

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE « Dr. TAHAR MOULAY » DE SAIDA

FACULTE DES SCIENCES

DEPARTEMENT DE PHYSIQUE



MEMOIRE

Présenté en vue de l'obtention du diplôme de

MASTER

Spécialité : PHYSIQUE

Option : Physique Computationnelle

Par

M^{me} BENBAHOUNA Ikram

Sur le thème

Ionisation simple de la molécule d'eau par impact de protons.

Soutenu le /09/2020 devant le jury composé de :

M. EL-KEURTI Mohammed	Professeur	Université de Saïda	Président
M. SAHLAOUI Mohammed	Professeur	ESSA-Tlemcen	Encadreur
M. LASRI Boumediene	Professeur	Université de Saïda	Co-Encadreur
M. BOUDRAA Kamel-Eddine	M.C.A	Université de Saïda	Examineur

Année Universitaire 2019 - 2020

Dédicace

Je dédie ce mémoire

A mes chers parents ma mère et mon père

Pour leur patience, leur amour, leur soutien et leurs encouragements.

A mon mari

A mes frère Abd- echakour et Abd- ullah.

A mes sœurs Douaa et Hadjer

A ma famille et mes amis

Sans oublier tout ma famille et tous les professeurs que ce soit du primaire, du moyen, du secondaire ou de l'enseignement supérieur.

IKRAM



Remerciement

Après avoir rendu grâce à Dieu le tout puissant et le

Miséricordieux nous tenons à remercier vivement tous ceux qui, de près ou loin ont participé à la rédaction de ce mémoire. il s'agit plus particulièrement du :

Professeur LASRI Boumediene et le Professeur Sahlaoui Mohammed pour l'honneur qu'elle nous accordé pour d'ériger mon mémoire .

Mes remerciements les plus vifs sont adressés également

Aux membres de jury, Le Professeur El-Keuri Mohammed ainsi que le Docteur BOUDRAA Kamel-Eddine , pour avoir accepté de juger mon travail.

merci.



Résumé

La molécule rentre dans la construction de la structure chimique de la matière biologique. C'est pour cette raison qu'elle est importante pour le domaine de la radiobiologie. Des données sur l'ionisation simples de la molécule d'eau sont très utiles afin de caractériser l'effet d'une radiation ionisante sur la matière biologique. De tels données sont obtenus à partir des calculs numériques des sections efficaces. Un flux de protons est une radiation ionisante, c'est la raison pour laquelle nous avons proposé ce sujet où les sections efficaces sont obtenues dans le cadre de la première approximation de Born.

Table des matières

Introduction générale	01
<u>Chapitre I</u> : Généralités sur la théorie des collisions atomiques et moléculaires.....	03
I-1.Introduction.....	03
I-2.Elément théorique.....	04
I-2-1 :Ionisation.....	04
I-2-2 :L'excitation.....	05
I-2-3 :La capture électronique.....	05
I-3.Matrice de transition.....	06
I-4.L'approximation de Born.....	07
I-4-1 :Commentaires sur la validité de l'approximation de Born.....	11
I-5.L'approximation iconale.....	12
I-6.Approximation de Born aux ondes distordues.....	12
I-7.Modèle convergent close coupling(ccc).....	13
I-8.Ionisation :terminologie et notion.....	14
I-8-1 :Le processus de simple ionisation($e,2e$).....	14
I-9.Section efficaces d'ionisation.....	15
I-9-1 :Section efficace triplement différentielle(SETD).....	17
I-9-2 :Section efficace doublement différentielle(SED).....	18
I-9-3 :Section efficace simplement différentielle.....	19

I-10.Références.....	21
Chapitre II : Ionisation de cible atomiques et moléculaires par impact d'électron et de protons.....	22
II -1.Introduction.....	22
II -2.Première approximation de Born.....	25
II -2-1 :Impact par électron.....	25
II -2-2 :Impact par proton.....	27
II -3.Deuxième approximation de Born.....	27
II -3-1 :Impact de électron.....	27
II -3-2 :Impact de proton.....	30
II -4.Le principe variationnel de Schwinger.....	30
II -5.Terminologie et notions.....	31
II -6. Les expériences(e,2e).....	33
II -6-1 :Conditions cinématiques.....	33
II -6-1-1 :Géométrie symétrique.....	34
II -6-1-1-1 :Géométrie symétrique coplanaire.....	34
II -6-1-1-2 :Géométrie symétrique non coplanaire.....	36
II -6-1-2 :Géométrie asymétrique.....	37
II -6-1-2-1 :Géométrie asymétrique coplanaire.....	37
II -6-1-2-2 :Géométrie asymétrique non coplanaire	38
II -7.Références.....	39

<u>Chapitre III</u> : Ionisation de la molécule d'eau par impact de protons	41
.....	41
III-1.Introduction.....	41
III-2. Formalisme théorique.....	42
III-3.Résultats et discussions.....	47
III-4.Références.....	55
Conclusion.....	57

Introduction générale

Les études des processus d'ionisation simple d'une cible atomique ou moléculaire par impact de particules chargées, et plus particulièrement par impact de proton est l'un des domaines les plus importants dans la Physique des collisions atomiques. Ce processus intervient dans différents domaines comme la physique des plasmas, l'astrophysique et la radiobiologie. L'analyse des informations qu'apportent ces études joue un rôle essentiel aussi bien dans la compréhension de la structure de la matière que de la dynamique de la collision. Cependant, durant plusieurs années, la plupart des travaux théoriques et expérimentaux sur des collisions ne se focalisent que sur des molécules diatomiques simples, les molécules polyatomiques plus complexes ont été moins étudiées. Dans ce travail nous allons étudier l'ionisation simple d'une molécule triatomique qui la molécule H_2O par impact de proton. La réaction dite d'ionisation simple réfère spécifiquement à un processus dans lequel une particule projectile provoque une ionisation simple en arrachant un électron de la cible. Les deux particules sortantes sont analysés durant une expérience de collision en énergie et en direction et sont détectés en coïncidence pour garantir qu'ils proviennent du même événement ionisant. La grandeur physique ainsi mesurée est la section efficace, qui contient des informations sur le processus d'ionisation.

L'objectif de ce travail théorique consiste à l'application du de la première approximation de Born, en employant le model d'une fonction d'onde de Coulomb a l'ionisation simple de la molécule d'eau par impact de proton. La molécule d'eau constitue la composante principale de la matière biologique, ce qui fait de cette molécule une cible très intéressante pour étudier les processus d'interaction des radiations avec les tissus vivants. Donc, dans cette étude le projectile est un proton qui est plus lourd de 1836 fois la masse d'un électron.

L'étude de l'ionisation d'une cible moléculaire est plus compliquée que l'étude d'une cible atomique. En plus, il est indispensable de vérifier la précision d'un formalisme en considérant d'abord des cibles atomiques de structure simple comme l'atome d'hydrogène ou l'hélium avant de l'utiliser dans l'étude de cibles atomiques ou moléculaires de structures électronique plus compliquées. C'est le cas du formalisme utiliser dans le travail présent qui a été utilisé pour étudier l'ionisation simple des atomes d'hydrogène et d'hélium et les molécules d'eau et de méthane par impact d'électron [1-5].

Le présent travail est constitué d'une introduction et d'une conclusion ainsi que trois chapitres. Dans le premier chapitre nous avons commencé par donner des généralités sur la théorie des collisions atomiques et moléculaires. Dans le deuxième chapitre nous avons présenté l'ionisation simple d'une cible atomique ou moléculaire par impact d'électron et de proton. Dans le troisième chapitre nous avons étudié l'ionisation de la molécule d'eau par impact de proton.

Références :

- [1] A. Boukhikhi, M. Sahlaoui and B. Lasri et al., *J. Phys B: At. Mol. Opt. Phys.*, 52, 015201 (2019).
- [2] M. Sahlaoui, B. Lasri and M. Bouamoud, *Can. J. Phys.*, 92, 136 (2014).
- [3] M. Sahlaoui, M. Bouamoud and B. Lasri et al., *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 46, 115206 (2013).
- [4] M. Sahlaoui and M. Bouamoud, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 45, 085201 (2012).
- [5] M. Sahlaoui and M. Bouamoud, *Can. J. Phys.*, 89, 723 (2011).

Chapitre I

Généralités sur la théorie des collisions atomiques et moléculaires

I-1. Introduction

Les études menées sur les collisions entre des projectiles est des cibles atomiques ou moléculaires constituent une source d'information très importante et originale sur la structure atomique et moléculaire et sur les processus induit par effet de l'interaction cible-projectile. Ces études présentent un grand intérêt aussi bien fondamental que pratique pour la compréhension de plusieurs phénomènes naturels notamment pour la physique des plasmas, la fusion thermonucléaire, l'astrophysique et la radiobiologie. En astrophysique par exemple, les mécanismes d'interaction cible-projectile (capture, ionisation, excitation) interviennent au cour de la formation d'objets cosmologiques tels que les disques d'accrétion autour des trous noirs [1][2].

L'ionisation des atomes ou des ions atomiques par impact d'électrons est un processus fondamental en physique atomique. Il est omniprésent dans différents champs disciplinaires comme l'astrophysique, la physique des plasmas ou bien la physique des matériaux irradiés, ces derniers pouvant être amorphes, cristallins et même organiques

La connaissance de ces mécanismes permet ainsi d'analyser les phénomènes galactiques. Dans le domaine de la fusion thermonucléaire, l'étude des phénomènes d'ionisation et d'excitation est fondamentale pour le développement de la physique des plasmas de fusion, dans lesquels les collisions conduisent à la production d'ions excités dont la désexcitation se traduit par l'émission de rayons X [3][4]. Grâce à des méthodes performantes de spectroscopie, il est possible d'obtenir une estimation précise de la densité, de la température ainsi que la mise en évidence des processus de transfert d'énergie au sein de ces plasmas chauds, et par conséquent la notion de section efficace totale est fondamentale.

Les sections efficaces de collisions atomiques ont été largement étudiées en fonction des énergies d'impact. Récemment, les expériences de physique nucléaire et biologiques avec des ions fortement chargés dans des accélérateurs de particules ont montré une nouvelle direction des études pour la physique des collisions atomiques.

I-2. élément théorique

Le développement de différents champs de la physique, ces dernières années, relance l'intérêt d'obtenir une description aussi précise que possible de tous les processus collisionnels (ionisation, excitation capture) (figure 1-1).

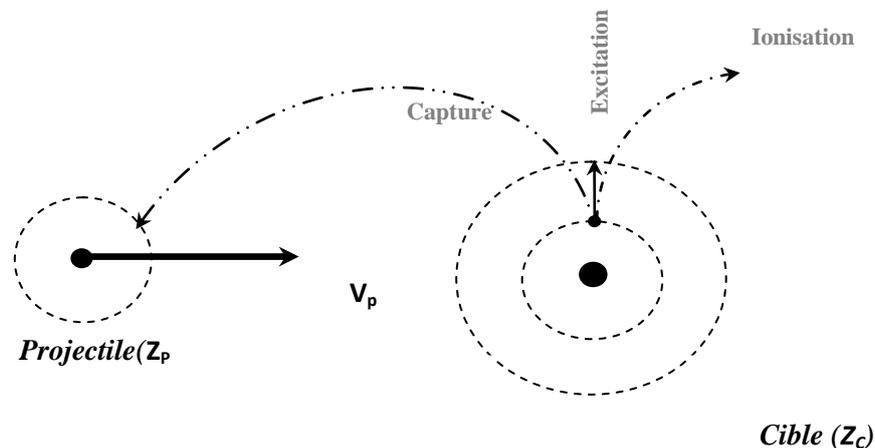


Figure I-1 : Les processus atomiques mono électroniques élémentaires

- **l'ionisation** : si l'interaction est assez intense, le transfert d'énergie peut être suffisant pour arracher un électron de l'atome cible, c'est le phénomène d'ionisation.
- **l'excitation** : si l'interaction est insuffisante pour créer une ionisation, il y a seulement excitation, processus par lequel un atome passe d'un niveau d'énergie à un niveau plus élevé.

- **la capture électronique** : une troisième type de processus consiste en la capture d'un électron de l'atome cible par le projectile. Ce processus intervient surtout lors d'irradiation en ions lourds.

Notons, que durant très longtemps, l'étude expérimentale et théorique de la réaction d'ionisation par impact de particules chargées s'est largement limitée aux cas des atomes. L'atome qui a fait l'objet du plus grand nombre d'études est l'atome d'hélium. Celui-ci est l'atome multiélectronique le plus simple. Les méthodes les plus sophistiquées ont été utilisées pour essayer d'explorer la structure électronique des systèmes à deux électrons. Il s'est avéré que les prédictions théoriques sont très sensibles aux fonctions d'onde qui représentent les états liés de la cible ainsi qu'aux modèles collisionnels utilisés.

L'ionisation d'atomes ou de molécules par impact d'une particule chargée est un processus dont l'étude théorique n'est pas simple. En effet, il fait intervenir des interactions coulombiennes (aux portées infinies) entre au moins trois particules chargées (c'est un problème quantique à plusieurs corps en interaction mutuelle), nécessitant des approximations pour son traitement. Les méthodes numériques utilisées pour la description de ce processus se scindent en deux catégories, à savoir les développements perturbatifs basés sur la série de Born ou l'approche « close-coupling » non perturbative basée sur le développement de la fonction d'essai en un ensemble de base de fonctions le plus complet possible. Les modèles utilisant les développements en série de Born ont été utilisés avec succès dans le cas des collisions à hautes énergies où l'interaction projectile-cible est relativement faible comparée à l'énergie cinétique du projectile incident. D'autre part les développements du type « close-coupling » ont été utilisés dans le cas des collisions de basses énergies où l'énergie est telle que seulement une diffusion élastique ou au moins une excitation des premiers états excités de la cible sont possibles.

I-3 matrice de transition

Considérons le cas simple de collision d'un électron incident d'énergie E_i avec une cible atomique de N électrons. Selon la théorie de la mécanique quantique le hamiltonien de ce système est de la forme

$$H = H_0 + V \tag{I-1}$$

où H_0 représente l'opérateur hamiltonien qui décrit indépendamment (avant l'interaction) l'électron incident et la cible atomique. Il est bien connu que ce hamiltonien est de la forme

$$H_0 = H_T + K_0 \quad (\text{I-2})$$

où

$$K_0 = -\frac{1}{2}\nabla_0^2 \quad (\text{I-3})$$

qui n'est autre que l'opérateur de l'énergie cinétique de l'électron incident libre (qui ne subit aucune interaction avec aucun potentiel), et

$$H_T = \sum_{i=1}^N \left(-\frac{1}{2}\nabla_i^2 - \frac{N}{r_i} \right) + \frac{1}{2} \sum_{\substack{i,j=1 \\ i \neq j}}^N \frac{1}{|r_i - r_j|} \quad (\text{I-4})$$

qui est l'opérateur hamiltonien qui décrit la cible atomique constituée d'un noyau de charge positif Ne^+ et un nombre N d'électrons. La perturbation V provoquée par l'électron incident est dans ce cas de la forme

$$V = \left(-\frac{N}{r_0} + \sum_{i=1}^N \frac{1}{|r_0 - r_i|} \right) \quad (\text{I-5})$$

Le vecteur \mathbf{r}_0 représente la position de l'électron incident dans le référentiel Oxyz d'origine située sur le centre du noyau de la cible. Les vecteurs \mathbf{r}_i représentent les positions des électrons de la cible atomique, supposée ici électriquement neutre.

La matrice de transition est définie dans le cas présent par la formule

$$T_{fi} = \langle \Psi_f | V | \Psi_i \rangle \quad (\text{I-6})$$

Où $|\Psi_i\rangle$ et $|\Psi_f\rangle$ les fonctions d'ondes qui décrivent, respectivement, les états initial et final du système de $(N+1)$ électrons. Ces fonctions d'ondes sont des solutions des équations des deux équations de Schrödinger avant et après la collision

$$H|\Psi_i\rangle = E|\Psi_i\rangle \quad (\text{avant la collision}) \quad (\text{I-7})$$

et

$$H|\Psi_f\rangle = E|\Psi_f\rangle \quad (\text{après la collision}) \quad (\text{I-8})$$

La matrice de transition fourni la probabilité pour que le système composée d'un électron incident et une cible atomique passe après la collision de l'état quantique initiale $|\Psi_i\rangle$ à l'état quantique finale $|\Psi_f\rangle$. La relation entre la matrice de transition est l'amplitude de transition est la suivante :

$$f_{fi} = -(2\pi)^2 T_{fi} \quad (\text{I-9})$$

Ainsi la section efficace triplement différentielle, définie précédemment dans le chapitre I, peut être réécrite sous la forme

$$\frac{d^3\sigma}{d\hat{k}_s d\hat{k}_e dE_e} = (2\pi)^4 \frac{k_s k_e}{k_i} |T_{fi}|^2 \quad (\text{I-10})$$

L'étude d'une façon exacte de la dynamique d'un système quantique de plusieurs particules a toujours été très compliquée. Le processus d'ionisation rentre dans cette catégorie de problèmes, c'est pour cette raison que souvent des approximations sont utilisées afin de pouvoir évaluer les éléments de la matrice de transition T_{fi} .

Dans la littérature nous pouvons trouver plusieurs formalismes théoriques qui décrivent la même réaction de collision. Pour étudié la réaction (e,2e), nous pouvons des modèles approximatifs tel que le modèle d'une fonction de Coulomb, le modèle de deux fonctions de Coulomb [5,6], le model de trois fonctions de Coulomb [7], et le modèle *Convergent Close Coupling* (CCC) qui a été proposé par Massey et Mohr [8].

I-2 L'approximation de Born

L'approche développée par Born pour le calcul des sections efficaces joue un rôle dominant dans l'étude des collisions atomiques et moléculaires. Au début, il faut noter que l'approximation de Born est essentiellement un développement perturbatif de la fonction d'onde ou de l'amplitude de diffusion en puissance du potentiel d'interaction.

Dans cette approximation, on suppose que le potentiel diffuseur décrivant l'interaction coulombienne du projectile avec les différentes particules chargées de la cible est petit devant l'énergie totale de la cible et celle de l'électron incident (rapide) ou, en d'autres termes, la particule incidente d'une part, et la cible moléculaire d'autre part peuvent être considérés comme deux sous-systèmes indépendant avant et après la collision. En fait, cette séparation est justifiée à haute énergie où la vitesse de la particule incidente est supérieure à celles des électrons de la cible qui subissent le choc. La collision est alors

considérée comme un problème stationnaire où chaque sous système passe de l'un de ses états propres à d'autres, et/ou la fonction d'onde du système projectile-cible se réduit au simple produit de deux fonctions d'onde du projectile et de la cible, que ce soit avant ou après la collision.

Nous avons vu dans la section précédente la section efficace triplement différentielle dépend de la norme au carré de l'amplitude de transitions T_{fi} (voir équation I-28). Cette dernière et une quantité dépendent de fonctions d'ondes qui définissent les états initiale et finale qui sont des solutions des équations de Schrödinger indépendantes du temps données dans les équations (I-7) et (I-8).

Considérons la réaction (e,2e) dans laquelle un électron incident viens avec une énergie cinétique E_i suivant la direction de son vecteur moment cinétique \mathbf{k}_i . Nous supposons que cet électron rentre en collision avec une cible atomique constituée d'un noyau de charge $Z = Ne^+$ et un nombre N d'électrons. L'ensemble du système quantique est donc constitué d'un noyau et d'un nombre $N+1$ d'électrons (N électrons liés et un électron libre). La fonction d'onde de ce système doit satisfaire l'équation différentielle de Schrödinger suivante

$$H|\Psi_i^{(+)}\rangle = (H_0 + V)|\Psi_i^{(+)}\rangle = \left(\frac{k_i^2}{2} + \epsilon_i\right)|\Psi_i^{(+)}\rangle \quad (\text{I-11})$$

Où H est l'opérateur hamiltonien de l'ensemble du système donnée dans l'équation (I-1) et ϵ_i l'énergie de la cible atomique et $k_i^2/2$ l'énergie cinétique de l'électron incident.

Supposons maintenant que la cible avant la collision est dans un état propre $|\phi_n\rangle$ quelconque. Cet état est donc solution de l'équation de Schrödinger suivante

$$H_T|\phi_n\rangle = \epsilon_n|\phi_n\rangle \quad (\text{I-12})$$

Où H_T est l'opérateur hamiltonien de la cible atomique définie dans l'équation (I-4) et ϵ_n la valeur propre de cet hamiltonien qui n'est autre que l'énergie propre de l'état $|\phi_n\rangle$ ($n = 1,2,3, \dots, etc$). Si la cible atomique est dans l'état $|\phi_i\rangle$ avant la collision elle forcément solution de l'équation

$$H_T|\phi_i\rangle = \epsilon_i|\phi_i\rangle \quad (\text{I-13})$$

et la fonction d'onde $|\Psi_i^{(+)}\rangle$ de l'ensemble du système électron incident-cible atomique va automatiquement satisfaire la condition an limite

$$\left| \Psi_i^{(+)} \right\rangle \xrightarrow{r_0 \rightarrow \infty} |\mathbf{k}_i, \phi_i\rangle + \text{onde sortante} \quad (\text{I-14})$$

Avec

$$|\mathbf{k}_i, \phi_i\rangle = |\mathbf{k}_i\rangle |\phi_i\rangle = \exp(i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}) |\phi_i\rangle \quad (\text{I-15})$$

Nous avons supposé ici que l'électron incident est très rapide ce qui justifie le choix d'une fonction d'onde plane pour décrire cet électron

$$|\mathbf{k}_i\rangle = \exp(i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}) \quad (\text{I-17})$$

L'équation (I-13) avec la condition à la limite donnée dans l'équation (I-14) peut être transformée à une équation intégrale, connue par l'équation de Lippmann Schwinger :

$$\left| \Psi_i^{(+)} \right\rangle = |\mathbf{k}_i, \phi_i\rangle + G_0^{(+)} V \left| \Psi_i^{(+)} \right\rangle \quad (\text{I-18})$$

ou $G_0^{(+)}$ représente l'opérateur de Green. La solution formelle de l'équation (I-13) est donc une série en puissance de V obtenue par itération :

$$\left| \Psi_i^{(+)} \right\rangle = \left(1 + G_0^{(+)} V + \left(G_0^{(+)} V \right)^2 + \dots + \left(G_0^{(+)} V \right)^p + \dots \right) |\mathbf{k}_i, \phi_i\rangle \quad (\text{I-19})$$

Cette série est connue par la série de Born pour une fonction d'onde.

Il est important de noter que dans cette approximation l'effet de l'électron incident est considéré comme une perturbation. Ceci implique que cet électron après la collision diffuse avec une énergie suffisamment grande pour que la forme asymptotique de l'état final $\langle \Psi_f |$ de l'ensemble du système de $N+1$ électrons, loin de la cible, prenne la forme de produit de deux fonctions d'ondes :

$$\langle \Psi_f | = \langle \mathbf{k}_s, \phi_f | = \langle \mathbf{k}_s | \langle \phi_f | \quad (\text{I-20})$$

Où \mathbf{k}_s est le vecteur moment cinétique de l'électron diffusé et $\langle \phi_f |$ l'état final de la cible après la collision.

En introduisant les relations précédentes dans la relation de l'amplitude de transition on trouve le développement de Born de l'amplitude de transition

$$T_{fi}(\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i) = \langle \mathbf{k}_s, \phi_f | V + V G_0^{(+)} V + V \left(G_0^{(+)} V \right)^2 + \dots + V \left(G_0^{(+)} V \right)^p + \dots | \mathbf{k}_i, \phi_i \rangle \quad (\text{I-21})$$

En se limitant au premier terme du développement de cette série on définit l'amplitude de transition dans la première approximation de Born

$$T_{fi}^{B1}(\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i) = \langle \mathbf{k}_s, \phi_f | V | \mathbf{k}_i, \phi_i \rangle \quad (\text{I-22})$$

Si on ne retient que les deux premiers termes du développement dans la série de Born, on obtient la deuxième approximation de Born :

$$T_{fi}(\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i) = T_{fi}^{B1}(\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i) + T_{fi}^{B2}(\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i) \quad (\text{I-23})$$

avec le premier terme T_{fi}^{B1} est définie dans l'équation (I-22), et le deuxième terme est définie par

$$T_{fi}^{B2}(\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i) = \langle \mathbf{k}_s, \phi_f | V G_0^{(+)} V | \mathbf{k}_i, \phi_i \rangle \quad (\text{I-24})$$

Ce second terme joue un rôle très important dans la réaction (e,2e), précisément dans la description des transitions entre les états intermédiaires.

Pour calculer le terme $T_{fi}^{B2}(\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i)$, une résolution spectrale de l'opérateur de Green $G_0^{(+)}$ est nécessaire

$$G_0^{(+)} = - \sum_n \lim_{\eta \rightarrow 0^+} \frac{1}{4\pi^3} \int dk \frac{|k, \phi_n\rangle \langle k, \phi_n|}{k^2 - k_n^2 - i\eta} \quad (\text{I-25})$$

Dans cette équation la sommation est sur tous les états discrets et continus $|\phi_n\rangle$ de la cible atomique et les k_n sont définies par l'équation

$$k_n^2 = k_i^2 + 2(E_i - E_n) \quad (\text{I-26})$$

La substitution de l'équation (I-25) dans l'équation (I-24) donne

$$T_{fi}^{B2}(\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i) = \frac{-1}{4\pi^3} \sum_n \lim_{\eta \rightarrow 0^+} \int d\mathbf{k} \frac{\langle \mathbf{k}_s, \phi_f | V | \mathbf{k}, \phi_n \rangle \langle \mathbf{k}, \phi_n | V | \mathbf{k}_i, \phi_i \rangle}{k^2 - k_n^2 - i\eta} \quad (\text{I-27})$$

Le calcul de l'intégrale triple qui figure dans cette équation est difficile à résoudre puisqu'il contient généralement des singularités mathématiques. C'est pour cette raison que la résolution numérique de cette intégrale prend un temps important. Ceci même à une autre difficulté dans le calcul du deuxième terme de Born qui est la somme sur tous les états intermédiaires $|\phi_n\rangle$. Pour cette raison une bonne approximation est souvent basée sur le remplacement de k_n dans l'équation (I-27) par une moyenne \bar{k}

$$\bar{k}^2 = k_i^2 + 2(E_i - \bar{E}) \quad (\text{I-28})$$

Où \bar{E} représente une moyenne sur les énergies des états intermédiaires $|\phi_n\rangle$. L'équation (I-27) dans ce cas prend la forme suivante

$$T_{fi}^{B2}(\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i) = \frac{-1}{4\pi^3} \lim_{\eta \rightarrow 0^+} \int d\mathbf{k} \frac{\langle \mathbf{k}_s, \phi_f | V | \mathbf{k}, \phi_n \rangle \sum_n |\phi_n\rangle \langle \phi_n| \langle \mathbf{k}, \phi_n | V | \mathbf{k}_i, \phi_i \rangle}{k^2 - \bar{k}^2 - i\eta} \quad (\text{I-29})$$

Nous pouvons maintenant utiliser la relation de fermeture :

$$\sum_n |\phi_n\rangle \langle \phi_n| = 1 \quad (\text{I-30})$$

Pour trouver pour le deuxième terme de Born l'approximation suivante :

$$T_{fi}^{B2}(\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i) = -\frac{1}{4\pi^3} \lim_{\eta \rightarrow 0^+} \int d\mathbf{k} \frac{\langle \mathbf{k}_s, \phi_f | V | \mathbf{k} \rangle \langle \mathbf{k} | V | \mathbf{k}_i, \phi_i \rangle}{k^2 - \bar{k}^2 - i\eta} \quad (\text{I-49})$$

Souvent appelée l'approximation de Born simplifier.

I-3.1. Commentaires sur la validité de l'approximation de Born:

Pour que l'approximation de Born soit valable, il faut impérativement que le mouvement relatif de la particule incidente soit décrit par une fonction d'onde plane. De plus, le potentiel responsable de la transition entre les deux états initial et final peut être traité comme une petite perturbation. En effet, au départ, le système est décrit par la forme asymptotique à grande distance de la fonction d'onde, appelée parfois état libre; et par conséquent l'approximation de Born est seulement valable quand l'énergie cinétique de l'ion incident est très grande par rapport au potentiel d'interaction.

Quoique l'inclusion des termes d'ordre supérieurs du développement donne une meilleure représentation de la fonction d'onde, elle augmente considérablement la difficulté de calculs numériques sur ordinateurs.

En général, l'approximation de Born donne un bon résultat pour des hautes énergies d'incidence. Le domaine de validité de cette approximation dépend aussi de la charge nucléaire effective exercée par effet d'écrantage des électrons dans leur orbitale initiale. Ainsi dans n'importe quelle collision donnée, la PWBA (l'approximation de Born utilisant l'onde plane) peut être valide pour l'interaction d'électrons dans certains noyaux, mais pas

dans d'autres. La vitesse de collision doit être plus grande que les vitesses électroniques orbitales.

I-4. L'approximation iconale:

L'approximation de Born et l'approximation iconale sont toutes les deux basées sur l'expression intégrale exacte de l'amplitude de collision de l'expression (I.1).

L'approximation de Born au premier ordre (Born-I) est basée sur le fait que la collision s'effectue à faible interaction, par conséquent la fonction d'onde de diffusion $|\psi_{\alpha}^{+}\rangle$ diffère très peu de la fonction d'onde plane incidente. Si nous considérons une meilleure approximation de la fonction d'onde, celle-ci sera réalisée pour l'amplitude de transition. Une possible amélioration est alors l'approximation iconale, qui est valable aussi à haute énergie et aux petits angles de collision. Elle consiste à supposer que le projectile se déplace en ligne droite et que le transfert d'impulsion de la cible est perpendiculaire à la trajectoire du projectile. L'idée de base dans cette méthode consiste en ce que la fonction d'onde incidente subisse un changement de phase sous l'influence du potentiel sur une trajectoire en ligne droite.

Pour déduire l'approximation iconale, on peut modifier Ψ comme suit :

$$\psi(\vec{r}) = e^{ik' \cdot \vec{r}} \phi(\vec{r}) \quad (\text{I-50})$$

Quand les critères de validité de l'approximation de Born ne sont pas vérifiés, la généralisation de l'approximation Born dite DWBA (Distorted Wave Born Approximation) peut être employée. Par exemple, l'excitation ou l'ionisation d'ions positifs où la contribution du potentiel à longue portée est dominante, nécessite que l'état initial soit le produit d'une fonction d'onde de la particule incidente choisie dans un modèle de potentiel et la fonction d'onde de la cible obtenue avec certaines approximations.

I-5. Approximation de Born aux ondes distordues

Comme l'interaction entre les électrons a une longue portée, alors la trace de l'effet des électrons de la cible sur les électrons incident (diffusé) et actif (éjecté) doit se trouver dans les fonctions d'ondes. L'approximation de Born aux ondes distordues (Distorted wave Born approximation DWBA) est basée sur cette idée. Dans ce cas l'électron incident est représenté par une onde distordue calculée par la résolution de l'équation de Schrödinger

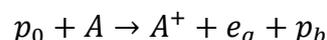
qui contient le potentiel de la cible, tandis que les électrons diffusé et éjecté sont représentés par des ondes distordues calculées par la résolution de l'équation de Schrödinger qui contient le potentiel de l'ion. Cependant, bien que cette approximation tienne compte de l'interaction des électrons libres avec les électrons de la cible elle reste une approximation de premier ordre puisque elle considère que le projectile n'interagit qu'une seule fois avec la cible. Quand l'énergie du projectile est basse, l'interaction avec les électrons de la cible n'est plus négligeable comme dans le cas de l'approximation de Born. La fonction d'onde du projectile subit alors l'effet d'un potentiel de distorsion avant et après la collision avec la cible. Ce potentiel est de courte portée et devient pratiquement nul au-delà d'une certaine distance, et les électrons incident, diffusé et éjecté peuvent être représentés par des ondes distordues. Quand les énergies d'incidence et de diffusion sont très grandes, les effets de distorsion et d'échange deviennent faibles.

I-6. Modèle Convergent Close Coupling (CCC)

Le modèle CCC a été proposé par Massey et Mohr [8] qui ont donné un formalisme général pour traiter les processus d'excitation vers les états atomiques discrets, Successivement développé par différents auteurs [9-27]. Ce modèle est une approche complètement numérique qui consiste à développer la fonction d'onde totale sur des états de carré sommables. Cette méthode réussie [17] dans le traitement des transitions discrètes parce que les équations close-coupling mènent à une amplitude stationnaire pour une variation du développement de la fonction d'onde totale. Bray et Fursa [18] ont suggéré que l'extension de la méthode convergente close-coupling (CCC) donne également des amplitudes d'ionisation précises. Stelbovics [24], Bray et ses collaborateurs. [17,18, 20,21], Colgan et ses collaborateurs [27] et autres ont utilisés le formalisme close-coupling et on réussis dans une certaine mesure à résoudre des problèmes à trois corps d'interaction de nature coulombienne, comme la collision d'un électron avec l'atome d'hydrogène et l'ionisation simple de l'atome d'hélium par impact d'électron. Leurs calculs étaient en bon accord dans la plupart des cas avec les valeurs expérimental.

I-7. ionisation : terminologie et notion

D'une façon générale, les processus de simple ionisation par impact de particule chargée peuvent être représentés respectivement comme suite :



Où A représente la cible atomique ou moléculaire, A^+ l'ion résiduel. Les particules incidents, diffusé et éjectés sont représentés respectivement par p_0 , e_a et p_b ont chacun une énergie E_j et une quantité de mouvement \vec{k}_j ($j=0, a, b$). Du point de vue quantique, les particules émergeant après la collision sont discernables, les termes diffusé et éjecté ne sont donc pas équivalents.

Le processus (e, 2e) la simple ionisation ou (e, 3e) la double ionisation par impact électronique dans laquelle un électron projectile provoque une ionisation simple [ou double] en arrachant un [ou deux] électrons à la cible.

I-7-1-le processus de simple ionisation (e, 2e) :

L'ionisation simple (e, 2e) par impact électronique est l'arrachement d'un électron de la cible suite à la collision entre un électron de celle-ci.

Ce processus consiste à étudier la collision entre un électron projectile et une cible atomique ou moléculaire conformément aux conditions usuelles d'expérimentation la cible au repos et orientée de façon quelconque bombardée par un faisceau monocinétique d'électrons d'énergie supérieure au premier potentiel d'ionisation (figure 1-2).

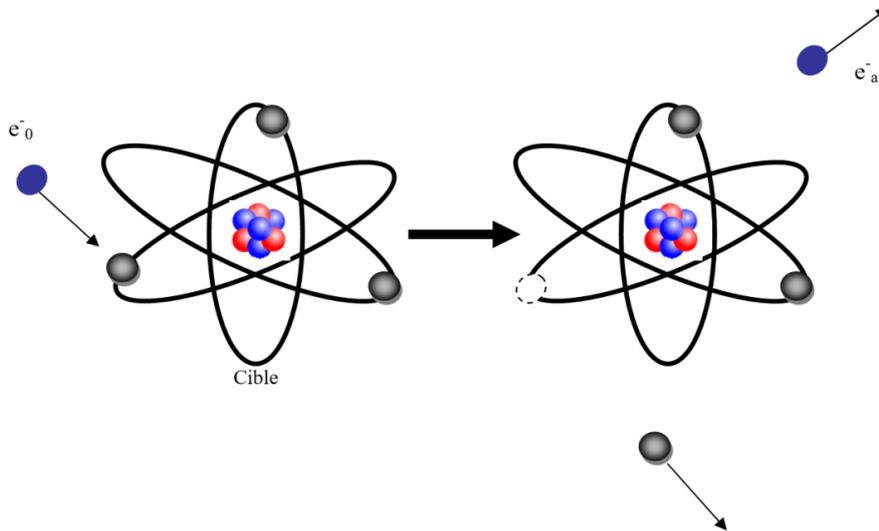


Figure I- 2 : Les processus de simple ionisation avec l'éjection d'un électron

Le processus d'ionisation simple par impact électronique connue par la réaction (e,2e), peut être résumé dans l'équation suivante :

$$e^-(k_i, E_i) + C(\omega_i) \rightarrow C^+(\omega_f) + e^-(k_s, E_s) + e^-(k_e, E_e)$$

Où les indices i, s et e des mouvements k et les énergies $E = \frac{k^2}{2}$ font référence aux électrons incidents, diffusé et éjecté respectivement.

L'électron va s'éjecté avec un mouvement k_e et une énergie E_e dans une direction définie par les angles (θ_e, φ_e) .

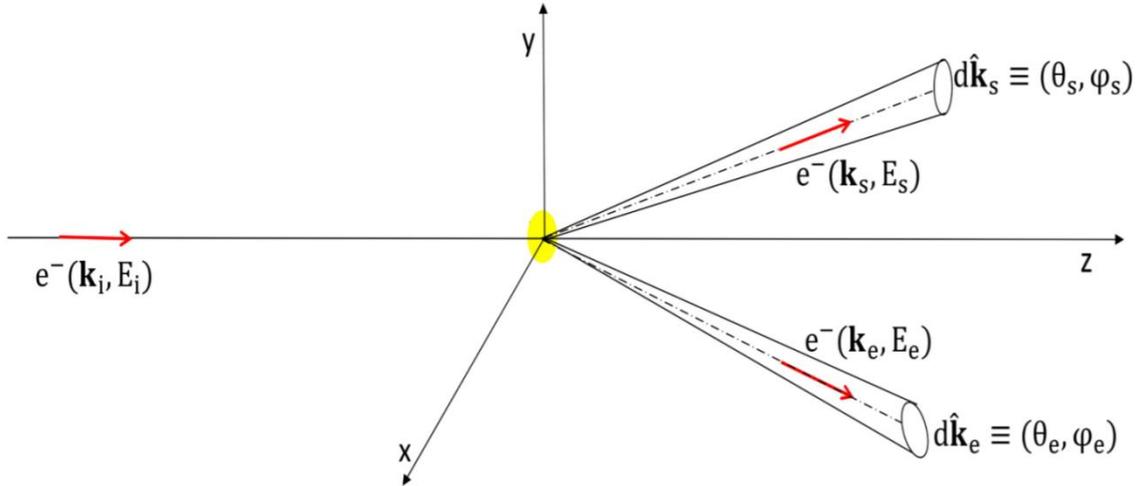


Figure I- 3 : Schéma de la réaction (e, 2e)

$d\hat{k}_s$ et $d\hat{k}_e$ Sont des éléments d'angles solides centrés sur les directions (θ_s, φ_s) et (θ_e, φ_e) .

Une réaction (e, 2e) est symétrique si $E_s = E_e$ et asymétrique si $E_s \neq E_e$. Si les moments de l'électrons incident, éjecté et diffusé se trouvent dans le même plan, le processus est dit coplanaire, sinon il est non-coplanaire.

I-8 :sections efficaces d'ionisation :

La section efficace de diffusion représente la probabilité indépendante du temps pour qu'un processus particulier de collision s'effectue. L'interaction effective entre l'électron et la cible dépend fortement de l'énergie de l'électron incident, comme elle dépend de l'angle de diffusion et la nature du processus.

La section efficace qui mesure la probabilité qu'un type de réaction est réalisé, va donc en général dépendre des énergies et des angles sortants et entrants.

$C(\omega_i)$ est la cible dans un état initial i l'énergie initial ω_i et $C^+(\omega_f)$ est l'ion dans l'état final f d'énergie finale ω_f . Considérons Q comme le moment de recul de l'ion, la conservation des moments exige que :

$$k_i = k_s + k_e + Q \quad (I.5)$$

Ainsi la condition de conservation d'énergie donne

$$E_i + \omega_i = E_s + E_e + \omega_f + E_r \quad (I.6)$$

L'énergie de recul de l'ion E_r est très petite comparée aux énergies des autres particules, vue que la masse de l'ion est plus grande que l'unité, elle peut être donc négligée dans le bilan énergétique. La réaction (e, 2e) peut être schématisée dans la figure (I.3) qui montre un électron incident avec un mouvement k_i et une énergie E_i qui rentre en collision avec la cible. Au mouvement de la collision une partie du moment du projectile est transférée à la cible. Cette quantité est connue par le moment de transfert ou précisément le moment perdu par l'électron rapide (diffusé). Après la collision le projectile diffusé avec un moment k_s et une énergie E_s dans une direction définie par les angles (θ_s, φ_s) .

Si l'énergie transférée à la cible est supérieure que le potentiel d'ionisation, $IP = w_i - w_f$, un électron, souvent connue par l'électron actif, va s'éjecté avec un moment k_e et une énergie E_e dans une direction définie par les angles (θ_e, φ_e) .

Considérons un flux monochromatique que d'un nombre N_i d'électrons par unité de temps et de surface d'énergie E_i et de mouvement k_i , qui vient de l'infinie le long de la direction de l'axe oz pour entrer en interaction avec un nombre N_t de cibles atomiques localisées à l'origine du système de coordonnées.

Nous supposons que chaque cible est au repos et très massive par rapport aux électrons incidents. Lors de la réaction le nombre N_s d'électrons avec des énergies entre E_s et $E_s + dE_s$ diffusés par unité de temps dans l'élément d'angle solide $d\hat{k}_s$ centré sur la direction (θ_s, φ_s) définie par la direction du moment k_s est donnée par :

$$N_s dE_s d\hat{k}_s = d^2 \delta(k_i k_s) N_i N_t \quad (I.7)$$

La section efficace doublement différentielle de diffusion (SEDD) est définie donc par :

$$\frac{d^2 \delta(k_i k_s)}{dE_s d\hat{k}_s} = \frac{N_s}{N_i N_t} \quad (I.8)$$

Considérons le processus de diffusion dans lequel les électrons diffusés sont détectés. Le détecteur est localisé dans la direction $d\hat{k}_s = \sin\theta_s d\theta_s$ et détecte les électrons

avec les énergies dans l'intervalle $[E_s, E_s + dE_s]$ la section efficace doublement différentielle de diffusion par une cible atomique

$$\frac{d^2\delta}{d\hat{k}_s dE_s} = \frac{k_s}{k_i} |f(k_i, k_s)|^2 \quad (I.9)$$

Où l'amplitude $f(k_i, k_s)$ de l'onde diffusée relative à l'onde incidente est l'amplitude de transition.

I-8-1 :section efficace triplement différentielle (SETD):

La section efficace triplement différentielle (SETD) est la mesure de la probabilité que dans une réaction (e, 2e) un électron incident avec une énergie E_i et un mouvement k_i excite un électron de la cible vers un état de continuum d'énergie E_e et un moment k_e .

La section efficace sera dite triplement différentielle si l'on peut analyser les deux électrons de la voie de sortie aussi bien suivant leurs directions que leurs énergies respective.

L'électron incident diffuse après la collision avec une énergie E_s et un moment k_s . Les électrons diffusé et éjecté sortent dans les directions k_s et k_e respectivement cette section efficace peut être définie par la relation

$$\frac{d^3\sigma}{d\hat{k}_e d\hat{k}_s dE_s} = \frac{d^3\sigma}{d\hat{k}_s d\hat{k}_e dE_e} = \frac{k_s \cdot k_e}{k_i} |f(k_i, k_s, k_e)|^2 \delta(E_i - E_s - E_e + IP) \quad (I.10)$$

La section efficace triplement différentielle est la grandeur mesurable dans l'expérience de la réaction (e, 2e) si les deux électrons de l'état final sont analysés aussi bien suivant leurs directions que leurs énergies respectives. C'est une quantité qui fournit une description complète sur la cinématique du processus de l'ionisation puisqu'elle fait intervenir tous les paramètres cinématiques entrants en jeu, à savoir les énergies E_i, E_s et E_e ainsi que les angles de diffusion (θ_s, φ_s) et d'éjection (θ_e, φ_e) . La section efficace triplement différentielle fournit le teste le plus sensible de la théorie (e, 2e), ainsi elle permet de tester les différents modèles théorique proposés. Dans les expériences de la simple ionisation, pour s'assurer que les électrons diffusé et éjecté proviennent du même évènement ionisant, ces électrons doivent être détectés en coïncidence temporelle.

I-8-2 :section efficace doublement différentielle (SEDD):

Si lors d'une expérience d'une réaction (e, 2e), seulement un électron est détecté et on peut mesurer son énergie et sa direction d'émission, alors la section efficace doublement différentielle est obtenue. Celle-ci est donnée par l'équation

$$\frac{d^2\sigma}{d\hat{k}_s dE_s} = \int_0^{4\pi} d\hat{k}_e \frac{d^3\sigma}{d\hat{k}_s d\hat{k}_e dE_s} \quad (I. 11)$$

Si on s'intéresse à l'angle et l'énergie de l'électron diffusé, et

$$\frac{d^2\sigma}{d\hat{k}_e dE_e} = \int_0^{4\pi} d\hat{k}_e \frac{d^3\sigma}{d\hat{k}_e d\hat{k}_s dE_e} \quad (I. 12)$$

Si on s'intéresse à l'angle et l'énergie de l'électron éjecté. Cette grandeur est moins significative que la section efficace triplement différentielle puisqu'elle ne fournit qu'une description cinématique des particules diffusées ou éjectées après la collision. Les théories utilisées pour décrire les sections efficaces doublement différentielles doivent inclure tous les processus d'ionisation possibles et tous les états pouvant contribuer aux sections efficaces. Donc La section efficace doublement différentielle est obtenue à partir de l'intégration de la SETD sur l'angle solide de l'électron éjecté

I-8-3 : Section efficace simplement différentielle :

Si lors d'une expérience de la réaction (e, 2e) une des particules diffusée ou éjectée est détectée sélectivement dans une certaine direction, on parle de la section efficace simplement différentielle en angle

$$\frac{d\sigma}{d\hat{k}_s} = \int_{E_{min}}^{E_{max}} dE_s \frac{d^2\sigma}{d\hat{k}_s dE_s} \quad (I. 13)$$

si on s'intéresse à l'électron diffusé, et

$$\frac{d\sigma}{d\hat{k}_e} = \int_{E_{min}}^{E_{max}} dE_e \frac{d^2\sigma}{d\hat{k}_e dE_e} \quad (I. 14)$$

si on s'intéresse à l'électron éjecté. Cette quantité contient évidemment moins d'informations sur le processus d'ionisation comparée à celles donnée par les sections efficaces doublement et triplement différentielles, mais elle présente un grand intérêt dans, par exemple, l'étude des structures moléculaires. Si on s'intéresse au spectre de déperdition d'énergie, on définit une section efficace simplement différentielle en énergie

$$\frac{d\sigma}{dE_s} = \int_0^{2\pi} d\hat{k}_s \frac{d^2\sigma}{d\hat{k}_s dE_s} \quad (I.15)$$

si on s'intéresse au spectre énergétique de l'électron diffusé, et

$$\frac{d\sigma}{dE_e} = \int_0^{2\pi} d\hat{k}_e \frac{d^2\sigma}{d\hat{k}_e dE_e} \quad (I.16)$$

si on s'intéresse à l'électron éjecté

References

- [1] C. P. Ballance, N. R. Badnell and K. A. Berrington, *J. Phys. B.* 34, 3287 (2001).
- [2] A. D. Whiteford, N. R. Badnell, C. P. Ballance, S. D. Loch, M. G. O'Mullane and H. P. Summers, *J. Phys. B* 35, 3729 (2002).
- [3] W. A. Schroeder, T. R. Nelson, A. B. Borisov, J. W. Longworth, K. Boyer and C. K. Rhodes, *J. Phys. B* 34, 297 (2001).
- [4] J. Zeng, J. Yuan and Q. Lu, *J. Phys. B* 34, 2823 (2001).
- [5] Peterkop R K. *Opt. Spectr.* 13, 1220 (1961).
- [6] Peterkop R K. *Theory of Ionization of Atoms by Electron Impact.* Colorado Assoc. Univ.Press, Boulder, (1977).
- [7] Brauner M, Briggs J S and Klar H. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* 22, 2265–2287 (1989).
- [8] Massey H S W and Mohr C. *Proc. Roy. Soc. A.* 141, 434 (1933).
- [9] Bray I, McCarthy I E, Mitroy J, and Ratnavelu K. *Phys. Rev. A.* 39, 4998 (1989).
- [10] Bray I, Madison D H and McCarthy I E. *Phys. Rev. A.* 41, 5916 (1990).
- [11] Bray I, Konovalov D A and McCarthy I E. *Phys. Rev. A.* 43, 1301 (1991).
- [12] Bray I, Konovalov D A and McCarthy I E. *Phys. Rev. A.* 43, 5878 (1991).
- [13] Bray I, Konovalov D A and McCarthy I E. *Phys. Rev. A.* 44, 5586 (1991).
- [14] Bray I, Konovalov D A and McCarthy I E. *Phys. Rev. A.* 44, 7179 (1991).
- [15] Bray I and McCarthy I E. *Phys. Rev. A.* 46, 5916 (1992).
- [16] Bray I and Stelbovics A T. *Phys. Rev. Lett.* 61, 53 (1992).
- [17] Bray I and Stelbovics A T. *Phys. Rev. A.* 46, 6995 (1992).
- [18] Bray I and Stelbovics A T. *Phys. Rev. Lett.* 70, 746 (1993).
- [19] Bray I, Fursa D V and McCarthy I E. *Phys. Rev. A.* 47, 1101 (1993).

- [20] Fursa D V and Bray I. Phys. Rev. A. 52, 1279 (1995).
- [21] Bray I Fursa D V. Phys. Rev. A. 54, 2991 (1996).
- [22] Bray I. Phys. Rev. Lett. 89, 273201 (2002). 20.
- [23] Bray I, Fursa D V and Stelbovics A T. Phys. Rev. A. 63, 040702 (2001). 20.
- [24] Stelbovics A T. Phys. Rev. Lett. 82, 1570 (1999). 20.
- [25] Bray I., Bartschat K. Fursa D.V. and Stelbovics A.T. J. Phys. B. 36, 3425 (2003). 20.
- [26] Bray I., Bartschat K. Fursa D.V. and Stelbovics A.T. J. Phys. B. 36, 3425 (2003). 20.
- [27] Colgan J, Foster M, Pindzola M S, Bray I, Stelbovics A T and Fursa D V. J. Phys. B.

Chapitre II

Ionisation de cibles atomiques et moléculaires par impact d'électron et de protons

II-1. Introduction

L'étude de l'ionisation simple des atomes et des molécules par impact de particules chargées, particulièrement par impact de protons, représente l'un des domaines les plus importants de la physique des collisions. Ce processus apparaît dans différents domaines comme la physique des plasmas (processus de transfert d'énergie au sein de plasmas chauds) et l'astrophysique (rôle essentiel des mécanismes élémentaires d'interaction ionisation, excitation, capture qui interviennent lors de la formation d'objets cosmologiques), car l'analyse des informations qu'apportent ces études joue un rôle essentiel aussi bien pour la compréhension de la structure de la matière que de la dynamique de la collision.

Dans une collision des protons, un faisceau de protons entre en collision avec une cible atomique ou moléculaire. L'ionisation par impact de protons est l'arrachement d'un ou plusieurs électrons de la cible suite à au transfert d'énergie électromagnétique entre e

protons et celle-ci. On peut distinguer différents types d'ionisation, directe et indirecte, simple et multiple. Généralement, le processus le plus probable durant une collision est celui de l'ionisation simple et directe de la cible, elle consiste en l'éjection d'un électron de la couche externe où la cible est dans son état fondamental.

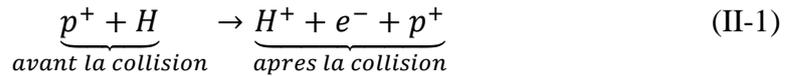
Les expériences d'ionisation simple par impact de protons, consistent alors en la détection en coïncidence des électrons et protons sortants pour des valeurs déterminées de leurs angles et énergies. La détection en coïncidence de ces particules émergents et leur analyse simultanée en énergie fournit des informations détaillées aussi bien sur la structure de la cible que sur le mécanisme réactionnel.

Prenons par exemple, le processus de l'ionisation simple de l'hydrogène atomique par une projectile rapide. Dans une telle expérience l'électron éjecté est détecté en coïncidence avec le proton diffusé. Il a été démontré que ce genre d'expériences est très sensible aux détails de la théorie.

L'atome d'hydrogène ou, plus généralement, les ions à un seul électron présente un intérêt fondamental pour la description théorique des structures atomiques. Dans une étude théorique de ce genre il existe des modèles théoriques et des formalismes mathématiques fiables pour décrire les réactions de collisions. Cependant, la nature de l'interaction entre le noyau et les électrons et les protons qui est de type Coulombienne, connue par une du large distance d'influence des forces d'interaction, complique beaucoup la modélisation des réactions de collisions. Cela rend le problème de collision, même pour les cas les plus simples, très difficile pour être résolu complètement. C'est pour cette raison que la théorie des collisions atomiques, s'est concentrée sur le développement de techniques et de méthodes d'approximations avec lesquelles les divers processus de collisions peuvent être décrits convenablement. On parle souvent dans la théorie des collisions atomique de l'approximation de Born, et dans le but de surmonter certaines faiblesses de cette approximation, on trouve une méthode développée au début des années soixante, appelé la méthode VPS (Vainshtein, Presnyakov et Sobelman) [1], qui consiste à introduire une correction partielle de la fonction d'onde en incluant une distorsion due à l'interaction entre la particule incidente et les électrons liés. Une version partiellement différente de l'approche initiale a été proposée en 1965 par Mc Carroll et Crothers [2]. Elle fut appliquée ensuite, en 1966 par Mc Carroll et Salin [3] aux collisions de type Proton-atome d'hydrogène. Une autre alternative à l'approximation de Born est l'approximation des

équations couplées, où la fonction d'onde de diffusion est développée sur des bases de fonctions d'onde représentant les différentes voies des réactions. Il en résulte un système d'équations différentielles couplées par les coefficients du développement.

L'ionisation simple de l'hydrogène atomique par impact de proton peut être schématisée comme suit:



H : désigne la cible

H^+ : l'ion résiduel

p^+ : le proton

e^- : l'électron éjecté

Si l'électron éjecté et le proton diffusé sont détectés en coïncidence alors nous avons l'expérience (e, e + p). Le calcul des sections efficaces totales de diffusion constitue l'intérêt majeur des études faites sur ces processus de collisions. En effet, plusieurs chercheurs se sont penchés sur le problème de la diffusion multiple. Ce n'est qu'en 1975 que Park et ses collaborateurs ont publié les résultats expérimentaux [7], concernant des mesures de la section efficace totale de diffusion obtenues par la technique appelée "Crossed Beam". Dans ce qui va suivre nous allons donner une définition de la section efficace triplement différentielle de l'ionisation d'une cible atomique par impact électronique. L'amplitude de transition est définie en premier lieu dans la première approximation de Born corrigée par le facteur de Gamow.

L'ordre correspondant à la série de Born représente le nombre d'interactions de la particule incidente avec la cible, une fois Born (1) si on ne prend que le premier terme du développement et deux fois Born (2) si on prend les deux premiers termes ... etc. Alors la première approximation de Born consiste à retenir que le premier terme du développement en négligeant la contribution des termes d'ordre supérieur. Cette approche développée par Born [Born 1926] est l'une des approximations les plus utilisées pour le calcul des sections efficaces, elle joue un rôle dominant dans l'étude des collisions atomiques. Dans cette

approximation, on suppose que le potentiel diffuseur décrivant l'interaction coulombienne du projectile avec la cible est petit devant l'énergie totale de la cible ainsi que celle de proton incident et peut par conséquent être considéré comme une perturbation. Dans cette approximation, les particules incidente et diffusée sont représentées par des ondes planes.

Généralement, la section efficace est définie comme étant la mesure du nombre de particules qui ont subi une diffusion déterminée dans l'espace sur le nombre de particules incidentes. Dans l'étude de l'ionisation que nous considérons dans ce travail, il s'agit essentiellement de déterminer l'expression de la section efficace différentielle. Les résultats obtenus lors d'une expérience de collision sont représentés en termes de section efficace. Cette quantité donne une mesure de la probabilité qu'un certain type de réaction se produise [8].

II-2 Première approximation de Born

a- Impact par électron

Dans ce cas, la section efficace triplement différentielle (TDCS) s'écrit :

$$\sigma^{(3)} = \frac{d^3\sigma}{d\Omega_e d\Omega_s dE_e} = \frac{k_s k_e}{k_i} |f_{b1}|^2 \quad (\text{II-2})$$

où \vec{k}_i , \vec{k}_s et \vec{k}_e désignent respectivement les moments des électrons incidents, diffusés et éjectés. Les angles solides des électrons diffusés et éjectés sont respectivement $d\Omega_s$ et $d\Omega_e$. L'intervalle d'énergie de l'électron éjecté est représenté

par dE_e . La conservation de l'énergie s'écrit :

$$\frac{k_i^2}{2} + E_i = \frac{k_s^2}{2} + \frac{k_e^2}{2} + \frac{Q^2}{2M} \quad (\text{II-3})$$

où E_i est l'énergie de l'état initial (Atome d'hydrogène : $E_i = -13.6 \text{ eV} = -0.5 \text{ au}$), or l'énergie de recul de l'ion résiduel est très petite comparée aux énergies des autres particules, vu que la masse de l'ion est plus lourde que l'unité, elle peut être donc négligée dans le bilan énergétique. Le premier terme f_{B1} de la série de Born 0

$$f_{B1} = -\frac{1}{2\pi} \left\langle e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0} \cdot \Psi_c^-(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \left| V(\vec{r}_0, \vec{r}_1) \right| e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \cdot \Phi_i(\vec{r}_1) \right\rangle \quad (\text{II-4})$$

décrit le passage direct de l'état initial de l'atome cible à l'état final dans le continuum.



$\Phi_i(\vec{r}_1)$ représente la fonction d'onde de l'état initial de la cible, $\Psi_c^-(\vec{k}_e, \vec{r}_1)$ représente la fonction d'onde de l'électron éjecté, et $V(\vec{r}_0, \vec{r}_1)$ représente l'interaction coulombienne entre l'électron incident et la cible de façon que :

$$V(\vec{r}_0, \vec{r}_1) = \frac{1}{r_{01}} - \frac{1}{r_1} \quad (\text{II-5})$$

Où $r_{01} = |\vec{r}_0 - \vec{r}_1|$

Après l'intégration sur \vec{r}_0 et en utilisant la transformation de Bethe :

$$I_B = \int \frac{e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}_0}}{|\vec{r}_0 - \vec{r}_1|} d\vec{r}_0 = \frac{4\pi}{k^2} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}_1} \quad (\text{II-6})$$

On obtient :

$$\begin{aligned} f_{B1} &= -\frac{1}{2\pi} \left\langle e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0} \cdot \Psi_c^-(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \left| V(\vec{r}_0, \vec{r}_1) \right| e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \cdot \Phi_i(\vec{r}_1) \right\rangle \\ &= -\frac{1}{2\pi} \left\langle e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0} \cdot \Psi_c^-(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \left| \frac{1}{r_{01}} - \frac{1}{r_0} \right| e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \cdot \Phi_i(\vec{r}_1) \right\rangle \\ &= \frac{1}{2\pi} \left\langle e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0} \cdot \Psi_c^-(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \left| \frac{1}{|\vec{r}_0 - \vec{r}_1|} \right| e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \cdot \Phi_i(\vec{r}_1) \right\rangle \\ &\quad - \frac{1}{2\pi} \left\langle e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0} \cdot \Psi_c^-(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \left| \frac{1}{r_0} \right| e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \cdot \Phi_i(\vec{r}_1) \right\rangle \\ &= -\frac{1}{2\pi} \iint \frac{e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \cdot e^{-i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0}}{|\vec{r}_0 - \vec{r}_1|} d\vec{r}_0 \cdot \Phi_i(\vec{r}_1) \cdot \Psi_c^{-*}(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \cdot d\vec{r}_1 \\ &\quad + \frac{1}{2\pi} \iint \frac{e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \cdot e^{-i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0}}{|\vec{r}_0|} d\vec{r}_0 \cdot \Phi_i(\vec{r}_1) \cdot \Psi_c^{-*}(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \cdot d\vec{r}_1 \\ &= \frac{2}{k^2} \left(\int \Phi_i(\vec{r}_1) \cdot \Psi_c^{-*}(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \cdot d\vec{r}_1 - \int e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_1} \cdot \Phi_i(\vec{r}_1) \cdot \Psi_c^{-*}(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \cdot d\vec{r}_1 \right) \end{aligned} \quad (\text{II-7})$$

D'où

$$f_{B1} = -\frac{2}{k^2} \left\langle \Psi_c^-(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \left| e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_1} - 1 \right| \Phi_i(\vec{r}_1) \right\rangle \quad (\text{II-8})$$

ou le moment de transfert est défini par : $\vec{k} = \vec{k}_i - \vec{k}_s$

Si $\Phi_i(\vec{r}_1)$ et $\Psi_c^-(\vec{k}_e, \vec{r}_1)$ sont des solution exacte alors forcément ils sont orthogonaux, dans ce cas le terme qui correspond à l'interaction de l'électron projectile avec le noyau cible ne donne aucune contribution :

$$\int \Phi_i(\vec{r}_1) \cdot \Psi_c^{-*}(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \cdot d\vec{r}_1 = 0 \quad (\text{II-9})$$

Donc

$$f_{B1} = -\frac{2}{k^2} \int e^{i\vec{k}\vec{r}_1} \cdot \Phi_i(\vec{r}_1) \cdot \Psi_c^{-*}(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \quad (\text{II-10})$$

ou par une autre représentation :

$$f_{B1} = -\frac{2}{k^2} \left\langle \Psi_c^-(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \left| e^{i\vec{k}\vec{r}_1} \right| \Phi_i(\vec{r}_1) \right\rangle \quad (\text{II-11})$$

b- Impact par proton :

Puisque le proton est positivement chargé alors le potentiel d'interaction avec la cible est :

$$V'(\vec{r}_0, \vec{r}_1) = -\frac{1}{r_{01}} + \frac{1}{r_0} = -V(\vec{r}_0, \vec{r}_1) \quad (\text{II-12})$$

C'est l'opposé du potentiel d'interaction entre un électron et l'atome d'hydrogène.

D'où le premier terme de la série de Born sera :

$$f'_{B1} = -\frac{2}{k^2} \left\langle \Psi_c^-(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \left| -e^{i\vec{k}\vec{r}_1} + 1 \right| \Phi_i(\vec{r}_1) \right\rangle \quad (\text{II-13})$$

Donc :

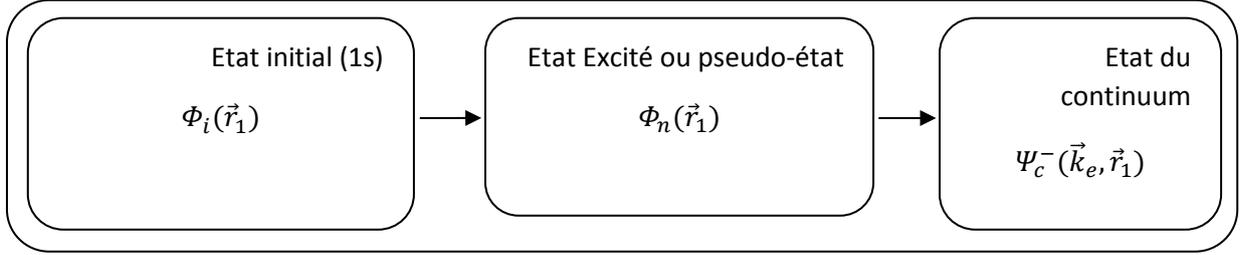
$$f'_{B1} = +\frac{2}{k^2} \left\langle \Psi_c^-(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \left| e^{i\vec{k}\vec{r}_1} - 1 \right| \Phi_i(\vec{r}_1) \right\rangle = -f_{B1} \quad (\text{II-14})$$

Alors le premier terme de la série de Born pour un proton est égal à l'opposé de celui avec un électron, donc la « SETD » pour les deux est la même comme dans la relation (II-2).

II-3- Deuxième approximation de Born :

a- Impact par électron :

La deuxième approximation de Born consiste à considérer que le passage de l'état fondamental à l'état du continuum passe par un état excité ou pseudo-état, ce dernier est considéré comme un état intermédiaire et il est décrit par la fonction d'onde $\Phi_n(\vec{r}_1)$.



Dans ce cas, la section efficace triplement (TDCS) s'écrit :

$$\sigma^{(3)} = \frac{d^3\sigma}{d\Omega_e d\Omega_s dE_e} = \frac{k_s k_e}{k_i} |f_{B1} - f_{B2}|^2 \quad (\text{II-15})$$

Et le deuxième terme f_{B2} de la série de Born s'écrit comme suit :

$$f_{B2} = \frac{1}{8\pi^2} \sum_n \int d\vec{q} \frac{\langle e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0} \Psi_c^-(\vec{k}_e, \vec{r}_1) | V | e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_0} \Phi_n(\vec{r}_1) \rangle \langle e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_0} \Phi_n(\vec{r}_1) | V | e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \Phi_i(\vec{r}_1) \rangle}{q^2 - k_n^2 - i\varepsilon} \quad (\text{II-16})$$

Avec $\varepsilon \rightarrow 0^+$.

Les valeurs de k_n correspondants sont définies par l'équation de conservation d'énergie suivante:

$$\frac{k_i^2}{2} + E_i = \frac{k_n^2}{2} + E_n \quad (\text{II-17})$$

où E_n est l'énergie du niveau intermédiaire. Donc

$$\frac{k_n^2}{2} = \frac{k_i^2}{2} + (E_i - E_n) \quad (\text{II-18})$$

Soient

$$J_1 = \langle e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0} \Psi_c^-(\vec{k}_e, \vec{r}_1) | V | e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_0} \Phi_n(\vec{r}_1) \rangle \quad (\text{II-19})$$

Et

$$J_2 = \left\langle e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}_0} \cdot \Phi_n(\vec{r}_1) \middle| V \middle| e^{i\vec{k}_i\cdot\vec{r}_0} \cdot \Phi_i(\vec{r}_1) \right\rangle \quad (\text{II-20})$$

Après l'intégration sur r_0 en utilisant la transformation de Bethe, J_1 et J_2 seront :

$$J_1 = \frac{4\pi}{(\vec{q}-\vec{k}_s)^2} \left\langle \Psi_c^-(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \middle| e^{i(\vec{q}-\vec{k}_s)\cdot\vec{r}_1} - 1 \middle| \Phi_n(\vec{r}_1) \right\rangle \quad (\text{II-21})$$

$$J_2 = \frac{4\pi}{(\vec{k}_i-\vec{q})^2} \left\langle \Phi_n(\vec{r}_1) \middle| e^{i(\vec{k}_i-\vec{q})\cdot\vec{r}_1} - 1 \middle| \Phi_i(\vec{r}_1) \right\rangle \quad (\text{II-22})$$

Soient :

$$\vec{K}_i = \vec{k}_i - \vec{q} \quad (\text{II-23})$$

$$\vec{K}_f = \vec{q} - \vec{k}_s \quad (\text{II-24})$$

Le moment de transfert sera aussi égale a

$$\vec{k} = \vec{K}_i + \vec{K}_f = \vec{k}_i - \vec{k}_s \quad (\text{II-25})$$

Donc

$$f_{B2} = \frac{1}{8\pi^4} \sum_n \int \frac{d\vec{q}}{(q^2 - k_n^2 - i\varepsilon)} \frac{(4\pi)^2}{K_i^2 K_f^2} \left\langle \Psi_c^-(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \middle| e^{i\vec{K}_f\cdot\vec{r}_1} - 1 \middle| \Phi_n(\vec{r}_1) \right\rangle \\ \times \left\langle \Phi_n(\vec{r}_1) \middle| e^{i\vec{K}_i\cdot\vec{r}_1} - 1 \middle| \Phi_i(\vec{r}_1) \right\rangle \quad (\text{II-26})$$

D'où :

$$f_{B2} = \frac{2}{\pi^2} \sum_n \int d\vec{q} \frac{\left\langle \Psi_c^-(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \middle| e^{i\vec{K}_f\cdot\vec{r}_1} - 1 \middle| \Phi_n(\vec{r}_1) \right\rangle \left\langle \Phi_n(\vec{r}_1) \middle| e^{i\vec{K}_i\cdot\vec{r}_1} - 1 \middle| \Phi_i(\vec{r}_1) \right\rangle}{(q^2 - k_n^2 - i\varepsilon) K_i^2 K_f^2} \quad (\text{II-27})$$

La sommation sur n est sur tous les états discrets et continus $|\Phi_n\rangle$ de la cible.

$$\frac{k_n^2}{2} = \frac{k_i^2}{2} - (E_n - E_i) \quad (\text{II-28})$$

Sous certaines conditions, il est possible de calculer la quantité f_{B2} de telle sorte que la somme sur les états intermédiaires puisse s'effectuer à l'aide d'une relation de fermeture [9]. En d'autres termes, la quantité k_n peut-être approximée par

$$\frac{k_n^2}{2} \approx \frac{k_i^2}{2} - (\bar{E} - E_i) = \frac{\bar{k}^2}{2} \quad (\text{II-29})$$

est on peut dire que les états intermédiaires forment une base complète, c'est-à-dire :

$$\sum_n |\Phi_n\rangle \langle \Phi_n| = 1 \quad (\text{II-29})$$

En appliquant cette formule sur l'équation (II-27) de la deuxième approximation de Born, on obtient la forme suivante indépendante de n :

$$f'_{B2} = \frac{2}{\pi^2} \int \frac{d\vec{q}}{q^2 - \bar{k}^2 - i\varepsilon} \frac{\langle \Psi_c^-(\vec{k}_e, \vec{r}_1) | e^{i\vec{K}\vec{r}_1} - e^{i\vec{K}_f\vec{r}_1} - e^{i\vec{k}_i\vec{r}_1} + 1 | \Phi_i(\vec{r}_1) \rangle}{K_i^2 K_f^2} \quad (\text{II-30})$$

b- Impact par protons :

D'après la relation (II-12) :

$$V'(\vec{r}_0, \vec{r}_1) = -\frac{1}{r_{01}} + \frac{1}{r_0} \quad (\text{II-31})$$

Alors les éléments de matrice J'_1 et J'_2 de (II-21) et (II-22) seront :

$$\begin{aligned} J'_1 &= \left\langle e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0} \cdot \Psi_c^-(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \middle| V \middle| e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_0} \cdot \Phi_n(\vec{r}_1) \right\rangle \\ &= \frac{4\pi}{K_f^2} \left\langle \Psi_c^-(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \middle| -e^{i\vec{K}_f \vec{r}_1} + 1 \middle| \Phi_n(\vec{r}_1) \right\rangle \end{aligned} \quad (\text{II-32})$$

De même:

$$\begin{aligned} J'_2 &= \left\langle e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_0} \cdot \Phi_n(\vec{r}_1) \middle| V \middle| e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \cdot \Phi_i(\vec{r}_1) \right\rangle \\ &= \frac{4\pi}{K_i^2} \left\langle \Phi_n(\vec{r}_1) \middle| -e^{i\vec{k}_i \vec{r}_1} + 1 \middle| \Phi_i(\vec{r}_1) \right\rangle \end{aligned} \quad (\text{II-33})$$

D'où le deuxième terme de la série de Born avec un proton est le même que dans la relation (II-27) avec un électron. Alors :

$$f'_{B1} = -f_{B1} \quad \text{et} \quad f'_{B2} = f_{B2} \quad (\text{II-34})$$

Donc la section efficace triplement différentielle avec un proton est :

$$\sigma^{(3)} = \frac{d^3\sigma}{d\Omega_e d\Omega_s dE_e} = \frac{k_s k_e}{k_i} |f'_{B1} + f'_{B2}|^2 = \frac{k_s k_e}{k_i} |-f_{B1} + f_{B2}|^2 \quad (\text{II-35})$$

II-4- Le principe variationnel de Schwinger :

D'après Joachain [10], le principe variationnel de Schwinger donne de meilleurs résultats que l'approximation de Born d'ordre 2. On a donc le principe variationnel sous la forme proposée par Joachain pour exprimer l'amplitude de diffusion :

$$f = f_{B1} \left[1 - \frac{f_{B2}}{f_{B1}} \right]^{-1} \quad (\text{II-36})$$

Et avec un proton c'est :

$$f' = f_{B1} \left[1 + \frac{f_{B2}}{f_{B1}} \right]^{-1} \quad (\text{II-37})$$

où f_{B1} et f_{B2} représentent la première et la deuxième approximation de Born. La section efficace triplement différentielle sera :

$$\sigma^{(3)} = \frac{d^3\sigma}{d\Omega_e d\Omega_s dE_e} = \frac{k_s k_e}{k_i} |f|^2 \quad (\text{II-38})$$

Dans le cas où $f_{B2} \ll f_{B1}$, il est évident que:

$$\frac{f_{B2}}{f_{B1}} \ll 1 \quad (\text{II-39})$$

Dans ce cas il est facile de déduire que

$$\left[1 - \frac{f_{B2}}{f_{B1}} \right]^{-1} \approx 1 + \frac{f_{B2}}{f_{B1}} \quad (\text{II-40})$$

Et on peut développer l'expression de Schwinger :

$$f \approx f_{B1} \left[1 + \frac{f_{B2}}{f_{B1}} \right] = f_{B1} + f_{B2} \quad (\text{II-41})$$

Ce qui revient à la série de Born d'ordre deux.

II-5- Terminologie et notations

Pour simplifier la présentation de la terminologie nous allons considérer la particule chargée la plus simple qui est l'électron. L'ionisation simple par impact électronique est l'arrachement d'un électron de la cible suite à la collision entre un électron de celle-ci. Ce processus consiste à étudier la collision entre un électron projectile et une cible atomique ou moléculaire conformément aux conditions usuelles d'expérimentation la cible au repos et orientée de façon quelconque bombardée par un faisceau monocinétique d'électrons d'énergie supérieure au premier potentiel d'ionisation (figure II.1)

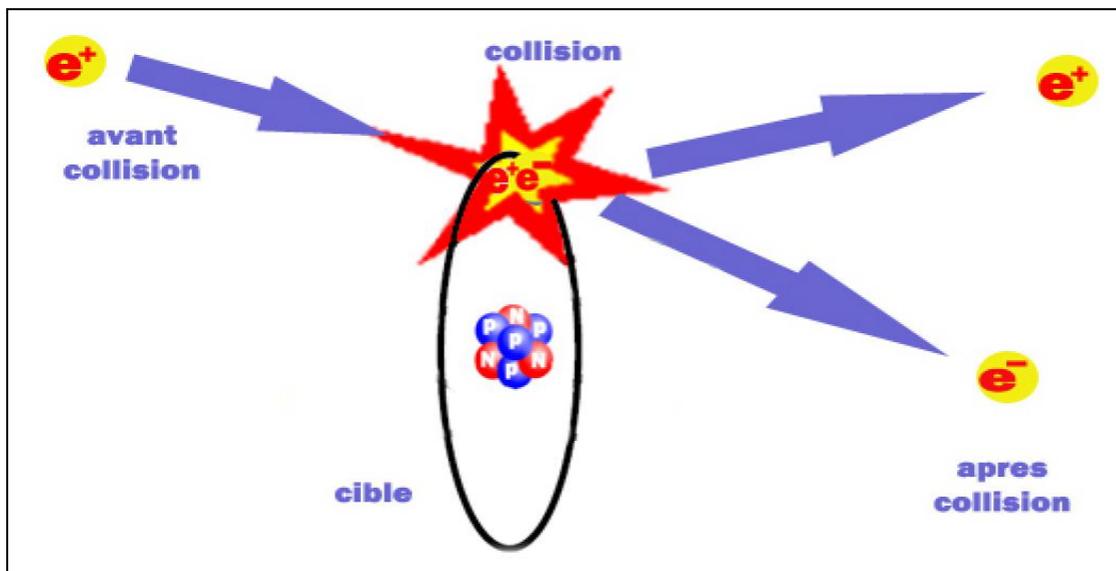
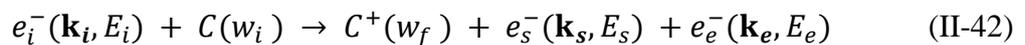


Figure II.1: Le processus de simple ionisation avec l'éjection d'un électron.

D'une façon générale, la réaction de collision de la simple ionisation par impact électronique, connue chez les chercheurs dans le domaine des collisions atomiques par la réaction $(e,2e)$, peut être représenté comme suite :



Cette équation représente un électron e_i^- incident avec une énergie E_i suivant la direction de son vecteur quantité de mouvement \mathbf{k}_i qui rentre en collision avec une cible atomique C . Après la collision si l'énergie transférée à cette dernière est suffisamment grande, cette cible éjecte un électron e_e^- avec une énergie E_e dans la direction définie par le vecteur quantité de mouvement \mathbf{k}_e de l'électron éjecté. La cible devient donc un ion résiduel C^+ et l'électron incident qui est la cause de l'excitation de la cible va donc être diffusé avec

une énergie E_s inférieure que E_i dans la direction de son vecteur quantité de mouvement \mathbf{k}_s . Après la collision on se retrouve donc avec deux électrons diffusés e_s^- et éjecté e_e^- .

La conservation de l'énergie de la réaction question peut donc être écrite sous la forme

$$E_i = E_s + E_e + E_r + E_I \quad (\text{II-43})$$

Où E_I représente l'énergie d'ionisation correspondant à l'extraction d'un électron d'une orbitale donnée de la cible qui est considérée dans son état fondamental. E_r représente l'énergie de recul de l'ion C^+ , qui est considérée ici très petite devant les énergies des autres particules. Dans le cadre de cette supposition, cette énergie peut être négligée dans le bilan énergétique.

$$E_i \approx E_s + E_e + E_I \quad (\text{II-44})$$

La conservation de la quantité de mouvement qui représente la deuxième contrainte cinématique de la réaction (e,2e) peut être écrite sous la forme

$$\mathbf{k}_i = \mathbf{k}_s + \mathbf{k}_e + \mathbf{Q} \quad (\text{II-45})$$

Où \mathbf{Q} représente le vecteur moment de recul de l'ion. Un autre vecteur très important dans la théorie des collisions atomiques et le vecteur $\mathbf{q} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_s$ qui définit le transfert de moment du projectile à la cible. Dans cette théorie le vecteur \mathbf{k}_i est souvent choisi selon la direction Oz d'un référentielle Oxyz, et les directions des vecteurs \mathbf{k}_s et \mathbf{k}_e sont définies par les angles sphériques (θ_s, φ_s) et (θ_e, φ_e) , respectivement (voir figure II.2).

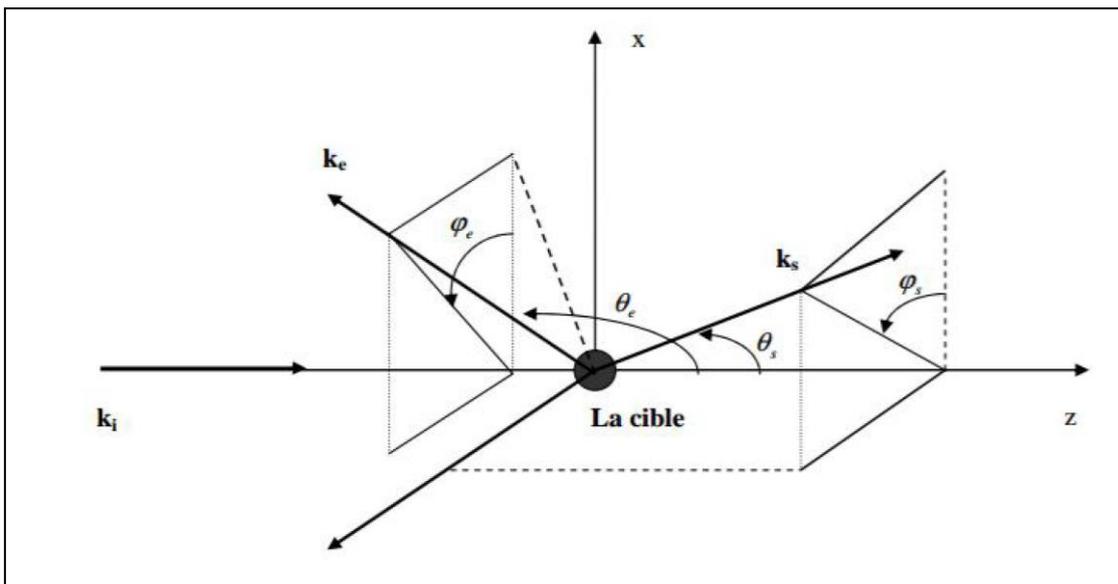


Figure I.2 – Schéma de la réaction (e,2e)

II-6 Les expériences (e,2e)

Réalisées à partir de 1969 par Armaldi *et col* [1]. (1969), et Ehrhardt *et col* [2] ces expériences consistent à détecter en coïncidence les deux électrons issus d'une simple ionisation. Elles permettent, pour des **conditions cinématiques particulières**, d'obtenir des informations sur la densité d'impulsion de la cible avant la collision. La plupart des expériences sont étant réalisées dans des conditions géométriques coplanaires, c'est-à-dire avec trois électrons sortants détectés dans un plan contenant les angles θ_s et θ_e par rapport à la direction d'incidence.

II-6-1 Conditions cinématiques

Le principe de la réaction (e,2e) consiste à ioniser la cible généralement dans son état fondamental par impact d'électrons. Il en résulte un ion résiduel et deux électrons dans la voie de sortie notés e_s et e_e . La réaction en question dépend en général des énergies mises en jeu ainsi que de la valeur du moment de transfert. Ce type de collisions nous fournit directement des informations sur la cible et peut être réalisé de deux façons différentes :

- les collisions (e, 2e) symétriques (Weigold et McCarty (1978)) [3] pour lesquelles l'électron diffusé à la même énergie que l'électron éjecté. Ce type de collisions peut être coplanaire ou non coplanaire. Elles sont dites coplanaires si les quantités de mouvement des électrons incident, éjecté et diffusé se trouvent dans le même plan.
- Les collisions (e, 2e) asymétriques coplanaires où l'électron diffusé est bien plus rapide que l'électron éjecté.

II-6-1-1 Géométrie symétrique :

Dans la géométrie symétrique, les deux électrons diffusé et éjecté sont détectés avec des énergies égales $E_s = E_e = \frac{E_i - E_I}{2}$. Dans cette géométrie on distingue deux types : coplanaire et non coplanaire.

II-6-1-1-1 Géométrie symétrique coplanaire :

Dans ce type d'expériences, les deux électrons diffusé et éjecté se trouvent tous les deux dans le plan de collision ($\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s$) et sont détectés dans des directions symétriques par rapport à la direction d'incidence (Figure II.3).

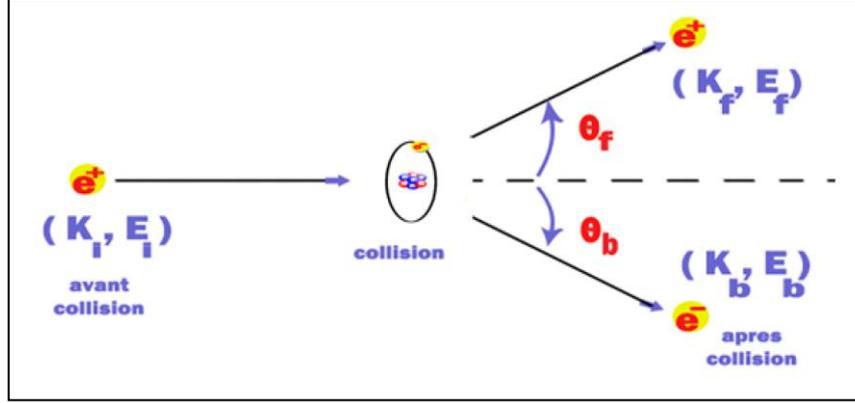


Figure II.3: Collision (e, 2e) avec une géométrie coplanaire symétrique. Les vecteurs quantités de mouvement se trouvent dans le même plan et les énergies et les angles sont égales $E_s = E_e$ et $\theta_e = \theta_s$.

Dans ce cas, l'angle de diffusion θ_s varie simultanément avec celui de l'électron éjecté θ_e tel que : $\theta_s = \theta_e$, $\varphi_s = 0^\circ$, $\varphi_e = 180^\circ$, et avec des énergies égales $E_s = E_e$ et petites devant celle de l'électron incident. Dans ce type de géométrie, la quantité de mouvement de l'ion résiduel $\mathbf{Q} = \mathbf{q} - \mathbf{k}_e$ sera telle que :

$$q = k_i - 2k_s \cos \theta_s \quad (\text{car } k_s = k_e) \quad (\text{II-46})$$

Cette quantité q sera nulle pour $\cos \theta_s = \frac{k_i}{2k_s}$.

La conservation de l'énergie s'écrit

$$\frac{k_i^2}{2} = \frac{k_s^2}{2} + \frac{k_e^2}{2} + E_I = k_s^2 + E_I \quad (\text{II-47})$$

et en supposant E_I négligeable devant k_s^2 :

$$\frac{k_i^2}{2} \approx k_s^2 \quad \text{soit } \cos \theta_s \approx \frac{\sqrt{2}}{2} \quad \text{d'où } \theta_s \approx 45^\circ \quad (\text{II-48})$$

L'impulsion Q est faible pour θ_s inférieur à 60° et tend vers zéro pour $\theta_s \approx 45^\circ$. et lorsque θ_s est supérieur à 90° , Q devient plus grande et la collision est caractérisée par de grands

moments de transfert q . La répulsion électrostatique entre l'électron diffusé et l'électron éjecté (interaction poste-collision) est à prendre en compte si l'angle θ_s est faible.

La répartition angulaire finale du processus de la collision fournit l'information sur la structure de la cible. Le facteur d'échange entre les deux électrons n'est pas dans ces conditions négligeable, il joue un rôle important dans la description théorique du mécanisme collisionnel.

Cette géométrie, proposée par (Armaldi et col. (1969)) [1], a été largement suivie durant les années suivantes. Par exemple, (Camilloni et col. (1978)) [4] et (Stefani et al. (1979)) [5] utilisèrent des valeurs de l'angle polaire allant de 25° à 75° et une énergie incidente assez élevée (environ 2 keV) entraînant une valeur assez grande du moment de transfert (4-7 u.a.) et assez petite de la quantité de mouvement de recul (inférieur que 2 u.a). Le mécanisme de la réaction est dans ce cas bien décrit par les théories du premier ordre. Pochat et col. (1983) [6] et (Tweed (1984)) [7] utilisèrent de plus basses énergies (entre 100 et 200 eV) sur la cible d'hélium avec un angle polaire allant jusqu'à 117° . L'impulsion de recul est plus considérable dans ce cas. Les résultats ne sont interprétés dans ce cas que par les effets d'ordres supérieurs (Byron et col. (1983)) [8]. En effet, en plus du pic binaire pour 45° , un pic de recul se manifeste à 135° et ne s'explique que par une théorie incluant la deuxième approximation de Born. Ce résultat peut se comprendre aisément si on suppose un mécanisme de double diffusion, interprété dans le cadre de la seconde approximation de Born comme suit : dans un premier temps, l'électron incident subit une collision binaire directe avec l'électron de la cible supposé être au repos, la conservation de l'énergie et de l'impulsion indiquent alors que les électrons diffusé et éjecté émergeront chacun avec un angle $\theta = 45^\circ$; ce mécanisme réactionnel est responsable du pic observé à 45° . Le second mécanisme fait intervenir un processus collisionnel double dans lequel l'électron incident est rétro diffusé par le noyau de façon élastique vers l'arrière puis subit une autre collision avec l'électron de la cible. Les deux électrons émergeront cette fois à 45° par rapport à la direction $(-\mathbf{k}_i)$, c'est-à-dire à 135° par rapport à celle de $(+\mathbf{k}_i)$. Actuellement on préfère réaliser des expériences (e,2e) symétriques non coplanaires.

II-6-1-1-2 Géométrie symétrique non coplanaire :

Dans ce type de symétrie nous avons aussi $E_s = E_e$ donc $k_s = k_e$ et mais les angles azimutaux ne sont pas nuls (cf Figure II.3). L'angle azimutal φ_e varie (mais $\varphi_s = 0$) alors que $\theta_e = \theta_s = 45^\circ$.

En utilisant l'équation de la conservation de la quantité de mouvement :

$$\mathbf{k}_i = \mathbf{k}_s + \mathbf{k}_e + \mathbf{Q} \quad (\text{II-49})$$

Les composantes du moment de recul s'écrivent :

$$Q_x = -k_s \sin \theta_s [\cos \varphi_s + \cos \varphi_e] \quad (\text{II-50})$$

$$Q_y = -k_s \sin \theta_s [\sin \varphi_s + \sin \varphi_e] \quad (\text{II-51})$$

$$Q_z = k_i - 2k_s \cos \theta_s \quad (\text{II-52})$$

L'expression du moment de recul dans ce type d'expériences s'écrit alors :

$$Q^2 = (k_i - 2k_s \cos \theta_s)^2 + 4k_s^2 \sin^2 \theta_s \cos^2 \left(\frac{\varphi_e}{2} \right) \quad (\text{I-53})$$

Si on suppose que $k_i^2/2 \approx k_s^2$ et sachant que $\cos 45^\circ = \sin 45^\circ = \sqrt{2}/2$ alors

$$Q^2 = 2k_s^2 \cos^2 \left(\frac{\varphi_e}{2} \right) = k_i^2 \cos^2 \left(\frac{\varphi_e}{2} \right) \quad (\text{I-54})$$

Dans ce type d'expérience φ_e varie peu autour de 180° (généralement $\pm 20^\circ$) et l'interaction électron diffusé-électron éjecté peut être négligée si $E_s \gg E_e$. Cette géométrie est caractérisée par de grands moments de transfert et est généralement utilisée dans les mesures de densité de moment électronique qu'on appelle spectroscopie de moment électronique Electron Momentum Spectroscopy (EMS) ou spectroscopie (e,2e) (Brion (1986)) [9]. Ce type d'expériences (e,2e) symétriques spectroscopiques nécessite une énergie incidente trente fois supérieure à l'énergie d'ionisation de la couche étudiée. La Section Efficace Triplement Différentielle (SETD) est déterminée en fonction de Q ou de Φ tels que $\Phi = \pi - |\varphi_s - \varphi_e|$ avec $\Phi = |\varphi_s - \varphi_e|$ étant l'angle azimutal relatif entre l'électron diffusé et l'électron éjecté. Le moment de transfert est constant (il est maximum lorsque $\theta_s = 45^\circ$).

Cette technique est un moyen très efficace pour les mesures d'énergies de liaison (ou d'ionisation) et les distributions de moments électroniques des orbitales de valence dans les atomes et les molécules (McCarthy et Weigold (1988)) [10].

La technique EMS s'avère alors en mesure de fournir des informations qui ne peuvent être obtenues par aucune autre technique car elle offre aussi un moyen de remonter à la structure de la cible. En effet, la SETD est proportionnelle à la densité électronique de moment correspondant à l'orbitale à partir de laquelle l'électron a été éjecté aussi bien dans le cas atomique que moléculaire (McCarthy et col. (1976)) [11].

II-6-1-1 Géométrie asymétrique :

Dans le cas de la géométrie asymétrique, les deux électrons sont détectés avec des énergies très différentes, un électron diffusé avec l'énergie E_s proche de l'énergie incidente E_i et un électron est éjecté avec l'énergie E_e assez faible.

Les collisions (e,2e) asymétriques dites spectroscopiques, nécessitent que la norme du vecteur moment de transfert q soit proche de celle du vecteur quantité de mouvement de l'électron éjecté k_e ($q \approx k_e$) de façon que la quantité de mouvement transférée à l'ion (Q) soit la plus petite possible. L'énergie de l'électron éjecté doit être au moins égale à $10 \times PI$ et $E_i \geq 30 \times PI$ où PI est l'énergie potentielle d'ionisation.

II-6-1-1-1 Géométrie asymétrique coplanaire :

Dans ce type d'expériences les électrons diffusé et éjecté se trouvent tous les deux dans le plan de collision (k_i, k_s), l'angle de diffusion restant faible ($\theta_s \leq 15^\circ$) alors que l'angle d'éjection est variable entre 0 et 360° .

Cette cinématique, connue aussi sous le nom de géométrie d'Ehrhard (Ehrhardt et col. (1969))[12] décrit essentiellement les réactions du régime dipolaire caractérisées par un faible moment de transfert. Elle a été réalisée à des énergies assez variées, très basses (Fournier-Lagarde et col. (1984)[13], quelques centaines d'électrons volts (Ehrhardt et col. (1986)) [14] puis jusqu'à 8 keV (Lahmam-Bennani et col.1984b)[15]. Ces diverses conditions expérimentales permettent d'avoir suffisamment de données pour l'étude de la dynamique du processus d'ionisation. A partir de 1983, cette géométrie et sous certaines

conditions (Lahmam-Bennani et col. (1984b, 1986))[15, 16] et (Avaldi et col. (1987))[17], s'est même révélée en mesure de donner des informations sur la structure de la cible en plus de l'étude de la dynamique de la collision et offre encore d'autres avantages tels qu'une moindre influence des effets d'échange. Ces expériences ont surtout été réalisées sur des cibles atomiques assez simples dont la structure est supposée connue tels que l'hydrogène (Weigold et col. (1979))[18], l'hélium (Ehrhardt et col. (1972))[19] et l'hydrogène moléculaire (Jung et col. (1975))[20] et (Chérid et col. (1989))[21] permettant ainsi une étude théorique plus aisée.

II-6-1-1-2 Géométrie asymétrique non coplanaire :

Dans ce type d'expérience, les électrons diffusé et éjecté sont détectés avec des énergies différentes, les angles polaires sont également différents et ils sont détectés en dehors du plan de collision.

Références

- [1] - Vainshtein, I. Presnyakov, and I. Sobelman, zh. Eksp, sov. , phys. JETP 18, pp 1383-1390 (1964).
- [2] - D. Crothers , R. McCarroll , proc. Phys. Soc. 86 issue: 4, 753-760(1965)
- [3] - R. McCarroll and A. Salin, Phys. B, ser. 2, vol.1, pp163-171(1968).
- [4] Byron F W Jr, Joachain C J and Piraux B 1985 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys* **18** 3203
- [5] Dal Cappello C, A, Menas F and Roy A C 2011 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys* **44** 15204
- [6] Sahlaoui M and Bouamoud M 2012 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **45** 085201
- [7] - J. T. Park, J. E. Aldag, J. M. George et J. L. Preacher, Phys. Rev. A 14, pp608-614 (1976).
- [8] Zahira REZKALLAH, THÈSE DE DOCTORAT, UNIVERSITE FERHAT ABBAS - SETIF, ionisation de petites molécules par impact d'électrons : études dynamique et de structure(2011).
- [9] Houamer S, *Thèse de doctorat*, Université Sétif (2000).
- [10] Quantum collision theory, Volume 1, P.234-235]

Chapitre III

Ionisation de la molécule d'eau par impact de proton

III-1 Introduction

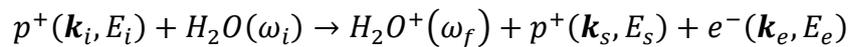
Pour étudier le processus d'ionisation d'une cible atomique ou moléculaire par impact d'électrons, plusieurs modèles théoriques et méthodes expérimentales ont été développés. La compréhension de ce processus est de grande importance pour plusieurs domaines, tels que la physique des plasmas, l'astrophysique ou la radiobiologie. Il est difficile d'étudier des cibles atomiques ou moléculaires avec plus de deux électrons. Donc il est nécessaire d'utiliser des méthodes d'approximation qui permettent d'extraire des données précises sans compliquer les calculs. Ces approximations doivent être construites pour donner des résultats précis et une identification des mécanismes qui se produisent pendant la collision. La méthode d'approximation de Born est une de ces types d'approximations. Elle permet, par exemple, l'identification du processus de collisions multiples dans l'ionisation simple et double [1-4]. L'approximation de Born est flexible dans les calculs analytiques et numériques et demeure encore un modèle préférable pour étudier les processus de collision. L'application de la deuxième approximation de Born pour étudier l'ionisation simple et double d'une cible atomique a été étudiée récemment en détails par Dal Cappello et ses collaborateurs. [4].

Dans ce chapitre nous employons la première approximation de Born pour étudier l'ionisation simple de la molécule d'eau par impact de proton. L'eau constitue une masse importante de la matière biologique, ce qui fait de la molécule d'eau une cible intéressante. Plusieurs simulations numériques de l'interaction d'une radiation ionisante avec un tissu biologique ont besoin d'ensembles précis de sections efficaces d'ionisation de la molécule d'eau [5-9]. Pour cette raison, plusieurs activités théoriques et expérimentales sont focalisées sur l'évaluation des sections efficaces de l'ionisation de la molécule d'eau par impact de particules chargées.

Avant d'étudier l'ionisation de la molécule d'eau nous allons donner un formalisme général pour calculer la section efficace doublement différentielle (SEDD) de l'ionisation par impact de proton d'une molécule simple de forme chimique XH_n , avec X est un atome très lourd devant l'atome d'hydrogène H. Dans ce formalisme les intégrales dans l'espace réel sont calculées en utilisant l'expression analytique donnée dans les références [10, 11]. Les sections efficaces différentielles données dans la première approximation de Born sont corrigées par le facteur de Salin pour traiter l'interaction post-collision entre le proton électrons diffusé et éjecté.

III-2 formalisme théorique

Le processus d'ionisation simple par impact de proton peut être résumé dans l'équation suivante :



Les indices i, s et e des vecteurs moments \mathbf{k} et des énergies E font référence aux particules : incidente (proton p), diffusé (proton) et éjecté (électron), respectivement, w_i et w_f sont les énergies initiale et finale de la cible moléculaire H_2O . Le proton p^+ vient avec une énergie cinétique E_i et rentre en collision avec la molécule d'eau, le proton perd une partie de son énergie cinétique et diffuse avec une énergie E_s . L'énergie perdue par le proton se transmet à la molécule d'eau ce qui crée une perturbation ou une instabilité dans le système de charges qui constitue la cible. Cette instabilité sera poussée la molécule à éjecter un électron avec une énergie E_e et gagne une nouvelle énergie w_f . Donc l'électron va s'éjecter avec une quantité de mouvement \mathbf{k}_e et une énergie E_e dans une direction

définie par les angles (θ_e, φ_e) . Le proton va diffuser avec une quantité de mouvement \mathbf{k}_s et une énergie E_s dans une direction définie par les angles (θ_s, φ_s) .

Si lors d'une expérience la cible moléculaire n'est pas alignée suivant une direction définie alors elle sera considérée aléatoirement orientée dans l'espace. Dans ce cas la section efficace triplement différentielle donnée théoriquement en unités atomiques doit être moyennée sur toutes les orientations moléculaires.

$$\frac{d^{(3)}\sigma}{d\hat{\mathbf{k}}_s d\hat{\mathbf{k}}_e dE_e} = \mu^2 \frac{k_s k_e}{k_i} \int |T_{fi}|^2 \frac{d\omega}{8\pi} \quad (\text{III-1})$$

où l'orientation de la molécule dans le système de référence liée au laboratoire est définie par l'élément d'angle solide $d\omega = \sin \beta d\alpha d\gamma$ avec (α, β, γ) les angles d'Euler. $d\hat{\mathbf{k}}_s$ et $d\hat{\mathbf{k}}_e$ sont des éléments d'angles solides centrés sur les directions (θ_s, φ_s) et (θ_e, φ_e) .

Les moments cinétiques sont définies en fonction des énergies par les égalités suivantes

$$k_i = \sqrt{2 \mu E_i}$$

$$k_s = \sqrt{2 \mu E_s}$$

$$k_e = \sqrt{2 E_e}$$

Avec μ la masse du proton (la masse de l'électron est égale à 1 en unités atomiques). T_{fi} est un élément de matrice de transition du système projectile-cible défini par

$$T_{fi} = \langle \Psi_f | V | \Psi_i \rangle \quad (\text{III-2})$$

Où $|\Psi_i\rangle$ et $|\Psi_f\rangle$ sont les états initial et final.

Quand la section efficace triplement différentielle est bien définie nous pouvons déduire la section efficace doublement d'éjection à partir de la section efficace triplement différentielle par intégration sur l'élément d'angle solides $d\hat{\mathbf{k}}_s$ de la direction de diffusion

$$\frac{d^{(2)}\sigma}{d\hat{\mathbf{k}}_e dE_e} = \int \frac{d^{(3)}\sigma}{d\hat{\mathbf{k}}_s d\hat{\mathbf{k}}_e dE_e} d\hat{\mathbf{k}}_s \quad (\text{III-3})$$

Le potentiel d'interaction est définie par

$$V = \frac{1}{|r_0 - \mathbf{R}_{H1}|} + \frac{1}{|r_0 - \mathbf{R}_{H2}|} + \frac{8}{|r_0 - \mathbf{R}_O|} - \sum_{i=1}^{10} \frac{1}{|r_0 - r_i|} \quad (\text{III-4})$$

où \mathbf{r}_0 est le vecteur position de proton incident, \mathbf{r}_i est le vecteur position du i ème électron de la cible, \mathbf{R}_{H1} et \mathbf{R}_{H2} sont les vecteurs positions des noyaux d'hydrogène de la molécule H_2O , \mathbf{R}_O est le vecteur position du noyau d'oxygène.

L'état initial qui correspond à une particule incidente et 10 électrons liés est décrit par le produit

$$|\Psi_i\rangle = \varphi_{k_i}(\mathbf{r}_0)\phi_i(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_N) \quad (\text{III-5})$$

où k_i est le moment de la particule incidente. L'état final est définie par

$$|\Psi_f\rangle = \varphi_{k_s}(\mathbf{r}_0)\phi_f(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_N) \quad (\text{III-6})$$

où k_s est le moment de la particule diffusée. Dans l'approximation de Born, les fonctions $\varphi_{k_i}(\mathbf{r}_0)$ et $\varphi_{k_s}(\mathbf{r}_0)$ sont des ondes planes

$$\varphi_{k_i}(\mathbf{r}_0) = \left(\frac{1}{\sqrt{2\pi}}\right)^3 \exp(i \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}_0) \quad (\text{III-7})$$

Et

$$\varphi_{k_s}(\mathbf{r}_0) = \left(\frac{1}{\sqrt{2\pi}}\right)^3 \exp(i \mathbf{k}_s \cdot \mathbf{r}_0) \quad (\text{III-8})$$

Il est difficile de traiter le problème de collision d'un proton avec une cible moléculaire de N électrons et M noyaux. Pour cette raison nous allons utiliser l'approximation dite du cœur gelé (frozen-core approximation) pour réduire le problème de plusieurs particules à deux particules actives proton-électron. Les fonctions d'ondes données dans les équations (III-4) et (III-5) qui décrivent les états initial et final du système de collision sont réduites donc aux formes simples suivantes

$$|\Psi_i\rangle = \varphi_{k_i}(\mathbf{r}_0)\phi_{OM}(\mathbf{r}_1) \quad (\text{III-9})$$

où k_i est le moment de la particule incidente. L'état final est définie par

$$|\Psi_f\rangle = \varphi_{k_s}(\mathbf{r}_0)\psi_{k_e}(\mathbf{r}_1) \quad (\text{III-10})$$

Dans le cadre de l'approximation du cœur gelé l'énergie potentielle d'interaction peut aussi être réduite à la forme suivante

$$V = \frac{1}{|\mathbf{r}_0|} - \frac{1}{|\mathbf{r}_0 - \mathbf{r}_1|} \quad (\text{III-11})$$

Où \mathbf{r}_1 est le vecteur position de l'électron actif (l'électron qui va être éjecté après la collision). L'origine du référentiel est choisie sur le noyau le plus lourd qui est le noyau d'oxygène. Puisque le noyau d'oxygène est très lourd devant le noyau d'hydrogène, chaque orbital moléculaire peut être définie par une combinaison linéaire de fonctions de type Slater centrée sur l'atome d'oxygène [12]

$$\phi_{OM}(\mathbf{r}_1) = \sum_{i=1}^N a_{ik} \Phi_{n_{ik}l_{ik}m_{ik}}^{\xi_{ik}}(\mathbf{r}_1) \quad (\text{III-12})$$

Où a_{ik} sont des coefficients de développement et $\Phi_{n_{ik}l_{ik}m_{ik}}^{\xi_{ik}}(\mathbf{r}_1)$ est un élément de base atomique de type Slater définie dans le cadre du référentielle moléculaire comme suite

$$\Phi_{n_{ik}l_{ik}m_{ik}}^{\xi_{ik}}(\mathbf{r}_1) = R_{n_{ik}}^{\xi_{ik}}(r_1) S_{l_{ik}m_{ik}}(\hat{\mathbf{r}}_1) \quad (\text{III-13})$$

$R_{n_{ik}}^{\xi_{ik}}(r_1)$ est la partie radiale de type Slater définie par

$$R_{n_{ik}}^{\xi_{ik}}(r_1) = \frac{(2\xi_{ik})^{n_{ik}+1/2}}{(2n_{ik})!} r_1^{n_{ik}-1} \exp(-\xi_{ik}r_1) \quad (\text{III-14})$$

$S_{l_{ik}m_{ik}}(\hat{\mathbf{r}}_1)$ est l'harmonique sphérique réel

$$S_{l_{ik}m_{ik}}(\hat{\mathbf{r}}_1) = \left(\frac{m_{ik}}{2|m_{ik}|}\right)^{1/2} \{Y_{l_{ik}-|m_{ik}|}(\hat{\mathbf{r}}_1) + (-1)^{m_{ik}} Y_{l_{ik}|m_{ik}|}(\hat{\mathbf{r}}_1)\} \quad (\text{III-15})$$

Il est important de préciser que la fonction d'onde moléculaire donnée dans l'équation (III-12) est définie dans un référentiel moléculaire où l'axe Oz est considéré comme axe principale orienté dans la direction de plus haut degré de symétrie. Cependant, dans une réaction de collision on trouve souvent que l'axe Oz du référentiel du laboratoire est choisi dans la direction de la particule incidente. Il est donc nécessaire de faire une transformation de la fonction d'onde moléculaire du référentiel moléculaire vers le référentiel du laboratoire. Ceci est bien possible grâce à la formule suivante

$$Y_{l_{ik}m_{ik}}(\hat{\mathbf{r}}_1) = \sum_{\mu=-l_{ik}}^{l_{ik}} D_{\mu m_{ik}}^{l_{ik}}(\alpha, \beta, \gamma) Y_{l_{ik}\mu}(\hat{\mathbf{r}}_1) \quad (\text{III-16})$$

Ou $D_{\mu m_{ik}}^{l_{ik}}(\alpha, \beta, \gamma)$ est l'opérateur de rotation, α , β et γ sont les angles d'Euler.

Nous rappelons que durant une réaction de collision, la cible moléculaire est aléatoirement orientée. Il est donc indispensable de faire une moyenne de la section efficace sur les orientations possible de la cible.

Dans le présent formalisme la fonction d'onde qui décrit l'électron éjectée est choisie comme une fonction de Coulomb

$$\psi_{\mathbf{k}_e}(\mathbf{r}_1) = \exp\left(\frac{\pi}{k_e}\right) \Gamma\left(1 + \frac{i}{k_e}\right) \frac{\exp(i \mathbf{k}_e \cdot \mathbf{r}_1)}{(2\pi)^{3/2}} \times F\left(-\frac{i}{k_e}, 1, -i(k_e r_1 + \mathbf{k}_e \cdot \mathbf{r}_1)\right) \quad (\text{III-17})$$

Pour plus de détails lecteur peut voir les travaux précédents [10,11,13-16].

Dans le but de prendre en compte le transfert de l'électron vers le continuum, nous allons multiplier la section efficace triplement différentielle définie dans l'équation (III-1) par un facteur S connue par le facteur de Salin

$$\frac{d^{(3)}\sigma}{d\hat{\mathbf{k}}_s d\hat{\mathbf{k}}_e dE_e} = S \mu^2 \frac{k_s k_e}{k_i} \int |T_{fi}|^2 \frac{dw}{8\pi} \quad (\text{III-18})$$

Ou

$$S = \frac{s}{1 - \exp(-s)} \quad (\text{III-19})$$

Avec

$$s = \frac{2\pi}{\left|\frac{k_i}{\mu} - k_e\right|} \quad (\text{III-20})$$

Pour résoudre analytiquement l'intégrale sur dw dans l'équation (III-18) nous utilisons la transformation donnée dans l'équation (III-16) avec laquelle l'orientation moléculaire est donnée dans le système de référence du laboratoire. Ainsi, la propriété suivante d'orthonormalisation

$$\int D_{m_1 \mu_1}^{l_1}(\alpha, \beta, \gamma) D_{m_2 \mu_2}^{l_2}(\alpha, \beta, \gamma) dw = \frac{8\pi^2}{2l_1 + 1} \delta_{l_1 l_2} \delta_{m_1 m_2} \delta_{\mu_1 \mu_2} \quad (\text{III-21})$$

est utilisée pour résoudre l'intégrale dans l'équation (III-18), pour trouver le résultat

$$\frac{d^{(3)}\sigma}{d\hat{\mathbf{k}}_s d\hat{\mathbf{k}}_e dE_e} = S\mu^2 \frac{k_s k_e}{k_i} \sum_{i=1}^N \frac{|a_{ik}|^2}{2l_{ik}+1} \sum_{\mu=-l_{ik}}^{l_{ik}} |T_i|^2 \quad (\text{III-22})$$

Ou

$$T_i = \frac{4\pi}{q^2} \left[F_{n_{ik}l_{ik}m_{ik}}^{\xi_{ik}}(\mathbf{q}) - P_{n_{ik}l_{ik}m_{ik}}^{\xi_{ik}} \right] \quad (\text{III-23})$$

Avec

$$F_{n_{ik}l_{ik}m_{ik}}^{\xi_{ik}}(\mathbf{q}) = \langle \psi_{\mathbf{k}_e}(\mathbf{r}_1) | \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_1) | \Phi_{n_{ik}l_{ik}m_{ik}}^{\xi_{ik}}(\mathbf{r}_1) \rangle \quad (\text{III-24})$$

$$P_{n_{ik}l_{ik}m_{ik}}^{\xi_{ik}} = \left\langle \psi_{\mathbf{k}_e}(\mathbf{r}_1) \left| \Phi_{n_{ik}l_{ik}m_{ik}}^{\xi_{ik}}(\mathbf{r}_1) \right. \right\rangle \quad (\text{III-25})$$

Les formes analytiques des fonctions d'ondes des états initial et final choisies ici pour décrire l'électron actif nous permettent de résoudre analytiquement les intégrales tridimensionnelles dans l'espace des positions [10].

III-3 Résultats et discussions

Nous allons étudier dans cette section l'ionisation de la molécule d'eau par impact de proton en utilisant le formalisme décrit dans la section précédente. Nos résultats théoriques sont obtenus dans la première approximation de Born et comparés aux données expérimentales de Toburen et Wilson [17] et aux résultats théoriques de Boudrioua et ses collaborateurs [18].

Pour décrire l'état fondamental de la molécule d'eau nous avons choisi la représentation de Moccia [12] dans laquelle chaque orbitale moléculaire est décrite par une fonction d'onde d'un seul centre développée sur une base de type Slater comme celle donnée dans l'équation (III-12). Les calculs donnés dans la section 2 sont effectués pour une partie angulaire des éléments de base des états liés décrite par l'harmonique sphérique réelle définie dans l'équation (III-15).

Avant d'étudier l'ionisation de la molécule d'eau nous allons discuter d'abord la précision de la fonction d'onde proposée par Moccia [12] où chaque orbitale moléculaire est développée sur des fonctions de type Slater centrés sur l'oxygène. Les calculs de Moccia [12] ont été effectués pour la configuration d'équilibre dans la méthode de champ self-

consistant (self-consistent field (SCF)). Le tableau III.1 donne la liste des différents coefficients et nombres quantiques proposés par Moccia [12] pour développer chaque orbitale moléculaire.

Tableau III.1 Liste des coefficients et nombres quantiques (n_ν, l_ν, m_ν) nécessaires pour développer chaque orbitale de la molécule d'eau sur la base de type Slater [12]. Les cinq orbitales moléculaires sont notées par $^1a_1, ^2a_1, ^3a_1, ^1b_2$ et 1b_1 , respectivement. Les potentiels d'ionisation correspondant sont en unités atomiques 20.5249, 1.3261, 0.5561, 0.6814 et 0.4954.

n_ν	l_ν	m_ν	α	1a_1	2a_1	3a_1	1b_2	1b_1
1	0	0	12.600	0.05167	0.01889	-0.00848
1	0	0	7.450	0.94656	-0.25592	0.08241
2	0	0	2.200	-0.01708	0.77745	-0.30752
2	0	0	3.240	0.02497	0.09939	-0.04132
2	0	0	1.280	0.00489	0.16359	0.14954
2	1	0	1.510	0.00107	0.18636	0.79979
2	1	0	2.440	-0.00244	-0.00835	0.00483
2	1	0	3.920	0.00275	0.02484	0.24413
3	2	0	1.600	0.00000	0.00695	0.05935
3	2	0	2.400	0.00000	0.00215	0.00396
3	2	2	1.600	-0.00004	-0.06403	-0.09293
3	2	2	2.400	0.00003	-0.00988	0.01706
4	3	0	1.950	-0.00004	-0.02628	-0.01929
4	3	2	1.950	-0.00008	-0.05640	-0.06593
2	1	-1	1.510	0.88270	...
2	1	-1	2.440	-0.07083	...
2	1	-1	3.920	0.23189	...
3	2	-1	1.600	0.25445	...
3	2	-1	2.400	-0.01985	...
4	3	-1	1.950	0.04526	...
4	3	-3	1.950	-0.06381	...
2	1	1	1.510	0.72081
2	1	1	2.440	0.11532
2	1	1	3.920	0.24859
3	2	1	1.600	0.05473
3	2	1	2.400	0.00403
4	3	1	1.950	0.00935
4	3	3	1.950	-0.02691

La bonne qualité de la fonction d'onde a été aussi confirmée par la comparaison des résultats théoriques des sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation des orbitales $^2a_1, ^3a_1, ^1b_2$ et 1b_1 obtenues par Champion et ses collaborateurs [19] avec les résultats expérimentaux de la spectroscopie de moment électronique (SME) (electron momentum spectroscopy, EMS) obtenue par Bawagan et ses collaborateurs [20]. La spectroscopie de moment électronique mesure la densité moment-énergie des électrons d'un atome, une molécule ou un solide au moyen d'une cinématique complète sur la réaction d'ionisation effectuée par un faisceau d'électrons.

La section efficace triplement différentielle de l'ionisation à une énergie suffisamment grande, obtenue pour différentes valeurs de la différence entre le moment électronique totale et les énergies initiales et finales est très sensible à la densité énergie-moment. Les conditions d'expérience peuvent être arrangées telles que la différence entre le moment électronique total initial et final puisse être identifiée avec le moment de l'électron initialement lié, et la probabilité d'observation de cette différence est proportionnelle à la densité énergie-moment.

Les résultats théoriques de Champion et ses collaborateurs. [19] et les mesures expérimentales de Bawagan et ses collaborateurs. [20] sont donnés dans la figure III.1.

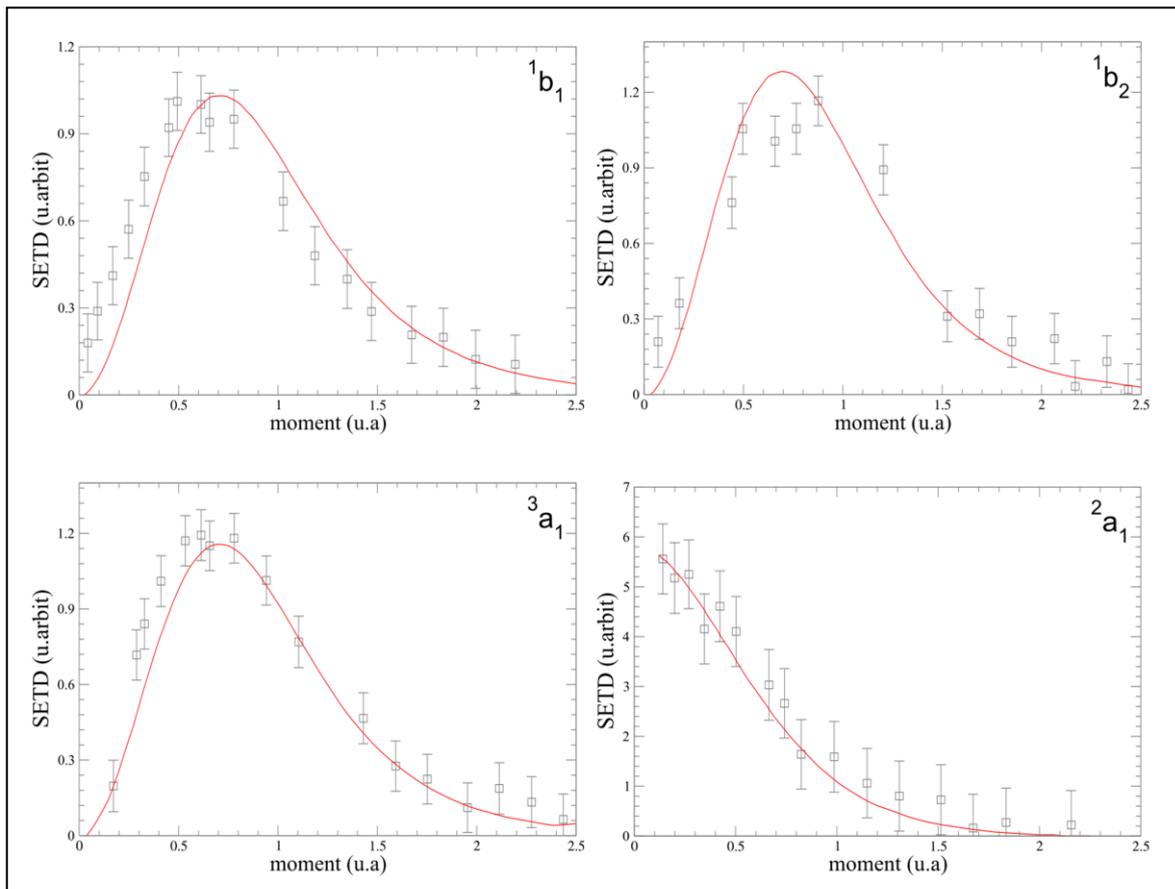


Figure III.1 Comparaison de la section efficace triplement différentielle obtenue Théoriquement par Champion et ses collaborateurs. [19] (ligne continue) pour les orbitales de la molécule d'eau $1b_1$, $1b_2$, $3a_1$ et $2a_1$ avec les résultats de l'expérience mesurés par Bawagan et ses collaborateurs. [20] (carrés ouverts).

Les calculs des résultats théoriques obtenus par Champion et ses collaborateurs. [19] sont basés sur l'approximation d'onde plane (plane wave impulse approximation, PWBA) en prenant en compte l'effet d'échange puisque les deux électrons sortent avec la même énergie. L'expérience de Bawagan et ses collaborateurs [20] est réalisée pour une

géométrie non-coplanaire pour une énergie d'incidence d'environ 1200 eV et un angle de détection des deux électrons ensemble $\theta = 45^\circ$ par rapport à la direction d'incidence qui correspond à un maximum du moment de transfert. L'angle azimutal d'éjection est considéré égal à zéro $\varphi_e = 0^\circ$ et l'angle azimutal de diffusion φ_s s'étend entre 0 et 30° . Le bon accord entre la théorie et l'expérience observé dans la figure III.1 montre que la représentation de Moccia [12] est d'une bonne qualité et constitue une description précise de la structure de la cible.

Nous allons maintenant discuter nos résultats de la section efficace doublement différentielle de l'ionisation de la molécule d'eau par impact de proton. Dans les figures III.2 et III.3 nous avons présenté nos résultats de calcul théorique de la section efficace doublement différentielle obtenue dans le cadre du modèle d'une fonction d'onde de Coulomb avec la première approximation de Born. Nos résultats sont comparés aux résultats théoriques de Boudrioua et ses collaborateurs [18] et les données expérimentales de Toburen et Wilson [17]. Dans l'expérience le proton est émis avec une énergie cinétique très grande, 1.5 MeV. Cette énergie est suffisamment grande pour que la première approximation de Born soit suffisamment précise pour décrire la réaction de collision considérée ici dans ce travail. Pour l'énergie de 1.5 MeV l'approximation du cœur gelé doit aussi être valable dans le cas présent. Lors de l'expérience la cible moléculaire est aléatoirement orientée dans l'espace, et donc un chaque point du spectre de la section efficace est obtenue par une moyenne sur des mesures obtenue pour dans la même direction d'éjection et pour la même énergie. Dans ce cas la section efficace doublement différentielle doit être une moyenne sur les sections efficaces obtenue pour chaque orientation possible.

Les résultats théoriques de Boudrioua et ses collaborateurs [18] sont obtenus avec deux modèles théoriques, le premier est le même que celui utilisé dans ce travail mais avec un formalisme mathématique différent. Les auteurs ont utilisé la technique du développement en ondes partielles pour résoudre les intégrales angulaires dans l'amplitude de transition qui figure dans la section efficace triplement différentielle. L'intégrale radiale a été calculée numériquement. Le deuxième modèle utilisé par Boudrioua et ses collaborateurs [18] est le modèle de l'onde distordue toujours dans la première approximation de Born. Dans ce modèle au lieu d'utiliser une onde de Coulomb les auteurs ont utilisé une onde distordue pour prendre en compte l'effet de l'ion résiduel sur l'électron éjecté. Evidemment, afin de calculer la section efficace doublement différentielle, tous les travaux théoriques ont utilisé

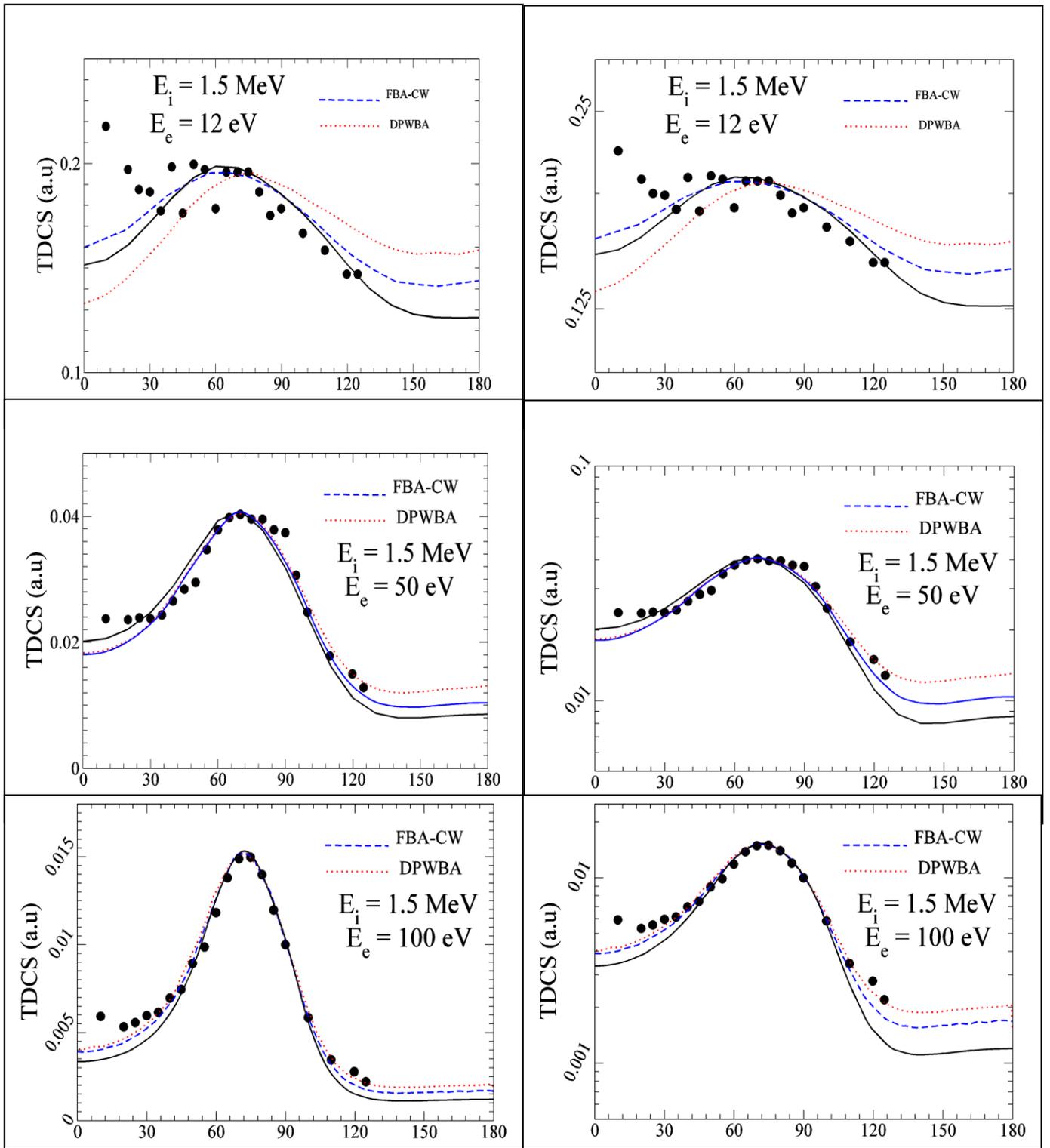


Figure III.2 : section efficace doublement différentielle de l'ionisation de la molécule d'eau par impact de proton d'énergie incidente $E_i = 1.5$ MeV. Nos résultats théoriques sont en ligne continue. Les données expérimentales de Toburen et Wilson [17] en cercles. Les résultats théoriques de Boudrioua et ses collaborateurs [18] du modèle une fonction de Coulomb (FBA-CW) en ligne discontinue et du modèle d'une onde distordue (DPWBA) en ligne pointillée. Dans cette figure les énergies d'éjection sont $E_e = 12, 50$ et 100 eV. A gauche les résultats sont présentés en échelle linéaire et à droite en échelle logarithmique.

une double intégration numérique de la section efficace triplement différentielle mais avec des techniques numériques différentes. Dans le travail de Boudrioua et ses collaborateurs [18], la description de Moccia [12] pour les orbitales moléculaires a aussi été utilisée

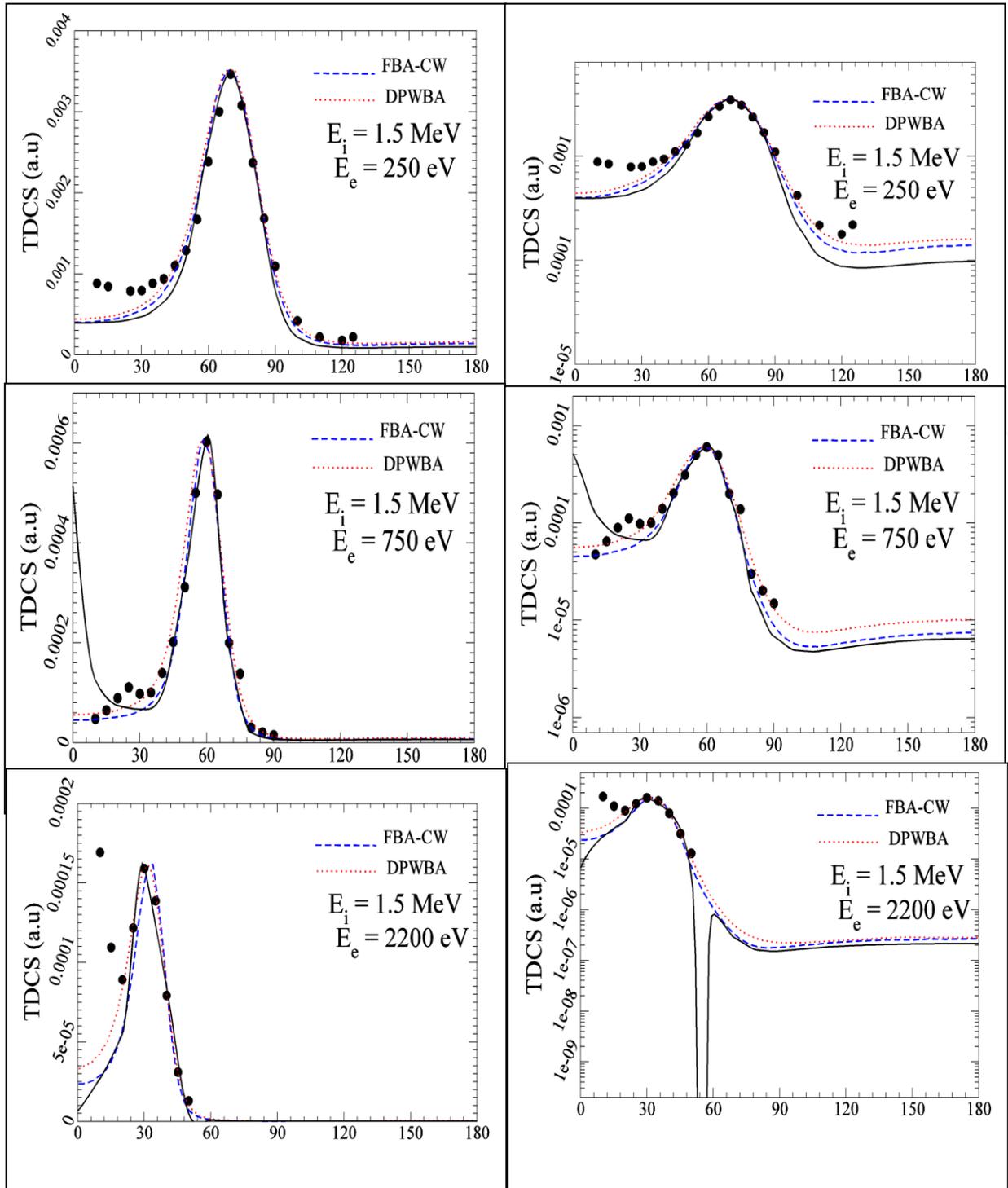


Figure III-3 : comme la figure III-2 mais pour les énergies d'éjection 250, 750 et 2200 eV.

A partir des figure III.2 et III.3 nous pouvons voir que, d'une façon générale, nos résultats sont en bon accord avec ceux de l'expérience. Au lieu de présenter tous les résultats uniquement en échelle logarithmique, les résultats sont présentés dans les deux échelles logarithmiques et échelles linéaires. Nous pensons que, de cette manière, la comparaison des résultats théoriques et expérimentaux devient plus claire. Afin de prendre en compte l'effet du transfert d'électrons vers le continuum, nous avons multiplié la section efficace par le facteur Salin. D'une manière générale, à partir de la comparaison des résultats actuels avec les données expérimentales, nous pouvons dire que nos résultats sont en

bon accord avec l'expérience sur tous pour les énergies d'éjection 50, 100 et 250 eV, et en accord acceptable pour les autre énergies 12, 750 et 2200 eV. Nos résultats sont également proches des données expérimentales dans les pics. Cependant, plusieurs effets doivent être considérés dans notre formalisme. L'un de ces effets est la distorsion de l'électron éjecté. En analysant les courbes théoriques nous pouvons facilement voir que quand l'énergie d'éjection est grande nos courbes sont confondues avec ceux du model de l'onde distordue mais dès que cette énergie devienne petite la différence entre les courbes devienne importante. Ce qui nous mène à dire que pour de petites énergies d'éjection l'effet de l'ion résiduel sur les l'électron éjectée doit être pris en compte. Nous ne devons pas oublier que nous étudions une action entre un proton et une cible moléculaire. Cette réaction étudier dans le travail présent diffère de celle où le projectile est un électron par le fait que le proton a une charge électrique positive et une masse importante par rapport à l'électron. Dans ce cas, l'interaction entre le proton et l'électron actif peut induire un phénomène dit de capture. Ce phénomène est considéré comme négligeable lorsque le projectile est émis avec une vitesse très rapide. Cependant, sous certaines conditions énergétiques et géométriques, ce phénomène devient important. Nous croyons que c'est pour cette raison dans le cas des grandes énergies notre courbe pour l'énergie d'éjection de 750 eV diffère de celles des autres travaux théoriques au début de l'intervalle des angles d'éjections. Rappelons que, plus les énergies cinétiques des deux particules sortantes, l'électron éjecté et le proton diffusé, sont proches ceci nous ramène à dire qu'il sorte ensembles. Ceci implique qu'il aura une interaction importante entre ces deux particules ce qui pour effet de produire le phénomène de capture d'un électron de masse très petite par le proton qui est de masse très importante devant celle de l'électron. Donc au cours de la diffusion il aura tendance de produire, dans un intervalle de temps petit, un atome d'hydrogène. Bien sur,

l'analyse de la courbe pour une énergie d'éjection de 750 eV, nous informe aussi que la transition vers le continuum doit être correctement décrite puisque dans notre formalisme elle n'est considérée que d'une façon approximative par la multiplication de la section efficace par le facteur de Salin. Nous croyons aussi que le choix d'une fonction d'onde plane pour décrire le proton doit aussi être révisé.

A dernière figure pour l'énergie d'éjection de 2200 eV nous renseigne que pour certaines conditions énergétiques et géométriques il y a un facteur dans la formule de l'amplitude de transition qui tend vers diverger (division par un nombre très petit). Donc une révision code numérique est nécessaire.

- [1] Lahmam-Bennani A, Staicu-Casagrande E M, Naja A, Dal Cappello C and Bolognesi P. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* 43, 105201 (2010).
- [2] Staicu-Casagrande E M, Li C, Lahmam-Bennani A, Dal Cappello C, Schultz M and Ciappina M. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* 44, 055201 (2011).
- [3] Li C, Lahmam-Bennani A, Staicu-Casagrande E M and Dal Cappello C. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* 44, 115201 (2011). 49
- [4] Dal Cappello C, Haddadou A, Menas F and Roy A C. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* 44, 015204 (2011).
- [5] Bigildeev E A and Michalik V. *Radiat. Phys. Chem.* 47, 197–207 (1996).
- [6] Champion C, L'Hoir A, Politis M F, Chetioui A, Fayard B and Touati A. *Nucl. Instrum. Methods B.* 146, 533–540 (1998).
- [7] Champion C. *Nucl. Instrum. Methods B.* 205, 671–676. (2003).
- [8] Munoz A, Blanco F, Garcia G, Thorn P A, Brunger M J, Sullivan J P and Buckman S. *J. Int. J. Mass Spectrom.* 277, 175–179 (2008).
- [9] Lekadir H, Abbas I, Champion C and Hanssen J. *Nucl. Instrum. Methods B.* 267, 1011–1014 (2009).
- [10] Sahlaoui M and Bouamoud M. *Can. J. Phys.* 88, 905–910 (2010).
- [11] Sahlaoui M and Bouamoud M. *Can. J. Phys.* 89, 723–727(2011).
- [12] R. Moccia, *J. Chem. Phys.*, 40, 2164 (1964).
- [13] A. Boukhikhi, M. Sahlaoui and B. Lasri et al., *J. Phys B: At. Mol. Opt. Phys.*, 52, 015201 (2019).
- [14] M. Sahlaoui, B. Lasri and M. Bouamoud, *Can. J. Phys.*, 92, 136 (2014).
- [15] M. Sahlaoui, M. Bouamoud and B. Lasri et al., *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 46, 115206 (2013).
- [16] M. Sahlaoui and M. Bouamoud, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 45, 085201 (2012).
- [17] L. H. Toburen and W. E. Wilson, *J. Chem. Phys.* 66, 5202 (1977).

[18] O. Boudrioua, C. Champion, C. Dal Cappello, and Y. V. Popov. PHYSICAL REVIEW A **75**, 022720 (2007).

[19] Champion C, Dal Cappello C, Houamer S and Mansouri A 2006. Phys. Rev. A. 73, 012717 (2006).

[20] Bawagan A O, Brion C E, Davidson E R, and Feller D. J. Chem. Phys. 113, 19 (1987).

Conclusion

Dans ce travail nous avons étudié la section efficace doublement différentielle de l'éjection d'un électron par une cible moléculaire qui la molécule d'eau après avoir été bombardée par un proton. Dans le premier chapitre nous avons donné des généralités sur la théorie des collisions atomiques et moléculaire. Dans le deuxième chapitre nous donne une présentation théorique de l'ionisation d'une cible atomique ou moléculaire par impact d'électron et de proton. Dans le troisième chapitre nous avons donné une présentation détaillée sur le formalisme de l'ionisation de la molécule d'eau par impact de proton de grande énergie d'incidence. Dans ce formalisme le model d'une fonction d'onde de Coulomb a été employer avec la première approximation de Born. Dans la dernière section du chapitre III nous avons présenté les résultats des calculs numériques de la section efficace doublement différentielle pour une énergie d'incidence de 1.5 MeV (suffisamment grande pour que la première approximation de Born soit valable) avec une discussion des différentes courbes obtenues. Nos résultats théoriques ont été comparés aux résultats théoriques de Boudrioua et ses collaborateurs [18] obtenu à partir des modèles d'une fonction d'onde de Coulomb et d'une fonction distordue. Nous avons comparé les résultats aussi avec les données expérimentales de Toburen et Wilson [17]. En général, nous avons trouvé que nos résultats sont en bon accord avec l'expérience et les autres calculs théoriques. Cela prouve que notre simple formalisme peut fournir des résultats très précis, sous certaines conditions énergétiques et géométriques. Cependant, certaines corrections sont nécessaires dans le but d'améliorer la précision du formalisme. Par exemple, la prise en compte de l'effet de distorsion de la particule éjectée par l'ion moléculaire résiduel. Nous pouvons également tenir compte du phénomène de capture et avec plus de précision l'effet du transfert d'électrons vers le continuum. L'interaction de post-collision entre l'électron éjecté et le proton diffusé doit également être prise en considération.