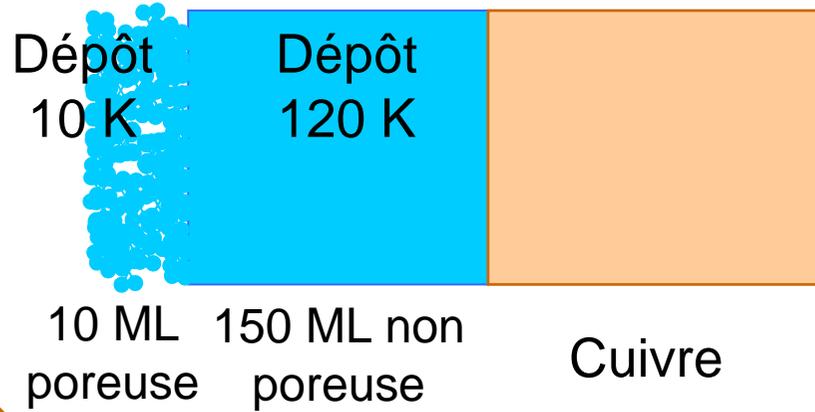
Jet D<sub>2</sub> uniquement

Coefficient de collage croissant avec la couverture, jusqu'à saturation

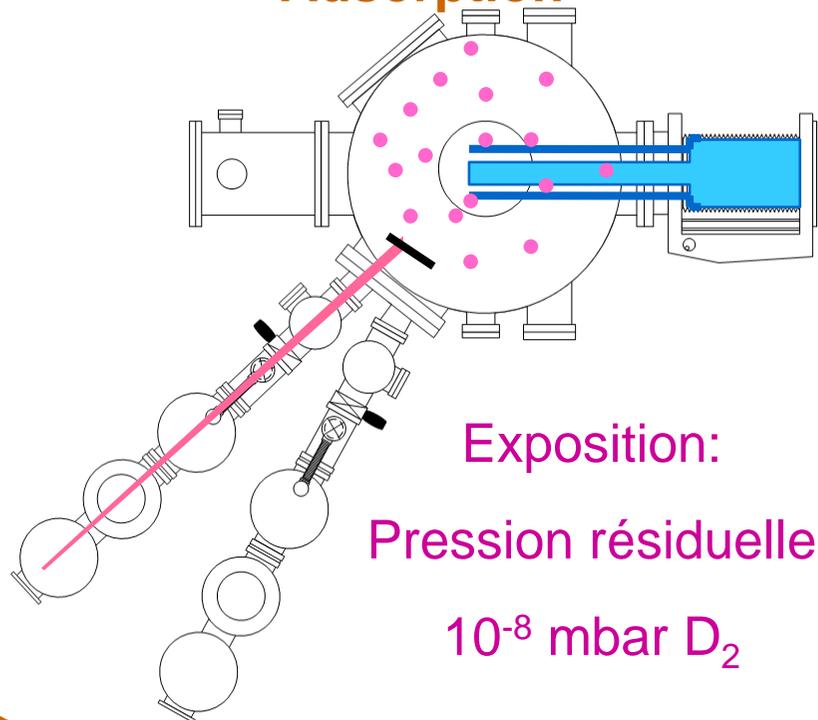


# Expériences Adsorption - désorption simple de D<sub>2</sub>

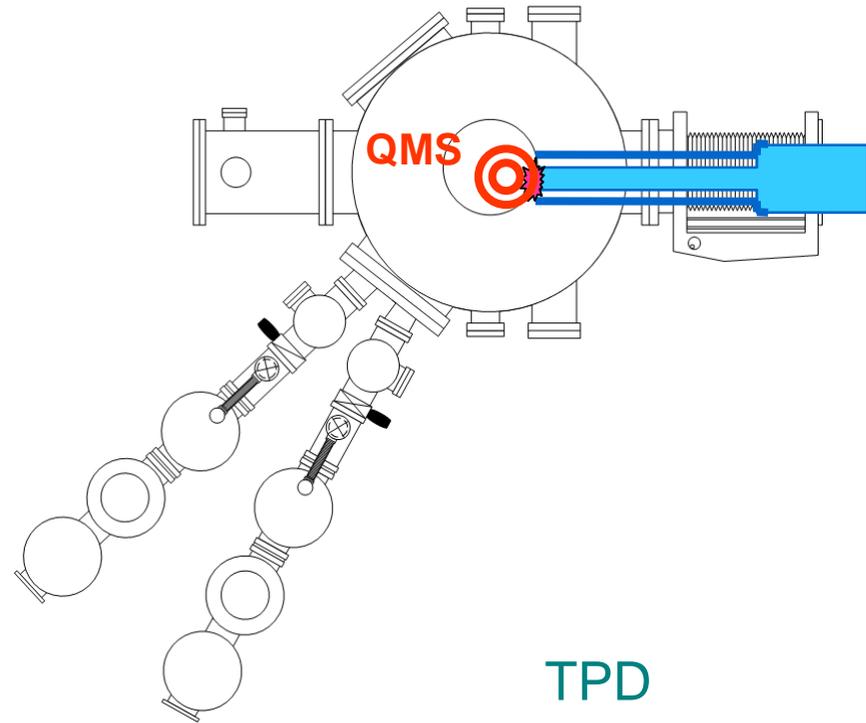
## Echantillon



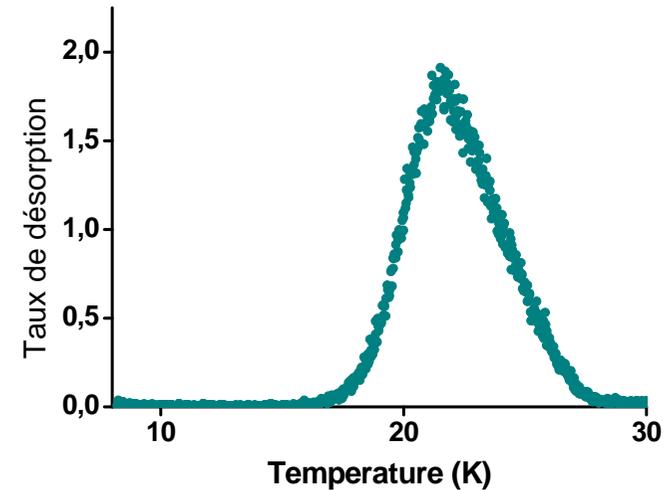
## Adsorption



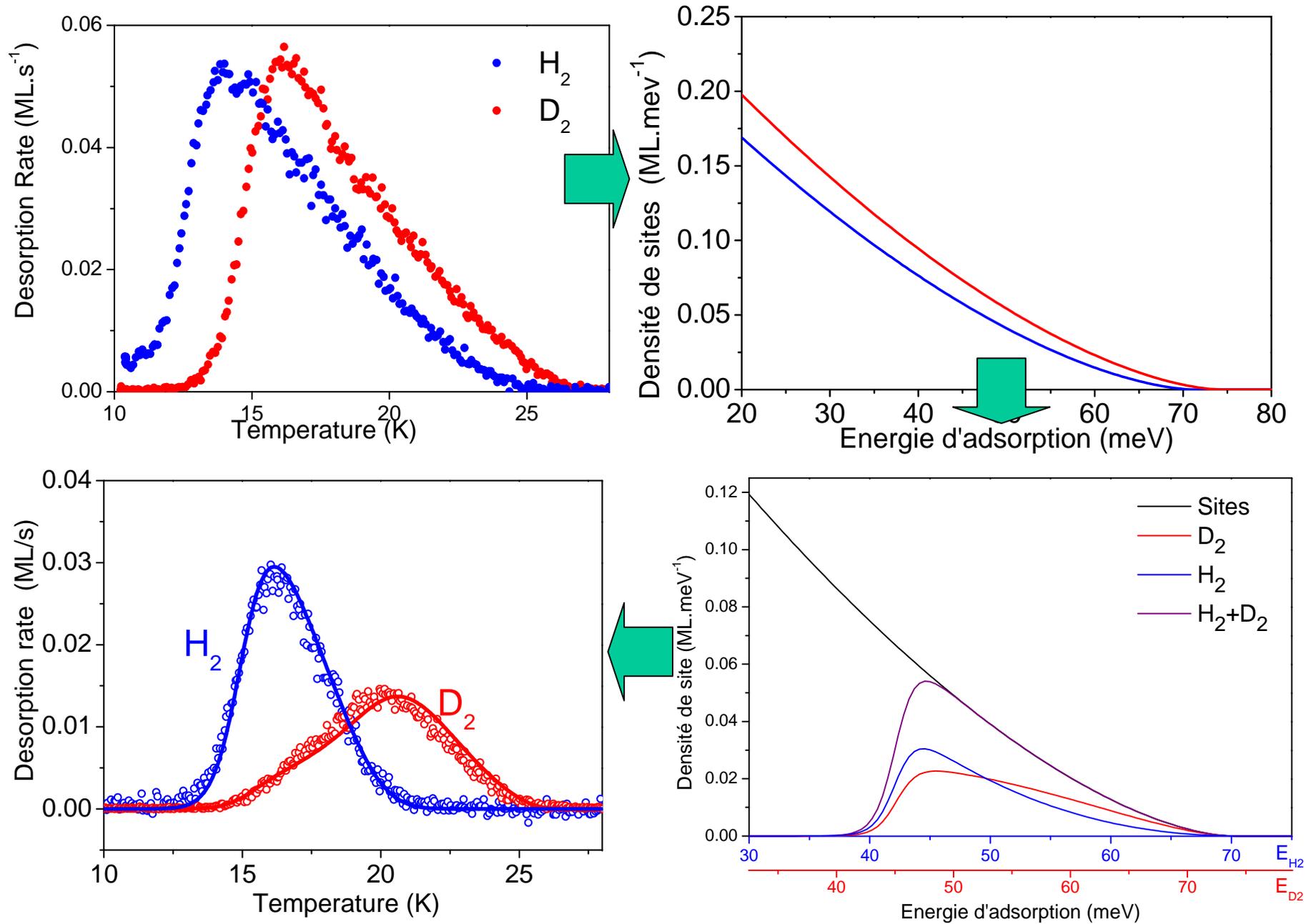
## Désorption



## TPD

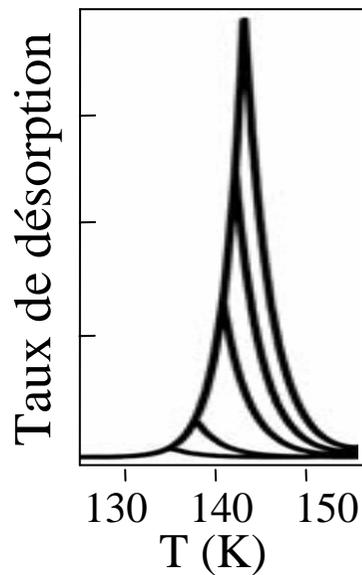
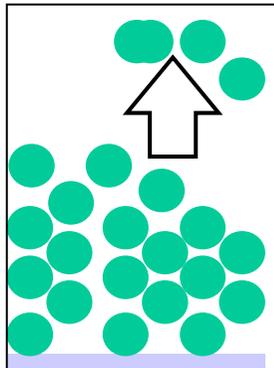


# Modélisation

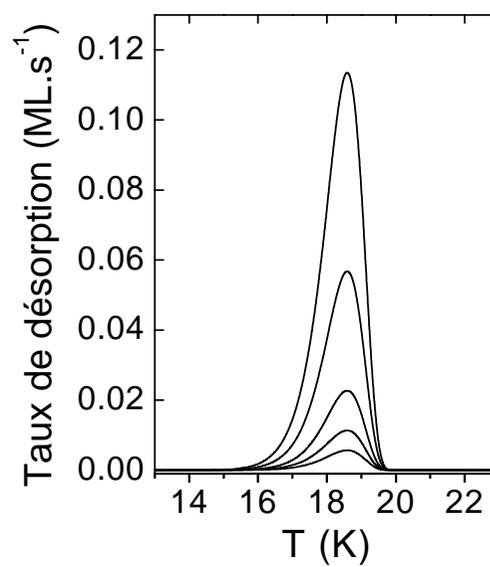
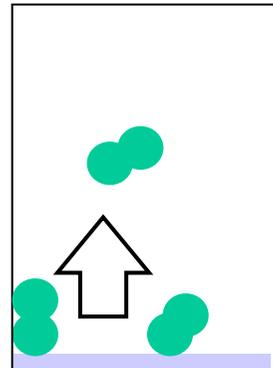


$$\frac{dN_a}{dt} = N_a^n A e^{-E_a/kT}$$

n=0



n=1



n=2

