**R**épublique **A**lgérienne **D**émocratique et **P**opulaire
**M**inistère de l'**E**nseignement **S**upérieur et
de la **R**echerche **S**cientifique

**U**niversité **F**erhat **A**bbas de **S**ETIF
**F**aculté des **S**ciences
**D**épartement de **P**hysique

# THESE

Présentée pour obtenir le diplôme de
**Doctorat ès sciences**

Option : **Physique théorique**
Par

**Kada Imene**

T H E M E

# Double ionisation de la molécule d'eau par impact d'électrons

Soutenue le : 14/12/2009
Devant le jury composé de :

| | | |
|---|---|---|
| Dr. M. MAAMACHE | Prof.Univ. Sétif | President |
| Dr. A .MANSOURI | M.C.Univ. Sétif | Rapporteur |
| Dr. C. DAL CAPPELLO | Prof. Univ. Metz | Co-encadreur |
| Dr. A.LAHMAM BENNANI | Prof. Univ. Paris-Sud | Examinateur |
| Dr. J.HANSSEN | Prof.Univ. Metz | Examinateur |
| Dr. M. NEKKAB | Prof.Univ. M'sila | Examinateur |

***Remerciements***

*J'exprime mes meilleurs remerciements à Mr A. Mansouri, maitre de conférence à l'université de Sétif, qui a accepté de diriger cette thèse en me témoignant sa confiance. Qu'il trouve dans ces lignes ma profonde reconnaissance pour son aide précieuse dans la recherche de la documentation, et ses programmes qu' il a mis à ma disposition, ses discussions fructueuses ainsi que pour son assistance et ses sincères encouragements.*

*Je tiens aussi à adresser ma gratitude et ma reconnaissance à Mr C. Dal Cappello, professeur à l'université de Metz, et co-directeur de ce travail pour son suivi, son aide précieuse en documents et en codes de calculs ainsi que pour ses remarques pertinentes pendant ses visites.*

*Mr M.Maamache, professeur à l'université de Sétif, président du jury de soutenance de mon magister, a accepté de présider le jury d'examen de ma thèse. Qu'il trouve ici mes chaleureux remerciements et mes respects.*

*Je tiens aussi à exprimer mes vifs remerciements à Mr. A. Lahmam Bennani professeur à l'université Paris Sud, qui a accepté de participer au jury d'examen de ce travail, ainsi que pour l'intérêt qu'il a porté à mon travail.*

*Mr. J.Hanssen professeur à l'université de Metz a aussi accepté d'examiner cette thèse. Je lui adresse mes sincères remerciements.*

*J'exprime mon profond respect et ma reconnaissance à Mr. M. Nekkab professeur à l'université de M'sila pour ses discussions et ses conseils. Je le remercie également d'avoir accepté d'examiner ma thèse et de m'avoir encouragé durant sa préparation ; ainsi que pour les nombreuses discussions que nous avons eu pendant ce travail.*

*Cette thèse a été réalisée dans le cadre de la collaboration de notre laboratoire de Physique Quantique et Systèmes Dynamiques avec le Laboratoire de Physique Moléculaire et des Collisions de l'université de Metz. Je remercie tous les membres du LPQSD, particulièrement Mr S. Houamer maitre de conférences à l'université de Sétif pour ses remarques qui m'ont été très utiles, son aide en documentation, son attention et ses nombreux encouragements.*

*Je suis très reconnaissante à Mr. A. Kharmouche maitre de conférences à l'université de Sétif pour son suivi et ses encouragements pendant ce travail.*

*Enfin je remercie tous ceux qui m'ont aidé en documentation ou en programmation de calculs.*

# Table des matières

**Introduction** ……2

**Chapitre 1 : Collision et Théorie de diffusion** ……5

Introduction ……5

**1.1** Description du phénomène de collision ……5

**1.2** Section efficace de diffusion……6

**1.3** Fonction de Green……7

**1.4** Approximation de Born……9

**Chapitre 2 : Processus de double ionisation**

Introduction ……11

**2.1** Description de la réaction (e, 3e)……17

**2.2.** Section efficace de double ionisation……18

**2.2.1.** Section efficace quintuplement différentielle……19

**2.3.** Mécanismes de la double ionisation……19

**2.3.1.** Mécanismes directs de double ionisation……19

**2.3.1.1.** Mécanisme de la cible secouée……23

**2.3.1.2.** Mécanisme à deux étapes 1……23

**2.3.1.3.** Mécanisme à deux étapes 2……25

**2.3.2.** Mécanismes indirects de la double ionisation……26

**2.3.2.1.** Excitation auto double ionisation ……26

**2.3.2.2.** Excitation double auto ionisation ……26

**2.4.** Conditions cinématiques de la réaction (e, 3 e)……27

**2.4.1.** Régime asymétrique……27

**2.4.1.1.** Géométrie coplanaire asymétrique……27

**2.4.1.2.** Géométrie non coplanaire asymétrique……27

**2.4.2.** Régime symétrique……27

**2.4.2.1.** Géométrie coplanaire symétrique……27

**2.4.2.2.** Géométrie non coplanaire symétrique……28

**2.5.** Modèles théoriques pour la double ionisation……28

**2.5.1.** Dans le cadre de la première approximation de Born……28

**2.5.2.** Au delà de la Première approximation de Born……29

Conclusion ……30

**Chapitre 3 : Application à la double ionisation**

Introduction……31

**3.1.** Application de BBK et 2CWG à la double ionisation ……31

**3.2.** Description de l'état final par BBK ou 3C.....32
**3.3.** Description de l'état final par 2CWG ou BBK approximé.....33
**3.4.** Double ionisation de L'hélium .....33
**3.4.1.**L'état initial.....33
**3.4.2.**L'état final.....34
**3.5.** Double ionisation de la molécule d'eau .....36
**3.5.1.**Introduction.....36
**3.5.2.**Description physique de la molécule d'eau.....37
**3.5.3.**Repère du laboratoire.....38
**3.5.4.**Etats liés de la cible $H_2O$.....39
**3.5.5.**Mouvement de vibration et de rotation.....41
**3.6.** Etude de la double ionisation de $H_2O$ par 2CWG.....41
**3.6.1.** Etat initial.....42
**3.6.2.** Etat final.....43
**3.7.** Etude de la double ionisation de $H_2O$ par BBK.....44
**3.7.1.** Etat initial.....45
**3.7.2.** Etat final.....46
Conclusion.....48

**Chapitre 4 : Résultats et interprétations**
**4.1.** Double ionisation de l'hélium .....50
**4.1.1.**Comparaison avec les résultats de R. Dey [Dey 06].....50
**4.1.2.**Comparaison avec les résultats d' El Azzouzi [El Az05].....52
**4.2.** Double ionisation de la molécule d'eau.....57
**4.2.1.** Résultats obtenus par le modèle 2CWG.....57
**4.2.1.1.** Choix de l'énergie d'éjection et de l'angle de diffusion.....57
**4.2.1.2.** Choix des énergies et des directions d'éjection.....61
**4.2.1.3.** La SEQD La SEQD $\sigma^{(3)} = f(E_1, E_2)$.....66
**4.2.1.4.** La SEQD $\sigma^{(3)} = f(\theta_1, \theta_2)$ .....68
**4.2.1.5.** La SEQD $\sigma^{(3)} = f(\theta_2)_{\theta_1 fixe}$ .....72
**4.2.2.**Etude de la double ionisation de H2O par BBK.....83
**4.2.2.1.** Choix de l'angle de diffusion .....83
**4.2.2.2.** Choix des énergies d'éjections .....84
**4.2.2.3.** Variation de la SEQD en fonction de $\theta_1$et $\theta_2$.....84
**4.2.2.4.** Distribution angulaire de la SEQD .....86
Conclusion .....88

**Conclusion Générale**.....90
**Annexes**
**A.** Comportement asymptotique de la fonction 3C.....92

**B.** Calcul de l'intégrale **I**……93
**C.** Calcul des termes $T_{K,t}^{i_q i_a m_i m_a}$(i=0,1,2)……98
**D.** Exemple d'évaluation du terme $T_{K,i}^{i_q i_a m_i m_a}$ ……99

**Bibliographie**……100

# INTRODUCTION

## Introduction

Parmi les processus de base en physique, les **collisions,** en particulier les collisions de particules chargées ou de photons avec des cibles atomiques ou moléculaires constituent l'un des moyens les plus pertinents pour l'investigation de la structure de la matière. L'étude de ces processus est également fondamentale en astrophysique, en physique des plasmas et notamment en médecine et en biologie.

L'interaction collisionnelle particule-cible est souvent gouvernée par des processus impliquant les corrélations électroniques, qui sont d'importance capitale pour la description structurelle de l'atome ou de la molécule en question. L'intérêt de l'étude de ces corrélations a été conforté par l'évolution des techniques expérimentales, et ce depuis les premières expériences de Langmuir et Jones [Lang28], et celles de Rudberg [Rudb30]. Cet intérêt était à l'origine des travaux théoriques de Bethe [Beth30] et de Massey et Mohr [Mass33], qui ont établi les fondements du calcul de la section efficace de diffusion dans la première approximation de Born.

L'étude des interactions de simple ou double ionisations a été amplement développée avec l'évolution continue des théories décrivant le problème à plusieurs corps. Nous évoquons, à titre de rappel dont les détails dépassent cette introduction, le modèle aux ondes distordues [Jia02,03 ; Coop04], 3C[Joul92, Dal95], CCC [Khei99], 6C [Mala97], C4FS [Bera96] et le modèle de la matrice J [Zayt07]. Ces modèles sont basés sur deux types d'approches différentes, la première favorisant la description asymptotique des électrons éjectés dans le continuum de l'ion résiduel (6C, 3C, C4FS), alors que la seconde approche privilégie la représentation exacte de ces particules lorsqu'elles sont très proches entre elles, en ignorant le comportement asymptotique (CCC, modèle de la matrice J).

D'autre part le progrès des techniques expérimentales, notamment la détection en coïncidence des particules émergentes, a permis la réalisation de nouvelle expériences dites ''complètes'' de processus de simple ionisation (e,2e) puis de double ionisation (e,3e). Dans ces expériences les énergies et les directions d'éjection des trois électrons (le diffusé et les deux éjectés) issus d'une même interaction sont bien déterminées, ce qui permet l'analyse de la dynamique réactionnelle due aux corrélations électroniques. En fait ces expériences demeurent difficiles et donc rares, ceci à cause du faible taux de coïncidence. En conséquence le groupe d'Orsay a proposé de nouvelles expériences communément dites (e,3-1e) où deux électrons parmi les trois sont détectés en coïncidence. La première expérience (e,3e) réalisée par A. Lahmam-Bennani en 1989 sur la double ionisation de l'atome d'argon [Lahm89] a été motivé les premiers calculs de la section efficace multi-différentielle effectués par C. Dal Cappello et Le Rouzo [Dal91] dans le contexte de la première approximation de Born.

Plusieurs études ont été réalisées afin d'améliorer l'accord expérience-théorie [Bera96], [El Mk98], [Khei99], [Boey06] et de comprendre les différents mécanismes de double ionisation [Popo94], [Bera93], [Lamy94], [Sriv96], [Dal98].

L'objectif de notre travail consiste en l'étude de la double ionisation de la molécule d'eau qui s'avère nécessaire pour la description physique de l'interaction particule chargée-cellule vivante. Le processus de collision particule-molécule est rarement étudié, vu la complexité de la description des états de la cible ainsi que celle des électrons dans la voie de sortie. Parmi les travaux apparus dans le domaine nous citons les calculs de Motassim et Joulakian [Mota99] sur la double ionisation de la molécule d'hydrogène, utilisant le modèle TCC et la première approximation de Born. En 2004 A. Mansouri et col. [Mans04] ont proposé l'étude de ce processus en utilisant la seconde approximation de Born avec un modèle à deux ondes coulombiennes et le facteur de Gamow (2CWG). Récemment d'autres calculs de section efficace multiplement différentielle pour la double ionisation de molécules ont été effectués par l'utilisation de la méthode TDS « Time Dependent Scaling » [Séro07] et la méthode de la fonction à deux centres TCC [Chulu08].

Ce mémoire constitué de quatre chapitres est structuré comme suit. Dans le premier chapitre nous rappelons quelques généralités sur la théorie de la diffusion. Nous présentons une description du processus de collision, du calcul de la section efficace de diffusion, ainsi que les différentes approches utilisées dans cette étude telles que la méthode de la fonction de Green, le développement de l'approximation de Born et l'approche de la matrice de diffusion, pour aboutir à l'expression de la section efficace multiplement différentielle.

Le deuxième chapitre est consacré à la description du processus de double ionisation comme un cas particulier des collisions inélastiques. Initialement, nous décrivons la réaction (e,3e) et les différentes formes de la section efficace multiplement différentielle associées. Nous détaillons par la suite la représentation des mécanismes réactionnels directs apparaissant dans les deux premiers termes du développement de Born, et nous rappelons les différents mécanismes indirects de la réaction (e,3e). Le processus de double ionisation est généralement réalisé sous des conditions cinématiques et géométriques évoquées dans la troisième partie. Nous terminons ce chapitre par des rappels sur les différents modèles théoriques utilisés dans le cadre de l'approximation de Born pour l'étude de la double ionisation.

Dans le troisième chapitre et après l'étude des deux modèles utilisés dans notre étude (BBK et 2CWG), nous présentons leurs applications au processus de double ionisation. La première partie concerne la double ionisation de l'atome d'hélium, par des électrons de 600eV, basé sur la première approximation de Born (PAB) et le modèle 2CWG. L'objectif de cette première partie est de confirmer le rôle des corrélations dans l'état initial. La seconde partie est consacrée à l'étude de

la réaction (e, 3e) de la molécule d'eau. Les états initial et final du système en interaction sont explicitement décrits. Le projectile est décrit par une onde plane alors qu'une fonction mono centrique de Moccia [Mocc64] va représenter les électrons liés à la cible moléculaire. L'état final est décrit par les deux modèles : 2CWG et BBK.

Les résultats de ces études sont décrits dans le dernier chapitre. Nous exposons l'étude de la double ionisation de l'hélium où nous comparons nos résultats à ceux obtenus par d'autres méthodes [Dey06 ; El Az05].

L'étude théorique de la double ionisation de la molécule d'eau, faite pour la première fois, n'a pu être comparée à aucun résultat expérimental. Afin de susciter l'intérêt pour de telles expériences nous avons étudié en détail la section efficace quintuplement différentielle en fonction des différents paramètres énergétique et directionnels du système. Les résultats obtenus sont interprétés de façon classique, à l'aide des mécanismes réactionnels de la double ionisation.

# Chapitre I

# Collision et théorie de la diffusion

## Introduction

Nous étudions la collision d'une particule chargée (ou non) d'un faisceau incident avec une cible constituée de différents composants. La nature des résultats de l'interaction définit le type de la collision qui est dite:

**Élastique :** la cible dans la voie de sortie garde sa composition initiale, soit :

$$p + A \rightarrow p + A$$

**Inélastique :** la cible est déformée en changeant de composition après l'interaction :

$$p + A \rightarrow p + A'$$

Après la détection des différentes particules sortantes de la collision, et la mesure de leurs propriétés physiques (direction d'émission, énergie…), on peut évidemment déterminer les interactions qui ont eu lieu pendant la collision. Nous nous limitons à l'étude de la collision d'une particule chargée (dans ce travail ce sera un électron) avec une cible atomique ou moléculaire, considérée au repos et de masse très grande devant celle des particules incidentes, de façon que le centre de masse du système soit superposé avec celui du centre diffuseur. L'interaction est décrite par le potentiel $V(\overrightarrow{r_1} - \overrightarrow{r_2})$ne dépendant que de la position relative $\vec{r} = \overrightarrow{r_1} - \overrightarrow{r_2}$ des deux particules. L'étude d'un problème à deux corps est réduit au mouvement d'une particule libre de masse $\mu = \frac{M*m}{M+m}$ , soumise à un potentiel $V(\vec{r})$, M étant la masse de la cible et *m* celle du projectile.

### 1.1. Description du phénomène de collision

Autour du centre de masse du système projectile +cible on localise le potentiel ***V(r)***. On dispose loin de cette région d'un détecteur **D** dans la direction repérée par les angles ($\theta$,$\varphi$) et vu sous un angle solide d$\Omega$.

Lorsque le paquet d'ondes incident passe par la région où règne le potentiel V(***r*** ) sa structure est modifiée et son évolution compliquée [Tann], loin de cette région il est scindé en un paquet d'ondes transmis et un autre diffusé, où il présente à nouveau une forme simple. L'onde globale sortante de la collision s'écrit donc comme une superposition de l'onde plane incidente et l'onde diffusée. Cette dernière, et d'après l'optique ondulatoire, dépend du potentiel diffuseur anisotrope et par conséquent de la direction ($\theta$,$\varphi$) (d'émission ou de détection).

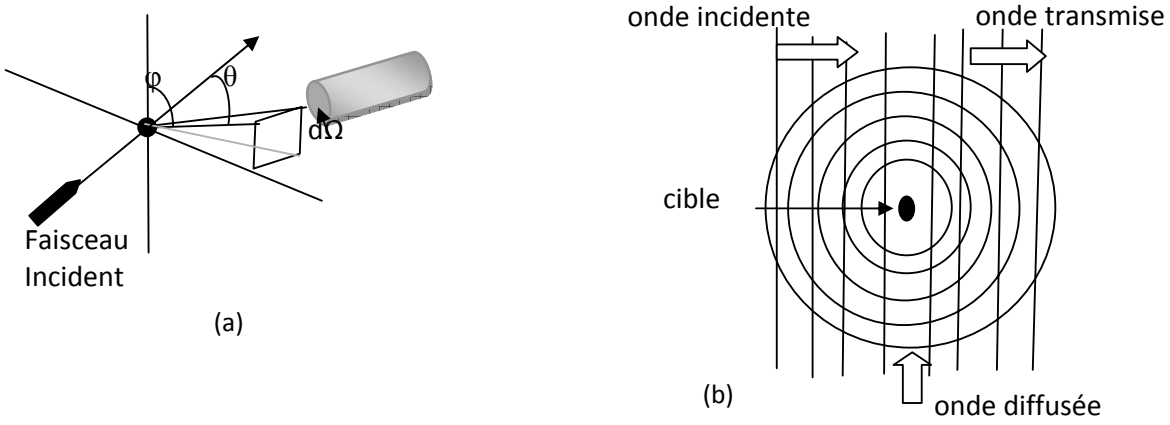



**Figure1 : (a)** *représentation géométrique d'un processus de collision.*
**: (b)** *différentes ondes participant dans la diffusion.*

Elle s'exprime par la forme :

$$\psi_d(\vec{k},\vec{r}) = f_k(\theta,\varphi)\frac{e^{ikr}}{r} \qquad (1\text{-}1)$$

où la fonction de proportionnalité $f_k(\theta,\varphi)$ définit l'amplitude de diffusion. Elle a la dimension d'une longueur et décrit l'anisotropie de la diffusion (la dépendance de l'onde diffusée $\psi_d(\vec{k},\vec{r})$ de la direction θ,φ ainsi que de l'énergie)[Atkin].

A grande distance de la zone d'interaction, l'onde globale prend la forme asymptotique ;

$$\psi(\vec{k},\vec{r}) \approx e^{ikz} + f_k(\theta,\varphi)\frac{e^{ikr}}{r} \qquad (1\text{-}2)$$

C'est la fonction d'état stationnaire de diffusion.

### 1.2. Section efficace de diffusion

Considérons le cas de la collision élastique.

Pour obtenir la section efficace différentielle de diffusion on calcule le taux de particules diffusées dans la direction (θ,φ) sur le nombre de particules incidentes.

La densité de courant de particules incidentes représentées par des ondes planes $(e^{ikz})$est donnée par :

$$|\vec{j}| = \frac{-i\hbar}{2\mu}(\psi^*\nabla\psi - \psi\nabla\psi^*) = \frac{\hbar k}{\mu} \qquad (1\text{-}3)$$

La densité de courant de particules diffusées représentées par la fonction $\psi_d(\vec{k},\vec{r})$ (eq 1-1) est donnée par :

$$|\overrightarrow{j_r}| = \frac{-i\hbar}{2\mu}(\psi_d^*\nabla\psi_d - \psi_d\nabla\psi_d^*) = \frac{\hbar k|f_k(\theta\varphi)|^2}{\mu r^2} \qquad (1\text{-}4)$$

en ne considérant que les termes dont la décroissance avec les puissances de r est la plus faible. Le nombre de particules qui frappe la surface *ds* du détecteur par unité de temps dans l'angle solide dΩ, est *dn* donné par :

$$dn = \sigma(\theta,\varphi)F_i d\Omega \tag{1-5}$$

et le flux de particules incidentes $F_i$, est proportionnel au courant incident $\vec{j}_i$.

$$F_i = |\vec{j}| = \frac{\hbar k_i}{\mu} \tag{1-6}$$

Ce nombre s'écrit aussi comme le produit du flux diffusé par la surface de diffusion *ds* ($ds=r^2 d\Omega$) :

$$dn = j_r r^2 d\Omega = \frac{k\hbar|f_k(\theta,\varphi)|^2}{\mu} d\Omega \tag{1-7}$$

Le facteur de proportionnalité σ est dit section efficace différentielle de diffusion, il a l'unité d'une surface et s'exprime, d'après les deux dernières équations, par la relation :

$$\sigma(\theta,\varphi) = |f_k(\theta,\varphi)|^2 \tag{1-8}$$

C'est l'expression de la section efficace différentielle en termes de l'amplitude de diffusion.

La section efficace totale de diffusion est obtenue par intégration de la section différentielle sur toutes les directions (θ,φ) :

$$\sigma_{tot} = \int_0^{\pi}\int_0^{2\pi} \sigma(\theta,\varphi)\sin\theta \, d\theta d\varphi \tag{1-9}$$

Dans le cas de la collision inélastique la section efficace différentielle prend la forme [Atkin]:

$$\sigma(\theta,\varphi) = \frac{k_d}{k_i}|f_k(\theta,\varphi)|^2 \tag{1-10}$$

où $k_d$est le moment de la particule diffusée, et $k_i$ celui du projectile.

### 1.3. Fonction de Green

La solution de l'équation de Schrödinger décrivant une particule soumise à un potentiel V(r) est donnée par l'état d'énergie E bien définie :

$$\psi(\vec{r},t) = \psi(\vec{r})exp\left(\frac{iEt}{\hbar}\right) \tag{1-11}$$

où $\psi(\vec{r})$est solution de l'équation stationnaire:

$$\left[\frac{-\hbar^2}{2\mu}\Delta + V(r)\right]\psi(\vec{r}) = E\psi(\vec{r}) \tag{1-12}$$

qui s'écrit après un changement de variable :

$$k^2 = \frac{2\mu E}{\hbar^2} \quad \text{et} \quad U(r) = \frac{2\mu V(r)}{\hbar^2}$$

$$(\Delta + k^2)\psi(\vec{r}) = U(r)\psi(\vec{r}) \tag{1-13}$$

si $\psi_0(\vec{r})$ est la solution de l'équation homogène :

$$(\Delta + k^2)\psi_0(\vec{r}) = 0 \tag{1-14}$$

on peut toujours écrire la fonction d'onde stationnaire $\psi(\vec{r})$, ayant un comportement asymptotique, sous la forme :

$$\psi(\vec{r}) = \psi_0(\vec{r}) + \int d^3\vec{r}'\, G(\vec{r}-\vec{r}')U(r')\psi(\vec{r}') \qquad (1\text{-}15)$$

satisfaisant à l'équation (1-13), où on définit la fonction $G(\vec{r})$ appelée fonction de Green vérifiant l'équation :

$$(\Delta + k^2)G(\vec{r}-\vec{r}') = \delta(\vec{r}-\vec{r}') \qquad (1\text{-}16)$$

la fonction $\delta(\vec{r}-\vec{r}')$ étant la fonction de Dirac.
Par définition la fonction de Green solution de (1-16) prend la forme :

$$G_{\pm}(\vec{r}-\vec{r}') = -\frac{1}{4\pi}\frac{exp\pm i\vec{k}|\vec{r}-\vec{r}'|}{|\vec{r}-\vec{r}'|} \qquad (1\text{-}17)$$

Les signes **+** et **–** dans l'exposant correspondent à une fonction sortante ou entrante respectivement.
Avec l'approximation :

$$|\vec{r}-\vec{r}'| = \sqrt{r^2 + r'^2 - 2\vec{r}.\overrightarrow{r'}}$$
$$= r\sqrt{1 + \frac{r'^2}{r^2} - 2\frac{\vec{r}.\overrightarrow{r'}}{r^2}}$$

Pour $r' \ll r$

$$|\vec{r}-\vec{r}'| \simeq r - \frac{\vec{r}.\overrightarrow{ri}}{r}$$
$$\simeq r - \overrightarrow{u_r}.\overrightarrow{r'}$$

La fonction de Green (1-17) devient :

$$G_{\pm}(\vec{r}-\vec{r}') = -\frac{1}{4\pi}\frac{exp(\pm ikr)}{r}exp\left(\mp i\overrightarrow{k_d}.\vec{r}'\right) \qquad (1\text{-}18)$$

L'obtention d'une forme asymptotique suggère [Tann] de prendre pour $\psi_0(\vec{r})$ l'onde plane $e^{i\vec{k}.\vec{r}}$ et pour *G(r)* la fonction sortante $G_+$, d'où l'équation (1-15) se ramène à :

$$\psi\left(\vec{k},\vec{r}\right) \sim_{r\to\infty} e^{i\vec{k}.\vec{r}} - \frac{1}{4\pi}\frac{e^{ikr}}{r}\int d\vec{r}'e^{-i\overrightarrow{k_d}.\vec{r}'}U(r')\,\psi\left(\vec{k},\vec{r}'\right) \qquad (1\text{-}19)$$

C'est l'équation intégrale de diffusion.
Par comparaison avec la première expression (1-2) de la solution asymptotique on trouve que :

$$f_k(\theta,\varphi) = -\frac{1}{4\pi}\int d\vec{r}'e^{-i\overrightarrow{k_d}.\vec{r}'}U(r')\,\psi\left(\vec{k},\vec{r}'\right) \qquad (1\text{-}20)$$

Avec $\vec{k}_d$ le vecteur d'onde du projectile diffusé.
Par conséquent la section efficace différentielle de diffusion s'écrit comme :

$$\sigma(\theta,\varphi) = \frac{\mu^2 k_d}{4\pi\hbar^2 k_i}\left|\int d\vec{r}'e^{-i\overrightarrow{k_d}.\vec{r}'}V(r')\,\psi\left(\vec{k},\vec{r}'\right)\right|^2 \qquad (1\text{-}21)$$

Nous verrons plus loin la forme de cette expression dans le cas de la collision doublement ionisante d'une cible par impact d'électrons.

### 1.4. Approximation de Born

Les difficultés de calcul de la section efficace du problème de diffusion sont souvent résolues par des méthodes d'approximations, telle l'approximation de Born. Cette approche développée par Born en 1926 [Born26] introduit le potentiel diffusif comme étant une perturbation, en s'appuyant sur le fait qu'il est de faible valeur devant les énergies, cinétique du projectile et totale de la cible. Par conséquent la solution de l'équation intégrale de diffusion (1-19) se met sous la forme d'une série en termes du potentiel d'interaction *V(r)*. Ce développement en série est obtenu après plusieurs changements de notations [$\vec{r} \to \vec{r}'$; $\vec{r}' \to \vec{r}''$] dans l'expression de $\psi(\vec{k},\vec{r})$ (1-19) [Tann] on trouve :

$$\psi(\vec{r}) = \psi_0(\vec{r}) - (1/4\pi)\int d^3\vec{r}'\, G(\vec{r}-\vec{r}')U(r')\psi_0(\vec{r}') + (1/4\pi)^2 \iint G(\vec{r}-\vec{r}')U(r')G(\vec{r}'-\vec{r}'')U(r'')\psi(\vec{r}'')\, d^3\vec{r}' d^3\vec{r}'' \qquad (1\text{-}22)$$

Les deux premiers termes sont connus puisqu'ils contiennent la fonction$\psi_0(\vec{r})$, par contre le troisième où il n'y a que $\psi(\vec{r})$ est inconnu.
En répétant la procédure [$\vec{r} \to \vec{r}''$; $\vec{r}' \to \vec{r}'''$] dans (1-19) et en injectant l'expression obtenue pour $\psi(\vec{r}'')$ dans le troisième terme de (1-22) on obtient :

$$\psi(\vec{r}) = \psi_0(\vec{r}) - \left(\frac{1}{4\pi}\right)\int G(\vec{r}-\vec{r}')U(\vec{r}')\psi_0(\vec{r}')d^3\vec{r}' + \left(\frac{1}{4\pi}\right)^2 \iint G(\vec{r}-\vec{r}')U(\vec{r}')G(\vec{r}'-\vec{r}'')U(\vec{r}'')\psi_0(\vec{r}'')\, d^3\vec{r}' d^3\vec{r}'' + \left(\frac{1}{4\pi}\right)^3 \iiint d^3\overrightarrow{r'} d^3\overrightarrow{r''} d^3\overrightarrow{r'''} G(\vec{r}-\vec{r}')U(\vec{r}')G(\vec{r}'-\vec{r}'')U(\vec{r}'') G(\vec{r}''-\vec{r}''')U(\vec{r}''')\psi(\vec{r}''') \qquad (1\text{-}23)$$

Cette procédure permet de négliger les derniers termes du fait que le potentiel U est faible. On peut écrire ce développement pour l'amplitude de diffusion en rapportant celui de $\psi(\vec{r})$ dans la formule (1-20)

$$f_k(\theta,\varphi) = -\frac{1}{4\pi}\int d\vec{r}' e^{-i\overrightarrow{k_d}.\vec{r}'} U(\overrightarrow{r'})\, e^{i\vec{k}_i.\vec{r}} - \frac{1}{4\pi}\int d\vec{r}' e^{-i\overrightarrow{k_d}.\vec{r}'} U(\overrightarrow{r'}) \int d\vec{r}'' G(\vec{r}'-\vec{r}'')U(\overrightarrow{r''})e^{i\vec{k}_i.\vec{r}''} - \frac{1}{4\pi}\iiint d\overrightarrow{r'} d\overrightarrow{r''} d\overrightarrow{r'''} e^{-i\overrightarrow{k_d}.\overrightarrow{r'}} U(\overrightarrow{r'})\, G(\overrightarrow{r'}-\overrightarrow{r''})U(\overrightarrow{r''})G(\overrightarrow{r''}-\overrightarrow{r'''})U(\overrightarrow{r'''})e^{i\overrightarrow{k_i}.\overrightarrow{r'''}} \qquad (1\text{-}24)$$

Le premier terme de Born décrit le passage de la particule incidente de son état initial $\psi_{in}(\vec{k}_i,\overrightarrow{r})$de moment $\overrightarrow{k_\iota}$(décrit par une onde plane $e^{i\overrightarrow{k_\iota}.\vec{r}}$), sous l'effet de $V(\vec{r})$, vers un état final $\psi_f(\vec{k}_d,\overrightarrow{r})$ de moment diffusé $\overrightarrow{k_d}$ représenté par l'onde $e^{i\overrightarrow{k_d}.\vec{r}}$:

$$f_{b1} = \frac{-1}{4\pi}\langle\psi_f(\vec{k}_d,\overrightarrow{r})|V(\vec{r})|\psi_{in}(\vec{k}_i,\overrightarrow{r})\rangle = \frac{-1}{4\pi}\int e^{i\vec{K}.\vec{r}'}\, V\left(\overrightarrow{r'}\right) d\overrightarrow{r'} \qquad (1\text{-}25)$$

où $\vec{K}$ est le moment de transfert donné par :

$$\vec{K} = \overrightarrow{k_\iota} - \overrightarrow{k_d}$$

Ce terme est appelé Première **Approximation de Born.** On ne tient compte que de l'onde incidente et des ondes diffusées par une seule interaction avec le potentiel.

Le deuxième terme de la série (1-23) est donné par $[Mans]_2$ :

$$f_{b2} = \frac{-1}{32\pi^2}\sum_n \frac{1}{k_i^2 - K^2 + i\eta}\left\langle \psi_{ff}\left(\overrightarrow{k_d}, \vec{r}\right)\middle|V(\vec{r})\middle|\psi_{int}(\vec{K}, \vec{r})\right\rangle \left\langle \psi_{int}\left(\vec{K}, \overrightarrow{r'}\right)\middle|V\left(\overrightarrow{r'}\right)\middle|\psi_i\left(\overrightarrow{k_\iota}, \overrightarrow{r'}\right)\right\rangle d\vec{K} \quad (1\text{-}26)$$

où : $n$ est le nombre des états intermédiaires de diffusion $\psi_{int}(\vec{K}, \vec{r})$, et $\eta$ un paramètre petit.

Dans ce cas le système passe par deux interactions successives. Sous l'effet du potentiel *V(r')* l'état initial $\boldsymbol{\psi_i}$ passe vers un état intermédiaire $\boldsymbol{\psi_{int}}$, qui sous l'action du potentiel *V(r)* passe vers l'état final $\boldsymbol{\psi_{ff}}$ .

Le calcul de ce terme nécessite l'intervention de tous les états intermédiaires (excités) de la cible.

# Chapitre II

# Processus de double ionisation

## Introduction

La collision d'une particule (ion, électron ou photon) avec une cible atomique ou moléculaire peut conduire à l'ionisation ou l'excitation de cette cible. Ce processus nous permet en particulier, d'étudier la structure de la cible.
L'importance actuelle de l'étude de ces processus, dans la physique des plasmas, l'astrophysique, ainsi qu'en biologie et en médecine où ils permettent d'expliquer les effets radio-induits sur la matière vivante, a conduit au développement des modèles théoriques ainsi que l'évolution des techniques de détection expérimentales.

Parmi les processus d'ionisation multiple, la double ionisation constitue le cas le plus simple. En particulier la double ionisation de l'atome de l'hélium a permis d'aborder le problème à quatre corps (la particule incidente qui est diffusée, les deux électrons éjectés de la cible et le noyau résiduel).

L'expérience a beaucoup progressé ces dernières années. Ainsi les techniques de détection multiple ont permis de réaliser des expériences de type (e,3e) dans lesquelles l'électron diffusé et les deux électrons éjectés de la cible sont détectés en coïncidence.

En mécanique quantique le problème à trois corps et plus n'est pas solvable. Il faut donc recourir à des approximations. Si la description de la cible (la plus simple dans notre cas étant l'atome d'hélium) ne pose pas de problème (il est toujours possible de déterminer des fonctions d'ondes de l'état initial en utilisant l'interaction de configuration ou des fonctions de type Hylleraas) il en est autrement pour l'état final où les trois électrons sont en interaction avec l'ion et entre eux.

Du point de vue historique on peut citer les premiers travaux effectués par Byron et Joachain [Byro66 ; 67] sur la section efficace totale de double ionisation de l'hélium. Les auteurs ont montré l'importance des corrélations dans l'état initial, et ont suggéré que la corrélation dans l'état final est négligeable. Tweed [Twee73a] a calculé la section efficace totale de double ionisation de l'hélium, de $H^-$ et de $Li^+$ par impact d'électrons.
L'auteur a inclus la corrélation dans l'état initial et, pour la première fois, pris en compte partiellement la corrélation dans l'état final, en décrivant chaque électron par une onde coulombienne (interaction coulombienne électron-noyau) avec une charge effective variable dépendant de la vitesse relative de chaque électron éjecté. Ainsi il prend en compte, d'une manière approchée, l'interaction coulombienne existant entre électrons éjectés. Tweed [Twee73b] aussi bien que Byron et Joachain [Byro83] ont confronté leurs résultats aux données expérimentales existantes (He, $H^-$, $Li^+$). L'accord était globalement satisfaisant, tout en remarquant que la précision expérimentale était loin d'égaler celle existant à notre époque. Smirnov [Smir78] a proposé d'autres conditions expérimentales pour obtenir des informations sur la structure de la cible. Il est utile de rappeler qu'à cette époque (1978) les collisions (e,2e) étaient en plein essor et permettaient de déterminer des informations sur la densité d'impulsion de la cible sous certaines conditions expérimentales: il fallait considérer la collision (e,2e) comme une collision binaire (choc entre l'électron incident et un électron de la cible), ce qui

nécessite une énergie incidente élevée (supérieure à 1000eV) et une énergie d'au moins 100eV pour l'électron éjecté. De plus le moment de transfert

$$\vec{K} = \overrightarrow{k_\imath} - \overrightarrow{k_d} \qquad (2\text{-}1)$$

est ici tel que :

$$|\vec{K}| = |\overrightarrow{k_e}|$$

$\overrightarrow{k_\imath}$ ,$\overrightarrow{k_d}$ et $\overrightarrow{k_e}$ représentent respectivement les quantités de mouvement des électrons incident, diffusé et éjecté. Dans ces conditions toute la quantité de mouvement reçue par la cible est directement transférée à un électron de la cible qui sera par la suite éjecté.

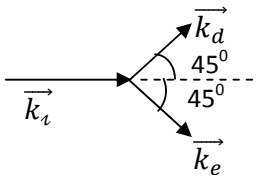



**Figure2** : *Schéma d'une collision binaire possible* où $|\overrightarrow{k_d}| = |\overrightarrow{k_e}|$

Dans le cas d'une collision binaire la section efficace (e,2e) triplement différentielle est directement proportionnelle à la densité d'impulsions relative à la couche où se situait l'électron de la cible avant éjection, soit

$$\varrho(\vec{q}) = \left|\left\langle e^{i\vec{q}.\vec{r}} \middle| \varphi(\vec{r}) \right\rangle\right|^2 \qquad (2\text{-}2)$$

Avec :

$$\vec{q} = \overrightarrow{k_\imath} - \overrightarrow{k_d} - \overrightarrow{k_e} = \vec{K} - \overrightarrow{k_e} \qquad (2\text{-}3)$$

Smirnov [Smir78] a proposé d'étudier la densité d'impulsion relative aux deux électrons de la cible avant éjection :

$$\varrho(\overrightarrow{p_1}, \overrightarrow{p_2}) = \left|\left\langle e^{i\overrightarrow{p_1}.\overrightarrow{r_1}} e^{i\overrightarrow{p_2}.\overrightarrow{r_2}} \middle| \varphi(\overrightarrow{r_1}, \overrightarrow{r_2}) \right\rangle\right|^2 \qquad (2\text{-}4)$$

en supposant que la section efficace (e,3e)quintuplement différentielle $\frac{d^5\sigma}{d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1 dE_2}$ est aussi directement proportionnelle à $\varrho(\overrightarrow{p_1}, \overrightarrow{p_2})$ ce qui nécessite des énergies élevées, aussi bien pour les électrons éjectés que pour l'électron incident, et un moment de transfert

$$|\vec{K}| \approx |\overrightarrow{k_1} + \overrightarrow{k_2}| \qquad (2\text{-}5)$$

En 1989, A.Lahmam Bennani et son groupe d'Orsay [Lahm89] ont réussi la première expérience (e,3e), mesurant les sections efficaces quintuplement différentielles de la double ionisation de l'argon. Ainsi la voie était ouverte pour les expériences (e, 3e) sur d'autres cibles atomiques de gaz rares: l'hélium [Taou98, Lahm99 ,01 Dorn99, 01, 02 ; Dùrr07] ; krypton [Lahm92] ; argon [El Ma97 ; Jia03] ; le néon [Schr98] et sur le magnésium [Ford98].

A.Lahmam Bennani [Lahm91, 02] et [El Ma95] ont remarqué que le taux de détection des trois particules émergentes en coïncidence était faible, particulièrement pour le cas de l'atome d'hélium. Ils ont réalisé une nouvelle expérience appelée (e, 3-1e) correspondant à la détection simultanée de deux parmi les trois particules sortantes. Actuellement les expériences (e, 3e) et (e, 3-1e) sont étudiées dans plusieurs laboratoires [Dorn02 ; Bolo03 ; Taka03 ; Lahm02]. Les expériences de double ionisation sur des cibles moléculaires sont limitées aux seules réactions (e, 3-1e) sur la molécule d'hydrogène [Lahm02].

Du côté théorique, les études de la double ionisation d'atomes sont nombreuses, par contre celles des molécules restent très limitées.

En 1991 C. Dal Cappello et Le Rouzo [Dal91] ont calculé la section efficace quintuplement différentielle (SEQD) de la double ionisation de l'hélium en se basant sur la première approximation de Born. Dans ce travail les auteurs ont montré l'importance des corrélations électroniques dans la voie de sortie en choisissant des fonctions coulombiennes avec des charges effectives variables représentant les deux électrons éjectés. Ils ont donc utilisé le modèle développé par Tweed mais en l'appliquant aux seules SEQD et ont démontré que si aucune corrélation dans l'état final n'était prise en compte alors les deux électrons de la cible seraient éjectés suivant la même direction (celle du moment de transfert $\overrightarrow{K}$). Ce résultat était évidement impossible du point de vue physique surtout dans le cas des électrons éjectés de même énergie. Le modèle appliqué par Dal Cappello et Le Rouzo (deux ondes coulombiennes avec des charges variables) n'a pas pu expliquer les premières expériences de double photo-ionisation. Joulakian et col [Joul92] ont alors utilisé le modèle BBK [Brau89] qui décrit l'état final (les deux électrons éjectés dans le champ coulombien de l'ion) par un produit de trois fonctions coulombiennes. Deux ondes coulombiennes représentent l'interaction de chacun des électrons éjectés avec l'ion, et la troisième pour décrire la répulsion entre ces deux électrons. Cette fonction d'onde (appelée BBK ou 3C) est une fonction d'onde exacte du problème à trois corps lorsque chaque particule s'éloigne des deux autres. Elle nécessite le calcul d'une intégrale numérique sextuple, réduite par Brauner et par Joulakian et coll à une intégrale numérique double. Il a été montré par la suite que la version approximée du modèle BBK (notée dans cette thèse 2CWG) qui consiste à remplacer la troisième fonction hypergéométrique (celle contenant le terme $r_{12}$ ) par le facteur de Gamow, donnait pratiquement les mêmes résultats que BBK. Néanmoins l'information sur l'amplitude était perdue. Ce modèle (2CWG) a été appliqué avec succès aux premières expériences sur l'argon [Hda94]. Mais les expériences suivantes, réalisées aussi sur l'argon ont montré un désaccord avec le modèle 2CWG. Ce désaccord est peut être dû au fait que le modèle 2CWG (ainsi que BBK) ne prend pas en compte l'un des mécanismes de la double ionisation, noté TS2.

On distingue, pour le moment, quatre mécanismes expliquant la double ionisation, qui sont du point de vue formel, inclus dans l'approximation de Born d'ordre 2.

Le premier est le mécanisme ‘’de la cible secouée ‘’ (noté SO du nom Shake-off) qui correspond à une ionisation simple suivie d’un réarrangement de la cible qui conduit à l’éjection d’un deuxième électron. Ce réarrangement de la cible est dû au changement brusque de potentiel survenant après l’éjection d’un électron. Le second électron de la cible voit ainsi son potentiel d’interaction brusquement modifié, ce qui peut provoquer une deuxième ionisation. Il est important de noter que ce réarrangement ne conduit pas nécessairement à une deuxième ionisation. La probabilité d’éjecter un deuxième électron est toujours bien plus faible que celle d’exciter cet électron. Le deuxième mécanisme est le Two Step 1, noté TS1, qui est un mécanisme à deux étapes. La première étape est analogue à celle du SO : La première éjection résulte après une collision entre l’électron incident et un électron de la cible. La deuxième étape consiste en une seconde collision entre le premier électron éjecté et un autre électron de la cible, ce qui provoque l’éjection de ce dernier. Le troisième mécanisme est le Two Step 2 (TS2), qui est aussi un mécanisme à deux étapes. La première étape déjà décrite précédemment, est commune à SO et TS1. La deuxième étape de TS2 consiste en une deuxième collision entre l’électron incident (qui vient d’être diffusé une première fois suite à sa collision avec un électron de la cible) et un autre électron de la cible qui sera enfin éjecté.

Le quatrième mécanisme est aussi en deux étapes que l’on pourrait noter TS3. Il diffère des autres par le fait que la première étape consiste en une collision élastique ou inélastique **sans ionisation** entre l’électron incident et la cible. Puis la deuxième étape est la double ionisation de la cible due à la redistribution des énergies et des quantités de mouvement données à la cible lors de la première collision.

Tweed [Twee92] a été le premier à décrire de façon formelle ces mécanismes réactionnels. Puis Yu. Popov [Popo94] a étudié les contributions respectives de chaque mécanisme réactionnel, à l’aide d’une modélisation très simple (où tous les électrons sont décrits par des ondes planes). Il a ainsi montré que le SO et TS1 étaient dominant pour une énergie de 5keV alors que le TS2 devenait important pour une énergie incidente plus faible.

Ces résultats confirment ceux établis préalablement par MC. Guire [MC. Gu82] lorsque celui-ci avait estimé les contributions respectives de chaque mécanisme réactionnel par un calcul de section efficace totale.

Dal Cappello et El Mkhanter [Dal98], [El Mk98] ont confirmé ces résultats en montrant l’importance du mécanisme TS2 à 1keV. Expérimentalement la contribution du mécanisme TS2 se manifeste par la brisure de la symétrie autour du moment de transfert $\overrightarrow{K}$ lorsque l’un des électrons éjectés est suivant la direction de $\overrightarrow{K}$ (ou - $\overrightarrow{K}$).

Du point de vue expérimental, l’une des étapes décisives a été la réalisation des premières expériences (e, 3e) sur l’hélium à 5.5keV [Taou98]. Ces expériences, absolues, ont ainsi permis de tester tous les modèles théoriques puisque la double ionisation de l’hélium est la plus simple à étudier théoriquement.

Le premier groupe d'expérience (10eV pour chaque électron éjecté) a d'abord été confronté au modèle BBK. Jones et Madison [Jone03] ont ainsi confirmé un bon accord entre ce modèle et l'expérience (16 situations reproduites sur les 20) malgré une différence d'un facteur de 2 en amplitude, quand ils utilisent une fonction d'onde très corrélée pour l'état initial. Curieusement, lorsque ces auteurs utilisent une fonction d'onde moins corrélée (de Pluvinage), l'accord est pratiquement parfait. Ce paradoxe a été étudié largement en détail par Ancarani [Anca04] qui a montré que l'accord était fortuit. Ainsi, quand on utilise cette fonction d'onde de Pluvinage pour la double photo-ionisation, l'accord est nettement moins bon que celui résultant d'une fonction d'onde très corrélée (de type interaction de configuration ou de type Hylleraas). Il est à noter que Lahmam-Bennani et col estimaient la précision de leur échelle absolue à un facteur de 2 [El Ma97] pour la double ionisation de l'argon, mais que par contre ils l'estimaient à 25% pour l'hélium pour une énergie des éjectés de 10 eV et à 35% pour une énergie des éjectés de 4 eV. Jones et Madison ont aussi utilisé un modèle plus sophistiqué noté 6C, un produit de six fonctions coulombiennes prenant en compte toutes les interactions coulombiennes entre les trois électrons de la voie finale et l'ion. Cette fonction d'onde est exacte lorsque les quatre particules s'éloignent à l'infini. C'est donc une solution asymptotique du problème à quatre corps qui nécessite le calcul d'une intégrale numérique à neuf dimensions. Jones et Madison [Jone03] ont ainsi montré que l'utilisation du modèle 6C ne donnait que peu de différences avec le modèle 3C. Ancarani et Dal Cappello [Anca05] ont confirmé ce résultat en utilisant le modèle 3C avec l'approximation de Born2 et la relation de fermeture. La conclusion de ces travaux est que le mécanisme TS2 semble bien peu important à 5keV. Ce résultat est corroboré par les résultats du modèle Convergent Close Coupling CCC [Khei04] qui reproduit lui aussi seize points parmi les vingt mais avec une amplitude trois fois supérieure à celle prévue par l'expérience. Or il a été prouvé que ce modèle CCC [Khei04] reproduisait encore mieux que BBK les situations expérimentales de Dorn [Dorn01] à 2keV ou 1keV mais il faut rappeler que ces expériences sont sur une échelle relative. Il serait néanmoins intéressant de refaire ce type d'expériences afin de vérifier l'accord théorie expérience. Actuellement un seul modèle reproduit l'amplitude des expériences (e, 3e) de Lahmam-Bennani; c'est celui de la matrice ***J*** de Zaytsev [Zayt07]. Mais ce modèle ne reproduit pas parfaitement la forme des courbes expérimentales (bien moins que BBK, 6C ou CCC), et ce, malgré l'utilisation de paramètres. Il est effectivement à noter que tous les autres modèles sont des calculs ab-initio ne nécessitant aucun paramètre.

Le deuxième jeu de situations expérimentales de Lahmam-Bennani [Taou98], toujours pour les (e, 3e) à 5.5keV sur l'hélium mais pour des électrons éjectés de 4eV n'est reproduit par aucune théorie sauf celle de Zaytsev. Il semble donc que le modèle BBK ne soit pas apte à reproduire une situation expérimentale où deux électrons sont éjectés à faible vitesse. Il faudrait dans ce cas peut-être utiliser BBK avec charges effectives variables comme cela à été effectué auparavant pour les expériences (e, 2e) à faible énergie incidente [Zhan00]. On peut toutefois noter un très sérieux désaccord entre

l'expérience et le modèle CCC au sujet de certains points expérimentaux. Généralement le modèle CCC demeure un modèle capable de reproduire souvent toutes les situations expérimentales de simple ou double ionisation sur des cibles telles que l'atome d'hydrogène ou celui de l'hélium. Il faudrait donc que ces expériences soient confirmées par un autre groupe. Ceci semble pour le moment impossible car le groupe de Lahmam Bennani est le seul, actuellement dans le monde, à avoir utilisé une énergie de 5.5keV. Le groupe de Dorn opère entre 100eV et 2keV, et les autres groupes pour des énergies incidentes inférieures à 1keV. De plus Dorn et al ne peuvent pas, pour le moment, donner des résultats absolus.

Un autre modèle à mentionner est le **DWBA** « distorted wave Born approximation », décrivant chacun des électrons intervenants dans la diffusion (incident, diffusé et éjectés) par une onde distordue, afin d'introduire l'action du potentiel de distorsion (diffusif), ressenti par chacun dans la voie d'entrée et la voie de sortie [Jia02,03], [Coop04].

Sur le plan moléculaire, les travaux étudiant le phénomène de la double ionisation sont limités. L'expérience (e, 3-1e) [Lahm02] sur l'hydrogène a intéressé les théoriciens car l'hydrogène est la molécule la plus simple. A. Motassim et B. Joulakian [Mota99] ont développé un calcul de section efficace de la double ionisation d'$H_2$, basé sur la première approximation de Born et utilisant le modèle TCC**.** Dans ce modèle TCC l'état final est décrit par un produit de deux fonctions coulombiennes à deux centres avec des charges effectives, tandis que l'état initial est représenté par des fonctions d'ondes non corrélées. En 2004 A. Mansouri [Mans04] a étudié la réaction (e, 3e) et (e, 3-1e) de $H_2$ en utilisant le modèle 2CWG mais en poussant le calcul au second ordre de l'approximation de Born. L'état initial était décrit par une fonction corrélée mono centrique de Hagstrom et Schull. Ce calcul a amélioré les résultats obtenus dans le cadre de la première approximation de Born en reproduisant partiellement le déplacement des pics binaire et de recul. Il serait intéressant de prendre en compte plus d'états intermédiaires et utiliser le modèle BBK pour améliorer les résultats.

Concernant la double ionisation de la molécule d'eau, objet de notre travail, aucune étude théorique ou expérimentale n'a été proposée jusqu'à présent. Nous allons citer quelques calculs qui sont proches de ceux concernant la double ionisation de l'eau. Rappelons tout d'abord les travaux de H. Siegbahn [Sieg75], déterminant le spectre des électrons Auger provenant de l'excitation par impact de photons de la vapeur d'eau. En 1980 N. Kosugi et ses collaborateurs [Kosu80] ont défini les énergies de relaxation des orbitales de valence simplement et doublement ionisées pour quelques petites molécules, dont l'eau, utilisant une méthode ab-initio SCF. Les auteurs concluent que l'énergie de la double ionisation est le double de l'énergie de l'ionisation simple. Le processus d'ionisation faisait récemment l'objet de plusieurs travaux parmi lesquels celui de F.Gobet [Gobe00] qui calcule la section efficace totale et partielle de l'ionisation d'eau en phase gazeuse par impact de protons. L'expérience utilise la méthode de multi coïncidence, et différencie le phénomène d'ionisation et le

mécanisme de capture d'électrons. Juste après, C.Champion [Cham01] utilisa la première approximation de Born dans le calcul de la section efficace 8DCS et 5DCS de l'ionisation de l'eau par impact d'électrons en considérant le rôle de l'orientation de la molécule dans la collision ionisante. En 2002 il calcula la section efficace 3DCS (triplement différentielle), 2DCS (doublement différentielle) et SDCS (simplement différentielle) ainsi que la section efficace totale [Cham02] pour l'ionisation simple de $H_2O$ en utilisant la méthode DWBA à basse et moyenne énergie d'impact. Dans un autre travail la méthode DWBA, développée pour le cas moléculaire, a été utilisée dans l'étude de la dynamique de la réaction (e,2e) sur $H_2O$ [Brow 04]. Le phénomène d'ionisation simple et double de petits clusters d'$H_2O$ a été étudié par la méthode ab-initio utilisant les fonctions de Green [Mull06]. Récemment, et dans le cadre de sa thèse de Doctorat ; O.Boudrioua a effectué le calcul de la section efficace doublement différentielle et totale de l'ionisation d'$H_2O$ par impact de différents ions $[Boud07]_1$. La section efficace calculée par le modèle FBA-CW est en accord avec l'expérience quand l'énergie de la particule incidente est très grande devant celle des électrons éjectés. Lorsque l'énergie de l'électron éjecté est proche de celle de la particule diffusée, la section efficace augmente rapidement sous l'effet de la capture d'électrons dans le continuum. Ce phénomène montre l'insuffisance du modèle FBA-CW, et nécessite l'utilisation du modèle BBK $[Boud07]_2$.

Nous essaierons dans ce qui suit de décrire le phénomène de la double ionisation en rappelant quelques généralités, les principaux modèles théoriques utilisés, les mécanismes générant la réaction (e,3e) et les conditions géométriques et cinématiques.

## 2.1. Description de la réaction (e, 3e)

Considérons la double ionisation d'une cible atomique dans son état fondamental $|\psi_{ci}\rangle$ d'énergie $E_{ci}$. Le processus consiste en l'éjection de deux électrons de la couche de valence. On expose la cible à une perturbation externe d'un électron appartenant à un faisceau mono énergétique d'énergie $E_0$ et de moment $k_0$, relatif au centre de masse du système. Les deux électrons éjectés dans le continuum de l'ion résiduel, ont les énergies $E_1$ et $E_2$, et les moments $k_1$ et $k_2$. Le projectile émerge dans l'état final avec une énergie $E_s$ et un moment $k_s$, en laissant l'ion résiduel dans un état final $|\psi_{cf}\rangle$ d'énergie $E_{cf}$. L'appellation (e, 3 e) résume la réaction de la double ionisation :

$$\text{é} + \boldsymbol{X} \rightarrow \boldsymbol{X^{+2}} + \mathbf{3}\text{é}$$

Les différents vecteurs d'ondes sont représentés dans une géométrie coplanaire sur la figure ci dessous.

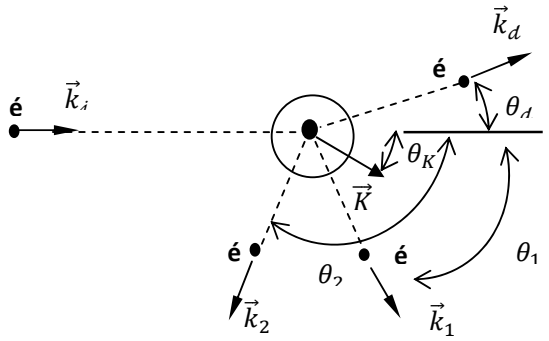



**Figure 3** : *schéma d'une réaction (e,3 e) en géométrie coplanaire. Les indices (i, d, 1, 2) indiquent l'électron projectile, diffusé, et les deux éjectés respectivement ;* $\vec{K}$ *est le moment de transfert défini par* $\vec{K} = \vec{k_i} - \vec{k_d}$.

L'énergie et la quantité de mouvement étant conservées lors de la réaction (e, 3e) par les lois :

$$E_i = E_f \Leftrightarrow E_0 + E_{ci} = E_s + E_1 + E_2 + E_{io} + E_{cf} \quad (2\text{-}6)$$

$$\vec{k}_0 = \vec{k}_d + \vec{k}_1 + \vec{k}_2 + \vec{q} \quad (2\text{-}7)$$

$$\vec{K} = \vec{k}_0 - \vec{k}_s \quad (2\text{-}8)$$

$$\vec{q} = \vec{K} - (\vec{k}_1 + \vec{k}_2) \quad (2\text{-}9)$$

où $E_i$ et $E_f$ sont les énergies initiales et finales du système; $\vec{q}$ est le moment de recul de la cible ionisée ; $E_{io}$ l'énergie nécessaire pour l'ionisation et $\vec{K}$ étant le moment de transfert.

### 2.2. Section efficace de double ionisation

Nous déterminons la section efficace de diffusion dans le cas de la collision double ionisante décrite plus haut.

Dans l'expérience réalisant le processus de double ionisation [Bera03], on mesure le taux de transition d'un état initial préparé vers un état final bien défini caractérisé par une densité d'états donnée par $d^3k_1 d^3k_2 d^3k_d$ . Le rapport de ce taux sur la densité du flux incident détermine la section efficace (eq 1-39 chap1) ; qui s'exprime en termes de l'élément de matrice de transition par la relation :

$$d\sigma(k_d, k_1, k_2; k_0, \psi_{ci}) = \frac{(2\pi)^4}{k_0}\delta(E_f - E_i)\left|T_{fi}\right|^2 d^3k_1 d^3k_2 d^3k_d \quad (2\text{-}10)$$

Où :

$$T_{fi} = \frac{1}{2\pi}\left\langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2)\varphi(\vec{k}_d, \vec{r}_0)\middle|V\middle|\varphi(\vec{k}_i, \vec{r}_0)\psi_i(\vec{r}_i \ldots . \vec{r}_N)\right\rangle \quad (2\text{-}11)$$

$$V = \frac{-Z}{r_0} + \sum_{i=1}^{N}\frac{1}{|\vec{r}_{0i}|} \quad (2\text{-}12)$$

$\psi_i(\vec{r}_i \ldots \vec{r}_N)$ et $\psi_{ff}(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2)$ représentent les états de la cible et de l'ion résiduel.
La section efficace est calculée en intégrant sur toutes les variables possibles intervenant dans l'expression de la section efficace multi différentielle.
La réaction étudiée consiste en l'éjection de deux électrons de la cible. Dans le cadre de l'approximation du cœur gelé, on assimile la cible considérée (atome à plusieurs électrons ou molécule) à un atome à deux électrons actifs (atome d'hélium), ce qui nous permet de supposer que les électrons dans le cœur ionique doublement chargé ne participent pas au processus d'ionisation [Coop04], [Hda94].
Dans ce cas la fonction initiale et le potentiel d'interaction s'écrivent sous les formes :

$$|\psi_i(\vec{r}_i \ldots . \vec{r}_N)\rangle = |\psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2)\rangle \qquad (2\text{-}13)$$

et

$$V = \frac{-2}{r_0} + \sum_{i=1}^{2} \frac{1}{|\vec{r}_{0i}|} \qquad (2\text{-}14)$$

Les deux électrons actifs (1et2) ayant les vecteurs positions $\vec{r}_1, \vec{r}_2$ sont ceux qui seront éjectés.

### 2.2.1. Section efficace quintuplement différentielle

Dans le cadre des expériences de double ionisation, l'énergie de l'électron incident est connue selon un choix bien précis. Les autres énergies correspondant à l'électron diffusé et les deux éjectés sont déduites de la loi de conservation de l'énergie si on connait l'énergie de double ionisation $E_{io}$. Supposons que les énergies des électrons éjectés sont fixées par les détecteurs à $E_1$ et $E_2$ (donc à des moments $k_1$ et $k_2$ ), l'énergie du diffusé obéira à:

$$E_d = E_i - E_1 - E_2 - E_{io} \qquad (2\text{-}15)$$

on obtient par conséquent la section efficace quintuplement différentielle SEQD définie par:

$$\frac{d^5\sigma}{d\Omega_1 \mathrm{d}\Omega_2 \mathrm{d}\Omega_d dE_1 dE_2} = (2\pi)^4 \frac{k_1 k_2 k_d}{k_0} \left|T_{fi}\right|^2 \qquad (2\text{-}16)$$

Cette expression contient toute l'information sur la réaction (e ,3 e).

## 2.3. Mécanismes de la réaction (e, 3 e)

Les réactions d'ionisation (e, 3 e) sont réalisées suivant des mécanismes directs [Twee92], [Popo94] ou indirects.

### 2.3.1. Mécanismes directs de la double ionisation :

Le processus direct de double ionisation est réalisé selon différents mécanismes. On distingue trois types de mécanisme, (SO, TS1 et TS2).
Ces mécanismes réactionnels peuvent être inclus dans le calcul de la section efficace à travers les deux premiers termes de la série de Born.

$$\frac{d^5\sigma}{d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1 dE_2} = \frac{k_1 k_2 k_d}{k_i} |f_{b1} + f_{b2}|^2 \quad (2\text{-}17)$$

où $d\Omega_d, d\Omega_1$ et $d\Omega_2$ désignent les éléments d'angles solides des électrons diffusé et les deux éjectés respectivement. $dE_1$ et $dE_2$ sont les intervalles d'énergies des électrons éjectés. $\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_d$ et $\vec{k}_i$ représentent les moments des électrons éjectés 1et2, diffusé et incident. $f_{b1}$ et $f_{b2}$ sont les deux premiers termes du développement de Born donnés par :

$$f_{b1} = \frac{-1}{2\pi}\left\langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_d.\vec{r}_0} \middle| V \middle| e^{i\vec{k}_i.\vec{r}_0} \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \quad (2\text{-}18)$$

$\psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ et $\psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2)$ représentent les états de la cible et de l'ion résiduel. $\overrightarrow{r_0}, \vec{r}_1, \vec{r}_2$ sont les vecteurs position du projectile incident, électrons actifs 1et 2 par rapport au centre diffuseur du système.

le potentiel général $V(r_0, r_1, r_2)$ est donné par l'expression (2-10):

$$V(r_0, r_1, r_2) = \frac{-2}{r_0} + \sum_{i=1}^{2} \frac{1}{|\vec{r}_{0i}|} \quad (2\text{-}19)$$

L'intégration sur les coordonnées du projectile $\vec{r}_0$ peut être effectuée analytiquement en utilisant la transformation de Bethe :

$$\int \frac{e^{i\vec{k}.\vec{r}}}{|\vec{r} - \vec{r}_i|} d\vec{r} = \frac{4\pi}{k^2} e^{i\vec{k}.\vec{r}_i} \quad (2\text{-}20)$$

Le premier terme de Born pour l'amplitude de diffusion est donc de la forme :

$$f_{b1} = \frac{1}{2\pi^2 K^2}\left\langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) \middle| -2 + e^{i\vec{K}.\vec{r}_1} + e^{i\vec{K}.\vec{r}_2} \middle| \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \quad (2\text{-}21)$$

Ou encore :

$$f_{b1} = T_{e_1} + T_{e_2} + T_N \quad (2\text{-}22)$$

Avec :

$$T_{e_1} = \frac{1}{2\pi^2 K^2}\left\langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) \middle| e^{i\vec{K}.\vec{r}_1} \middle| \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \quad (2\text{-}23)$$

$$T_{e_2} = \frac{1}{2\pi^2 K^2}\left\langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) \middle| e^{i\vec{K}.\vec{r}_2} \middle| \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \quad (2\text{-}24)$$

$$T_N = -\frac{2}{2\pi^2 K^2}\left\langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) \middle| \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \quad (2\text{-}25)$$

$\vec{K}$ est le moment de transfert.

Les amplitudes $T_{e_1}, T_{e_2} et T_N$ représentent la diffusion directe du projectile par les deux électrons actifs (1, 2) et par le noyau, respectivement.

La première approximation de Born PAB est à la base de plusieurs calculs théoriques [Khei99], [Hda94], [Coop04], [Joul92]. Cette méthode ne tient compte que de l'interaction projectile-cible du premier ordre. Or, il fallait considérer les transitions des électrons actifs de la cible pour introduire l'interaction d'ordre supérieur. D'ailleurs l'expérience montre une certaine insuffisance du traitement incluant la PAB à basse

énergie comme à haute énergie d'incidence. Pour pouvoir expliquer les résultats des expériences réalisées à basse énergie, l'élaboration de modèles théoriques qui tiennent compte de l'interaction projectile-cible de façon dynamique devenait nécessaire [Dal95, 98].

La seconde approximation de Born est une extension de l'interaction projectile-cible aux ordres supérieurs. Cette approximation exprime la contribution des mécanismes à deux étapes TS1 et TS2 dans la distribution angulaire de la SEQD.

L'amplitude de diffusion correspondant est donnée par la relation :

$$f_{b2} = \frac{1}{8\pi^4}\sum_n \int \frac{d\vec{k}_n}{k_i^2 - k_n^2 - 2|I_n| + i\varepsilon} \left\langle \psi_{ff}(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_d.\vec{r}_0} \middle| V \middle| \psi_n(\vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_n.\vec{r}_0} \right\rangle$$
$$\times \left\langle e^{i\vec{k}_n.\vec{r}_0} \psi_n(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \middle| V \middle| e^{i\vec{k}_i.\vec{r}_0} \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \qquad (2\text{-}26)$$

où $I_n$ est la différence d'énergie entre l'état initial et l'état intermédiaire de moment $\vec{k}_n$représenté par la fonction d'état $\psi_n(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$. L'électron diffusé-intermédiaire est représenté par une onde plane. Cet électron interagit avec la cible ionisée avec ou sans excitation simultanée. Ce processus représente le mécanisme TS2 qui est responsable de la brisure de la symétrie autour du moment de transfert. Le calcul du terme $f_{b2}$ est très délicat et nécessite beaucoup d'attention, car il s'appuie sur la sommation sur tous les états intermédiaires possibles de la cible. Cette sommation peut être effectuée en utilisant l'approximation de la relation de fermeture [Grin00] :

$$\sum_n |\psi_n\rangle\langle\psi_n| = 1 \qquad (2\text{-}27)$$

le terme $f_{b2}$ s'écrit donc sous la forme:

$$f_{b2} = \frac{1}{8\pi^4} \int \frac{d\vec{k}}{k_i^2 - k^2 - 2I} \langle \psi_{ff}(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{K}_2.\vec{r}_0} \Big| V(r_0, r_1, r_2)$$
$$\times V(r_0, r_1, r_2) \Big| e^{i\vec{K}_1.\vec{r}_0} \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \qquad (2\text{-}28)$$

$I_n$ est considéré ici comme un paramètre $I$ et $\vec{k}$ est l'impulsion de l'électron diffusé intermédiaire. Le potentiel général $V(r_0, r_1, r_2)$ est donné sous l'approximation du cœur gelé par l'expression (2-10):

$$V(r_0, r_1, r_2) = \frac{-2}{r_0} + \sum_{i=1}^{2} \frac{1}{|\vec{r}_{0i}|} \qquad (2\text{-}29)$$

L'intégration sur les coordonnées du projectile $\vec{r}_0$ peut être effectuée analytiquement en utilisant la transformation de Bethe :

$$\int \frac{e^{i\vec{k}.\vec{r}}}{|\vec{r} - \vec{r}_i|} d\vec{r} = \frac{4\pi}{k^2} e^{i\vec{k}.\vec{r}_i} \qquad (2\text{-}30)$$

L'expression de $f_{b2}$ devient :

$$f_{b2} = \frac{2}{\pi^2} \int \frac{d\vec{k}}{K_1^2 K_2^2 \left(k_i^2 - k^2 - 2I\right)} \langle \psi_{ff}(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) \Big| \left(-2 + e^{i\vec{K}_1.\vec{r}_1} + e^{i\vec{K}_2.\vec{r}_2}\right)$$
$$\times \left(-2 + e^{i\vec{K}_1.\vec{r}_1} + e^{i\vec{K}_2.\vec{r}_2}\right) |\psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2)\rangle \qquad (2\text{-}31)$$

Où :

$$\begin{cases} \vec{K}_1 = \vec{k}_i - \vec{k} \\ \vec{K}_2 = \vec{k} - \vec{k}_d \\ \vec{K} = \vec{K}_1 + \vec{K}_2 \end{cases} \quad (2\text{-}32)$$

Pour la double ionisation de l'hélium à haute énergie d'impact (1keV et 5keV), M. Grin [Grin00] a utilisé la seconde approximation de Born (SAB) avec la relation de fermeture dans le modèle 2CWG. Les deux électrons éjectés étaient décrits par deux ondes coulombiennes alors que leur interaction répulsive était décrite par le facteur de Gamow. Ce modèle a pu reproduire (comme le CCC et BBK) l'allure des résultats expérimentaux. Les auteurs ont confirmé que l'amplitude obtenue correspondait exactement à la contribution du TS2. D'autres auteurs ont appliqué cette méthode dans le cas atomique [Götz03], [Jone03], [El Mk98], [Dal98], ainsi que dans le cas de la molécule d'hydrogène [Mans04]$_1$.

L'expression (2-24) de la section efficace peut aussi être écrite sous la forme [Twee92] :

$$\frac{d^5\sigma}{d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1 dE_2} = \frac{k_1 k_2 k_d}{k_i} |M_{SO} + M_{TS1} + M_{TS2}|^2 \quad (2\text{-}33)$$

où les amplitudes $M_{SO}, M_{TS1}$ et $M_{TS2}$ correspondent respectivement aux processus SO, TS1 et TS2, et sont exprimées par les formules suivantes [Dal98] :

$$M_{SO} = \frac{-1}{2\pi}\left\langle \psi_{ff}(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_d.\vec{r}_0} \left| \frac{-2}{r_0} + \frac{1}{|\vec{r}_{01}|} + \frac{1}{|\vec{r}_{02}|} \right| e^{i\vec{k}_i.\vec{r}_0} \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \quad (2\text{-}34)$$

$$M_{TS1} = \frac{-1}{\pi} \sum_n \int \frac{d\vec{k}_a}{(2\pi)^3 \left( {k_i}^2 - k_a^2 - k_d^2 - 2I_n \right)} \left\langle \psi_{ff}(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) \left| \frac{1}{|\vec{r}_{12}|} \right| \psi_n^{(+)}(\vec{k}_a; \vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \times \left\langle \psi_n^{(-)}(\vec{k}_a; \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_d.\vec{r}_0} \left| \frac{-2}{r_0} + \frac{1}{|\vec{r}_{01}|} + \frac{1}{|\vec{r}_{02}|} \right| e^{i\vec{k}_i.\vec{r}_0} \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \quad (2\text{-}35)$$

$$M_{TS2} = \frac{-1}{\pi} \sum_n \int \frac{d\vec{k}_b}{(2\pi)^3 \left( {k_i}^2 - k_b^2 - k_1^2 - 2I_n \right)} \left\langle \psi_{ff}^{(-)}(\vec{k}_2, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_d.\vec{r}_0} \left| \frac{1}{|\vec{r}_{02}|} \right| e^{i\vec{k}_b.\vec{r}_0} \psi_n(\vec{r}_2) \right\rangle \times \left\langle \psi_n^{(-)}(\vec{k}_1; \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_b.\vec{r}_0} \left| \frac{-2}{r_0} + \frac{1}{|\vec{r}_{01}|} + \frac{1}{|\vec{r}_{02}|} \right| e^{i\vec{k}_i.\vec{r}_0} \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle$$
$$\frac{-1}{\pi} \sum_n \int \frac{d\vec{k}_b}{(2\pi)^3 \left( {k_i}^2 - k_b^2 - k_2^2 - 2I_n \right)} \left\langle \psi_{ff}^{(-)}(\vec{k}_1, \vec{r}_1) e^{i\vec{k}_d.\vec{r}_0} \left| \frac{1}{|\vec{r}_{01}|} \right| e^{i\vec{k}_b.\vec{r}_0} \psi_n(\vec{r}_1) \right\rangle \times \left\langle \psi_n^{(-)}(\vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_b.\vec{r}_0} \left| \frac{-2}{r_0} + \frac{1}{|\vec{r}_{01}|} + \frac{1}{|\vec{r}_{02}|} \right| e^{i\vec{k}_i.\vec{r}_0} \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \quad (2\text{-}36)$$

où $I_n$ est l'énergie nécessaire pour éjecter un électron, $\psi_n^{(\pm)}$ (**+**ou**-** onde entrante ou sortante) représente l'état de l'électron intermédiaire de moment $\vec{k}_{(a,b)}$.

L'étude que nous présentons dans ce qui suit peut être considérée comme une projection du cas de l'atome d'hélium sur les autres cas atomiques ou moléculaires étudiés dans le cadre de l'approximation du cœur gelé.

### 2.3.1.1. Mécanisme de la cible secouée 'Shake off '

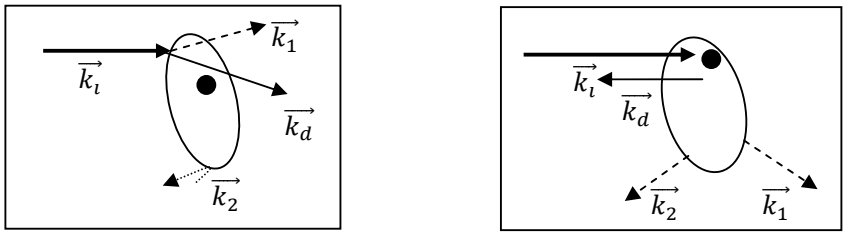
C'est le premier chemin proposé pour la double ionisation [Twee92], décrivant l'interaction projectile cible au premier ordre, exprimée par la relation (2-43) :

$$M_{SO} = \frac{-1}{2\pi}\left\langle \psi_{ff}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2)e^{i\vec{k}_d.\vec{r}_0}\left|\frac{-2}{r_0}+\frac{1}{|\vec{r}_{01}|}+\frac{1}{|\vec{r}_{02}|}\right|e^{i\vec{k}_i.\vec{r}_0}\psi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle \quad (2\text{-}37)$$

Ce processus est décrit par la première approximation de Born. L'amplitude de la SEQD correspondante est donnée par l'expression précédente de $f_{b1}$ (2-31):

$$f_{b1} = T_{e_1} + T_{e_2} + T_N \quad (2\text{-}38)$$

Le mécanisme Shake off correspond à une simple ionisation due à l'interaction de l'électron incident avec l'un des deux électrons actifs (terme $T_{e_1}$ ou $T_{e_2}$ ) figure (1-a) en l'éjectant, suivie d'une relaxation de la cible (en raison du changement brutal du potentiel) responsable de l'éjection du deuxième électron. Un autre cas de SO est celui dû à l'interaction directe du projectile avec la cible en l'excitant. L'éjection simultanée des deux électrons est produite suite à la redistribution des potentiels de la cible excitée. Ce dernier cas est dit double Shake off fig(1-b).




(a) (b)

**Figure 4***: Schémas du mécanisme Shake off.*

### 2.3.1.2. Mécanisme à deux étapes 1 TS1

Ce mécanisme est réalisé en deux étapes qui consistent en une ionisation simple suivie d'une interaction entre les électrons actifs. L'amplitude de diffusion de ce mécanisme est représentée par le deuxième terme de Born sous la forme :

$$M_{TS1} = \frac{-1}{\pi}\sum_n \int \frac{d\vec{k}_a}{(2\pi)^3(\,{k_i}^2-k_a^2-k_d^2-2I_n)}\left\langle \psi_{ff}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right|\frac{1}{|\vec{r}_{12}|}\left|\psi_n^{(+)}(\vec{k}_a;\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle$$
$$\times\left\langle \psi_n^{(-)}(\vec{k}_a;\vec{r}_1,\vec{r}_2)e^{i\vec{k}_d.\vec{r}_0}\left|\frac{-2}{r_0}+\frac{1}{|\vec{r}_{01}|}+\frac{1}{|\vec{r}_{02}|}\right|e^{i\vec{k}_i.\vec{r}_0}\psi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle \quad (2\text{-}39)$$

La lecture du premier terme de cette expression :

$$\left\langle \psi_n^{(-)}(\vec{k}_a;\vec{r}_1,\vec{r}_2)e^{i\vec{k}_d.\vec{r}_0}\left|\frac{-2}{r_0}+\frac{1}{|\vec{r}_{01}|}+\frac{1}{|\vec{r}_{02}|}\right|e^{i\vec{k}_i.\vec{r}_0}\psi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle \qquad (2\text{-}40)$$

indique que l'électron incident est diffusé après sa collision avec l'un des deux électrons actifs en laissant la cible simplement ionisée $\boldsymbol{X}^+$dans son état $\psi_n^{(-)}(\vec{k}_a;\vec{r}_1,\vec{r}_2)$ (fondamental $n=1$, ou et excité $n>1$ ).

le deuxième terme :

$$\left\langle \psi_f(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2)\left|\frac{1}{|\vec{r}_{12}|}\right|\psi_n^{(+)}(\vec{k}_a;\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle \qquad (2\text{-}41)$$

décrit l'interaction du premier électron éjecté de moment intermédiaire $\vec{k}_a$ avec le deuxième électron actif, qui est éjecté à son tour [Nebd99]. Ce mécanisme TS1 est schématisé sur la figure 2(a). Une autre illustration de ce processus à deux étapes est celle réalisée avec un recul de la cible après la collision du projectile avec l'un des électrons actifs. Dans ce cas le premier électron éjecté (intermédiaire) ressent le recul de la cible excitée, avant ou après son interaction avec le deuxième électron actif. Ce processus dit ''TS1 avec recul'' est représenté sur les figures 2 (b, c).

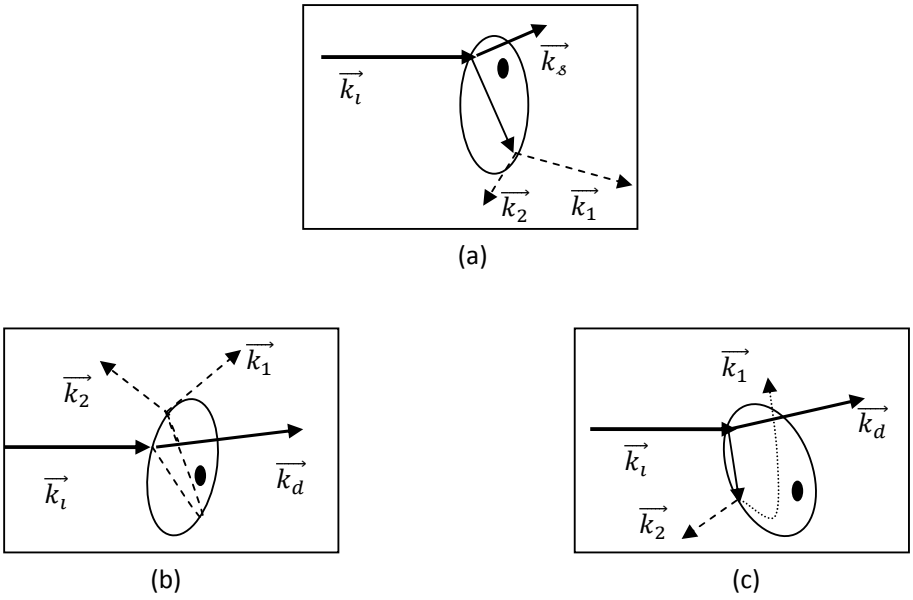



**Figure 5** : *Schémas du mécanisme TS1.*

Le processus TS1 peut être interprété comme une interaction du premier ordre, du fait que le projectile incident n'interagit qu'une seule fois avec la cible avant d'être diffusé. Il est donc bien décrit par la méthode PAB dans le cas où les corrélations dans les voies initiale et finale sont prises en considération [Grin00].

### 2.3.1.3. Mécanisme à deux étapes 2 TS2

Ce processus émanant du deuxième ordre de l'interaction projectile-cible nécessite la considération de la deuxième approximation de Born. L'amplitude de diffusion correspondante est exprimée par la relation [Dal98]:

$$M_{TS2} = \frac{-1}{\pi}\sum_n \int \frac{d\vec{k}_b}{(2\pi)^3\left(k_i{}^2 - k_b^2 - k_1^2 - 2I_n\right)} \left\langle \psi_f{}^{(-)}(\vec{k}_2,\vec{r}_2) e^{i\vec{k}_d.\vec{r}_0} \left| \frac{1}{|\vec{r}_{02}|} \right| e^{i\vec{k}_b.\vec{r}_0}\psi_n(\vec{r}_2) \right\rangle \times \left\langle \psi_n^{(-)}(\vec{k}_1;\vec{r}_1,\vec{r}_2) e^{i\vec{k}_b.\vec{r}_0} \left| \frac{-2}{r_0} + \frac{1}{|\vec{r}_{01}|} + \frac{1}{|\vec{r}_{02}|} \right| e^{i\vec{k}_i.\vec{r}_0}\psi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2) \right\rangle$$

$$\frac{-1}{\pi}\sum_n \int \frac{d\vec{k}_b}{(2\pi)^3\left(k_i{}^2 - k_b^2 - k_2^2 - 2I_n\right)} \left\langle \psi_f{}^{(-)}(\vec{k}_1,\vec{r}_1) e^{i\vec{k}_d.\vec{r}_0} \left| \frac{1}{|\vec{r}_{01}|} \right| e^{i\vec{k}_b.\vec{r}_0}\psi_n(\vec{r}_1) \right\rangle \times \left\langle \psi_n^{(-)}(\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2) e^{i\vec{k}_b.\vec{r}_0} \left| \frac{-2}{r_0} + \frac{1}{|\vec{r}_{01}|} + \frac{1}{|\vec{r}_{02}|} \right| e^{i\vec{k}_i.\vec{r}_0}\psi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2) \right\rangle \quad (2\text{-}42)$$

L'expression de $M_{TS2}$ représente à travers son premier terme les interactions successives entre l'électron incident et la cible :

$$\left\langle \psi_n^{(-)}(\vec{k}_j;\vec{r}_1,\vec{r}_2) e^{i\vec{k}_b.\vec{r}_0} \left| \frac{-2}{r_0} + \frac{1}{|\vec{r}_{01}|} + \frac{1}{|\vec{r}_{02}|} \right| e^{i\vec{k}_i.\vec{r}_0}\psi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2) \right\rangle \quad (2\text{-}43)$$

avec $j = 1ou2$

ce terme correspond (comme pour le TS1) à une simple ionisation ($n = 1$) ou une simple ionisation avec excitation simultanée ($n > 1$). Après cette étape, l'électron diffusé intermédiaire, décrit par une onde plane $e^{i\vec{k}_b.\vec{r}_0}$, subit une autre collision avec le deuxième électron et l'éjecte selon le terme :

$$\left\langle \psi_f{}^{(-)}(\vec{k}_j,\vec{r}_j) e^{i\vec{k}_d.\vec{r}_0} \left| \frac{1}{|\vec{r}_{0j}|} \right| e^{i\vec{k}_b.\vec{r}_0}\psi_n(\vec{r}_j) \right\rangle \quad (2\text{-}44)$$

avec $j = 1ou2$

On note que dans cette équation, la contribution du noyau ($\frac{-2}{r_0}$) est nulle parce que la fonction coulombienne décrivant l'état $\psi_n^{(-)}$ est orthogonale à l'état (fondamental ou excité) de l'ion $\boldsymbol{X}^+$ pour Z=2 [El Mk98] :

$$\left\langle \psi_n^{(-)} \middle| \varphi_n \right\rangle = 0 \quad (2\text{-}45)$$

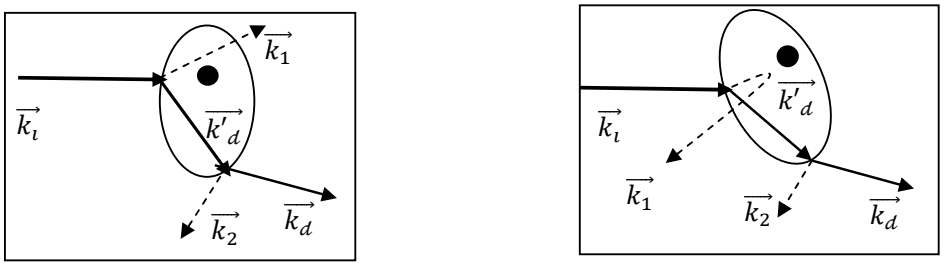



**Figure 6**: *Schémas du mécanisme TS2.*

Dans le cas de même énergie d'éjection ($E_1 = E_2$) et lorsqu'un de ces électrons est éjecté suivant la direction du moment de transfert, la présence du processus TS2 est se remarque par la brisure de symétrie de la distribution angulaire autour cette direction observée dans les expériences d'El Marji [El Ma97], et de [Jia02, 03]. La situation n'a pas été expliquée par le modèle PWBA qui inclut les deux processus SO et TS1 seulement. Tandis que le modèle DWBA [Coop04] décrivant tous les électrons (incident diffusé et les deux éjectés) par des ondes distordues, et malgré qu'il soit du premier ordre du potentiel d'interaction, donne un bon accord relatif avec ces expériences. D'après ce modèle, la symétrie prédite par la PAB est brisée (expérience de Jia [Jia02,03]) du fait que l'onde distordue décrivant l'électron diffusé permet de tenir compte de son interaction avec l'ion résiduel continuellement. Mais la méthode DWBA est loin de reproduire les mesures de l'expérience à faible moment de transfert [Jia03], car la contribution du mécanisme TS2, entrainant la double interaction entre l'électron diffusé et la cible, doit être mieux prise en compte.

D'après l'expression (2-42) des effets d'interférence entre les différents mécanismes peuvent apparaître lors du calcul de la SEQD [Twee92]. Popov et ses collaborateurs [Popo94] ont étudié la double ionisation de l'hélium à haute énergie d'impact. Cette étude montre que le TS1 est dominant pour les faibles moments de transfert à haute énergie d'éjection (500eV pour chacun des électrons éjectés). Des effets d'interférences ont été inclus dans le calcul de la distribution SEQD par l'addition des amplitudes des mécanismes SO et TS1. Dans leurs études confirmant la contribution du mécanisme TS2 au processus de double ionisation de l'hélium à haute énergie, El Mkhanter et Dal Cappello ont considéré des effets d'interférences entre les mécanismes SO et TS2 [El Mk98], ainsi que d'autres effets obtenus par l'addition des trois mécanismes SO, TS1 et TS2 à la fois [Dal98].

### 2.3.2. Mécanismes indirects de la double ionisation

La double ionisation de la cible peut être produite à travers plusieurs types d'excitation.

#### 2.3.2.1. Excitation auto double ionisation :

$$é + X \rightarrow X^{**} + é \rightarrow X^{+2} + 3é$$

La cible X passe par un état doublement excité d'énergie supérieure à son deuxième potentiel d'ionisation ce qui permet l'éjection simultanée de 2 électrons.

#### 2.3.2.2. Excitation double auto ionisation :

$$é + X \rightarrow X^{*} + é \rightarrow X^{+*} + 2é \rightarrow X^{+2} + 3é$$

C'est une réaction en cascade. L'ion résiduel est obtenu après deux auto-ionisation successives.

### 2.4. Conditions cinématiques de la réaction (e, 3e)

Nous rappelons dans ce paragraphe les différentes conditions cinématiques et géométriques des réactions (e ,3e), qui dépendent des énergies mises en jeu et donc du moment de transfert. Ces conditions sont réparties selon leurs caractéristiques géométriques : symétrique ou asymétrique, coplanaire ou non coplanaire.

#### 2.4.1. Régime asymétrique :

Ce type de géométrie est associé aux expériences où les deux électrons éjectés sont détectés avec des énergies très faibles et différentes $E_{1,2}<<E_d$. L'électron diffusé, supposé rapide est détecté sous un angle $\vartheta_d$<1°.5, tandis que les deux électrons lents sont généralement détectés sous des angles variables. Les valeurs des angles azimutaux déterminent la nature coplanaire ou non coplanaire de la géométrie.

##### 2.4.1.1. Géométrie coplanaire asymétrique

Dans ce cas les différents vecteurs d'impulsion $\vec{k}_i, \vec{k}_d, \vec{k}_1$ et $\vec{k}_2$ se trouvent dans le plan de collision. Les angles azimutaux $\varphi_1$ et $\varphi_2$ prennent la valeur 0 ou $\pi$, figure 7. Les angles d'éjections $\theta_1$ et $\theta_2$ étant variables on distingue dans l'expérience une variété de modes d'angle d'éjection. Le premier consiste à varier l'un des deux angles entre 0 et 2$\pi$ dans le sens trigonométrique en fixant le deuxième lors de la réaction [Lahm99], [Khei99]. La deuxième variante considère que l'angle relatif $\theta_{12} = |\theta_1 - \theta_2|$ est constant tout en variant les deux angles d'éjections $\theta_1$ et $\theta_2$ . Ce type de géométrie a été utilisé dans plusieurs cas de mesures de la SEQD [El Ma 97], [Schr98], [Dorn99], [Chou03].

##### 2.4.1.2. Géométrie non coplanaire asymétrique

En plus de la condition sur l'énergie d'éjection $E_{1,2}<<E_d$ , , cette cinématique est caractérisée par la variation des angles azimutaux $\varphi_1$ et $\varphi_2$ et donc la présence des différents électrons de la voie de sortie dans l'espace, figure 7b.

#### 2.4.2. Régime symétrique:

Ce régime correspond au cas d'égale énergie d'éjection $E_1=E_2<<E_d$. Ces électrons lents peuvent être détectés dans le plan de collision (géométrie coplanaire) ou en dehors de ce plan (géométrie non coplanaire) selon les valeurs des angles $\varphi_1$ et $\varphi_2$.

##### 2.4.2.1. Géométrie coplanaire symétrique

Dans cette géométrie les angles de diffusion et d'éjection se trouvent tous dans un même plan par rapport à la direction d'incidence, et les deux électrons éjectés sont détectés symétriquement ($\theta_1 = \theta_2$ ) par rapport à cette direction. L'angle azimutal relatif $\phi = |\varphi_1 - \varphi_2|$ prend la valeur 0 ou $\pi$ figure 7(c). Cette géométrie a été utilisée dans les mesures de la SEQD pour le néon [Schr98], ainsi que dans le cas de l'hélium [Lahm99].

#### 2.4.2.2. Géométrie non coplanaire symétrique

Cette cinématique est plus générale que la précédente car les électrons éjectés peuvent être détectés dans toutes les directions de l'espace $\phi = (\varphi_1 - \varphi_2 - \pi)$ et $(\theta_1 = \theta_2)$ figure 7(d). Cet arrangement a été largement utilisé par le groupe de Takahashi réalisant des expériences (e, 2 e) et (e, 3-1 e) sur des cibles atomique (He) et moléculaire ($H_2$) [Taka03, 04], [Wata05,08].

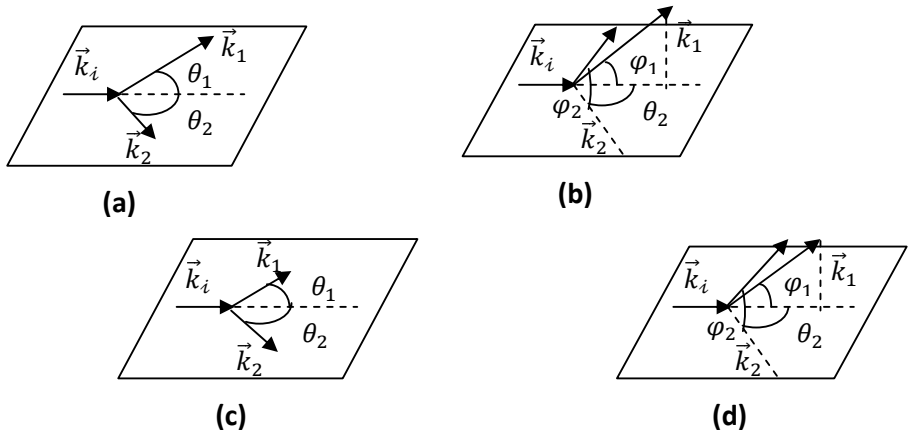



**Figure 7 :** *schémas des différentes situations cinématiques et géométriques.*

### 2.5. Modèles théoriques pour la double ionisation

Les difficultés qui se présentent dans les calculs des sections efficaces sont dues à la complexité de la représentation des états initial et final du système (à plusieurs corps) en interaction. Dans de telles situations, la théorie des perturbations représente un moyen de calcul très utile dans le problème de diffusion. L'étude de l'interaction double ionisante dans le régime perturbatif suppose alors que les électrons projectiles sont rapides, et donc ne transfèrent qu'une petite fraction de leurs moments à la cible [Bera03].

#### 2.5.1. Dans le cadre de la première approximation de Born

Dans ce cas le traitement de l'interaction projectile-cible est réduit à l'étude d'un problème à trois corps. Plusieurs modèles sont basés sur cette approximation, et peuvent décrire les processus du premier ordre tels que SO et TS1.

- **Modèle des ondes planes PWBA**

Ce modèle est basé sur la description de tous les électrons participant à l'interaction (l'incident, le diffusé, les deux éjectés) par des ondes planes [Smir78], [Popo94]. Il ne peut donc être appliqué que dans le cas de haute énergie d'éjection, où l'interaction coulombienne entre chacun des électrons éjectés et l'ion résiduel devient négligeable.

- **Modèle des ondes coulombiennes**

Ce modèle a été introduit par Byron et Joachain [Byro67] dans l'étude de la double ionisation de l'hélium où ils représentaient les électrons éjectés par deux ondes

coulombiennes non corrélées. Cette méthode ignorait complètement la corrélation dans la voie finale. En 1991, C. Dal Cappello et Le Rouzo [Dal91], ont tenu compte de cette corrélation en décrivant les électrons éjectés par des ondes coulombiennes à charges effectives variables dépendant des angles d'éjections. L'étude s'appuyait sur l'orthogonalité des fonctions d'ondes initiale et finale de la cible, elle a corrigé le modèle de Byron et Joachain.

- **Modèle BBK ou 3C**

Ce modèle a été introduit par Brauner Briggs et Klar en 1989 [Brau89] pour l'étude de l'ionisation simple de l'atome d'hydrogène. Les auteurs ont utilisé une description asymptotique de l'état final. Le comportement asymptotique était incorporé par le produit de trois fonctions coulombiennes décrivant l'interaction coulombienne des électrons éjectés entre eux et avec l'ion résiduel. Une autre version de ce modèle consiste à remplacer la troisième fonction coulombienne par l'unité et à introduire le facteur de Gamow qui traduit la répulsion entre les électrons éjectés. Ce modèle appliqué dans le cadre de la première approximation de Born et dans ces deux versions a amélioré qualitativement l'accord avec l'expérience [Joula92], [Joula93], [Hda94].

- **Approche CCC Convergent Close Coupling**

Cette méthode proposée par Massey et Mohr en 1932 [Mass33], est basée essentiellement sur la résolution de l'équation de Lippmann-Schwinger dans le cas d'un système à trois corps, en utilisant le premier terme de l'approximation de Born. Ce modèle a été appliqué dans le cas de la double ionisation de l'atome d'hélium [Bray92], [Khei99, 01, 04]. Kheifets [Khei04] a aussi utilisé le deuxième terme de l'approximation de Born mais que pour des moments de transfert très faibles.

- **Approximation de Born aux ondes distordues DWBA**

Lorsque l'électron incident est d'énergie modérée le potentiel diffusif n'est plus négligeable ou de courte portée, il agit comme une distorsion sur les électrons dans la voie d'entrée et de sortie. Chacun de ces derniers est représenté par une fonction d'onde distordue capable de traduire les corrélations initiales et finales [Coop04]. Malgré que la méthode DWBA soit du premier ordre de l'interaction ses résultats sont encourageants.

### 2.5.2. Au delà de la Première approximation de Born

L'expérience a montré une insuffisance de la première approximation dans l'étude de la réaction (e ,3e) à basse comme à haute énergie. Ceci est expliqué par la présence des effets d'ordre supérieurs dans ces expériences, alors que la première approximation de Born n'accompagne que les effets du premier ordre de l'interaction projectile-cible. Ce manque peut être compensé par l'inclusion des termes d'ordres supérieurs du potentiel d'interaction à travers la seconde approximation de Born ou en utilisant des méthodes physiques simulant les corrélations de sortie de façon asymptotique.

- **Seconde approximation de Born**

Cette approche permet de décrire les interactions successives que subit le projectile lors de sa collision avec la cible [Dal98, 95]. Ces interactions sont à la base des effets secondaires apparaissant dans la distribution angulaire en particulier la brisure de symétrie autour de la direction du moment de transfert traduite par la présence d'un processus à deux étapes TS2. Une situation similaire a été observée dans l'étude de simple ionisation à basse énergie d'impact électronique utilisant la deuxième approximation de Born [Byro83]. L'utilisation de cette approximation dans l'étude de la réaction (e ,3 e) nécessite une grande attention et un temps de calcul très long. Pour cette raison les études réalisées jusqu'ici, pour des cibles atomiques [Dal98, 95], [El Mk98], [Grin00] et moléculaires $[Mans04]_1$ ont été effectuées dans le contexte du modèle 2CWG permettant de réduire le temps de calcul. L'application de la seconde approximation de Born dans le cadre du vrai modèle BBK a fait l'objet de l'investigation d'Ancarani [Anca04], qui a conclu à une légère différence entre ses résultats et ceux obtenus par la première approximation de Born avec BBK.

- **Modèle 6C**

Cette méthode a été appliquée à la double ionisation comme une extension du modèle 3C (BBK). elle prend en considération toutes les interactions mutuelles possibles entre les différentes particules dans la voie de sortie (l'électron diffusé, les deux éjectés et l'ion résiduel),en utilisant une fonction d'onde finale produit de six fonctions coulombiennes traduisant les différentes interactions coulombiennes. Ce modèle présente un bon accord avec l'expérience [Malc97], [Götz03], [Jone03], [El Az05].

L'étude théorique de la double ionisation a toujours motivé les auteurs dans le but de reproduire l'expérience. D'autres modèles théoriques ont été conçus pour réaliser cet objectif, nous mentionnons à titre de références le C4FS [Bera96], le modèle de la fonction de Green [Bera00, 02], l'approximation de Glauber [Roy80], [Ritu06].

**Conclusion**

Ce chapitre était réservé à des rappels fondamentaux sur le processus de double ionisation. Nous avons brièvement vu une description globale de la réaction (e,3e), ses mécanismes principaux, les situations cinématiques et géométriques de sa réalisation, ainsi que les modèles théoriques les plus utilisés dans son étude.

# Chapitre III

# application à la double ionisation

## Introduction

L'étude que nous proposons dans ce travail comporte deux parties.

La première partie consiste en une comparaison des résultats de la double ionisation de l'atome d'Hélium donnés par notre modèle 2CWG, avec ceux obtenus par d'autres modèles. Le but est de tester la validité du modèle et de confirmer l'importance des corrélations introduites par le choix de la fonction d'onde de l'état initial.

La deuxième partie est consacrée, pour la première fois, à l'étude de la double ionisation de la molécule d'eau par impact d'électrons, dans le cadre de deux modèles : BBK et BBK approximé (2CWG). Cette étude pourrait servira de guide aux futures expériences de double ionisation de la molécule d'eau.

### 3.1. Application de 2CWG et BBK à la double ionisation

Différents modèles théoriques ont été utilisés dans l'étude de la double ionisation. Ces modèles traduisent le choix de la représentation des états initial et final du système en interaction, et par conséquent l'ordre des corrélations intervenant dans les voies d'entrée et de sortie. Des exemples sur les modèles les plus utilisés ont été mentionnés dans le chapitre précédent. Nous rappelons dans cette section les deux modèles, 2CWG et BBK, que nous utiliserons pour l'étude de la double ionisation de la molécule d'eau.

La section efficace quintuplement différentielle est donnée par la relation (2- 27) :

$$\frac{d^5\sigma}{d\Omega_1 \mathrm{d}\Omega_2 \mathrm{d}\Omega_d dE_1 dE_2} = (2\pi)^4 \frac{k_1 k_2 k_d}{k_0} \left|T_{fi}\right|^2 \qquad (3\text{-}1)$$

$T_{fi}$ est l'élément de matrice de transition défini dans la première approximation de Born par :

$$T_{fi} = \frac{1}{2\pi} \langle \psi_f(\vec{k}_d, \vec{r}_0; \vec{k}_1, \vec{r}_1; \vec{k}_2, \vec{r}_2) \left| V \right| \psi_i(\vec{k}_i, \vec{r}_0; \vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \qquad (3\text{-}2)$$

où :

$$V = \frac{-Z}{r_0} + \frac{1}{|\vec{r}_{01}|} + \frac{1}{|\vec{r}_{02}|} \qquad (3\text{-}3)$$

$\psi_i(\vec{k}_i, \vec{r}_0; \vec{r}_1, \vec{r}_2)$ est la fonction d'état initial du système projectile-cible exprimé par le produit de la fonction représentant l'électron incident par celle de la cible.

$$\left|\psi_i(\vec{k}_i, \vec{r}_0; \vec{r}_1, \vec{r}_2)\right\rangle = \left|\Phi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2)\varphi(\vec{k}_i, \vec{r}_0)\right\rangle \qquad (3\text{-}4)$$

$\psi_f(\vec{k}_d, \vec{r}_0; \vec{k}_1, \vec{r}_1; \vec{k}_2, \vec{r}_2)$ est la fonction d'état du système, après collision, constituée de l'électron diffusé et des deux électrons éjectés émergeant dans le continuum de l'ion résiduel.

$$\left|\psi_f(\vec{k}_d, \vec{r}_0; \vec{k}_1, \vec{r}_1; \vec{k}_2, \vec{r}_2)\right\rangle = \left|\Phi_f(\vec{k}_1, \vec{r}_1; \vec{k}_2, \vec{r}_2)\varphi(\vec{k}_d, \vec{r}_0)\right\rangle \qquad (3\text{-}5)$$

$\varphi(\vec{k}_i,\vec{r}_0)$et $\varphi(\vec{k}_d,\vec{r}_0)$ sont les fonctions d'ondes de l'électron incident et diffusé. Dans notre étude ces électrons sont considérés comme très rapides et donc d'énergie cinétique élevée. Ils sont décrits par deux ondes planes de la forme :

$$\varphi(\vec{k},\vec{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} e^{i\vec{k}.\vec{r}} \qquad (3\text{-}6)$$

Nous négligeons tous les effets d'échanges entre l'électron incident et les électrons actifs de la cible ainsi que ceux entre l'électron diffusé et les deux électrons éjectés dans la voie de sortie.

$\Phi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)$ et $\Phi_f(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2)$sont les fonctions décrivant les électrons actifs liés à la cible qui seront éjectés dans le champ de l'ion résiduel. Les formes de ces fonctions sont dictées par le choix du modèle utilisé dans l'étude du processus. Ces fonctions seront exprimées selon les deux modèles BBK et BBK approximé (2CWG) que nous utilisons dans l'étude de la double ionisation de l'atome d'hélium et de la molécule d'eau.

### 3.2. Description de l'état final par le modèle BBK ou 3C

L'étude du processus de double ionisation nécessite la prise en compte des corrélations dans la voie de sortie [Dal91]. Le modèle BBK [Brau89] représentant une solution asymptotique exacte du problème à trois corps, est un bon candidat. Ce modèle utilise un produit de trois fonctions Coulombiennes pour décrire les électrons éjectés dans le continuum de l'ion résiduel. Les deux premières décrivent l'interaction des électrons éjectés avec l'ion résiduel, la troisième pour traduire la répulsion Coulombienne entre ces électrons tout en s'éloignant de la zone d'interaction (région asymptotique). Le calcul de la section efficace par BBK revient à l'évaluation d'intégrales numériques doubles (ou triples) [Joul92] avec le calcul d'une série (2F1), ce qui demande un temps de calcul conséquent surtout pour le cas des molécules. D'autre part il a été remarqué que le modèle BBK inclut les mécanismes Shake off et TS1 du fait qu'il tient compte de la répulsion entre les électrons éjectés de façon continue [Popo94].

La fonction représentant les électrons éjectés, proposée par BBK, est de la forme :

$$\Psi_{3C}^{-}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2) = \frac{1}{(2\pi)^3} e^{i\vec{k}_1.\vec{r}_1} e^{i\vec{k}_2.\vec{r}_2} \varphi_c(\alpha_1,\vec{k}_1,\vec{r}_1)\varphi_c(\alpha_2,\vec{k}_2,\vec{r}_2)\varphi_c(\alpha_{12},\vec{k}_{12},\vec{r}_{12}) \qquad (3\text{-}7)$$

où :

$$\varphi_c(\alpha,\vec{k},\vec{r}) = \frac{e^{i\vec{k}.\vec{r}}}{(2\pi)^{3/2}} \Gamma(1-i\alpha) e^{\frac{-\pi\alpha}{2}} {}_1F_1\left(i\alpha,1,-i(\vec{k}.\vec{r}+kr)\right) \qquad (3\text{-}8)$$

$\alpha_1 = \frac{-Z}{k_1}$ , $\alpha_2 = \frac{-Z}{k_2}$ , $\alpha_{12} = \frac{1}{2k_{12}}$ sont les paramètres de Sommerfeld et $\vec{k}_{12} = \frac{1}{2}(\vec{k}_1 - \vec{k}_2)$

Z est la charge de l'ion résiduel, et ${}_1\mathrm{F}_1$ est la fonction hypergéométrique.
La fonction BBK est symétrisée par l'expression :

$$\Psi_{3\mathrm{C}} = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(\Psi_{3\mathrm{C}}^{-}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2) + \Psi_{3\mathrm{C}}^{-}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_2,\vec{r}_1)\right) \qquad (3\text{-}9)$$

Cette fonction a une forme asymptotique exacte. Le comportement asymptotique de la fonction 3C est décrit dans l'annexe A.

### 3.3. Description de l'état final par le modèle 2CWG ou BBK approximé

Le calcul de la section efficace du processus de double ionisation par la méthode BBK nécessite un temps très grand. En remplaçant la troisième fonction Coulombienne qui décrit la répulsion entre les deux électrons éjectés par une fonction appelée facteur de Gamow [Hda94] le temps de calcul de la SEQD est largement réduit.
Le facteur de Gamow ne dépend que des énergies des électrons éjectés et est défini par l'expression :

$$\varphi_G(\alpha_{12}) = \Gamma(1 - i\alpha_{12})e^{\frac{-\pi}{2}\alpha_{12}} \qquad (3\text{-}10)$$

Ce facteur prend en compte la forte répulsion des électrons éjectés ayant des énergies voisines tout en la surestimant. Lorsque les énergies d'éjections des deux électrons ne sont pas proches, leur répulsion est presque nulle et le facteur de Gamow tend ici vers un.
La fonction représentant les deux électrons éjectés s'écrit maintenant comme :

$$\Psi_{2\mathrm{CWG}} = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(\Psi_{2\mathrm{C}}^{-}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2) + \Psi_{2\mathrm{C}}^{-}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_2,\vec{r}_1)\right)\varphi_G(\alpha_{12}) \qquad (3\text{-}11)$$

Avec :

$$\Psi_{2\mathrm{C}}^{-}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2) = \frac{1}{(2\pi)^3}\mathrm{e}^{\mathrm{i}\vec{k}_1.\vec{r}_1}\mathrm{e}^{\mathrm{i}\vec{k}_2.\vec{r}_2}\varphi_{\mathrm{c}}(\alpha_1,\vec{\mathrm{k}}_1,\vec{\mathrm{r}}_1)\varphi_{\mathrm{c}}(\alpha_2,\vec{\mathrm{k}}_2,\vec{\mathrm{r}}_2) \qquad (3\text{-}12)$$

et $\varphi_{\mathrm{c}}(\alpha,\vec{\mathrm{k}},\vec{\mathrm{r}})$ est la fonction d'onde coulombienne définie par la relation (3-8).

### 3.4. Double ionisation de l'hélium

L'hélium est le meilleur candidat pour tester les modèles théoriques étudiant le processus d'ionisation (simple ou double) réalisé expérimentalement [Taou98], [Lahm99]$_2$.

#### 3.4.1. L'état initial

Nous étudions la réaction doublement ionisante de l'hélium

$$\mathrm{é} + \mathrm{He} \rightarrow \mathrm{He}^{+2} + \mathbf{3}\mathrm{é}$$

L'état initial est composé de l'atome d'hélium et de l'électron incident.

L'électron projectile étant rapide est décrit par une onde plane :

$$\varphi\left(\vec{k}_i,\vec{r}_0\right)=\frac{1}{(2\pi)^{3/2}}e^{i\vec{k}_i.\vec{r}_0} \tag{3-13}$$

La cible d'Hélium est représentée dans notre étude par la fonction de Silvermann et collaborateurs à couches fermées SPM2 [Silv60]. Cette fonction tient compte des corrélations radiale et angulaire (contient des termes 1s et 2p) et donne 80% de l'énergie de corrélation. En effet le choix de cette fonction a comme objectif de confirmer le rôle primordial des corrélations dans la voie initiale. L'état initial de l'atome d'hélium s'écrit sous la forme :

$$|\Phi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\rangle=\frac{1}{\sqrt{1+\lambda^2}}\left[\begin{array}{c}N\left(\Phi_{1s}(\vec{r}_1)\Phi_{1s'}(\vec{r}_2)+\Phi_{1s}(\vec{r}_2)\Phi_{1s'}(\vec{r}_1)\right)\\+\frac{\lambda}{\sqrt{3}}\left(\Phi^0_{2p}(\vec{r}_1)\Phi^0_{2p}(\vec{r}_1)-\Phi^1_{2p}(\vec{r}_1)\Phi^{-1}_{2p}(\vec{r}_2)-\Phi^1_{2p}(\vec{r}_2)\Phi^{-1}_{2p}(\vec{r}_1)\right)\end{array}\right] \tag{3-14}$$

avec :

$$\begin{cases}\Phi_{nlm}(\xi,\vec{r})=R_{nl}(\xi,r)Y^m_l(\theta,\varphi)\\ R_{nl}(\xi,r)=\frac{2\xi^{n+1/2}}{\sqrt{(2n)!}}r^{n-1}e^{-\xi r}\\ \left[Y^m_l(\theta,\varphi)\right]^*=(-1)^mY^{-m}_l(\theta,\varphi)\end{cases} \tag{3-15}$$

et :

$$\begin{cases}\Phi_{1s}(\vec{r})=\left(\frac{\xi^3}{\pi}\right)^{1/2}e^{-\xi r}\ ;\ \xi=2.17621\\ \Phi_{1s'}(\vec{r})=\left(\frac{\xi'^3}{\pi}\right)^{1/2}e^{-\xi' r}\ ;\ \xi'=1.20152\\ \Phi^{0,1,-1}_{2p}(\vec{r})=\left(\frac{2}{\sqrt{3}}\right)(\xi'')^{5/2}re^{-\xi'' r}Y^{0,1,-1}_1(\hat{r})\ ;\xi''=2.47547\end{cases} \tag{3-16}$$

N est la constante de normalisation de l'état $|1s1s'\rangle$ donnée par :

$$N=\left[2+2\left(S(\xi,\xi')\right)^2\right]\ ;\ S(\xi,\xi')=\int\Phi_{1s}\Phi_{1s'}\overrightarrow{dr}=8\left[\frac{(\xi\xi')^{3/2}}{(\xi+\xi')^3}\right] \tag{3-17}$$

N=0.53014 et la constante variationnelle $\lambda$ = -0.0617557 dans le cas de l'hélium.
Enfin l'état initial du système est décrit par le produit des deux fonctions $\Phi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)$ (3-12) et $\varphi\left(\vec{k}_i,\vec{r}_0\right)$ (3-13) :

$$\left|\psi_i\left(\vec{k}_i;\vec{r}_0,\vec{r}_1,\vec{r}_2\right)\right\rangle=\left|\Phi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\varphi\left(\vec{k}_i,\vec{r}_0\right)\right\rangle \tag{3-18}$$

### 3.4.2.L'état final

L'état final du système est représenté selon le modèle 2CWG. Les deux électrons éjectés sont décrits par des ondes coulombiennes traduisant leurs interactions avec le cœur ionique résiduel, tandis que le facteur de Gamow traduit leur répulsion coulombienne mutuelle.

$$\Phi_{ff}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2)=\frac{1}{\sqrt{2}}\left(\Phi_{2C}^{-}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2)+\Phi_{2C}^{-}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_2,\vec{r}_1)\right)\varphi_G(\alpha_{12}) \quad (3\text{-}19)$$

L'électron diffusé, plus rapide que les deux électrons éjectés, est décrit par une onde plane :

$$\varphi(\vec{k}_d,\vec{r}_0)=\frac{1}{(2\pi)^{3/2}}e^{i\vec{k}_d.\vec{r}_0} \quad (3\text{-}20)$$

L'état final est finalement décrit par la fonction :

$$\left|\psi_{ff}(\vec{k}_d,\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_0,\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle=\left|\Phi_{ff}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2)\varphi(\vec{k}_d,\vec{r}_0)\right\rangle \quad (3\text{-}21)$$

l'expression de l'élément de matrice $T_{fi}$ (3-2) se met alors sous la forme :

$$T_{fi}=\frac{1}{(2\pi)^3}\left\langle\Phi_{ff}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2)e^{i\vec{k}_d.\vec{r}_0}\left|\frac{-2}{r_0}+\frac{1}{|\vec{r}_{01}|}+\frac{1}{|\vec{r}_{02}|}\right|e^{i\vec{k}_i.\vec{r}_0}\Phi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle \quad (3\text{-}22)$$

En utilisant la relation de Bethe réduisant l'intégrale sur $r_0$:

$$\int\frac{e^{i\vec{k}.\vec{r}}}{|\vec{r}-\vec{r}_i|}d\vec{r}=\frac{4\pi}{k^2}e^{i\vec{k}.\vec{r}_i} \quad (3\text{-}23)$$

On obtient l'expression finale de l'élément $T_{fi}$:

$$T_{fi}=\frac{1}{2\pi^2K^2}\left\langle\Phi_{ff}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right|-2+e^{i\vec{K}.\vec{r}_1}+e^{i\vec{K}.\vec{r}_2}\left|\Phi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle \quad (3\text{-}24)$$

$$T_{fi}=T_{e_1}+T_{e_2}+T_N \quad (3\text{-}25)$$

Avec :

$$T_{e_1}=\frac{1}{2\pi^2K^2}\left\langle\Phi_{ff}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2)\left|e^{i\vec{K}.\vec{r}_1}\right|\Phi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle \quad (3\text{-}26)$$

$$T_{e_2}=\frac{1}{2\pi^2K^2}\left\langle\Phi_{ff}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2)\left|e^{i\vec{K}.\vec{r}_2}\right|\Phi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle \quad (3\text{-}27)$$

$$T_N=-\frac{2}{2\pi^2K^2}\left\langle\Phi_{ff}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right|\Phi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\rangle \quad (3\text{-}28)$$

$\vec{K}$ est le moment de transfert.

Les trois termes exprimés par les relations (3-26, 27, 28) sont appelés terme direct1 terme direct 2 et terme du noyau.

La détermination explicite de ces termes nécessite le calcul des éléments du type:

$$I=\left\langle\phi_c(\vec{k};\vec{r})\left|e^{i\vec{K}.\vec{r}}\right|\psi_{n,\ell,m}(\vec{r})\right\rangle \quad (3\text{-}29)$$

où $\phi_c(\vec{k};\vec{r})$ est une fonction coulombienne (3-8) et $\psi_{n,\ell,m}(\vec{r})$ une fonction de type Clémenti exprimée par une somme de termes de fonctions de type Slater (3-15).

Le calcul explicite de cet élément est contenu dans l'annexe B.

Nos résultats, calculés à l'aide du modèle 2CWG, sont comparés à ceux de l'expérience réalisée par Lahmam Bennani [Lahm03] à basse énergie (600eV) en

géométrie coplanaire. Les électrons éjectés de 11eV ont été détectés en coïncidence avec l'électron diffusé d'énergie 500eV détecté sous un angle fixe de 1°.5.
Nos résultats sont également comparés (chapitre suivant) avec ceux obtenus par d'autres méthodes théoriques [El Az05, Dey06].

## 3.5. Double ionisation de la molécule d'eau

### 3.5.1. Introduction

L'objectif principal de notre travail consiste en l'étude du processus de double ionisation de la molécule d'eau. Cette étude représente un exemple d'application fondamentale de la théorie des collisions sur les cibles moléculaires.

Nous avons choisi la molécule d'eau à cause de sa présence abondante dans la matière d'une manière générale. Elle constitue plus de 70% de la matière biologique. De plus l'eau a toujours attiré l'intérêt des chercheurs de différents domaines, nous citons particulièrement les travaux récents en chimie atmosphérique [Gold01], en Biologie et en médecine [Tomb84], [Schim92]. Les études ont montré que l'énergie cinétique des électrons éjectés lors de la soumission de l'eau aux radiations ionisantes, peut être suffisante pour ioniser d'autres molécules. Ces réactions rapides se terminent avec la production de molécules stables (telles que $H_2$ et $O_2$) ou de fragments ioniques ($H^+$et $OH^-$). Cependant les résultants de ces réactions primaires et secondaires sont en réalité des produits de la destruction des molécules d'eau entourant l'ADN [Boud00]. La détermination du taux des effets radio-induits sur la matière vivante nécessite l'acquisition de données théoriques et expérimentales sur les sections efficaces d'ionisation simple ou multiple de la molécule d'eau [Cham02], [Opal71], [Gobe01], [Bola86].
En chimie quantique l'étude de la molécule d'eau en phase liquide ou solide reste plus difficile que celle de la phase gazeuse. A ce jour la plupart des auteurs [Cham01,02] décrivent l'eau en phase liquide ou solide par des fonction d d'ondes de l'eau en phase gazeuse. Néanmoins une description de l'eau en phase liquide ou solide par de petits clusters est envisageable [Mull06].
Jusqu'à présent l'étude de la double ionisation de l'eau n'a jamais été proposée. Les résultats obtenus dans ce travail peuvent donc servir à l'élaboration de futures expériences.
Les calculs réalisés dans le cadre de la première approximation de Born, utilisant les deux modèles BBK et 2CWG pour des situations cinématiques variées, seront présentés en deux parties. La première partie est consacrée à l'étude des réactions (e,3e) sur $H_2O$ par le modèle 2CWG, concernant les différentes couches de la molécule. La seconde est réservée au calcul de la SEQD de la réaction (e,3e) de la couche '$1b_1$' par le modèle BBK. Pour les autres couches plus profondes, la situation devient de plus en plus compliquée et nécessite un temps de calcul conséquent.

### 3.5.2. Description physique de la molécule d'eau

En chimie fondamentale la molécule d'eau est produite par la réaction :

$$\boldsymbol{H_2 + \frac{1}{2}O_2 \rightarrow H_2O}$$

A l'équilibre thermodynamique, l'expérience montre que la molécule d'eau est de géométrie coudée, d'angle de liaison H-O-H = 104°.5, avec une longueur de liaison de 95.8*pm* et de moment dipolaire égal à 1.85 debye.

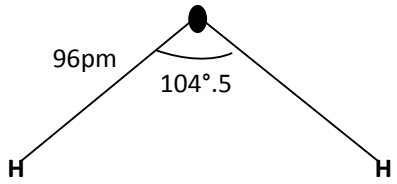



**Figure8** : *représentation géométrique de la molécule d'eau*

La configuration électronique de l'état fondamental est déterminée par la théorie des orbitales moléculaires OM-CLOA, basée sur la construction d'orbitales comme combinaisons linéaires d'orbitales atomiques des atomes qui composent la molécule [McQu]. D'après cette théorie la meilleure fonction d'onde décrivant la molécule d'eau est obtenue en créant une composition d'orbitales hybrides par des combinaisons linéaires des orbitales atomiques 2s (de l'Hydrogène) et les trois orbitales 2p (de l'oxygène). Ces orbitales sont nommées orbitale hybride **$2sp^3$**. En utilisant les propriétés de symétrie de $H_2O$ dictées par la théorie des groupes, les dix électrons de l'état fondamental sont distribués sur cinq orbitales moléculaires selon la configuration : $\boldsymbol{(1a_1)^2(2a_1)^2(1b_2)^2(3a_1)^2(1b_1)^2}$ [Mort].

Les énergies nécessaires pour ioniser chacune de ces orbitale sont données par : 558.5, 32.2, 18.5, 14.7, 12.6 (eV) [McQu], [Cham01]. Le processus de double ionisation peut être réalisé en éjectant deux électrons provenant de la même couche ou bien de deux couches différentes. Les énergies de double ionisation correspondantes ne sont que rarement mentionnées dans la littérature [Kosu80], [Sieg75], [Agren75] où seules celles des trois orbitales supérieures $(1b_2)^2(3a_1)^2(1b_1)^2$ ont été proposées prenant les valeurs : 53.2, 46.2, 41.3 (eV) respectivement. Les énergies de double ionisation pour les autres orbitales ont été calculées approximativement [Kosu80].

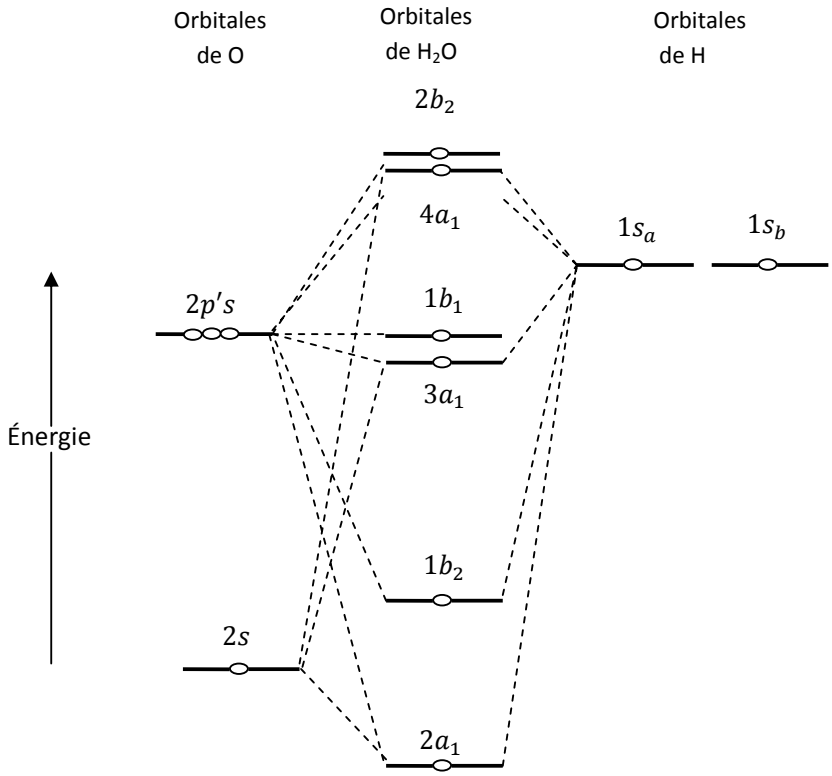



**Figure 9:** *Diagramme énergétique des orbitales moléculaires de $H_2O$. L'orbitale $1a_1$ n'est pas représentée car elle sort de l'échelle énergétique de la figure.*

### 3.5.3. Repère du laboratoire

L'état moléculaire est représenté par une fonction d'onde définie dans un repère (Oxyz) lié à la molécule. L'interaction collisionnelle est étudiée dans le référenciel du laboratoire(OXYZ). Le passage du repère (Oxyz) vers (OXYZ) se fait par l'intermédiaire des angles d'Euler.

La description de l'état moléculaire en fonction des angles d'Euler est incluse dans l'expression de la section efficace de diffusion:

$$\sigma^6 = \frac{d^6\sigma}{d\Omega_{Euler} d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2 d\mathrm{E}_1 d\mathrm{E}_2} = \frac{k_1 k_2 k_d}{k_i} \left| T_{fi}(\alpha, \beta, \gamma) \right|^2 \qquad (3\text{-}30)$$

où $$d\Omega_{Euler} = \sin\beta \, d\beta d\alpha d\gamma \qquad (3\text{-}31)$$

La section efficace de diffusion définie pour une orientation donnée de la molécule est obtenue en moyennant l'expression de la 6DCS (3-31) sur les angles solides d'Euler:

$$\sigma^5 = \frac{d^5\sigma}{d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2 d\mathrm{E}_1 d\mathrm{E}_2} = \frac{1}{8\pi^2} \iiint \sin\beta \, d\beta d\alpha d\gamma \frac{d^6\sigma}{d\Omega_{Euler} d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2 d\mathrm{E}_1 d\mathrm{E}_2} \qquad (3\text{-}32)$$

Cette intégrale nécessite un temps de calcul très long, qu'on peut réduire en utilisant une méthode théorique basée sur les propriétés des matrices de rotation [Cham01].

### 3.5.4. Description des états liés de la cible $H_2O$

La construction d'orbitales moléculaires par la combinaison d'orbitales atomiques présente souvent des difficultés selon la molécule à étudier. Le calcul de l'amplitude de diffusion dans le cas moléculaire s'est toujours heurté à la difficulté d'intégrales multicentriques même pour les petites molécules. Il s'avère que l'évaluation de ces intégrales dans le cas de plus de deux centres non alignés, n'est pas simple [Alle62]. Ce problème est souvent surmonté suivant deux procédures de calcul :

- évaluer les intégrales multicentriques à l'aide de changement de variables.
- ramener le problème moléculaire à une situation atomique au moyen d'une base mono-centrique.

L'Hamiltonien multicentrique d'une molécule polyatomique est donné dans l'approximation de Born-Oppenheimer par :

$$H = -\sum \frac{\nabla_i^2}{2} - \sum_{\alpha,i} \frac{1}{|\vec{r}_i - \vec{r}_\alpha|} + \sum_{i<j} \frac{1}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} + \sum_{\alpha<\beta} \frac{Z_\alpha Z_\beta}{|\vec{r}_\alpha - \vec{r}_\beta|} \qquad (3\text{-}33)$$

où les indices (i , j) représentent les électrons alors que $(\alpha, \beta)$ désignent les noyaux.
Le calcul est largement simplifié si on ramène les mesures des distances $|\vec{r}_i - \vec{r}_j|$ et $|\vec{r}_i - \vec{r}_\alpha|$ à un même centre comme dans le cas atomique. Le choix de ce centre n'est pas unique, mais généralement il coïncide avec le noyau le plus lourd $[Mocc64]_1$. Cette procédure s'est avérée efficace dans le cas des molécules de types $AH_n$ tel que $CH_4$ $[Mocc64]_1$, $NH_3$ $[Mocc64]_2$ et $H_2O$ $[Mocc64]_3$ dont les résultats (calcul de l'énergie totale et la longueur de liaison) se sont révélés en bon accord avec l'expérience.

| | **Valeurs données par Moccia** | **Valeurs expérimentales** |
|---|---|---|
| $\mu$**(a.u)** | 0.8205 | 0.728 |
| **O-H** | 1.814 | 1.810 |
| **H-H** | 2.907 | 2.873 |
| **H-O-H** | 106°.53 | 105°.5 |

**Tableau1** *comparaison des grandeurs caractéristiques de la molécule $H_2O$ données par Moccia avec les valeurs expérimentales de ces grandeurs.*

Dans notre étude l'état de la molécule $H_2O$ est représenté par la fonction mono-centrique de Moccia $[Mocc64]_3$ exprimée par une combinaison de cinq fonctions atomiques de type Slater toutes centrées sur le noyau d'oxygène.
Ces fonctions sont de la forme:

$$\psi_i(\vec{r}) = \sum_{j=1}^{N_i} a_{ij} \Phi^{\xi_{ij}}_{\mathrm{n}_{ij}\mathrm{l}_{ij}\mathrm{m}_{ij}}(\vec{r}) \qquad (3\text{-}34)$$

où $N_i$ est le nombre de fonctions de type Slater utilisées dans le développement de la i[ème] orbitale et $a_{ij}$ est le poids de chaque composante atomique $\Phi^{\xi_{ij}}_{\mathrm{n}_{ij}\mathrm{l}_{ij}\mathrm{m}_{ij}}(\vec{r})$ donné par:

$$\Phi^{\xi_{ij}}_{\mathrm{n}_{ij}\mathrm{l}_{ij}\mathrm{m}_{ij}}(\vec{r}) = R^{\xi_{ij}}_{\mathrm{n}_{ij}\mathrm{l}_{ij}}(r) S_{\mathrm{l}_{ij}\mathrm{m}_{ij}}(\hat{r}) \qquad (3\text{-}35)$$

avec $R^{\xi_{ij}}_{\mathrm{n}_{ij}\mathrm{l}_{ij}}(r)$ la partie radiale de la fonction $\Phi^{\xi_{ij}}_{\mathrm{n}_{ij}\mathrm{l}_{ij}\mathrm{m}_{ij}}(\vec{r})$ qui s'écrit comme:

$$R^{\xi_{ij}}_{\mathrm{n}_{ij}\mathrm{l}_{ij}}(r) = \frac{(2\xi_{ij})^{2\mathrm{n}_{ij}+1/2}}{\sqrt{(2\mathrm{n}_{ij})!}} r^{\mathrm{n}_{ij}-1} e^{-r\xi_{ij}} \qquad (3\text{-}36)$$

et $S_{\mathrm{l}_{ij}\mathrm{m}_{ij}}(\hat{r})$ les harmoniques solides réelles exprimées par la relation :

$$S_{\mathrm{l}_{ij}\mathrm{m}_{ij}}(\hat{r}) = \begin{cases} \left(\frac{\mathrm{m}_{ij}}{2|\mathrm{m}_{ij}|}\right)^{1/2} \left[ Y_{\mathrm{l}_{ij}-|\mathrm{m}_{ij}|}(\hat{r}) + (-1)^{\mathrm{m}_{ij}} \left(\frac{\mathrm{m}_{ij}}{|\mathrm{m}_{ij}|}\right) Y_{\mathrm{l}_{ij}|\mathrm{m}_{ij}|}(\hat{r}) \right], & \mathrm{m}_{ij} \neq 0 \\ Y_{\mathrm{l}_{ij}0}(\hat{r}) & \mathrm{m}_{ij} = 0 \end{cases} \qquad (3\text{-}37)$$

où $Y_{\mathrm{l}_{ij}\mathrm{m}_{ij}}(\hat{r})$ sont les harmoniques sphériques habituelles.

Nous rapportons dans le tableau (2) les valeurs des coefficients $a_{ij}$ et $\xi_{ij}$ pour les différents nombres quantiques $\mathrm{n}_{ij}, \mathrm{l}_{ij}$ et $\mathrm{m}_{ij}$ données par Moccia [Mocc64]$_3$:

| $n_{(i}$ | $l_{(i)}$ | $m_{(i)}$ | $\xi$ | $^1a_1$ | $^2a_1$ | $^3a_1$ | $^1b_2$ | $^1b_1$ |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 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 |

**Tabeau2:** *Valeurs des coefficients correspondants aux nombres quantiques (n, l, m) inclus dans les combinaisons linéaires d'orbitales atomiques constituant les orbitales moléculaires de $H_2O$.*

### 3.5.5. Mouvements de vibration et de rotation

L'étude de la structure moléculaire est beaucoup plus compliquée que celle des atomes. Elle est généralement proposée sous des approximations physiques permises par la nature de la structure même. Cependant, la différence de masse entre les électrons et le noyau d'oxygène dans la molécule d'eau permet de considérer que le mouvement du noyau est très lent devant celui des électrons et que par conséquent sa position sera supposée fixe. En effet, les mouvements de vibrations et de rotations ne sont pas pris en compte dans le cas de cette molécule du fait que la période des vibrations et des oscillations est très grande devant le temps écoulé lors de la réaction collisionnelle.

## 3.6. Etude de la double ionisation de $H_2O$ par 2CWG

Nous étudions la réaction (e,3e) associée à la double ionisation par impact d'électrons rapides de la molécule d'eau en phase gazeuse. Ce processus est réalisé

dans l'hypothèse d'une collision individuelle où la réaction a lieu entre un seul électron incident et une seule molécule cible $H_2O$:

$$é + \boldsymbol{H_2O} \rightarrow \boldsymbol{3}é + \boldsymbol{H_2O^{++}}$$

Cette hypothèse est justifiée dans le cas des cibles en état de gaz dilué. Les trois électrons résultant de la réaction (l'électron rapide diffusé et deux électrons lents éjectés) sont détectés en coïncidence. L'étude est réalisée au moyen du modèle théorique 2CWG présenté précédemment, et dans le contexte de la première approximation de Born où on décrit l'interaction par la section efficace de diffusion quintuplement différentielle (3-1):

$$\frac{d^5\sigma}{d\Omega_1 \mathrm{d}\Omega_2 \mathrm{d}\Omega_d dE_1 dE_2} = \frac{1}{(2\pi)^4}\frac{k_1 k_2 k_d}{k_0}\left|T_{fi}(\alpha,\beta,\gamma)\right|^2 \quad (3\text{-}38)$$

avec

$$T_{fi}(\alpha,\beta,\gamma) = \frac{1}{2\pi}\left\langle \psi_f\left(\vec{k}_d,\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_0,\vec{r}_1,\vec{r}_2\right)\middle|V\middle|\psi_i\left(\vec{k}_i;\vec{r}_0,\vec{r}_1,\vec{r}_2\right)\right\rangle \quad (3\text{-}39)$$

est l'élément de matrice de diffusion écrit dans la première approximation de Born, et :

$$V = \frac{8}{r_0} + \frac{1}{|\vec{r}_0-\vec{R}_1|} + \frac{1}{|\vec{r}_0-\vec{R}_2|} - \sum_{i=1}^{10}\frac{1}{|\vec{r}_0-\vec{r}_i|} \quad (3\text{-}40)$$

où $R_1 et R_2$ représentent les longueurs des liaisons O-H ($R_1 = R_2 = 1.1814\ (ua)$) $\vec{r}_i$ le vecteur position du i[ème] électron, et $\vec{r}_0$ le vecteur position de l'électron projectile. $\psi_i\left(\vec{k}_i;\vec{r}_0,\vec{r}_1,\vec{r}_2\right)$ et $\psi_f\left(\vec{k}_d,\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_0,\vec{r}_1,\vec{r}_2\right)$ sont les fonctions des états initial du système projectile-cible et final constitué de l'électron diffusé et des deux éjectés. Nous appliquons l'approximation du cœur gelé afin de simplifier le problème de dix corps à un problème à deux corps. Dans cette approximation seuls les deux électrons qui seront éjectés sont considérés par l'interaction, les autres rassemblés dans le cœur ne sont pas concernés [Coop00], [Hda94]. Le potentiel d'interaction s'écrit donc comme étant :

$$V = \frac{2}{r_0} - \sum_{i=1}^{2}\frac{1}{|\vec{r}_0-\vec{r}_i|} \quad (3\text{-}41)$$

l'élément de matrice de diffusion devient :

$$T_{fi}(\alpha,\beta,\gamma) = \frac{1}{2\pi}\left\langle \psi_f\left(\vec{k}_d,\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_0,\vec{r}_1,\vec{r}_2\right)\middle|\frac{2}{r_0} - \frac{1}{|\vec{r}_0-\vec{r}_1|} - \frac{1}{|\vec{r}_0-\vec{r}_2|}\middle|\psi_i\left(\vec{k}_i;\vec{r}_0,\vec{r}_1,\vec{r}_2\right)\right\rangle \quad (3\text{-}42)$$

### 3.6.1. Etat initial

L'état initial étant composé de l'électron incident et de la molécule $H_2O$, il est représenté par la fonction d'état produit de l'onde plane décrivant le projectile et la fonction mono-centrique de Moccia de la molécule d'eau définie précédemment.

### 3.6.2. Etat final

La fonction d'état du système après collision est le produit de la fonction d'onde plane de l'électron diffusé et la fonction décrivant les deux électrons éjectés dans le continuum de l'ion résiduel.

$$\left|\psi_{f}\left(\vec{k}_{d},\vec{k}_{1},\vec{k}_{2};\vec{r}_{0},\vec{r}_{1},\vec{r}_{2}\right)\right\rangle = \left|\Phi_{f}\left(\vec{k}_{1},\vec{k}_{2};\vec{r}_{1},\vec{r}_{2}\right)\varphi\left(\vec{k}_{d},\vec{r}_{0}\right)\right\rangle \quad (3\text{-}43)$$

$$\varphi\left(\vec{k}_{d},\vec{r}_{0}\right) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} e^{i\vec{k}_{d}.\vec{r}_{0}} \quad (3\text{-}44)$$

L'état des deux électrons éjectés émergeant dans le champ de l'ion est décrit par le modèle 2CWG sous la forme d'un produit symétrisé de deux fonctions coulombiennes, décrivant l'interaction de ces électrons lents avec l'ion résiduel, et un facteur de Gamow traduisant leur répulsion coulombienne tout en s'éloignant de la zone d'interaction :

$$\begin{aligned}\Phi_{f}\left(\vec{k}_{1},\vec{k}_{2};\vec{r}_{1},\vec{r}_{2}\right) &= \Psi_{2\mathrm{CWG}}\left(\vec{k}_{1},\vec{k}_{2};\vec{r}_{1},\vec{r}_{2}\right) \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}}\left(\Phi_{2\mathrm{C}}^{-}\left(\vec{k}_{1},\vec{k}_{2};\vec{r}_{1},\vec{r}_{2}\right) + \Phi_{2\mathrm{C}}^{-}\left(\vec{k}_{1},\vec{k}_{2};\vec{r}_{2},\vec{r}_{1}\right)\right)\varphi_{G}(\alpha_{12})\end{aligned} \quad (3\text{-}45)$$

$\Phi_{2\mathrm{C}}^{-}\left(\vec{k}_{1},\vec{k}_{2};\vec{r}_{1},\vec{r}_{2}\right)$ est le produit de deux fonctions coulombiennes et $\varphi_{G}(\alpha_{12})$ le facteur de Gamow, déjà définis dans le premier paragraphe (3-8, 10, 12).

Les effets d'échanges entre l'électron incident et les électrons actifs de la cible ainsi que ceux entre l'électron diffusé et les deux électrons éjectés dans la voie de sortie sont complètement ignorés du fait que nous avons considéré que les électrons incident et diffusé sont très rapides par rapport aux électrons éjectés.

Nous admettons aussi que la réaction (e,3e) est dissociative et que les électrons éjectés sont soumis à une charge globale de deux (+2).

En utilisant la transformation de Bethe:

$$\int \frac{e^{i\vec{k}.\vec{r}}}{|\vec{r}-\vec{r}_{i}|} d\vec{r} = \frac{4\pi}{k^{2}} e^{i\vec{k}.\vec{r}_{i}}$$

dans l'expression de l'élément de matrice de diffusion :

$$\begin{aligned}&T_{fi}(\alpha,\beta,\gamma) \\ &= \frac{1}{(2\pi)^{4}}\left\langle \Phi_{f}\left(\vec{k}_{1},\vec{k}_{2};\vec{r}_{1},\vec{r}_{2}\right)e^{i\vec{k}_{d}.\vec{r}_{0}}\left|\frac{2}{r_{0}} - \frac{1}{|\vec{r}_{0}-\vec{r}_{1}|} - \frac{1}{|\vec{r}_{0}-\vec{r}_{2}|}\right|e^{i\vec{k}_{i}.\vec{r}_{0}}\Phi_{i}(\vec{r}_{1},\vec{r}_{2})\right\rangle\end{aligned} \quad (3\text{-}46)$$

on obtient :

$$T_{fi}(\alpha,\beta,\gamma) = \frac{2\sqrt{2}}{(2\pi)^{3}\mathrm{K}^{2}}\left\langle \Phi_{2\mathrm{C}}^{-}\left(\vec{k}_{1},\vec{k}_{2};\vec{r}_{1},\vec{r}_{2}\right)\left|2 - e^{i\vec{K}.\vec{r}_{1}} - e^{i\vec{K}.\vec{r}_{2}}\right|\Phi_{i}(\vec{r}_{1},\vec{r}_{2})\right\rangle \varphi_{G}(\alpha_{12}) \quad (3\text{-}47)$$

$$T_{fi}(\alpha,\beta,\gamma) = T_{e_{1}} + T_{e_{2}} + T_{N} \quad (3\text{-}48)$$

Avec :

$$T_{e_1} = \frac{2\sqrt{2}}{(2\pi)^3 K^2}\left\langle \Phi_{2C}^{-}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2)\middle| e^{i\vec{K}.\vec{r}_1}\middle|\Phi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle \quad (3\text{-}49)$$

$$T_{e_2} = \frac{2\sqrt{2}}{(2\pi)^3 K^2}\left\langle \Phi_{2C}^{-}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2)\middle| e^{i\vec{K}.\vec{r}_2}\middle|\Phi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle \quad (3\text{-}50)$$

$$T_N = -\frac{4\sqrt{2}}{(2\pi)^3 K^2}\left\langle \Phi_{2C}^{-}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2)\middle|\Phi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle \quad (3\text{-}51)$$

La détermination de ces termes nécessite le calcul d'intégrales de type :

$$I = \left\langle \phi_c(\vec{k};\vec{r})\middle| e^{i\vec{K}.\vec{r}}\middle| R^{\xi_i}_{\mathrm{n}_i\mathrm{l}_i}(r) S_{\mathrm{l}_i\mathrm{m}_i}(\vec{r})\right\rangle \quad (3\text{-}52)$$

explicitement développées dans l'annexe B.

Les résultats des calculs obtenus dans le cadre du modèle 2CWG sont représentés dans le chapitre résultats et discussions. Ces résultats concernent la double ionisation de chacune des cinq couches de la molécule d'eau, ainsi que la double ionisation mixte provenant de deux couches différentes. L'étude a été effectuée pour une énergie incidente de 1keV dans une géométrie coplanaire. Les énergies des électrons éjectés ainsi que la direction de détection de l'électron diffusé, ont été choisies de façon que l'amplitude de diffusion obtenue soit importante et permette de réaliser l'expérience (e,3e). Ces choix sont en accord avec les données apportées par d'autres études théoriques [Joul93] et expérimentales [Lahm02], [Schr98] pour la double ionisation d'autres cibles.

### 3.7. Etude de la double ionisation de $H_2O$ par le modèle BBK

Nous étudions la réaction (e,3e) de la molécule d'eau présentée dans le paragraphe précédent.

$$e + H_2O \rightarrow 3e + H_2O^{++}$$

Cette réaction est considérée comme une pure transition électronique, puisqu'on peut appliquer la relation de fermeture sur tous les états vibrationnels et rotationnels de l'ion résiduel [Weck00].

Dans la première approximation de Born (PBA) la section efficace de diffusion 6DCS est, pour une direction moléculaire donnée, définie par les angles d'Euler $(\alpha,\beta,\gamma)$ selon l'expression (3-32) :

$$\sigma^6 = \frac{d^6\sigma}{d\Omega_{Euler} d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2 d\mathrm{E}_1 d\mathrm{E}_2} = \frac{k_1 k_2 k_d}{k_i}\left|T_{fi}(\alpha,\beta,\gamma)\right|^2 \quad (3\text{-}53)$$

où $d\Omega_{Euler}$ est l'angle solide d'Euler donné par $d\Omega_{Euler} = \sin\beta\, d\beta d\alpha d\gamma$ ; $d\Omega_d$, $d\Omega_1$ et $d\Omega_2$ sont les éléments d'angles solides des électrons diffusé et les deux éjectés(1,2) respectivement ; et $d\mathrm{E}_1$ et $d\mathrm{E}_2$ représentent les intervalles d'énergies de ces deux derniers. $\vec{k}_i, \vec{k}_d, \vec{k}_1 et\ \vec{k}_2$ sont les vecteurs impulsion de l'électron incident, diffusé, éjecté 1 et éjecté 2 respectivement. Dans les réactions (e, 3e) la conservation de l'énergie impose :

$$\frac{k_i^2}{2} = \frac{k_d^2}{2} + \frac{k_1^2}{2} + \frac{k_2^2}{2} + I^{2+} \quad (3\text{-}54)$$

où $I^{2+}$représente l'énergie nécessaire pour éjecter deux électrons de la molécule d'eau.

L'élément de matrice de diffusion s'écrit comme :

$$T_{fi}(\alpha,\beta,\gamma) = \frac{1}{2\pi}\langle\psi_f|V|\psi_i\rangle \quad (3\text{-}55)$$

$V$ représente l'interaction entre l'électron incident et la cible définie par l'expression (3-41) du paragraphe précédent. L'élément $T_{fi}$s'écrit donc sous la forme:

$$T_{fi}(\alpha,\beta,\gamma) = \frac{1}{2\pi}\left\langle\psi_f\left|\frac{8}{r_0} + \frac{1}{|\vec{r}_0-\vec{R}_1|} + \frac{1}{|\vec{r}_0-\vec{R}_2|} - \sum_{i=1}^{10}\frac{1}{|\vec{r}_0-\vec{r}_i|}\right|\psi_i\right\rangle \quad (3\text{-}56)$$

En appliquant l'approximation du cœur gelé, on obtient :

$$T_{fi}(\alpha,\beta,\gamma) = \frac{1}{2\pi}\left\langle\psi_f\left|\frac{2}{r_0} - \frac{1}{|\vec{r}_0-\vec{r}_1|} - \frac{1}{|\vec{r}_0-\vec{r}_2|}\right|\psi_i\right\rangle \quad (3\text{-}57)$$

où $\psi_i$ est l'état initial composé de l'électron incident et des deux électrons actifs de la cible, et représenté par le produit de la fonction d'onde plane du projectile rapide par la fonction de la cible dans son état fondamental. $\psi_f$ est l'état final après collision constitué de l'électron diffusé, des deux électrons éjectés et l'ion doublement chargé. Cet état final est décrit par le modèle BBK.

### 3.7.1. Etat initial

L'étude du processus (e,3e) sur la molécule d'eau par le modèle BBK est très couteuse du point de vue temps de calcul.

Nous réservons cette partie à l'étude de la double ionisation de la couche extérieure $1b_1$ de la configuration électronique de l'état fondamental de la molécule d'eau. Le choix de la couche $1b_1$ est dû à sa structure simple et primaire (composée des états p) parmi toutes les autres. La double ionisation de la molécule d'eau à partir de l'état $1b_1$ peut être réalisée par un projectile d'énergie 41.3eV.

L'état initial avant collision s'écrit sous la forme :

$$|\psi_i\rangle = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}}\left|\Phi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)e^{i\vec{k}_i.\vec{r}_0}\right\rangle \quad (3\text{-}58)$$

La fonction de Moccia représentant les deux électrons actifs liés à l'orbitale $1b_1$ est donnée par:

$$\Phi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2) = \sum_{i=1}^{3}\sum_{j=1}^{3} a_i\, a_j R_{2,1}^{\xi_i}(r_1) R_{2,1}^{\xi_j}(r_2) \times \frac{1}{2}\left(y_1^{-1}(\hat{r}_1) - y_1^{1}(\hat{r}_1)\right)\left(y_1^{-1}(\hat{r}_2) - y_1^{1}(\hat{r}_2)\right) \quad (3\text{-}59)$$

Les coefficients $a_i$ et $\xi_i$ correspondants sont donnés par le tableau 2. Nous avons négligé les parties radiales $R_{3,1}(r)$ et $R_{4,1}(r)$ car les coefficients $a_i$ associés sont de

valeurs très petites, et donc ces termes ne jouent aucun rôle ici. Ceci n'est pas le cas pour les autres couches telles que $1b_2$ et $3a_1$ où la contribution du terme $R_{3,1}(r)$ devient importante. On note que la fonction décrivant l'orbitale $1b_1$ est symétrique, (la fonction du spin est antisymétrique) et donc on doit symétriser la fonction de l'état final dans le modèle BBK.

### 3.7.2.L'état final

D'après le modèle BBK utilisé dans cette section, les deux électrons éjectés sont décrits chacun par une onde coulombienne représentant son interaction avec l'ion résiduel. La répulsion entre ces électrons est aussi décrite par une onde coulombienne. La fonction BBK utilisée a été définie précédemment et est donnée par la forme (3-7)

$$\Psi_{3C}^{-}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2) = \frac{1}{(2\pi)^3} e^{i\vec{k}_1.\vec{r}_1} e^{i\vec{k}_2.\vec{r}_2} \varphi_c(\alpha_1,\vec{k}_1,\vec{r}_1)\varphi_c(\alpha_2,\vec{k}_2,\vec{r}_2)\varphi_c(\alpha_{12},\vec{k}_{12},\vec{r}_{12}) \tag{3-60}$$

$\varphi_c(\alpha,\vec{k},\vec{r})$ est la fonction d'onde coulombienne, ($\alpha_1,\alpha_2,\alpha_{12}$) sont les paramètres de Sommerfeld déjà définis dans le premier paragraphe et $\vec{k}_{12} = \frac{1}{2}(\vec{k}_1 - \vec{k}_2)$

La fonction BBK est symétrisée selon l'expression (3-9):

$$\Psi_{3C} = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(\Psi_{3C}^{-}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2) + \Psi_{3C}^{-}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_2,\vec{r}_1)\right) \tag{3-61}$$

L'état final composé de l'électron diffusé décrit par une onde plane, et des deux éjectés s'exprime par la fonction d'état :

$$\langle\psi_f| = \langle\Psi_{3C}^{-}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2)\varphi(\vec{k}_d,\vec{r}_0)| \tag{3-62}$$

Après l'intégration analytique sur les coordonnées du projectile (au moyen de la relation de Bethe), l'élément de matrice de transition s'écrit dans ce cas comme :

$$T_{fi}(\alpha,\beta,\gamma) = \frac{2\sqrt{2}}{(2\pi)^3 K^2}\left\langle\Psi_{3C}^{-}(\vec{k}_1,\vec{k}_2;\vec{r}_1,\vec{r}_2)\middle|2 - e^{i\vec{K}.\vec{r}_1} - e^{i\vec{K}.\vec{r}_2}\middle|\Phi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle \tag{3-63}$$

$\vec{K} = \vec{k}_i - \vec{k}_d$ est le moment de transfert.

Les effets d'échanges entre l'électron projectile (le diffusé) et les électrons éjectés sont négligeables puisqu'on considère que l'électron incident (le diffusé) est plus rapide que les deux éjectés lents.

Le terme du noyau dans l'équation (3-63) devient nul quand on utilise des fonctions orthogonales pour décrire l'état initial et l'état final. Plusieurs auteurs ont remarqué que la section efficace différentielle peut être légèrement affectée dans ce cas (voir par exemple [Jone03]$_2$).

Généralement, l'élément de matrice (3-63) peut être représenté en fonction des trois termes suivants :

$$T_{K,1}^{l_j,l_k,m_j,m_k} = \left\langle \Psi_{3C}^{-} \middle| e^{i\vec{K}.\vec{r}_1} \middle| R_{n_j,l_j}(r_1) R_{n_k,l_k}(r_2) y_{l_j}^{m_j}(\hat{r}_1) y_{l_k}^{m_k}(\hat{r}_2) \right\rangle \quad (3\text{-}64)$$

$$T_{K,2}^{l_j,l_k,m_j,m_k} = \left\langle \Psi_{3C}^{-} \middle| e^{i\vec{K}.\vec{r}_2} \middle| R_{n_j,l_j}(r_1) R_{n_k,l_k}(r_2) y_{l_j}^{m_j}(\hat{r}_1) y_{l_k}^{m_k}(\hat{r}_2) \right\rangle \quad (3\text{-}65)$$

$$T_{0}^{l_j,l_k,m_j,m_k} = \left\langle \Psi_{3C}^{-} \middle| R_{n_j,l_j}(r_1) R_{n_k,l_k}(r_2) y_{l_j}^{m_j}(\hat{r}_1) y_{l_k}^{m_k}(\hat{r}_2) \right\rangle \quad (3\text{-}66)$$

Dans ce cas on a : $n_j = n_k = 2$ et $l_j = l_k = 1$. L'évaluation explicite d'un exemple de ces termes est donnée dans l'annexe C.

La dépendance angulaire de la 6DCS est incluse dans les fonctions harmoniques sphériques $y_l^m(\hat{r})$

$$y_l^m = \sum_{\tilde{m}=-1}^{\tilde{m}=+1} D_{\tilde{m},m}^{(l)}(\alpha;\beta;\gamma)\, y_l^{\tilde{m}} \quad (3\text{-}67)$$

à travers les matrices de rotations :

$$D_{\tilde{m},m}^{(l_j)}(\alpha;\beta;\gamma) = e^{-i\alpha m_i} d_{m_i,m_j}^{(l_j)}(\beta) e^{-i\gamma m_j} \quad (3\text{-}68)$$

où les fonctions $d_{m_i,m_j}^{(l_j)}(\beta)$ sont déterminées par le triplet $(m_i, m_j, l_j)$ à travers les polynômes de Jacobi [Land75, Mess61]
Les termes (3-70, 71,72) s'écrivent maintenant :

$$T_{K,1}^{l_j,l_k,m_j,m_k}(\alpha;\beta;\gamma) = T_1 =$$
$$\left\langle \Psi_{3C}^{-} \middle| e^{i\vec{K}.\vec{r}_1} \middle| R_{n_j,l_j}(r_1) R_{n_k,l_k}(r_2) \times \sum_{\tilde{m}_j} \sum_{\tilde{m}_k} D_{\tilde{m}_j,m_j}^{(l_j)} D_{\tilde{m}_k,m_k}^{(l_k)} y_{l_j}^{\tilde{m}_j}(\hat{r}_1) y_{l_k}^{\tilde{m}_k}(\hat{r}_2) \right\rangle \quad (3\text{-}69)$$

$$T_{K,2}^{l_j,l_k,m_j,m_k}(\alpha;\beta;\gamma) = T_2 =$$
$$\left\langle \Psi_{3C}^{-} \middle| e^{i\vec{K}.\vec{r}_2} \middle| R_{n_j,l_j}(r_1) R_{n_k,l_k}(r_2) \times \sum_{\tilde{m}_j} \sum_{\tilde{m}_k} D_{\tilde{m}_j,m_j}^{(l_j)} D_{\tilde{m}_k,m_k}^{(l_k)} y_{l_j}^{\tilde{m}_j}(\hat{r}_1) y_{l_k}^{\tilde{m}_k}(\hat{r}_2) \right\rangle \quad (3\text{-}70)$$

$$T_{0}^{l_j,l_k,m_j,m_k}(\alpha;\beta;\gamma) = T_0$$
$$= \left\langle \Psi_{3C}^{-} \middle| R_{n_j,l_j}(r_1) R_{n_k,l_k}(r_2) \times \sum_{\tilde{m}_j} \sum_{\tilde{m}_k} D_{\tilde{m}_j,m_j}^{(l_j)} D_{\tilde{m}_k,m_k}^{(l_k)} y_{l_j}^{\tilde{m}_j}(\hat{r}_1) y_{l_k}^{\tilde{m}_k}(\hat{r}_2) \right\rangle \quad (3\text{-}71)$$

L'expression complète de la section efficace différentielle s'écrit donc :

$$(\sigma)^6 = \frac{4k_1k_2k_d}{K^4k_i} \begin{pmatrix} 4T_0T_0^* + T_1T_1^* + T_2T_2^* - 2T_0T_1^* - 2T_0T_2^* \\ -2T_0^*T_1 - 2T_0^*T_2 + T_1^*T_2 + T_2^*T_1 \end{pmatrix} \quad (3\text{-}72)$$

La SEQD présentée dans ce travail est obtenue par intégration numérique de la section efficace différentielle 6DCS correspondant à la section efficace de double ionisation de la molécule d'eau pour une orientation bien définie au moyen des angles d'Euler $(\alpha;\beta;\gamma)$, tandis que la description proposée par Moccia [Mocc64]

correspond à une orientation moléculaire dans l'espace donné. Pour cette raison nous avons moyenné la section différentielle 6DCS sur l'angle solide d'Euler afin de pouvoir comparer avec la section expérimentale SEQD.

$$\sigma^5 = \frac{d^5\sigma}{d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2 d\mathrm{E}_1 d\mathrm{E}_2} = \frac{1}{8\pi^2}\iiint \sin\beta \, d\beta d\alpha d\gamma \frac{d^6\sigma}{d\Omega_{Euler} d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2 d\mathrm{E}_1 d\mathrm{E}_2} \tag{3-73}$$

L'intégrale numérique triple sur les angles d'Euler exige un temps très long à cause de la présence de la fonction d'onde 3C dans l'intégrant, elle est ici calculée analytiquement en faisant appel aux propriétés des matrices de rotations.

$$\begin{aligned}&\frac{1}{8\pi^2}\iint T_1 T_2^* \mathrm{d}\Omega_{\mathrm{Euler}} \\ &= \sum_{\widetilde{m}_j,\widetilde{m}_k} \sum_{\widetilde{m'}_j,\widetilde{m'}_k} \sum_{L=|l_j-l_k|}^{L=l_j+l_k} \frac{1}{2L+1} C^{L,\widetilde{m}_j+\widetilde{m}_k}_{l_j,\widetilde{m}_j,l_k,\widetilde{m}_k} C^{L,\widetilde{m}_j+\widetilde{m}_k}_{l'_j,\widetilde{m'}_j,l'_k,\widetilde{m'}_k} C^{L,m_j+m_k}_{l_j,m_j,l_k,m_k} C^{L,m'_j+m'_k}_{l'_j,m'_j,l'_k,m'_k} \\ &\qquad \times T^{l_j,l_k,\widetilde{m}_j,\widetilde{m}_k}_{K,1} \left(T^{l'_j,l'_k,\widetilde{m'}_j,\widetilde{m'}_k}_{K,2}\right)^*\end{aligned} \tag{3-74}$$

avec

$$T^{l_j,l_k,\widetilde{m}_j,\widetilde{m}_k}_{K,1} = \left\langle \Psi^-_{3\mathrm{C}} \middle| e^{i\vec{K}.\vec{r}_1} \middle| R_{n_j,l_j}(r_1) R_{n_k,l_k}(r_2) y^{\widetilde{m}_j}_{l_j}(\hat{r}_1) y^{\widetilde{m}_k}_{l_k}(\hat{r}_2) \right\rangle \tag{3-75}$$

où $-l_j \le \widetilde{m}_j \le l_j$ ; $-l_k \le \widetilde{m}_k \le l_k$ ; $-l'_j \le \widetilde{m}'_j \le l'_j$ ; $-l'_k \le \widetilde{m}'_k \le l'_k$
et $\widetilde{m}'_j + \widetilde{m}'_k = \widetilde{m}_j + \widetilde{m}_k$ .

Le terme $C^{j_3,m_3}_{j_1,m_1,j_2,m_2}$ est le coefficient de Clebsch-Gordon usuel

$$C^{j_3,m_3}_{j_1,m_1,j_2,m_2} = (-1)^{j_1-j_2+m_3}\sqrt{2j_3+1}\begin{pmatrix} j_1 j_2 j_3 \\ m_1 m_2 m'_3 \end{pmatrix} \tag{3-76}$$

tel que $m'_3 = -m_3$

**Conclusion**

Nous avons présenté explicitement les deux modèles théoriques utilisés dans ce travail. Nous commençons tout d'abord par tester le modèle 2CWG dans le cas de la double ionisation de l'hélium, afin de confirmer sa validité et donc de l'appliquer au cas de la double ionisation de l'eau. Pour ce dernier cas l'étude comporte deux parties, dont la première est réservée à l'application du modèle 2CWG à chaque processus (e,3e) provenant d'une couche unique ou bien de deux couches différentes de la molécule d'eau. La deuxième partie, et à cause de la complexité de la configuration électronique des couches profondes de l'état fondamental de la molécule d'eau, ainsi que du temps long nécessaire pour le calcul de la SEQD par BBK, est consacrée à l'étude de la réaction (e,3e)de la couche $1b_1$. Une méthode

analytique permettant de réduire le temps de calcul de l'intégrale sur l'angle solide d'Euler par BBK est utilisée ici.

# Chapitre IV

# Résultats et interprétations

## 4.1. Double ionisation de l'hélium à basse énergie

Comme nous l'avons exposé au paragraphe précédent, notre étude de la double ionisation de l'atome d'hélium repose sur la première approximation de Born et en utilisant le modèle 2CWG. Les électrons incidents ont une énergie de 601 eV, alors que les électrons éjectés ont une énergie bien plus faible de 11eV. Nous comparons nos résultats avec l'expérience réalisée par le groupe d'Orsay [Lahm03] dans les mêmes conditions en géométrie coplanaire et pour un angle de diffusion de 1.5°. La distribution angulaire expérimentale présente la même structure que celle obtenue par les différents modèles théoriques. La variation de la SEQD en fonction de l'angle d'éjection du deuxième électron obtenue pour des valeurs fixes de celui du premier électron, indique deux crêtes, dont la première est localisée autour des petites valeurs de $\theta_2$(50°-70°) alors que la deuxième est observée pour les grandes valeurs de $\theta_2$(110°-170°). Le fait expérimental important ici est la présence d'un fort déplacement du pic binaire qui ne peut s'expliquer que par un modèle utilisant la deuxième approximation de Born.

### 4.1.1. Comparaison avec les résultats des modèles GA, B1 et B2 [Dey06]

Dans son étude de la DI de l'hélium par impact d'électrons et de positrons, R. Dey et Col. [Dey 06] a utilisé le modèle 2CWG dans le cadre de l'approximation de Glauber, de Born 1 et de Born 2. Les auteurs ont utilisé une fonction de Silvermann et Col. [Silv60] SPM1 à couches ouvertes (OSWF) n'incluant que la corrélation radiale de l'état initial. L'étude comparative se termine par la conclusion que la SEQD n'est pas trop affectée par le choix de la fonction décrivant l'état initial ni par la charge du projectile.

En partant de cette conclusion, nous étudions le même processus en utilisant une fonction d'ondes de Silvermann et Col. à couches fermées SPM2 [Silv60] décrivant l'état initial de l'atome d'hélium. Cette fonction tient compte des corrélations radiales et angulaires et donne 80% de l'énergie de corrélation. Nous présentons une analyse comparative de nos résultats avec ceux de R. Dey et Col. [Dey06] sur la figure 4-1. Les différentes courbes montrent la variation de la SEQD en fonction de $\theta_2$ pour des valeurs fixes de $\theta_1$ (215°, 270°, 285°, 295°, 325°) utilisées par R. Dey et Col. Les données expérimentales sont relatives, donc les résultats théoriques sont multipliés par des facteurs de normalisation dépendant du maximum expérimental pour chaque situation. L'utilisation du facteur de Gamow dans ces études théoriques conduit généralement à sous-estimer l'amplitude de la SEQD théorique par rapport aux données expérimentales.

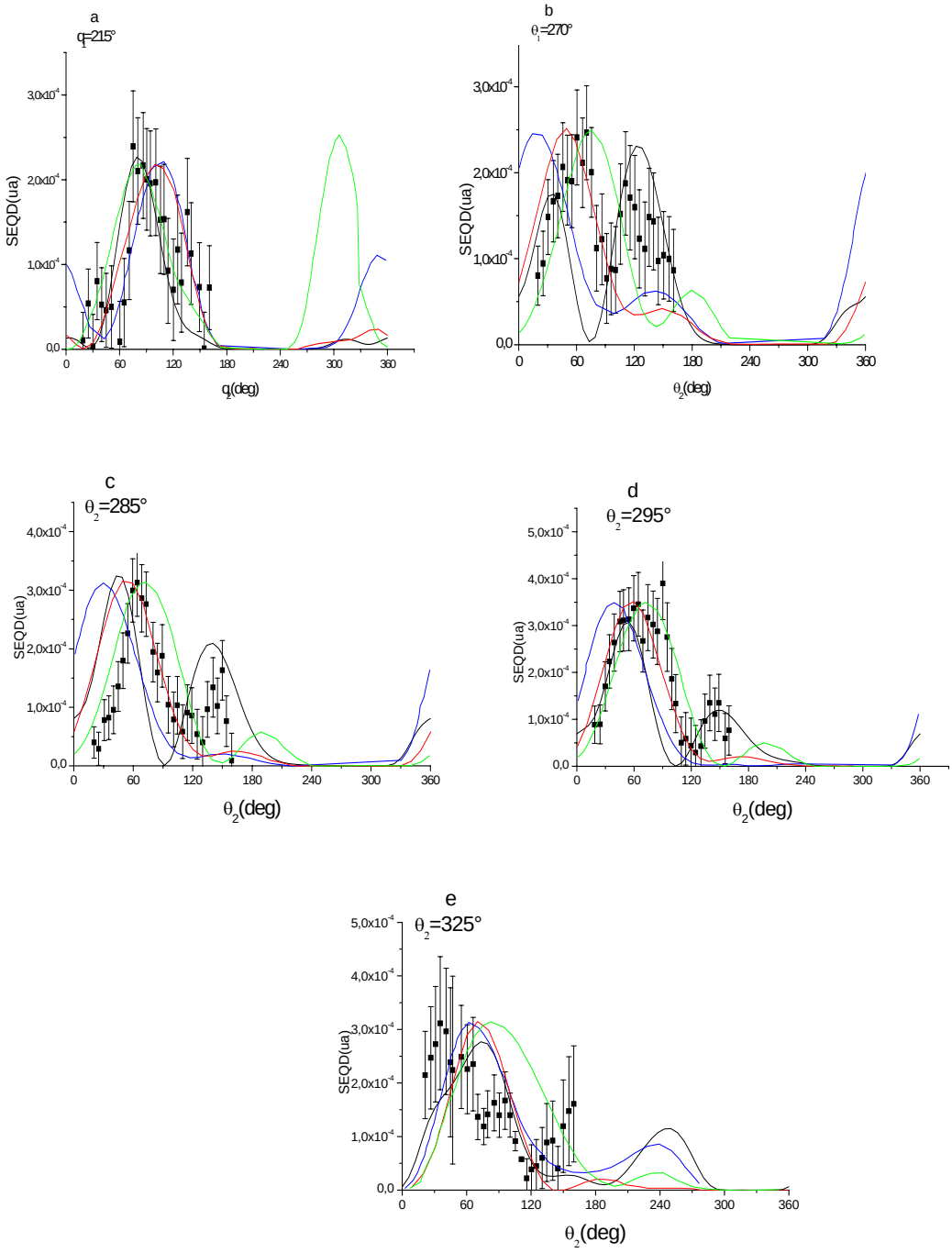



**Figure 4.1 :** *SEQD pour la double ionisation de l'hélium par impact d'électrons en géométrie coplanaire. $E_i$= 601eV, $E_1$ =$E_2$= 11eV, $\theta_d$ =1.5°. Les données expérimentales [Lahm03] sont représentées par des cercles pleins avec des barres d'erreurs. La courbe noire représente les résultats de notre modèle, alors que les résultats de [Dey06] sont représentés par les courbes: bleue ceux de B1, rouge ceux de B2, et la verte ceux de GA. (a) $\theta_1$ =215°; (b) $\theta_1$ =270°; (c) $\theta_1$ =285°; (d) $\theta_1$ =295°;(e) $\theta_1$ =325°.*

- **La figure 4.1(a)** correspond à la distribution angulaire pour $\theta_1$ =215°. On observe que le premier pic décrit par notre modèle se confond avec celui du modèle utilisant l'approximation de Glauber « GA », et que ces deux résultats sont en bon accord avec l'expérience. On note aussi que nos résultats corrigent les résultats de B1 et B2 obtenus par R. Dey. Donc l'effet des corrélations dans l'état initial apparaît clairement dans la présente situation.
- **La figure 4.1(b)** montre la variation de la SEQD pour $\theta_1$ =270°. Dans ce cas le premier pic expérimental est mieux reproduit par GA et B2. Notre modèle améliore la position du pic trouvé par B1 avec SPM1 de R. Dey et Col. Le second pic expérimental localisé à $\theta_2 \approx 100°$ est reproduit seulement par notre modèle, néanmoins la crête obtenue dans l'expérience est moins large que celle obtenue dans nos calculs (110°-150°).
- **La figure 4.1(c)** représente la SEQD pour $\theta_1$ =285°. On observe un décalage négatif du premier pic obtenu par B2 par rapport à celui de GA décalé ici vers l'avant. Ce pic est aussi décrit par nos résultats quoiqu'il soit décalé négativement par rapport à celui de B2, de GA et de l'expérience mais en améliorant la position de celui de B1 de façon qualitative. Pour le second pic, notre modèle est le seul qui le reproduise malgré une amplitude surestimée.
- **La figure 4.1(d)** correspond à la SEQD pour $\theta_1$ =295°. On remarque que le premier pic expérimental est mieux décrit par la méthode B2 ainsi que par notre modèle où il est plus ou moins décalé mais en corrigeant celui de B1 avec SPM1 et celui de GA. Dans cette situation le deuxième pic est obtenu par tous les modèles, quoique l'accord entre nos résultats et l'expérience soit meilleur.
- **La figure 4.1(e)** montre un large désaccord entre la distribution angulaire expérimentale et celles obtenues par les différentes théories pour l'angle d'éjection $\theta_1$ =325°. Un décalage positif du premier pic est noté par les résultats théoriques de B2, B1 (avec SPM1) et de notre modèle, alors que la méthode GA donne un décalage négatif de ce pic. Le second lobe est reproduit par tous les modèles employés ici mais pour les grandes valeurs de $\theta_2$.

On note que le second pic expérimental est reproduit par d'autres modèles théoriques tels que le modèle A6C utilisé par El Azzouzi et Col. [El Azz05] qui sera discuté dans le paragraphe suivant.

### 4.1.2. Comparaison avec les résultats des modèles A6C, B1 et B2 [El Az05]

Le travail présenté par El Azzouzi et Col. [El Azz05] pour la DI de l'hélium à basse énergie (601eV) concerne les applications du modèle A6C (trois fonctions coulombiennes avec des facteurs de Gamow) utilisant des charges effectives fixes (CEF) ou variables (CEV). L'état initial était représenté par la fonction fortement corrélée d'Hylleraas. L'étude a englobé plusieurs situations et a exposé le comportement de la SEQD en fonction de $\theta_2$ pour des valeurs fixes de $\theta_1$ balayant la gamme (200°-340°). L'analyse fondée sur les règles de sélections définies par

Berakdar [Bera03], a conclu que le modèle utilisé est capable de reproduire une partie significative des données expérimentales mais des désaccords substantiels demeurent en particulier pour le décalage du premier pic.

A partir des règles de sélections [Bera03] on remarque l'apparition de certains minimums de la distribution angulaire SEQD, qui correspondent aux cas suivants :

**(a)** $\vec{k}_1 = -\vec{k}_2$ , $[k_1 cos\theta_1 = -k_2 cos\theta_2]$. Ce minimum est lié à la parité de la fonction d'onde des électrons éjectés.

**(b)** $\vec{k}_1.\vec{K} = 0$ et $\vec{k}_2.\vec{K} = 0$,$\left(k_i cos\theta_1 - k_d\vec{k}_d.\vec{k}_1 = 0 \text{ et } k_i cos\theta_2 - k_d\vec{k}_d.\vec{k}_2 = 0\right)$. Ce minimum indique un zéro dans la distribution angulaire des électrons éjectés quand leurs énergies sont très importantes. Dans notre cas ce minimum est confondu avec (a) puisque $\vec{k}_1 = \vec{k}_2$ est physiquement impossible.

**(c)** $\vec{k}_1 = \vec{k}_2$ , $[k_1 cos\theta_1 = k_2 cos\theta_2]$. Ce minimum est dû à la répulsion électronique.

**(d)** $\left(\vec{k}_1 + \vec{k}_2\right).\vec{K} = 0$, $\left[k_1\left(k_i cos\theta_1 - k_d\vec{k}_d.\vec{k}_1\right) = -k_2\left(k_i cos\theta_2 - k_d\vec{k}_d.\vec{k}_2\right)\right]$. Ce minimum est le résultat de la transition optique interdite en double photo-ionisation.

Pour comparaison nous représentons sur la figure (4-2) les distributions angulaires obtenues par notre modèle 2CWG, par le modèle A6C avec charges effectives (CEF, CEV) obtenues par El Azzouzi et Col, ainsi que celles de B2 et de l'expérience obtenues par A. Lahmam-Bennani [Lahm03]. Nous choisissons ainsi quelques situations qui illustrent l'importance de la fonction d'onde initiale.

En premier lieu, nous notons que la structure des distributions angulaires obtenues par les différents modèles est la même. Les positions des différents minimums cités ci-dessus sont indiquées par les flèches a, b, c, d. Ces minimums apparaissent presque sur toutes les courbes théoriques ainsi que dans les données expérimentales.

- **La figure 4-2 (1)** représente les distributions angulaires en fonction de $\theta_2$ pour le premier groupe des valeurs de $\theta_1$ (230°, 245°, 250°). Un large désaccord est observé entre les données expérimentales et les différentes modèles théoriques. Nous notons que le premier pic situé à $\theta_2 \approx 50°$ n'est pas décrit par les théories utilisées ici ; aussi bien que le minimum marqué à $\theta_2 \approx 110°$ dans les données expérimentales. D'autre part on peut voir que nos résultats sont très proches de ceux obtenus par A6C (CEF, CEV), et représentent des structures semblables dans cette gamme angulaire.

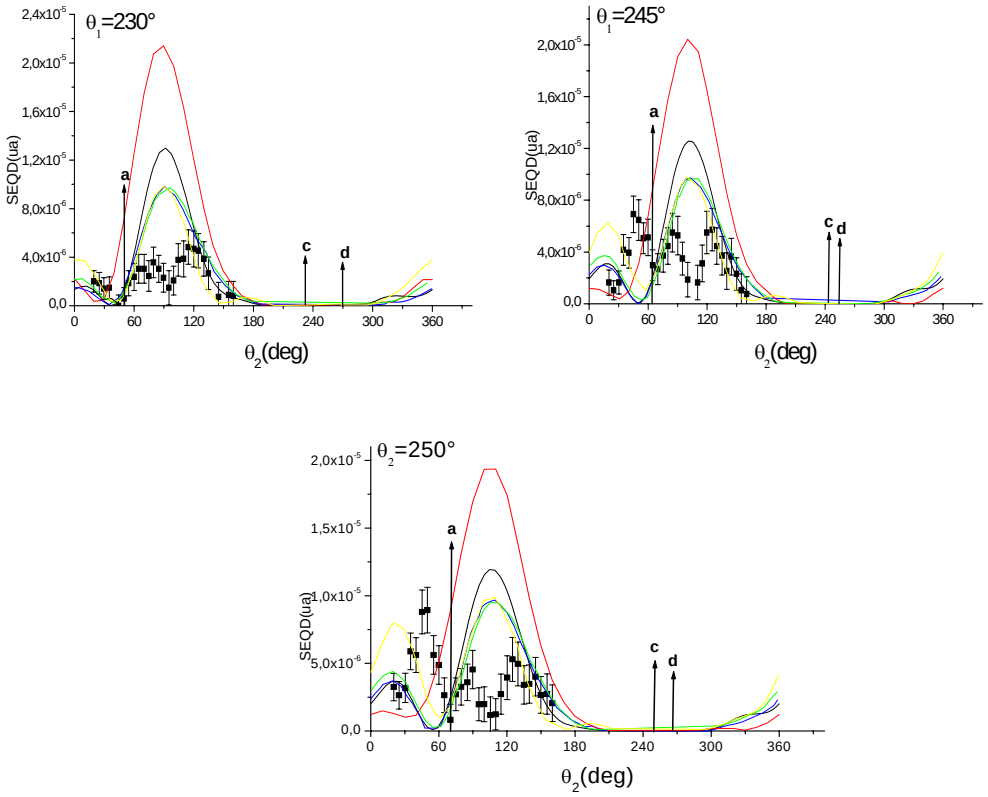



***Figure 4-2(1) :*** *SEQD de la double ionisation de l'hélium en fonction de* $\theta_2$ *pour* $\theta_1$ *fixe* $(230°, 245°, 250°)$ *.* $E_i$ *=601eV,* $\theta_d = 1.5°$*,* $E_1$ *=*$E_2$*= 11eV. Les données expérimentales [Lahm03] sont représentées par des cercles pleins avec des barres d'erreurs. La courbe en noir représente les résultats de notre modèle, alors que les résultats de [El Azz05] sont représentés par les courbes: bleue ceux de B1, la rouge ceux de B2, la verte A6C avec des charges fixes, et la jaune ceux de A6C avec charges variables.*

➢ **La figure 4-2(2)** montre le groupe des distributions pour $\theta_1$(280°, 300°). Dans ce cas le premier pic expérimental est localisé autour de $\theta_2 = 60°$, tandis que le second est observé dans l'intervalle $\theta_2 = (110° - 140°)$. Les positions des pics trouvés dans nos résultats (pour $\theta_1$=280°) sont en accord avec ceux des autres théories mais trop décalés par rapport à l'expérience. Par contre nos résultats pour $\theta_1$=300° sont en accord avec l'expérience, le modèle A6C et la méthode B2.

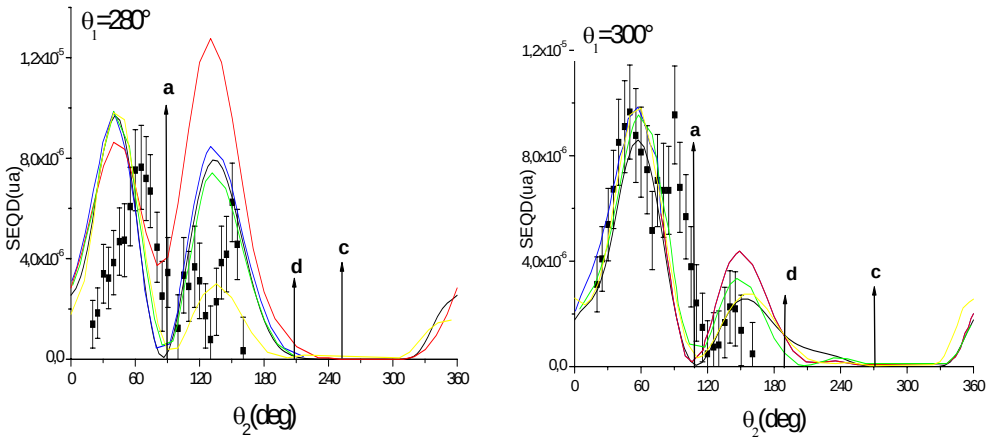



***Figure 4-2(2) :*** *même que pour la figure 4-2(1) sauf pour l'angle fixe* ($\theta_1 = 280°, 300°$).

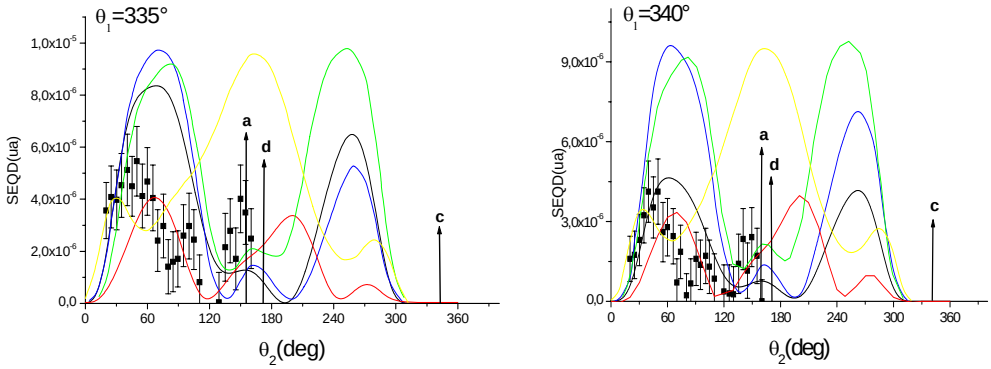



***Figure 4-2(3) :*** *même que pour la figure 4-2(1) sauf pour l'angle fixe* ($\theta_1 = 335°, 340°$) .

➢ **La figure 4-2(3)** est une illustration des cas $\theta_1$ (335°, 340°). La structure de la SEQD est néanmoins retrouvée par les théories utilisées ici, sauf par A6C(CEV) qui surestime l'amplitude du second pic. Nos résultats reproduisent qualitativement cette structure (voir la petite crête du centre), malgré le déplacement des pics et la sous-estimation de l'amplitude.

Concernant les différents minimums définis plus haut, on note qu'ils apparaissent souvent dans les données expérimentales et dans les différentes méthodes théoriques employées.

➢ Le minimum (a) existe dans toutes les distributions présentées pour $\theta_1$(230°-300°). Ce minimum disparaît lorsqu'un électron est éjecté le long de la direction du transfert $\overrightarrow{K}$, et sa direction indique ici un maximum dans les données expérimentales et théoriques (voir les cas $\theta_1$= 335°, 340°).

- Le minimum (b) n'est pas indiqué dans les distributions correspondants à $\theta_1$ (200°-340°), sauf pour $\theta_1$=255° [El Azz 05]. En fait, chacun des électrons est éjecté suivant une direction perpendiculaire à $\vec{K}$, et donc ce minimum est confondu avec celui du premier cas (a).
- Le minimum (c) étant dû à la répulsion coulombienne entre les deux électrons éjectés, est toujours présent dans les distributions angulaires. Il est généralement situé aux grands angles non accessibles aux expériences (limitées par la détection dans les demi-plans opposés). Ce minimum est bien reproduit car toutes les théories incluent des facteurs de Gamow qui imposent une SEQD nulle quand les deux électrons sont éjectés avec la même énergie dans la même direction.
- Le minimum (d) plus ou moins semblable au minimum (a), est retrouvé par tous les modèles (en particulier par B2) dans la gamme des grands angles (voir les cas $\theta_1$= 230°-250° et $\theta_1$= 280°, 300°). Dans le cas des angles plus grands ($\theta_1$= 335°, 340°) correspondant à l'éjection d'un électron le long de $\vec{K}$, ce minimum devient un maximum.

On en déduit que le choix de la fonction d'onde décrivant la cible dans l'état initial demeure important et peut largement affecter la distribution angulaire SEQD même si cette dernière est calculée par un modèle tenant compte des effets d'ordre supérieur de l'interaction.

## 4.2. Double ionisation de la molécule d'eau par impact d'électrons:

### 4.2.1. Résultats obtenus par le modèle 2CWG :

La présente étude est réalisée dans le contexte de la première approximation de Born où l'état initial des électrons liés à la molécule d'eau est représenté par une fonction mono-centrique de Moccia $[Moc64]_3$. Le modèle à deux fonctions coulombiennes avec un facteur de Gamow est utilisé pour décrire l'état final des électrons émergeant dans le continuum. En fait, nous essayons de trouver les caractéristiques énergétiques et directives les plus adéquates pour la réalisation expérimentale de la double ionisation de la molécule d'eau. Ensuite nous présentons une analyse descriptive des mécanismes réactionnels qui peuvent être à l'origine du processus (e, 3 e) dans le cas où les électrons éjectés proviennent de la même couche ou bien lorsqu'ils sont issus de deux couches différentes.

Nous proposons l'étude du processus de double ionisation à haute énergie d'impact (1000 eV), en géométrie coplanaire. Les caractéristiques de détections expérimentales des électrons dans la voie de sortie (le diffusé et les deux éjectés) sont obtenues à travers l'analyse des courbes décrivant la variation de la section efficace quintuplement différentielle 'SEQD' avec les différents paramètres du système (énergies et directions des électrons diffusé ou éjectés).

#### 4.2.1.1. Choix de l'énergie d'éjection et de l'angle de diffusion :

Cette partie est consacrée à l'étude de la variation de la SEQD en fonction de l'énergie d'éjection ($E_s$=$E_1$+$E_2$) et l'angle de diffusion $\theta_d$, effectuée pour des directions d'éjections (dans les demi-plans opposés) considérées comme favorables pour la détection des deux électrons éjectés ( $\theta_1 = \theta_K, \theta_2 = -\theta_K$), ($\theta_1 = \theta_K, \theta_2 = \theta_K - 90°$ ) et ($\theta_1 = 45°, \theta_2 = -45°$ ). L'énergie $E_s$ varie dans l'intervalle (*2 eV -60 eV*), en changeant le rapport entre les énergies individuelles des électrons éjectés $E_1/E_2$ en (1, 1/2, 1/3, 1/9, 1/19). L'angle de diffusion varie dans l'intervalle (0-6°) par pas de 0.2°. L'analyse est basée sur la détermination de l'énergie $E_s$ et la direction $\theta_d$ qui correspondent au maximum de la SEQD. Nous exposons uniquement les résultats pour la DI des couches $1b_1$ (ou $3a_1$) à titre d'exemple (correspondant à des SEQD élevées par rapport aux autres couches), sachant que la procédure est réalisée pour toutes les autres couches. L'analyse des courbes en surfaces montre que le processus de DI est plus favorable pour des énergies $E_s$ appartenant à l'intervalle (13eV-25eV) pour les rapports $E_1/E_2$ = (1/2, 1/3, 1/9, 1/19) lorsque l'angle $\theta_d \leq 1.5°$. L'amplitude du maximum de la SEQD associée est : $2.8 \times 10^{-3}$ua pour les énergies de rapport 1/2 ou 1/3, et est de $3 \times 10^{-3}$ua pour les énergies dont le rapport est de 1/9 ,1/19.

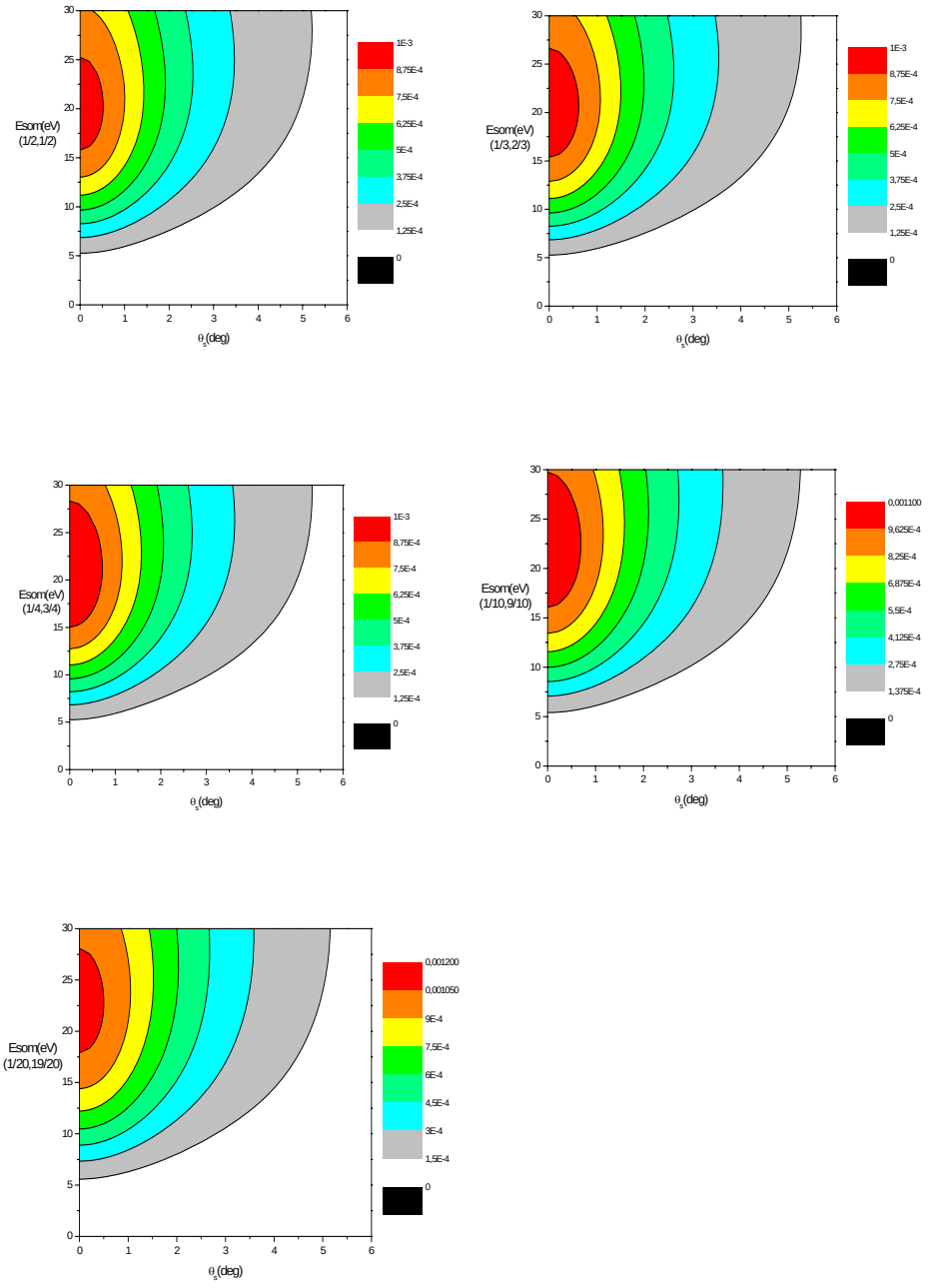



**Figure 4-3(1) :** *SEQD de DI-1$b_1$ en fonction des variations de l'énergie d'éjection et de l'angle de diffusion pour* ($\theta_1 = 45°, \theta_2 = -45°$ ). *Les énergies des électrons éjectés sont données par le rapport $E_1/E_2$ = (1,1/2, 1/3, 1/9, 1/19).*

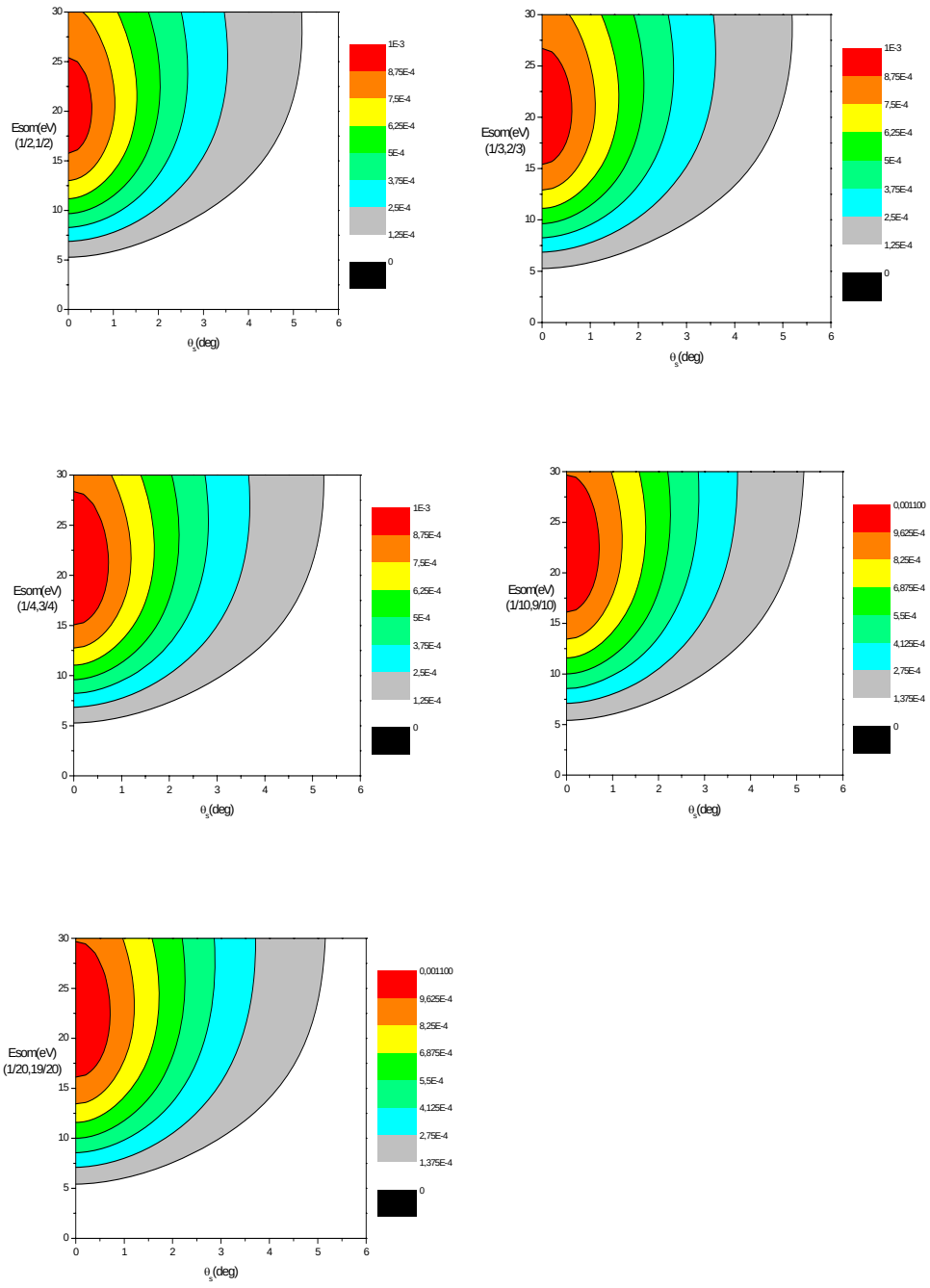



**Figure 4-3(2) :** *même que 4-3(1) avec* ($\theta_1 = \theta_K, \theta_2 = \theta_K - 90°$ ).

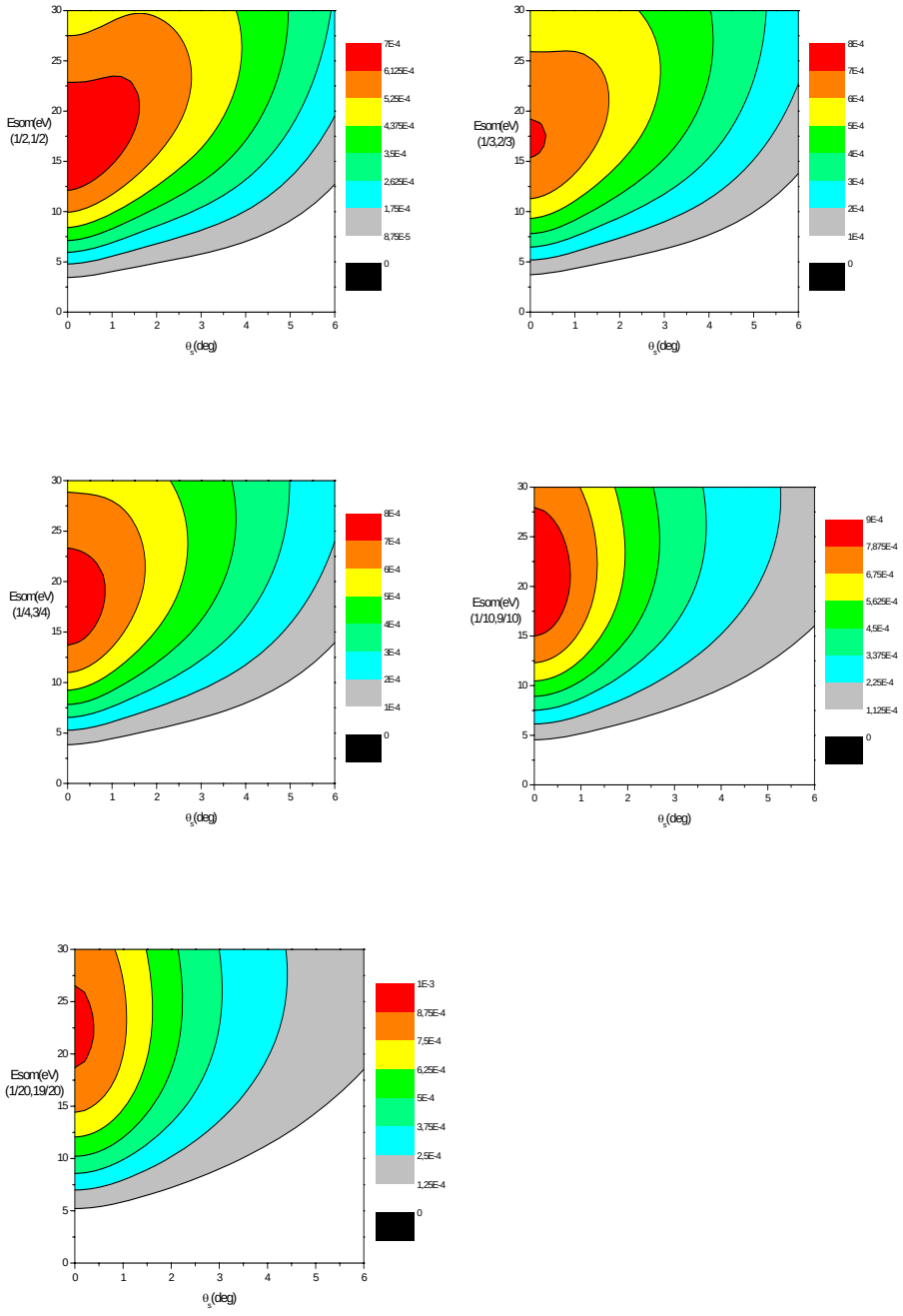



**Figure 4-3(3) :** *même que la figure* 4-3(1) *avec* ($\theta_1 = \theta_K, \theta_2 = -\theta_K$ ).

Ces observations incluent les valeurs de l'énergie d'éjection (20eV) et de l'angle de diffusion ($0.5° \leq \theta_d \leq 1.5°$) trouvés par B. Joulakian et C. Dal Cappello [Joul93] pour l'hélium et expérimentalement par Schröter [Schr98] pour le néon.

On en déduit que le processus de DI est plus favorable quand les électrons éjectés sont d'énergies dissymétriques largement différentes, et que l'émission dos

à dos ne présente pas la plus forte valeur pour l'éjection, tandis que l'électron diffusé est détecté pour de petits angles vu l'énergie conséquente du projectile incident.

#### 4.2.1.2. Choix des énergies et des directions d'éjection :

L'analyse de la distribution de la SEQD en fonction des paramètres directionnels et énergétiques des électrons éjectés de la réaction (e, 3e) nous permet de trouver les conditions favorables pour la DI. La somme des énergies des deux électrons éjectés $E_s$ prend des valeurs entre 1eV et 60eV tout en changeant le rapport $E_1/E_2$ ($E_1/E_2$ = 1, 1/2, 1/3, 1/9, 1/19). L'angle relatif $\boldsymbol{\theta_{12}} = |\theta_1 - \theta_2|$, allant de 0° jusqu'à $2\pi$, la direction d'émission de l'électron lent (d'énergie $E_1 = E_2$ /n) s'effectue suivant les directions $\theta_K, \theta_K - 90°$ et $\theta_K - 45°$. Les courbes des SEQD en fonction de $E_s$ et $\boldsymbol{\theta_{12}}$ de chacune des cinq couches de l'état fondamental de la molécule $H_2O$ ont été étudiées. Comme exemple, nous allons examiner les courbes de la SEQD pour la couche $3a_1$ dans les figures 4-4. Une analyse comparative est résumée dans le tableau (3).

L'analyse des données du tableau (3) nous permet de voir que le processus de DI est plus probable lorsque l'électron lent est éjecté suivant la direction $\theta_K - 45°$ ou $\theta_K - 90°$, la direction d'éjection $\theta_K$ n'est pas la plus favorable. Du point de vue amplitude de la SEQD on note un maximum de $3.5x10^{-3}$ ua dans le cas de DI de 1b2 pour l'éjection $\theta_1 = \theta_K - 90°$ et $\theta_1 = \theta_K - 45°$ avec des énergies dissymétriques de rapport 1 /2et 1/3, dont la somme est proche de 20eV (entre 17eV -22eV). Dans le cas de la couche $3a_1$ un maximum de $2.8x10^{-3}$ua est observé pour l'éjection de deux électrons de même énergie ($E_1=E_2 = E_s/2$) dans les directions $\theta_K - 45°$ et $\theta_K + 120°$. On remarque aussi que l'éjection à partir de cette couche est plus facile quand l'électron lent est émis suivant $\theta_K - 45°$ où l'angle relatif fluctue entre les valeurs 90° et 160°. Les autres directions sont moins probables pour toutes les combinaisons ($E_1/E_2$) énergétiques proposées. L'angle relatif prend les valeurs 160° et 90° dans les deux cas $\theta_1 = \theta_K$ et $\theta_1 = \theta_K - 90°$ respectivement.

Pour la DI-$1b_1$ on observe que l'éjection est minimale dans le cas de $\theta_1 = \theta_K$ (SEQD-max=$1.1x10^{-3}$ua), alors que la valeur du maximum est doublée pour les éjections $\theta_1 = \theta_K - 45°$ ($2.8x10^{-3}$ua) et $\theta_1 = \theta_K - 90°$ ($2.6x10^{-3}$ua). L'angle entre les directions correspondantes est $\theta_{12} \approx 90°$. On note aussi qu'on peut avoir d'autres maxima d'amplitudes moins importantes dans chacun des cas précédents.

La couche $2a_1$ étant la plus profonde sa DI est beaucoup moins probable (l'énergie nécessaire à la double ionisation est trop élevée). Le processus est plus probable avec une éjection suivant la direction du transfert, pour lequel le maximum de la SEQD est de $4x10^{-4}$ua, alors qu'il ne dépasse pas $1.4x10^{-4}$ua dans les autres cas d'émission. L'angle relatif entre les deux directions d'éjections est de 160°.

Enfin on peut dire que la DI de la molécule d'eau est plus favorable pour les couches $3a_1$ et $1b_2$ lorsque l'électron lent est éjecté à 45° du moment de transfert.

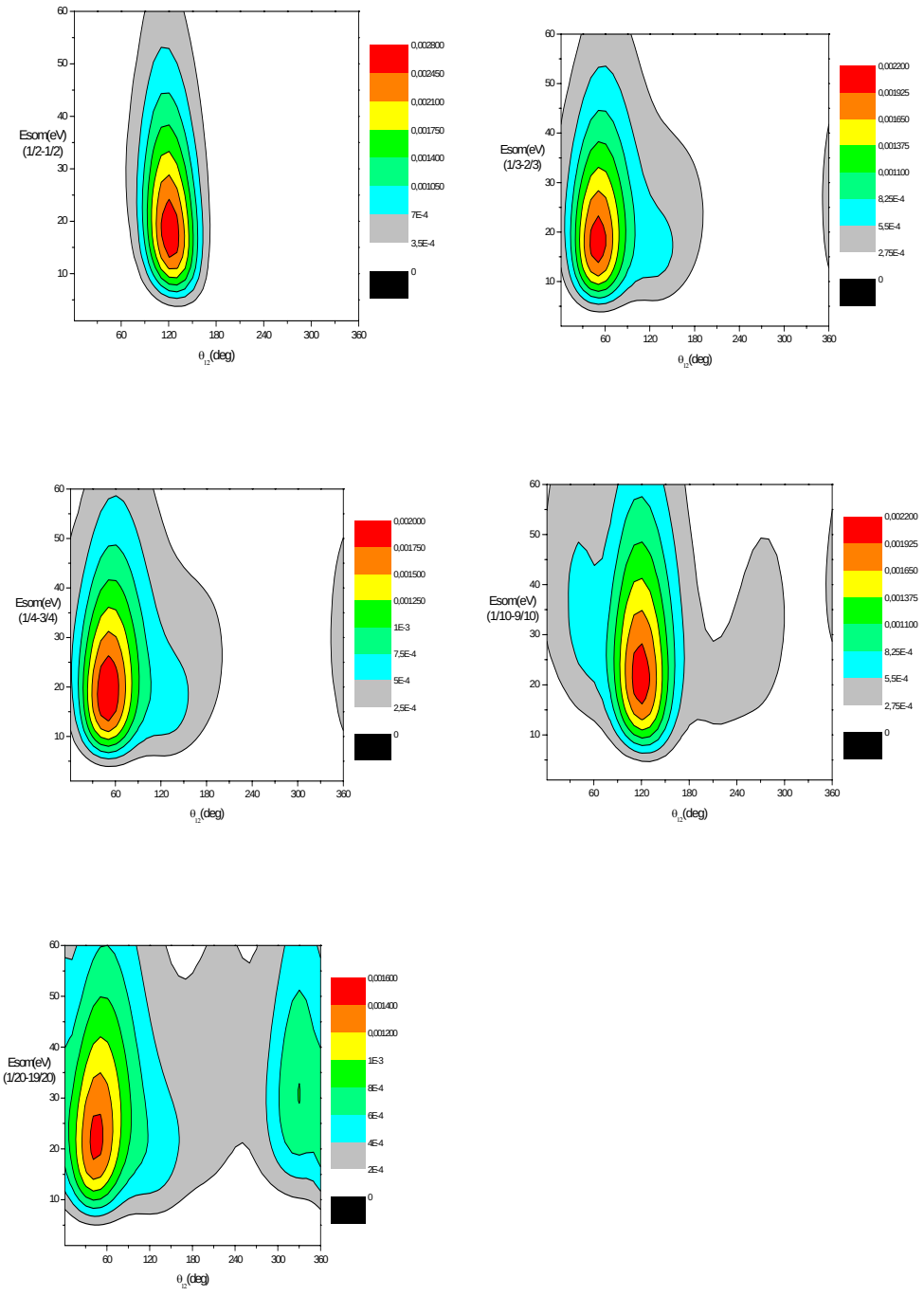



**Figure 4-4(1) :** *SEQD de la DI- $3a_1$ en fonction des variations de l'énergie d'éjection et de l'angle d'éjection relatif pour ($\theta_1 = \theta_K - 45°$). Les énergies individuelles des électrons éjectés sont données par le rapport $E_1/E_2$ = (1,1/2, 1/3, 1/9, 1/19).*

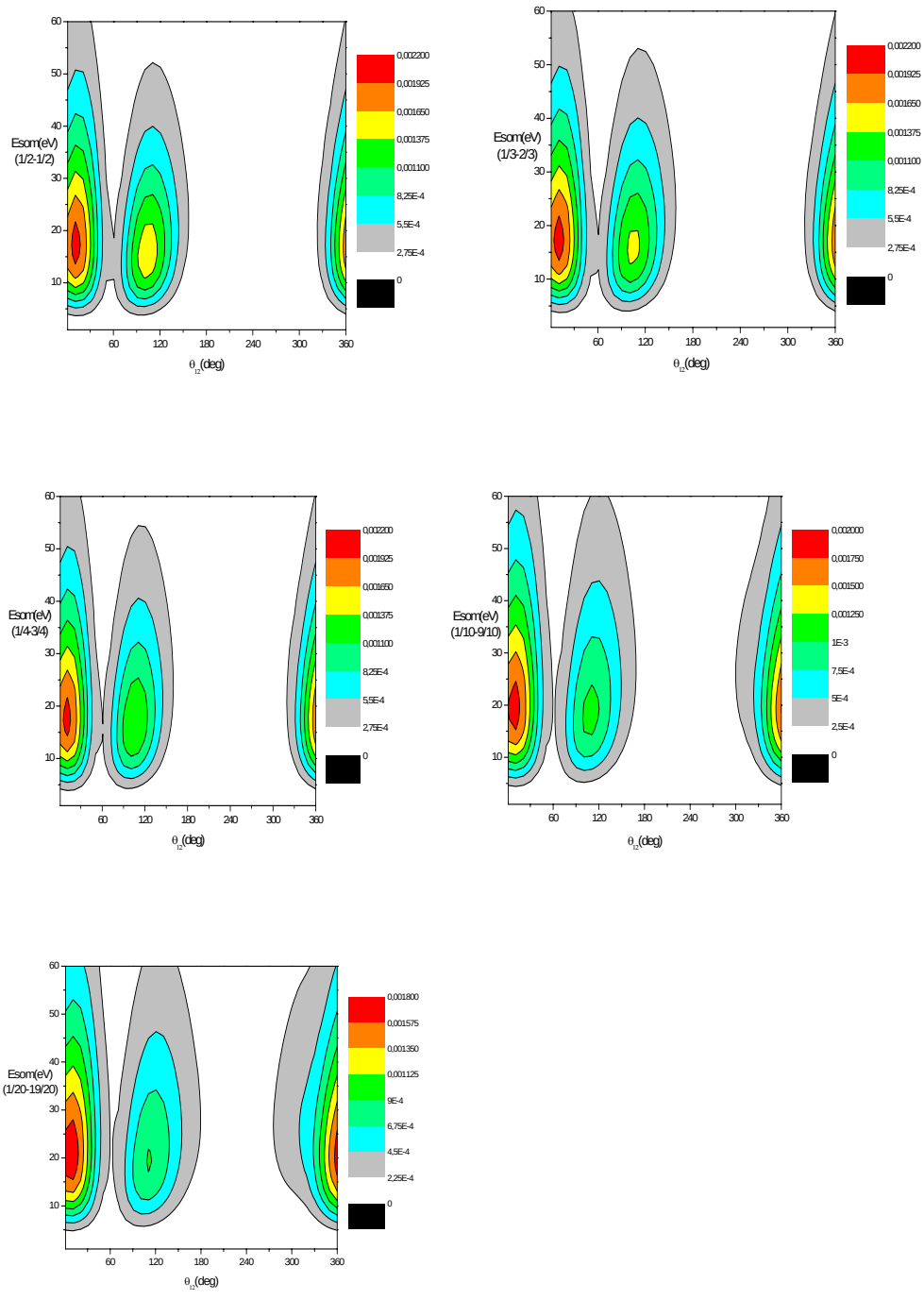



**Figure 4- 4(2) :** *même que pour la figure 4-4(1) avec* ($\theta_1 = \theta_K - 90°$)

| $(E_1, E_2)$ / $1b_1$ | (1/2,1/2)$E_s$ (e V) | (1/3,2/3)$E_s$ (eV) | (1/4,3/4)$E_s$ (eV) | (1/10,9/10)$E_s$ (eV) | (1/20,19/20)$E_s$ (eV) |
|---|---|---|---|---|---|
| $\boldsymbol{\theta_1 = \theta_K}$ | $E_s$=20.51 $\theta_{12} \approx 100°$ M=1.1X10$^{-3}$ua | $E_s$=25.55 $\theta_{12} \approx 150°$ M=1.1X10$^{-3}$ua | $E_s$=25.8 $\theta_{12} \approx 170°$ M=1.2X10$^{-3}$ua | $E_s$=26.36 $\theta_{12} \approx 150°$ M=1.4 X10$^{-3}$ua | $E_s$=34.9 $\theta_{12} \approx 35.4°$ M=1.4x10$^{-3}$ua |
| $\boldsymbol{\theta_1 = \theta_K - 45°}$ | $E_s$=18.6 $\theta_{12} \approx 90°$ M=2.8X10$^{-3}$ua | $E_s$=19.3 $\theta_{12} \approx 90°$ M=2.6X10$^{-3}$ua | $E_s$=20. 1 $\theta_{12} \approx 90°$ M=2.6X10$^{-3}$ua | $E_s$=19.8 $\theta_{12} \approx 90°$ M=2.2X10$^{-3}$ua | $E_s$=22.6 $\theta_{12} \approx 90°$ M=2.2X10$^{-3}$ua |
| $\boldsymbol{\theta_1 = \theta_K - 90°}$ | $E_s$=19.0 $\theta_{12} \approx 100°$ M=2.2X10$^{-3}$ua | $E_s$=18.3 $\theta_{12} \approx 92°$ M=2.6X10$^{-3}$ua | $E_s$=18.84 $\theta_{12} \approx 92°$ M=2.6X10$^{-3}$ua | $E_s$=19.8 $\theta_{12} \approx 92°$ M=2.4X10$^{-3}$ua | $E_s$=20.51 $\theta_{12} \approx 100°$ M=2.6X10$^{-3}$ua |
| **$3a_1$** | | | | | |
| $\boldsymbol{\theta_1 = \theta_K}$ | $E_s$=20.0 $\theta_{12} \approx 154°$ M=1.8X10$^{-3}$ua | $E_s$=21.0 $\theta_{12} \approx 155°$ M=1.8X10$^{-3}$ua | $E_s$=21.8 $\theta_{12} \approx 155°$ M=1.8X10$^{-3}$ua | $E_s$=23.1 $\theta_{12} \approx 155°$ M=1.6X10$^{-3}$ua | $E_s$=24.0 $\theta_{12} \approx 156°$ M=1.4X10$^{-3}$ua |
| $\boldsymbol{\theta_1 = \theta_K - 45°}$ | $E_s$=18.51 $\theta_{12} \approx 120°$ M=2.8X10$^{-3}$ua | $E_s$=18.0 $\theta_{12} \approx 49°$ M=2.2X10$^{-3}$ua | $E_s$=19.5 $\theta_{12} \approx 50°$ M=2.0X10$^{-3}$ua | $E_s$=22.0 $\theta_{12} \approx 119°$ M=2.2X10$^{-3}$ua | $E_s$=22.3 $\theta_{12} \approx 43°$ M=1.6X10$^{-3}$ua |
| $\boldsymbol{\theta_1 = \theta_K - 90°}$ | $E_s$=18.0 $\theta_{12} \approx 11.2°$ M=1.9X10$^{-3}$ua | $E_s$=18.0 $\theta_{12} \approx 10°$ M=1.9X10$^{-3}$ua | $^{*}E_s$=18.0 $\theta_{12} \approx 11.2°$ M=1.9X10$^{-3}$ua | $E_s$=20.0 $\theta_{12} \approx 11.2°$ M=1.7X10$^{-3}$ua | $^{*}E_s$=20.7 $\theta_{12} \approx 5.2°$ M=1.8X10$^{-3}$ua |
| **$1b_2$** | | | | | |
| $\boldsymbol{\theta_1 = \theta_K}$ | $^{*}E_s$=20.2 $\theta_{12} \approx 103°$ M=2.0X10$^{-3}$ua | $^{*}E_s$=22.8 $\theta_{12} \approx 200°$ M=1.8X10$^{-3}$ua | $E_s$=23.0 $\theta_{12} \approx 120°$ M=1.8X10$^{-3}$ua | $E_s$=25.2 $\theta_{12} \approx 160°$ M=1.4X10$^{-3}$ua | $E_s$=30.5 $\theta_{12} \approx 5°$ M=1.1X10$^{-3}$ua |
| $\boldsymbol{\theta_1 = \theta_K - 45°}$ | $E_s$=18.0 $\theta_{12} \approx 5.2°$ M=2.2X10$^{-3}$ua | $E_s$=19.6 $\theta_{12} \approx 2.3°$ M=3.5X10$^{-3}$ua | $E_s$=20.0 $\theta_{12} \approx 44°$ M=3.5X10$^{-3}$ua | $E_s$=22.6 $\theta_{12} \approx 43°$ M=3.0X10$^{-3}$ua | $E_s$=23.0 $\theta_{12} \approx 40°$ M=2.6X10$^{-3}$ua |
| $\boldsymbol{\theta_1 = \theta_K - 90°}$ | $^{*}E_s$=20.0 $\theta_{12} \approx 12.6°$ M=3.0X10$^{-3}$ua | $E_s$=18.2 $\theta_{12} \approx 47.2°$ M=3.5X10$^{-3}$ua | $E_s$=18.6 $\theta_{12} \approx 2.3°$ M=3.5X10$^{-3}$ua | $^{*}E_s$=20.0 $\theta_{12} \approx 2.8°$ M=3.5X10$^{-3}$ua | $E_s$=22.3 $\theta_{12} \approx 6.8°$ M=3.0X10$^{-3}$ua |
| **$2a_1$** | | | | | |
| $\boldsymbol{\theta_1 = \theta_K}$ | $E_s$=21.6 $\theta_{12} \approx 160°$ M=3.5X10$^{-4}$ua | $E_s$=26.0 $\theta_{12} \approx 160°$ M=3.5X10$^{-4}$ua | $E_s$=26.6 $\theta_{12} \approx 160°$ M=4.0X10$^{-4}$ua | $E_s$=33.3 $\theta_{12} \approx 164°$ M=3.5X10$^{-4}$ua | $E_s$=37.0 $\theta_{12} \approx 165°$ M=2.8X10$^{-4}$ua |
| $\boldsymbol{\theta_1 = \theta_K - 45°}$ | $E_s$=20.0 $\theta_{12} \approx 86°$ M=1.2X10$^{-4}$ua | $E_s$=22.0 $\theta_{12} \approx 86°$ M=1.2X10$^{-4}$ua | $E_s$=22.6 $\theta_{12} \approx 85°$ M=1.4X10$^{-4}$ua | $E_s$=32.0 $\theta_{12} \approx 84°$ M=1.2X10$^{-4}$ua | $E_s$=32.0 $\theta_{12} \approx 14°$ M=1.4X10$^{-4}$ua |
| $\boldsymbol{\theta_1 = \theta_K - 90°}$ | $E_s$=22.3 $\theta_{12} \approx 5.5°$ M=1.4X10$^{-4}$ua | $E_s$=20.6 $\theta_{12} \approx 8.4°$ M=1.2X10$^{-4}$ua | $E_s$=20.5 $\theta_{12} \approx 8°$ M=1.1X10$^{-4}$ua | $E_s$=23.0 $\theta_{12} \approx 10°$ M=1X10$^{-4}$ua | $E_s$=25.0 $\theta_{12} \approx 8.4°$ M=1X10$^{-4}$ua |

**Tableau 3 :** *Valeurs de $E_s$ , $\theta_{12}$ correspondants à l'amplitude (M) maximale de la SEQD pour les différentes couches de la molécule d'eau. ($^{*}$) Indique l'existence d'autres maxima dans ce cas.*

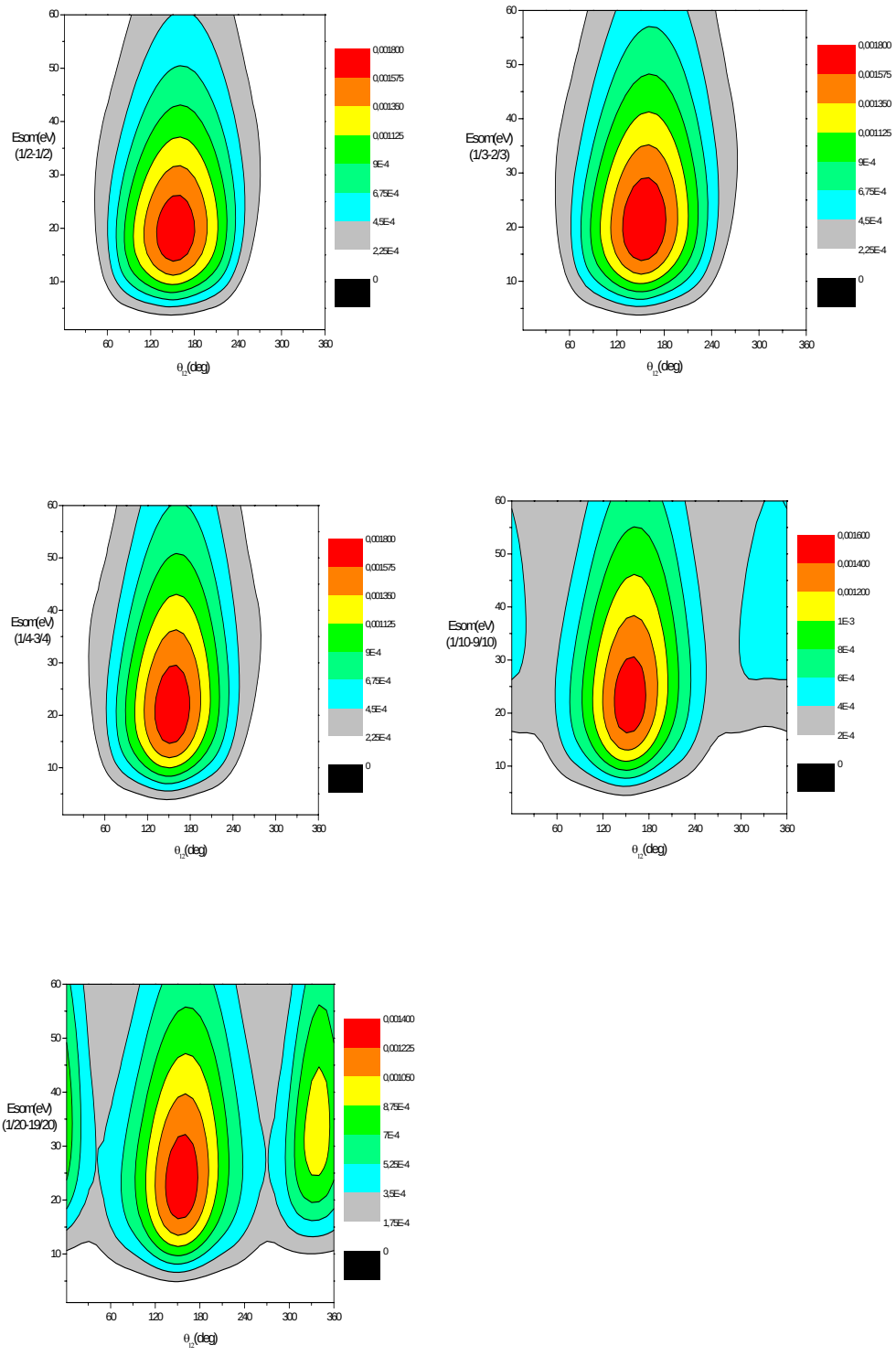



**Figure *4-4(3)*:** *même que pour la figure 4-4(1) avec* ($\theta_1 = \theta_K$).

Ce résultat qui inclut les valeurs de l'angle relatif ($\theta_{12} \in [90° - 130°]$) est aussi trouvé par Schröter [Schr98] dans le cas du néon.

Dans ce qui suit nous étudions la variation de la distribution énergétique et angulaire dans les conditions $E_s$=20 eV et $\theta_d = 1°$.

#### 4.2.1.3. La SEQD $\boldsymbol{\sigma^{(5)} = f(E_1, E_2)}$ :

On se propose de trouver les valeurs donnant la plus grande section efficace différentielle des énergies des électrons éjectés en fixant leurs directions suivant les angles les plus favorables, déduites de l'étude précédente.

- $\boldsymbol{\theta_1 = 45°, \theta_2 = -45°}$ Le processus le plus favorable de la double ionisation de la couche $1b_1$ (avec un maximum de $3.5x10^{-3}$ua de la SEQD) est observé ici pour les gammes d'énergie dissymétrique $E_1 \in [5 - 15]$eV et $E_2 \in [5 - 15]$eV. On note ainsi que les maxima de la SEQD trouvés pour les autres couches ($1b_2$, $3a_1$ et $2a_1$) sont inférieurs à ceux de $1b_1$.

Par contre, la même étude montre que le processus de DI provenant de deux couches différentes présente un maximum de la SEQD plus important dans le cas de DI-$1b_1 1b_2$ et DI-$1b_1 3a_1$ avec une valeur de $1.2x10^{-2}$ua.

- $\boldsymbol{\theta_1 = \theta_K, \theta_2 = \theta_K - 90°}$ Ces directions d'éjections favorisent le processus de DI-1b1 pour les situations où les électrons proviennent de la même couche. On remarque un maximum d'amplitude $2x10^{-3}$ua dans le cas des énergies dissymétriques et assez différentes (un électron lent avec un second très rapide). D'autre part, la section efficace différentielle est plus importante dans le cas de la DI-$1b_1 3a_1$ et DI-$1b_1 1b_2$ où on remarque un maximum de la SEQD supérieur au précédent (de $1b_1$) de $9x10^{-3}$ua, lorsque les électrons éjectés ont des énergies très différentes.

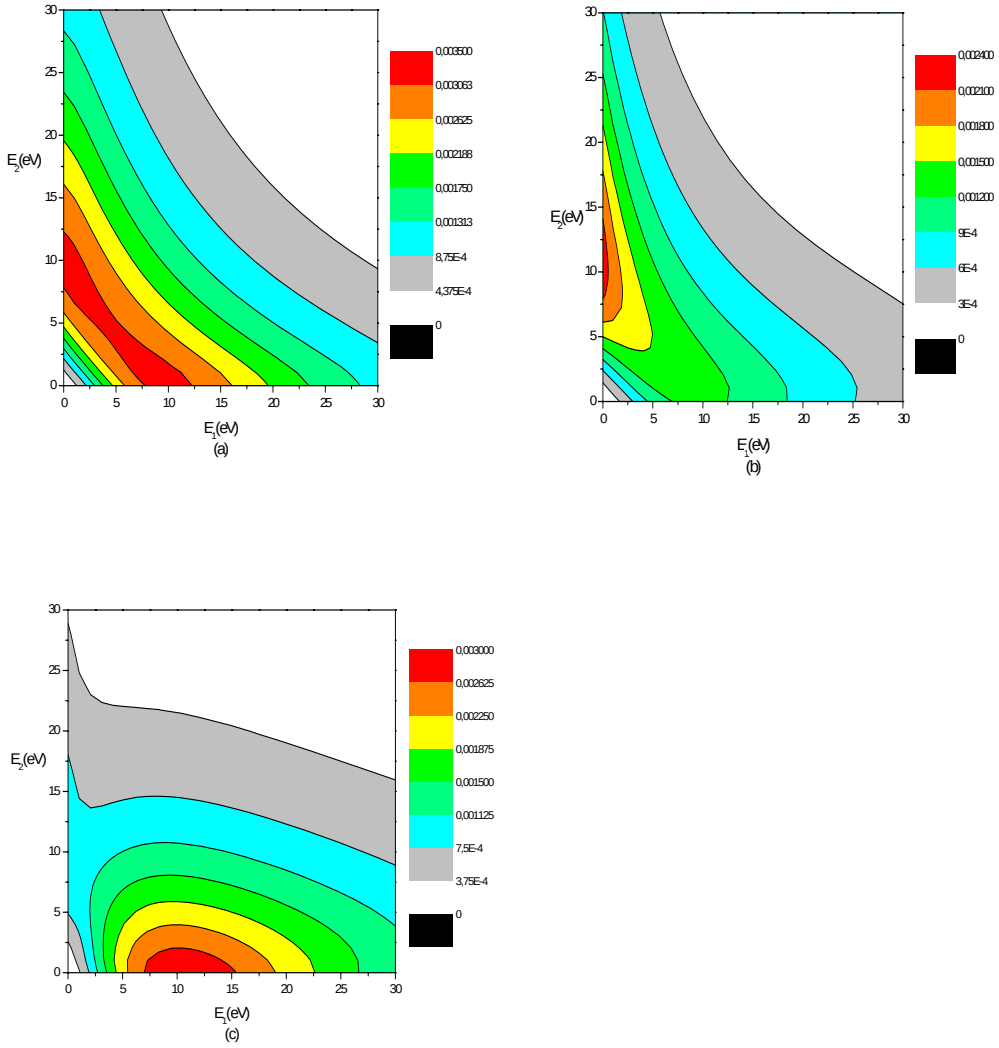



**Figure 4-5:** *la SEQD de DI-1b$_1$ en fonction des énergies individuelles d'éjection pour Les directions d'éjection: (a)* ($\theta_1 = 45°, \theta_2 = -45°$), *(b)* ($\theta_1 = \theta_K, \theta_2 = \theta_K - 90°$), *(c)* ($\theta_1 = \theta_K, \theta_2 = -\theta_K$) et $\theta_d$ *=1°.*

➢ **Pour $\boldsymbol{\theta_1 = \theta_K}$, $\boldsymbol{\theta_2 = -\theta_K}$** l'émission dos à dos (back to back), est plus probable dans le cas de DI-1b$_2$2a$_1$ (7x10$^{-3}$ ua) ainsi que la DI-3a$_1$2a$_1$ et DI-3a$_1$ (5x10$^{-3}$ ua) pour des énergies faibles et dissymétriques.

On en conclut que le processus de DI est plus favorable quand il provient de deux couches différentes, où les électrons sont émis avec des énergies dissymétriques, et orientés dans les directions favorables pour la réaction.

#### 4.2.1.4. La SEQD $\sigma^{(5)} = f(\theta_1, \theta_2)$

Dans cette partie nous étudions la variation de la SEQD en fonction des directions d'éjection des deux électrons pour différents rapports d'énergies ($E_1$, $E_2$)= (1,19) ; (5-15) ; (10-10) et les situations inverses (1 ⇋ 2). L'analyse des courbes montre qu'elles sont symétriques par rapport à la permutation des électrons éjectés, nous représentons donc une seule situation ($E_1$, $E_2$) alors que le cas ($E_2$, $E_1$) sera déduit par symétrie. L'étude effectuée pour tous les processus possibles (provenant d'une couche unique, ou de deux couches différentes) est réalisée pour une énergie d'éjection *Es = 20 eV* et pour un angle de diffusion $\theta_d = 1°$. Notre étude a été faite pour tous les cas possibles de la réaction, nous présentons uniquement deux cas comme exemples: DI de $1b_1$ et la DI de $1b_1$-$1b_2$.

Nous traitons la DI-$1b_1$ (d'un processus simple provenant d'une seule couche).

- **Cas d'électrons (1-19) :** on note quatre lobes symétriques deux à deux. Deux gros lobes caractérisés par $|\theta_1 - \theta_2| \approx 240°$ de $\theta_1 = 0°$ jusqu'à $\theta_1 = 50°$ (et de $\theta_1 = 220°$ jusqu'à $\theta_1 = 320°$ pour la partie symétrique). Le maximum (4.5x10$^{-3}$ua) est observé en $(\theta_1, \theta_2)$= (20°,260°) et en (0°, 240°). Ce groupe inclut les valeurs trouvées par Schröter [Schr98] pour le néon ($\theta_1 = 55°, \theta_2 = 280°$). Le deuxième groupe de maximum correspond à $|\theta_1 - \theta_2| \approx 120°$de $\theta_1 = 30°$ jusqu'à $\theta_1 = 150°$ (et par symétrie de $\theta_1 = 160°$ jusqu'à $\theta_1 = 260°$). Un maximum de 3.3x10$^{-3}$ua est observé en $(\theta_1, \theta_2)$= (90°, 220°) (et par symétrie en $(\theta_1, \theta_2)$= (220°,90°)).

**Cas d'électrons (5-15) :** la première remarque concerne l'augmentation de l'amplitude de la SEQD autour de la valeur 5.5x10$^{-3}$ua. La structure de la distribution ressemble aux deux précédentes, car on observe toujours quatre lobes séparés en deux régions symétriques. Le premier groupe composé de deux iles de maxima situées entre $\theta_1 = 0°$ et $\theta_1 = 90°$ et entre $\theta_1 = 20°$ et $\theta_1 = 150°$, dont la première est caractérisée par $|\theta_1 - \theta_2| \approx 220°$ et deux pics d'amplitude 5.5x10$^{-3}$ua. La seconde ile située dans l'intervalle $\theta_1 = 20°$ et $\theta_1 = 150°$ (de $\theta_1 = 160°$ à $\theta_1 = 280°$ par symétrie), correspond à un maximum 4.8x10$^{-3}$ua de la SEQD avec un angle relatif de$|\theta_1 - \theta_2| \approx 140°$.

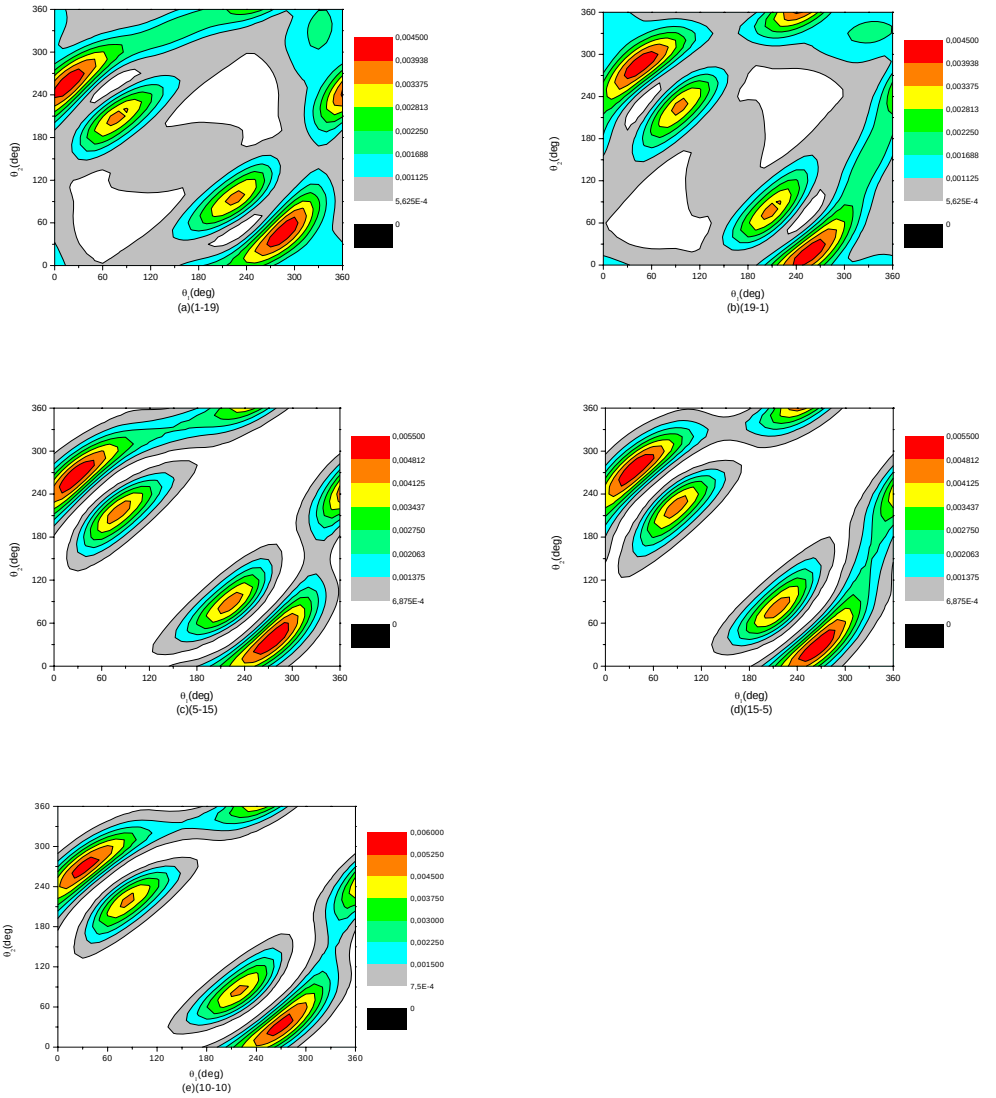



**Figure 4-6(1):** *SEQD de DI-1$b_1$ en fonction de $\theta_1$ et $\theta_2$ pour des électrons éjectés d'énergies: [(a)* (1,19), *(b)* (19,1), *(c)*(5,15), (d)(15,5), (e)(10,10)](eV) ; $\theta_d$ *=1°.*

➢ **Cas d'électrons (10- 10) :** l'amplitude de la SEQD passe par un pic de 6x10$^{-3}$ua. La distribution angulaire est de même structure avec une large vallée centrée sur l'axe $\theta_1 = \theta_2$, et séparant les deux groupes de maxima symétriques. L'élargissement de la zone entre les deux groupes est dû à la forte répulsion entre les électrons de même énergie. Chacun de ces groupes contient deux lobes. Le premier lobe du premier groupe situé en $\theta_1 \in [0°, 80°]$ (et par symétrie en $\theta_1 \in [220°, 300°]$) présente deux pics d'amplitudes 6x10$^{-3}$ ua très proches localisés en $(\theta_1, \theta_2) = (20°,250°)$ et (40°,280°).Ce groupe est caractérisé par $|\theta_1 - \theta_2| \approx 220°$. Le deuxième lobe limité dans $\theta_1 \in [20°, 150°]$ (et dans $\theta_1 \in [160°, 260°]$ par symétrie) est caractérisé par $|\theta_1 - \theta_2| \approx 120°$ et un pic de 5.2x10$^{-3}$ua.

L'analyse précédente est similaire au processus de DI-$1b_2$ et DI-$3a_1$, les distributions de leurs SEQD présentent pratiquement les mêmes caractéristiques (la structure et les positions des pics). Il est à noter que l'amplitude de la SEQD diffère d'une couche à l'autre. Par contre, la SEQD de la DI-$2a_1$ présente une structure spécifique en deux lobes. Le premier lobe correspond au groupe de maxima situé dans la gamme $\theta_1 \in [90°, 220°]$ centrée en $(\theta_1, \theta_2) = (150°, \theta_K)$ d'amplitude augmentant de 2.2x10$^{-4}$ua (pour le cas des énergies (1,19) eV) jusqu'à 3.5x10$^{-4}$ua (pour des énergies (5,15) eV). Ce groupe est caractérisé par $|\theta_1 - \theta_2| \approx 140°$. Le deuxième groupe, placé dans la zone $\theta_1 \in [310°, 360°]$, centré en $(\theta_1, \theta_2) = (\theta_K, 150°)$ correspond à un pic d'amplitude 1.6x10$^{-4}$ua (pour des électrons de (1,19)) jusqu'à 2.6x10$^{-4}$ ua (pour des électrons (5,15) eV).

Dans le cas d'électrons d'énergies égales (10,10) eV les groupes précédents sont placés sur deux axes perpendiculaires passant par les directions $\theta_1 = \theta_K$ et $\theta_2 = \theta_K$ . Les pics des maxima sont de 7x10$^{-4}$ua localisés en$(\theta_1, \theta_2) = (150°, \theta_K)$ et $(\theta_1, \theta_2) = (\theta_K, 150°)$. On en déduit que pour la couche $2a_1$ l'émission «dos à dos » est bizarrement la plus favorable, contrairement aux couches moins profondes analysées ci-dessus. Pour le processus DI-2a1 le mécanisme SO est dominant, alors qu'il ne l'est pas pour les autres processus (DI-3a1, DI-1b1 et DI-1b2) qui peuvent être d'origine TS1.

Nous reviendrons sur cette d'analyse, plus loin, avec beaucoup plus de détails.

**Dans le cas d'un processus mixte (de deux couches différentes) :** la structure de la distribution angulaire de la SEQD présente deux plages symétriques par rapport à l'axe $\theta_1 = \theta_2$ contenant chacune trois lobes. L'amplitude des maxima est supérieure à celle d'un processus simple (électrons éjectés issus d'une même couche), et est maximale pour la DI-$1b_1 1b_2$ et DI-$1b_1 3a_1$ pour des électrons d'énergies (5,15), (15,5) et (10,10). Les trois groupes de maxima, obtenus pour chaque rapport d'énergie, sont localisés dans l'intervalle $\theta_1 \in [0°, 150°]$ et $\theta_1 \in [160°, 330°]$ .

Les maxima de la SEQD de DI-$1b_1 1b_2$, DI-$1b_1 3a_1$, DI-$3a_1 1b_2$ sont pratiquement tous situés suivant les mêmes directions $(30°, 150°), (60°, 250°), (110°, 200°)$. Les deux pics d'amplitude maximale sont localisés suivant la première et la seconde position, correspondant aux directions $\theta_1$, ($\theta_2 = \theta_K - 45°$ , $\theta_K - 90°$). On note que le pic de la troisième position est toujours plus bas en amplitude par rapport aux deux autres. En fait, ces observations nous permettent de distinguer le rôle mineur de la direction d'éjection $\theta_{1,2} = \theta_K$ (correspondant au recul minimal)

Une autre remarque importante concerne la DI-$1b_1 2a_1$ ; DI-$1b_2 2a_1$ ; DI-$3a_1 2a_1$ (où un électron éjecté provient de la couche $2a_1$) dont la structure de la distribution angulaire est complètement modifiée. On observe ainsi une structure en deux gros lobes symétriques par rapport à $\theta_1 = \theta_2$, où les maxima sont situés sur des axes perpendiculaires associés aux grands angles $\theta_1$ et $\theta_2$. L'émission dans les directions $(\theta_K, -\theta_K)$ 'dos à dos' est la plus favorable, et le pic d'amplitude (7x10$^{-3}$ua)

maximale est observé pour le processus DI-$1b_2$ $2a_1$ lorsque les électrons éjectés sont d'énergies (5,15) eV ; (15,5) eV. D'autres pics d'amplitudes ($6x10^{-3}$ua) sont observés sur les distributions de ces processus.

On en conclut que l'éjection dos à dos due au mécanisme SO est la plus probable pour la DI de la molécule d'eau quand un électron, au moins, est issu de la couche $2a_1$.

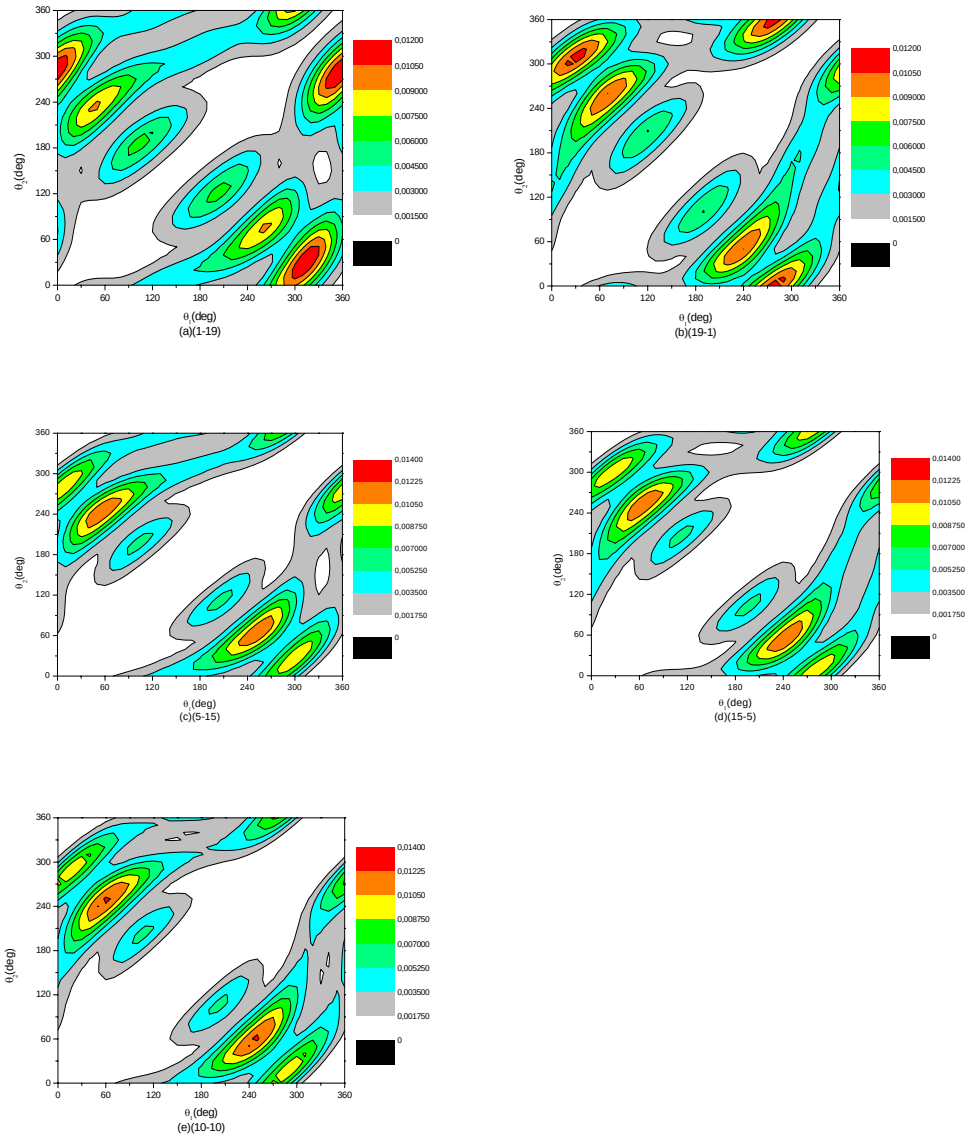


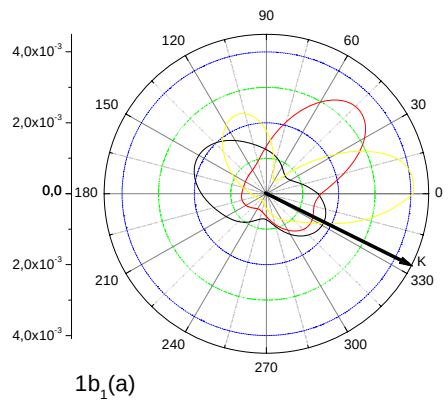

**Figure 4-6(2):** *SEQD de DI-$1b_1 1b_2$ en fonction de $\theta_1$ et $\theta_2$ pour des électrons éjectés d'énergies: [(a)* (1,19), *(b)* (19,1), *(c)*(5,15), (d)(15,5), (e)(10,10)](eV) ; $\theta_d$ *=1°.*

#### 4.2.1.5. La SEQD $\sigma^{(5)} = f(\theta_2)_{\theta_1 fixe}$ :

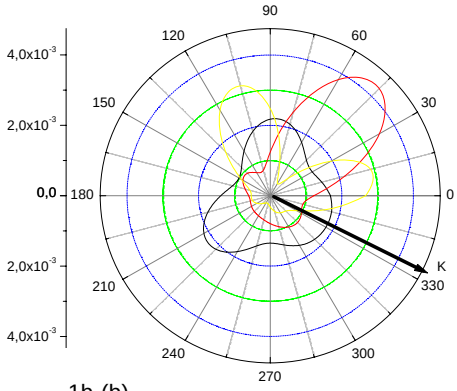
Nous présentons ici les résultats obtenus de la variation de la SEQD du processus de DI de la molécule d'eau en fonction de la direction d'éjection d'un électron en fixant celle du second. L'étude réalisée pour tous les processus (simples ou mixtes) possibles, nous permettra de déterminer l'origine du mécanisme de la réaction (e,3e)-$H_2O$. L'analyse est effectuée pour une énergie d'impact de 1000 eV, une énergie d'éjection de 20 eV, un angle de diffusion de 1° et des directions d'éjection du premier électron fixées à $\theta_K$, $\theta_K - 45°$ et $\theta_K - 90°$.

Nous représentons toutes les courbes des différents processus afin de mettre en valeur les mécanismes réactionnels responsables de la DI dans chaque cas. L'analyse est répartie en deux exemples : un sur le processus de DI-simple (DI-$1b_1$), alors que le second concerne le processus DI-mixte (DI-$1b_1 1b_2$).

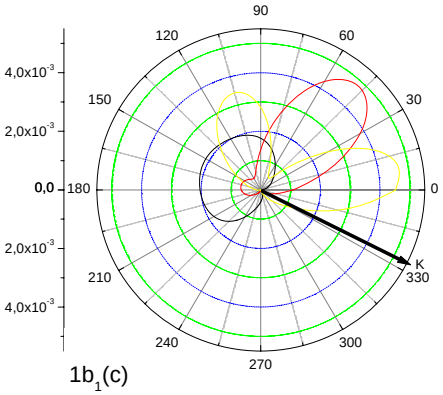
- **DI-$1b_1$ :** La réalisation de ce processus sous les conditions cinématiques proposées ci-dessus correspond à un moment de transfert dirigé dans la direction $\theta_K = 331.6°$. La figure 4-7 (a, b, c, d, e) représente les distributions angulaires de la DI-$1b_1$ pour les énergies [(1,19) ; (5,15) ;(10,10) ; (19,1) ;(15,5)] eV respectivement.



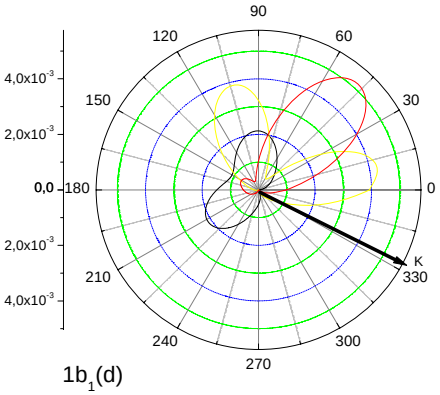

1b$_1$(a)



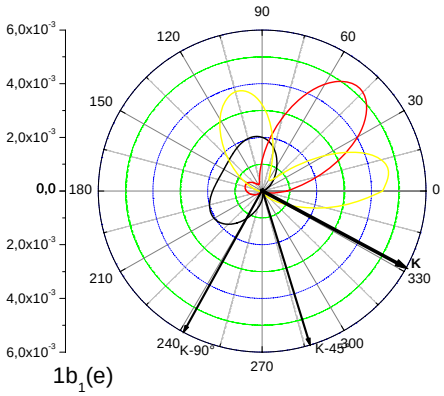

1b$_1$(b)




1b$_1$(c)




1b$_1$(d)




1b$_1$(e)

**Figure 4-7:** *la SEQD de DI-1b$_1$ en fonction de $\theta_2$ pour :( $\theta_1 = \theta_K$) courbe noire ; ($\theta_1 = \theta_K - 45°$) courbe rouge ; ($\theta_1 = \theta_K - 90°$) courbe jaune. Les électrons éjectés étant d'énergies: [(a)* (1,19), *(b)* (19,1), *(c)*(5,15), *(d)(15,5), (e)(10,10)](eV). $E_i$ =1000 eV et $\theta_d$ =1°.*

- La figure 4-7 ($1b_1$(a)) illustre le cas d'électrons (1,19) eV où on fixe la direction de l'électron lent sur la courbe en noir à $\theta_1 = \theta_K$ ; sur la courbe rouge à $\theta_1 = \theta_K - 45°$ et sur la rose à $\theta_1 = \theta_K - 90°$. Pour $\boldsymbol{\theta_1 = \theta_K}$ on observe deux crêtes de différentes amplitudes. La première correspond à une émission back to back, puisque les deux électrons sont dans des directions opposées ($\theta_K, -\theta_K$). Cette émission est due au mécanisme SO où un électron de la cible (le lent) est percuté par l'électron incident et est éjecté suivant $\theta_K$. Le second électron (rapide 19 eV) s'échappe selon $-\theta_K$ après la secousse de la cible sous l'effet de la première ionisation. Ce processus étant d'amplitude 2.2x10$^{-3}$ ua est donc le plus probable.

La deuxième crête indique l'éjection des deux électrons suivant la direction $\theta_K$. Ce processus est permis physiquement car les deux électrons sont d'énergies très différentes. Le premier électron (probablement le rapide) interagissant avec le projectile est émis suivant $\theta_K$. L'électron lent sort aussi suivant $\theta_K$ après la relaxation de la cible. Ce deuxième processus est moins probable (1.8x10$^{-3}$ ua). On note ainsi que le mécanisme SO peut être responsable de cette éjection. La deuxième courbe associée à l'éjection de l'électron lent à $\boldsymbol{\theta_1 = \theta_K - 45°}$, représente une distribution où on distingue trois crêtes de différentes amplitudes et directions. Dans l'ordre décroissant de l'amplitude, la plus importante (3.5x10$^{-3}$ua) est dirigée vers $\theta_2 = 45°$, donc à 120° du premier électron. Ce processus peut être dû à un mécanisme TS1 avec émission vers l'avant. Dans ce cas le projectile percute un électron actif de la cible (le rapide) ce dernier, dans son chemin d'éjection (suivant $\theta_2 = 45°$ ), percute le second électron et l'éjecte dans la direction $\theta_1 = \theta_K - 45°$. Ce cas sera réexaminé pour des électrons (19,1) eV. La deuxième crête indique un processus moins probable (1.5x10$^{-3}$ua) dans la direction $\theta_2 = 320°$ où les deux électrons éjectés sont très voisins ($\theta_{12} \approx 30°$). Cette situation peut être expliquée par un mécanisme TS1 avec émission toujours vers l'avant. La troisième crête beaucoup plus faible (<10$^{-3}$ua) est observée à $\theta_2 = 200°$ et peut être due à un TS1 avec diffusion vers l'arrière (Backward). Dans ce cas l'électron lent est éjecté suivant $\boldsymbol{\theta_1 = \theta_K - 90°}$ ($\approx 240°$) et le deuxième peut être éjecté à $\theta_2 \approx 10°$ ou à $\theta_2 \approx 110°$. On note un angle relatif $\theta_{12} \approx 130°$ entre les deux directions d'éjections (valeur trouvée dans le cas du néon [Schr98]). La première éjection ($\theta_2 \approx 10°$) est la plus favorable car elle est d'amplitude 4x10$^{-3}$ua, elle est due au mécanisme TS1 avec diffusion vers l'avant. L'électron incident avant sa diffusion percute l'électron rapide 19 eV. A son tour cet électron est éjecté pour $\theta_2 = 10°$ ou $\theta_2 = 110°$ puis interagit avec un second électron actif (le lent) et l'éjecte suivant $\theta_1 = \theta_K - 90°$. Cette réaction peut être due au mécanisme TS1 avec émission vers l'avant ($\theta_2 = 10°$) ou vers l'arrière ($\theta_2 = 110°$ ).

- La figure 4-7 ($1b_1$(c)) décrit la variation de la SEQD en fonction de $\theta_2$ direction de l'électron rapide (15 eV) avec un électron lent (5 eV) de direction fixe $\theta_1 = \theta_K$ $\theta_1 = \theta_K - 45°$ et $\theta_1 = \theta_K - 90°$. La structure de la distribution angulaire dans ce

cas est presque la même que celle observée précédemment sauf que l'éjection suivant la direction du transfert, associée au recul minimal, ne peut être en aucun cas la direction d'émission préférée pour l'électron 15 eV. L'émission dos à dos est le seul chemin suivi par ce dernier lorsque l'électron lent est dirigé suivant $\theta_K$. Une telle situation de distribution isotrope est directement liée au mécanisme SO. Lorsque l'électron 5 eV est éjecté sous un angle $\theta_1 = \theta_K - 45°$, l'électron rapide est éjecté vers l'avant à $\theta_2 = 45°$ (par rapport à la direction d'incidence) à travers un processus TS1 plus favorable ($5x10^{-3}$ua). En fait, cet électron peut être détecté dans la direction $\theta_2 = 180°$ après avoir suivi un processus TS1 dont l'émission est vers l'arrière. Une autre situation où le processus TS1 est le plus favorable à la DI-$1b_1$ est celui de l'éjection d'un électron lent de 5eV le long de $\theta_1 = \theta_K - 90°$. Ici l'électron de 15 eV est dirigé vers $\theta_2 \approx 10°$ou $\theta_2 \approx 105°$ néanmoins la première éjection reste plus probable ($4.8x10^{-3}$ ua).

Sur les figures 4.7 ($1b_1$(b, d)) nous représentons la SEQD en fonction de $\theta_2$ pour une permutation des deux électrons éjectés (étudiés précédemment). On note quelques modifications intéressantes dans les distributions correspondantes qui concernent : l'augmentation de l'amplitude dans le cas de $\theta_1 = \theta_K - 45°$ avec conservation de la direction d'éjection préférée (antérieure) pour le second électron (ici le lent). On remarque aussi que les petites crêtes observées dans ce cas, ont été déviées de leurs positions notées précédemment, ce qui est peut être lié à la répulsion entre les deux éjectés. Dans ce cas l'électron rapide influence la direction de l'électron lent.

- Sur la figure 4-7($1b_1$ (e)) la SEQD est calculée pour des électrons d'égales énergies de 10 eV. Il est clair que la direction d'éjection $\theta_K$ (de recul faible) n'est importante que dans l'émission dos à dos qui résulte du processus SO. Le mécanisme TS1 intervient quand un électron est dirigé à 45° ou à 90°du transfert. Le deuxième électron, dans ce cas, préfère une éjection vers l'avant que vers l'arrière.

L'analyse des courbes représentant la DI provenant des autres couches simples montre une grande ressemblance avec le cas de DI-$1b_1$, par conséquent nous ne présentons que les particularités notées dans certaines situations.

- Dans le cas de DI-$1b_2$ une diminution des amplitudes des maxima est remarquée par rapport à ceux de DI-$1b_1$, ainsi qu'un élargissement de la distribution isotrope correspondant à $\theta_1 = \theta_K$ (pour le cas des électrons (15,5)eV. La contribution des mécanismes SO et TS1 à ce processus est identique à celle exposée dans le cas DI-$1b_1$.

- Pour la DI-$3a_1$ nous remarquons une augmentation du maximum de la SEQD quand $\theta_1 = \theta_K$, avec une diminution des maxima pour $\theta_1 = \theta_K - 45°$ et $\theta_1 = \theta_K - 90°$. Ceci nous permet de dire que le rôle du mécanisme SO est plus important dans la DI-$3a_1$ que dans celles de la DI-$1b_1$ et DI-$1b_2$.

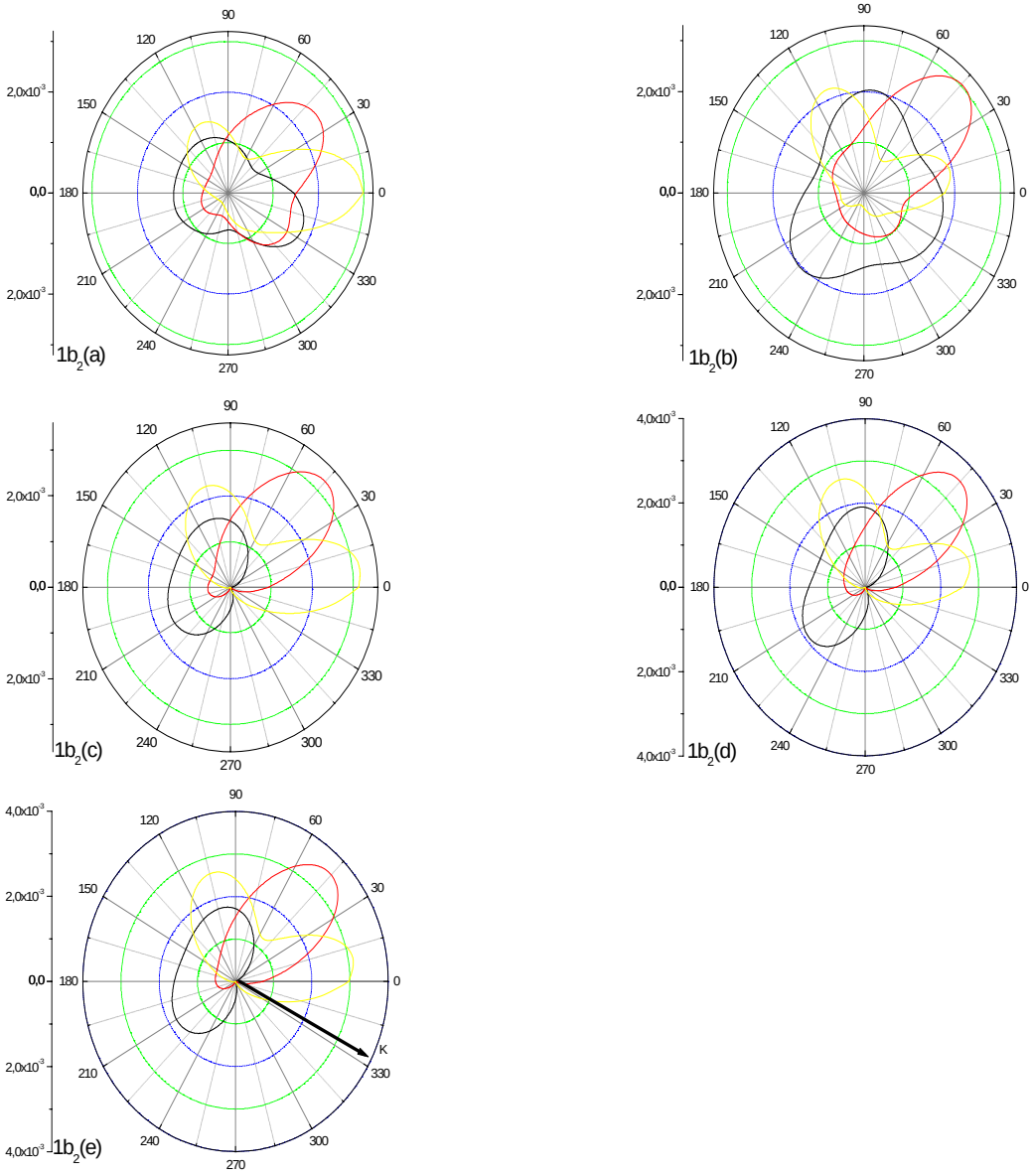



**Figure 4-8:** *même que la figure 4-7 mais pour la SEQD de DI-1b$_2$ .*

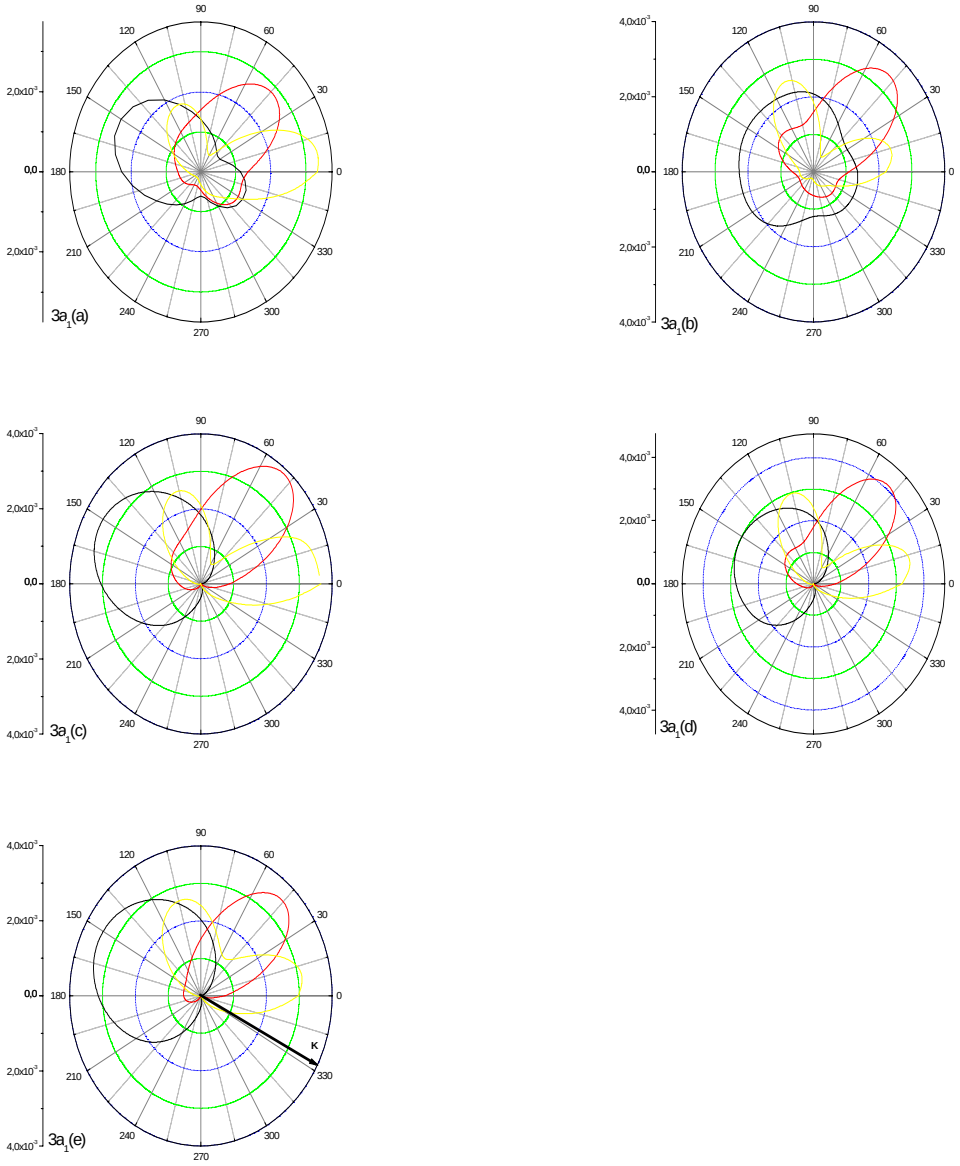



**Figure 4-9:** *même que la figure 4-7 mais pour la SEQD de DI-3$a_1$.*

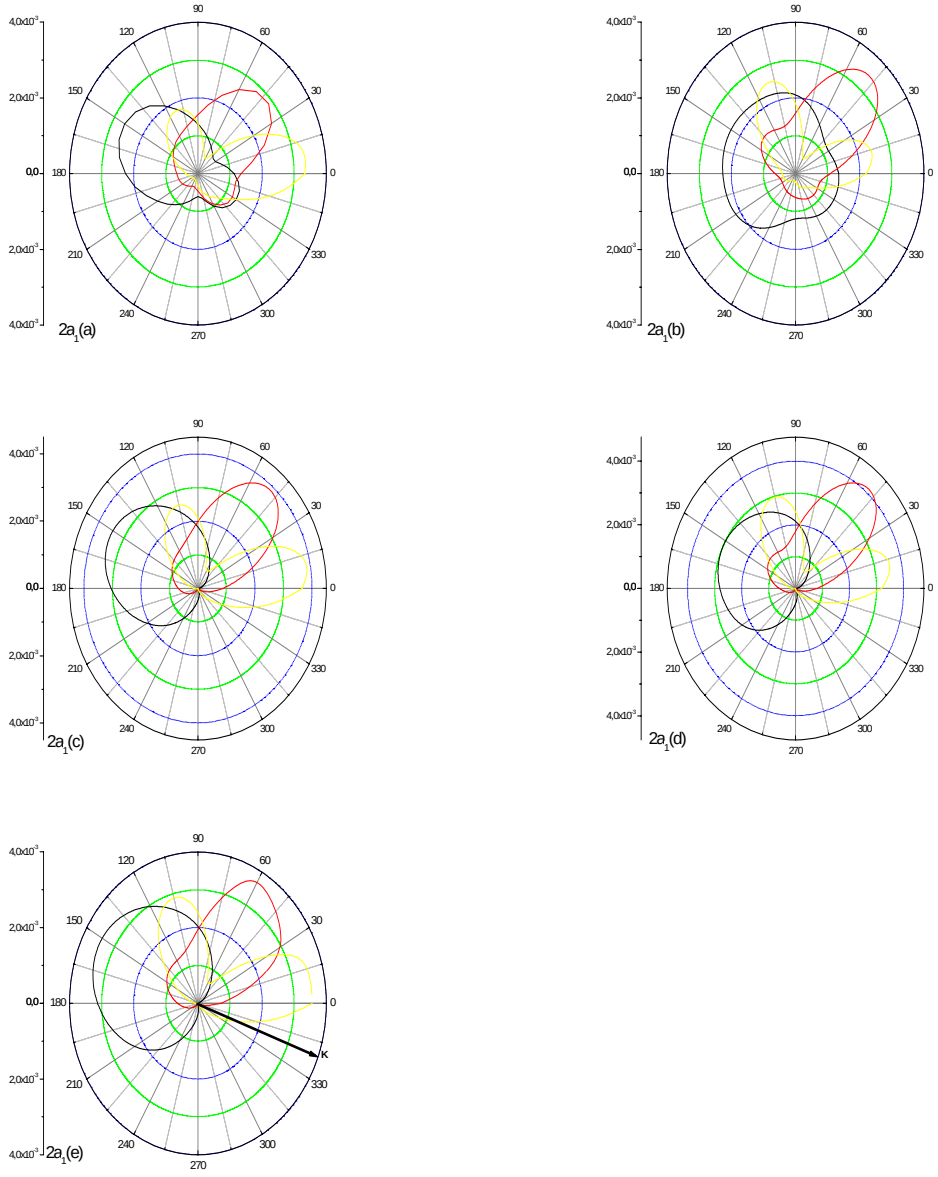



**Figure 4-10:** *même que la figure 4-7(1b$_1$) mais pour la SEQD de DI-2a1.*

Néanmoins, le mécanisme TS1 (avec émission vers l'avant surtout) est toujours plus favorable dans les directions $\theta_K - 45°$ et $\theta_K - 90°$ sauf pour le cas d'électrons (10,10) eV où il est équiprobable avec le SO pour $\theta_1 = \theta_K$.

- Dans le cas de la DI-2a$_1$ les distributions de la SEQD concordent avec celles de la DI-3a$_1$. Ce phénomène peut être expliqué par la ressemblance de la configuration

électronique de ces deux couches. Cette remarque est aussi à noter dans le cas de la DI-$1b_1$ et DI-$1b_2$.

Enfin on en déduit que le processus de DI d'une même couche de la molécule d'eau est plus favorable pour les couches $1b_1$ et $3a_1$. Cette réaction est due au mécanisme SO si un électron est émis suivant $\theta_K$. Sinon et dans le cas d'une éjection dans la direction $\theta_K - 45°$ ou $\theta_K - 90°$, le mécanisme TS1 est prédominant, et donne une SEQD plus importante quand il est vers l'avant.

➢ **DI-mixte :** Le processus de DI de la molécule d'eau peut être réalisé par l'éjection de deux électrons provenant de couches différentes. Ce phénomène ne peut être ignoré, car les SEQD calculées en fonction des énergies et des directions d'éjections prévoient une contribution importante du processus de la DI de $H_2O$.

Ceci peut être confirmé à travers les distributions polaires suivantes, où les premières observations nous indiquent une grande ressemblance entre les distributions des processus mixtes ayant une couche commune tel que DI-$1b_1 1b_2$ ; DI-$3a_1 1b_1$ ; DI-$3a_1 1b_2$ ainsi que DI-$1b_1 2a_1$ ; DI-$3a_1 2a_1$ ; DI-$1b_2 2a_1$. Cette observation nous permettra d'analyser un seul exemple de chaque groupe.
Pour le premier groupe l'amplitude de la SEQD est maximale pour la DI-$1b_1 1b_2$ et la DI-$3a_1 1b_1$. Nous analysons la DI-$1b_1 1b_2$ à titre d'exemple et on note dans ces conditions un moment de transfert dirigé vers $\theta_K \approx 334.5°$.

- Pour l'éjection d'électrons d'énergies dissymétriques (1-19 ; 5-15) eV avec la direction de l'électron lent fixe à $\theta_K$, la SEQD présente un minimum pour l'éjection du second électron suivant $\theta_K$ (direction du minimum de recul) ou $-\theta_K$. On peut donc voir l'absence de l'émission dos à dos observée dans le cas des processus simples. Les maxima de la SEQD sont localisés à $\theta_2 \approx \pm 60°$ pour le cas d'électrons (1,19) eV et à $\theta_2 \approx \pm 90°$ pour des électrons (5,15) eV. Ce résultat peut être dû aux interférences entre les mécanismes SO et TS1.
- Lorsque l'électron lent est dirigé vers $\theta_K - 45°$ on note deux lobes contenant les maxima dont le plus important (d'amplitude $10^{-2}$ua) est situé à $\theta_2 \approx 0°$ pour (1,19) eV ou à $\theta_2 \approx 15°$ pour (5,15) eV. Les deux directions d'éjections sont séparées d'un angle $\theta_{12} \approx 80°$. Le deuxième lobe d'amplitude inférieure est localisé à $\theta_2 \approx 130°$. Le premier processus est peut être dû au mécanisme TS1 avec diffusion vers l'avant, tandis que le dernier est lié au mécanisme SO (émission back to back $\theta_{12} \approx 180°$).
- Dans le cas de l'éjection perpendiculaire à la direction du transfert $\theta_1 = \theta_K - 90°$, on observe trois lobes dont deux sont d'amplitudes plus importantes, quoique ces amplitudes varient avec le changement des énergies des deux éjectés. Le premier maximum à $\theta_2 = \theta_K$ a une amplitude qui diminue avec la diminution de l'énergie de l'électron rapide. Cette éjection vers l'avant est due à une réaction TS1 avec un angle relatif $\theta_{12} \approx 90°$. La deuxième crête observée à $\theta_2 \approx 55°$ est

d'amplitude évoluant avec la réduction de l'énergie du second électron ($9x10^{-3}$ua pour l'électron 19 eV et $1.2x10^{-2}$ ua pour celui de 15 eV). Ce processus est lié au mécanisme Shake off puisque l'émission est dos à dos. Le troisième maximum est noté en $\theta_2 \approx -\theta_K$ à 90° du premier électron. Ce petit lobe indique une faible possibilité d'avoir une éjection vers l'arrière due au mécanisme TS1.

- Quand on inverse les énergies des deux électrons on remarque un élargissement de la structure de la distribution angulaire. Pour $\theta_1 = \theta_K$, cet élargissement diminue lorsque l'énergie du deuxième électron (lent) augmente. Les directions $\theta_K$ et $-\theta_K$ ne sont toujours pas les plus probables pour l'éjection. Les deux maxima à $\theta_2 \approx \pm 80°$ (19,1) eV, et à $\theta_2 \approx \pm 90°$ (15,5) eV par rapport au moment de transfert montrent la présence du processus d'interférence entre les mécanismes SO et TS1.

Quand l'électron rapide est éjecté à $\theta_1 = \theta_K - 45°$, l'éjection de l'électron lent résulte d'un processus TS1 vers l'avant qui se caractérise par un lobe d'amplitude $10^{-2}$ ua dans la direction $\theta_2 \approx 10° \rightarrow 15°$, ou bien d'un processus SO décrit par le lobe situé à $\theta_2 \approx 100°$ d'amplitude maximale $7x10^{-3}$ua.

Cependant, la distribution SEQD pour l'éjection de l'électron rapide dans la direction fixe $\theta_1 = \theta_K - 90°$ montre l'existence du mécanisme SO avec une forte probabilité donnée par le gros lobe dans la direction $\theta_2 \approx 60°$ (à 180° de $\theta_1$ ). L'amplitude de ce lobe évolue avec l'augmentation de l'énergie de l'électron lent. On observe aussi deux autres petites crêtes dans les directions $\theta_K, -\theta_K$ indiquant la faible présence du processus TS1 avec émission vers l'avant ou vers l'arrière.

- Dans le cas d'électrons éjectés d'égales énergies (10-10) eV on remarque que le processus de DI est plus probable quand un électron est détecté sur l'axe perpendiculaire au moment de transfert. Ce dernier est dû au mécanisme SO responsable de l'éjection dos à dos du deuxième électron. L'éjection d'un électron suivant $\theta_K$ ou $\theta_K - 45°$ est possible mais moins probable dans une telle situation.

Dans le deuxième groupe de processus mixtes nous observons que l'éjection d'un électron de la couche $2a_1$ influe sur la structure de la distribution angulaire SEQD. Nous remarquons que l'éjection d'un électron (lent ou rapide) suivant la direction $\theta_K$ ou $\theta_K - 45°$ favorise le processus de DI établi par le mécanisme SO. On peut voir ici que la distribution est presque isotrope et l'émission dos à dos peut jouer un rôle important. Cependant, le mécanisme TS1 avec émission vers l'avant ne peut être responsable de l'éjection que lorsqu'un électron (en particulier quand c'est le lent) est éjecté dans la direction $\theta_K - 90°$. Dans cette situation le second électron est éjecté suivant les directions adjacentes à $\theta_K$. Une petite crête est observée dans le sens inverse de la précédente indiquant une éjection vers l'arrière sous l'effet du processus TS1. Concernant l'amplitude des maxima on remarque qu'elle est plus importante dans le cas des électrons de même énergie pour tous les angles d'éjection pour le premier électron. En particulier, pour des électrons d'énergies

dissymétriques on note que les maxima augmentent en amplitude, quand l'énergie du premier électron augmente, dans le cas de $\theta_1 = \theta_K$ et $\theta_1 = \theta_K - 45°$, mais diminuent pour la direction d'éjection $\theta_1 = \theta_K - 90°$.

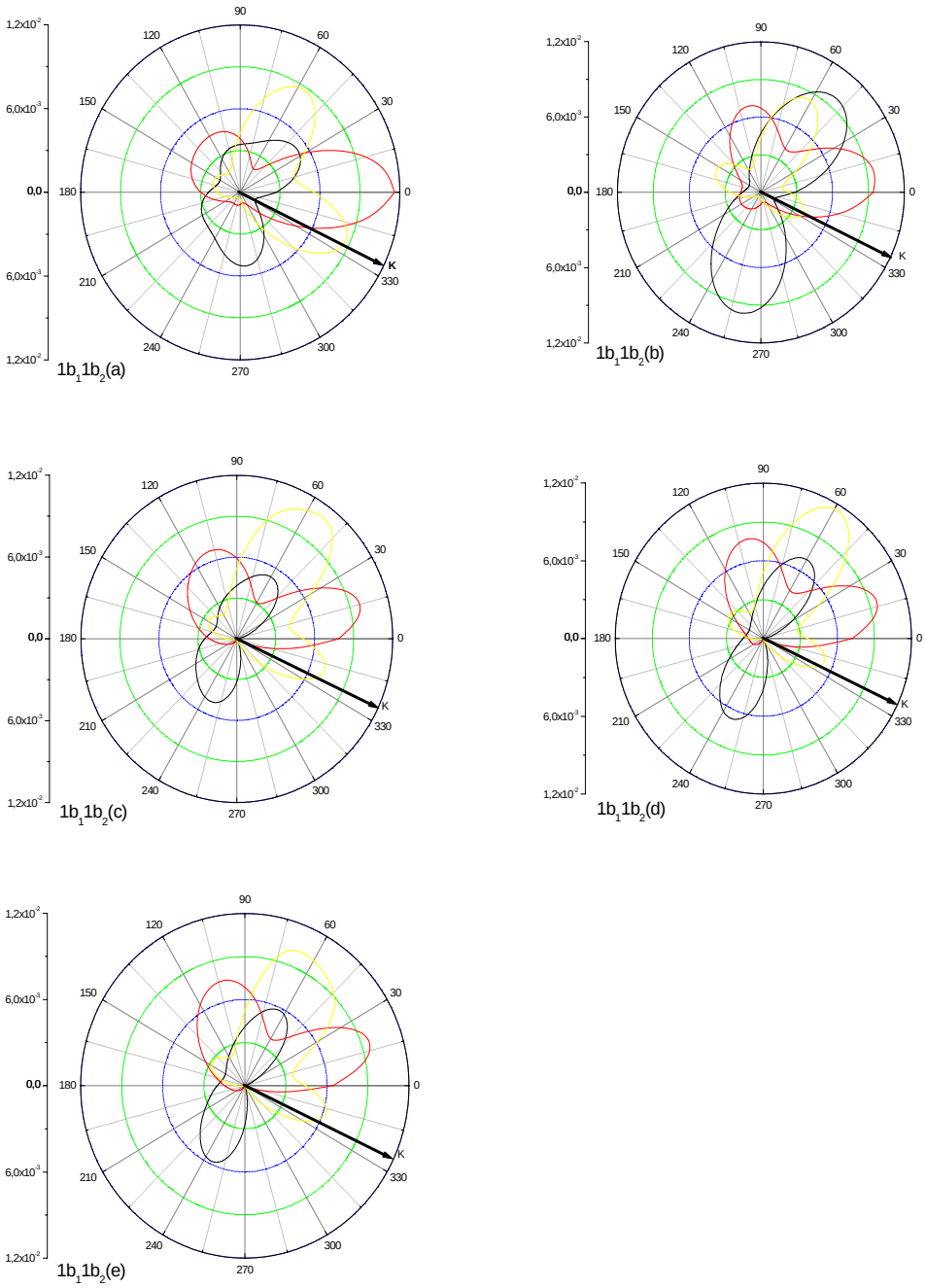



**Figure 4-11:** *même que la figure 4-7 mais pour la SEQD de DI-1b$_1$1b$_2$*

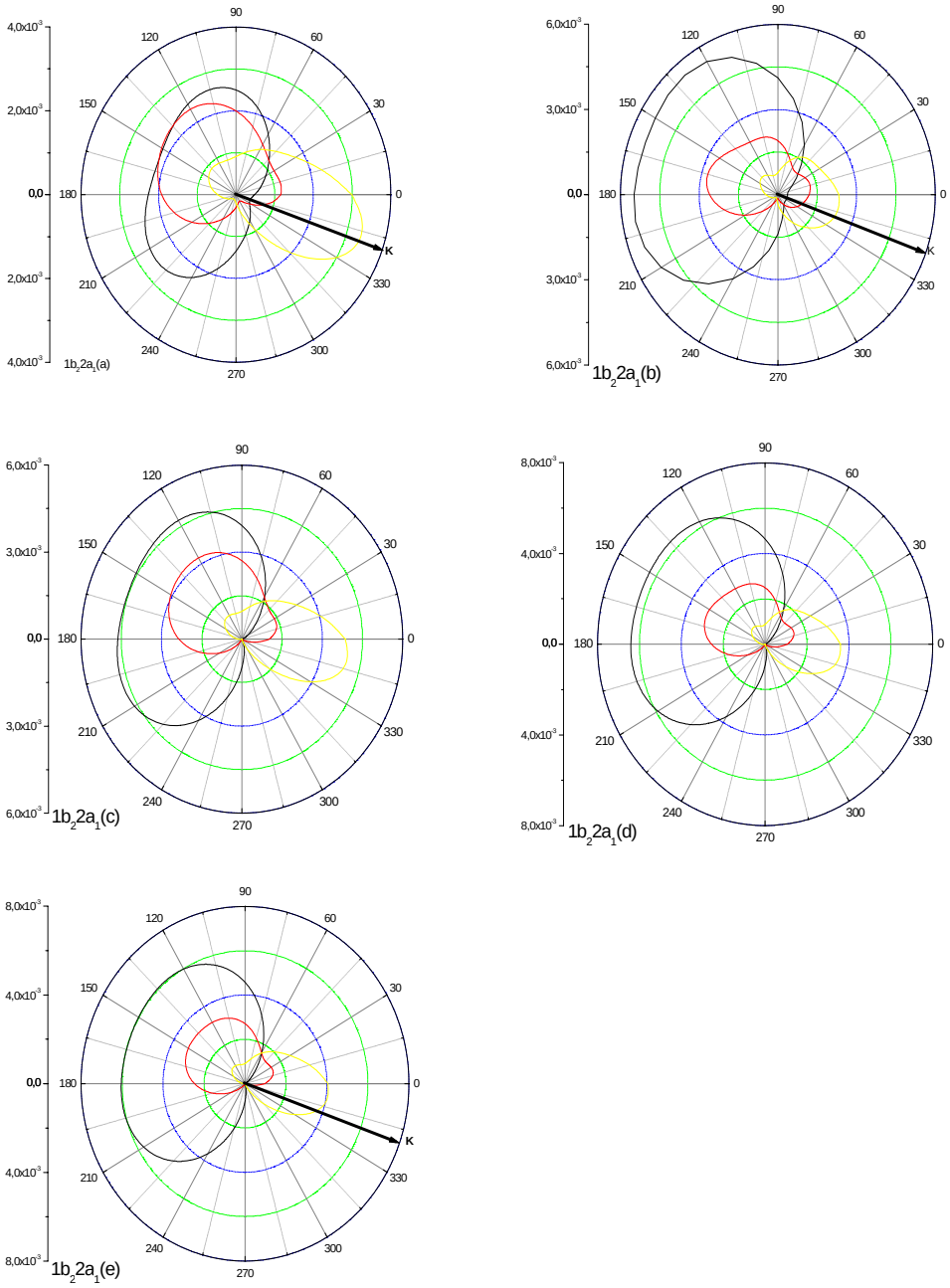



**Figure 4-12 :** *même que la figure 4-7 mais pour la SEQD de DI-$1b_2 2a_1$*

### 4.2.2. Etude de la double ionisation de $H_2O$ par BBK :

Nous considérons la double ionisation de la couche $1b_1$ de la molécule d'eau à haute énergie du projectile avec le modèle BBK.

Notre but est de trouver les conditions cinématiques et géométriques favorables pour réaliser des expériences (e,3e) sur la molécule $H_2O$. Nous étudions le comportement de la SEQD correspondant à la double ionisation de la couche $1b_1$ de $H_2O$ à haute énergie du projectile (1keV) et à faible énergie d'éjection en géométrie coplanaire.

#### 4.2.2.1. Choix de l'angle de diffusion

D'après les résultats de l'étude de double ionisation de l'hélium présentés par Joulakian et Dal Cappello [Joul93], l'angle de détection de l'électron diffusé doit être petit. En effet, dans les expériences (e, 3e) [Lahm02 ; Schr98] le détecteur de l'électron diffusé est généralement installé suivant les directions à faibles angles (0.45°-1.5°). Nous représentons sur les figures 4-13(1 et 2) nos résultats de la SEQD en fonction de l'angle de diffusion dans les deux cas cinématiques particuliers :

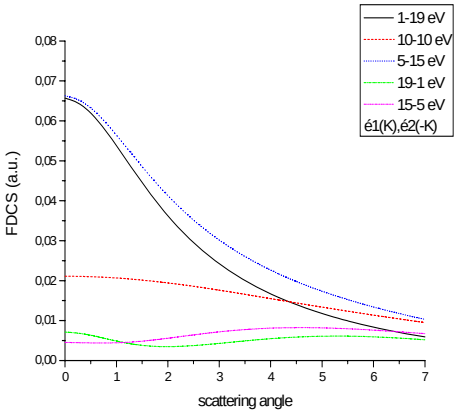



**Figure 4-13(1) :** *SEQD pour la double ionisation de la molécule d'eau par impact électronique de 1keV en fonction de $\theta_d$. Le premier électron est éjecté suivant $\vec{K}$ alors que le second est suivant -$\vec{K}$.*

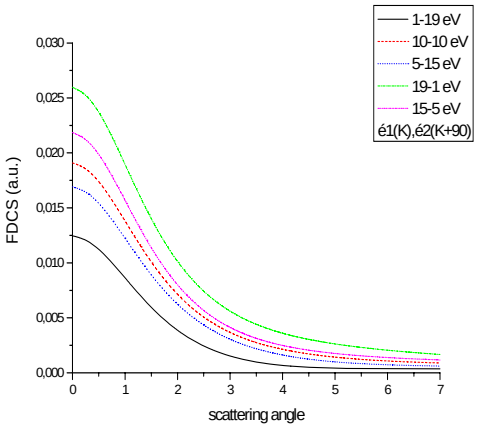



**Figure 4-13(2):** *même que pour la figure 4-13(1) sauf que le second électron est le long d'un axe perpendiculaire à $\vec{K}$.*

Ces figures sont tracées pour les énergies d'éjection: **a)**$E_1=E_2=10eV$ (rouge), **b)**$E_1=5eV$, $E_2=15eV$ (bleue), **c)**$E_1=15eV$, $E_2=5eV$ (rose), **d)**$E_1=1eV$, $E_2=19eV$ (noire), **e)**$E_1=19eV$, $E_2=1eV$ (verte).

Les résultats obtenus ici confirment ceux de Joulakian et Dal Cappello [Joul93] concernant les petits angles de diffusion. On note que le choix (b) dans la figure 4-13(1) donne une large amplitude de la SEQD, tandis que le choix (c) présente un

petit maximum autour de la direction 5.5°. A présent on fixe la valeur de $\theta_d$ à 1° généralement utilisée dans l'expérience (e,3e) [Lahm02 ; Schr98].

#### 4.2.2.2. Choix des énergies d'éjections

Le second paramètre à choisir est l'énergie d'éjection de chaque électron.

**La figure 4-14** représente la variation de la SEQD en fonction des énergies $E_1$ et $E_2$ pour $\theta_d$ = 1°, $\theta_1 = \theta_K$ , $\theta_2 = -\theta_K$. On trouve un maximum pour les valeurs asymétriques des énergies d'éjections (tel que $E_1$=2eV et $E_2$= 18eV).

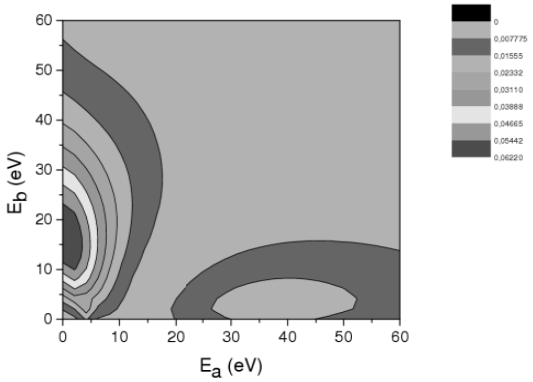



**Figure 4-14 :** *SEQD pour la double ionisation de la molécule d'eau par impact électronique de 1keV avec* $\theta_d$ = 1°, *en fonction des énergies d'éjections des électrons* $E_1$ *et* $E_2$. *Le premier électron est éjecté suivant* $\vec{K}$ *alors que le second est suivant* $-\vec{K}$.

#### 4.2.2.3. Variation de la SEQD en fonction de $\theta_1$ et $\theta_2$

**La figure 4-15(1)** représente la SEQD en géométrie coplanaire en fonction de $\theta_1$ et $\theta_2$ pour des énergies d'éjections égales ; $E_1$= $E_2$= 10eV ; avec $\theta_d$ = 1°. Le maximum est présent à $\theta_1 = 80°$ et $\theta_2 = 220°$ (ou par symétrie $\theta_1 = 220°$ et $\theta_2 = 80°$). Ces valeurs de $\theta_1$ et $\theta_2$ correspondent aux directions perpendiculaires au transfert $\vec{K}$. On note deux gros lobes correspondant au maximum caractérisés par $|\theta_1 - \theta_2| = 140°$ à partir de $\theta_1 = 20°$ jusqu'à $\theta_1 = 150°$ (et de $\theta_1 = 160°$ jusqu'à $\theta_1 = 290°$ dans la partie symétrique). Le premier groupe inclut les valeurs déjà trouvées par Schröter pour la double ionisation du néon ($\theta_1 = 130°$ et $\theta_2 = 240°$).

Ce groupe correspond à une éjection en arrière 'backward', qui peut être expliquée par le processus TS1 : l'électron incident percute, avant d'être diffusé un électron de la cible et l'éjecte suivant $-\vec{K}$. Ce dernier interagit avec un second électron de la cible. D'après Schröter [Schr98], si la deuxième collision est purement élastique, l'angle entre les deux électrons éjectés est de 90°, mais ceci n'est jamais le cas. Et comme cela a été mentionné par Dorn [Dorn02] l'angle entre les deux éjectés peut être considéré de 120°(ou même un peu plus) à cause de la répulsion entre les 2 électrons. Le deuxième groupe (les deux autres lobes) correspondant à $|\theta_1 - \theta_2| =$

$240°$ de $\theta_1 = 0°$ jusqu'à $\theta_1 = 60°$ (et de $\theta_1 = 240°$ jusqu'à $\theta_1 = 300°$ symétriquement), incluent aussi les valeurs trouvées par Schröter [Schr98] pour le néon ($\theta_1 = 50°$ et $\theta_2 = 280°$). Ce groupe correspond à une diffusion vers l'avant qui peut aussi être expliquée par le processus TS1. L'électron incident interagit avec un électron actif de la cible et l'éjecte suivant $+\vec{K}$, après sa première collision cet électron percute le deuxième électron actif de la cible et l'éjecte à son tour. Ici on peut aussi considérer un angle de 120° entre ces deux électrons éjectés. Ainsi on note que les directions $\pm\vec{K}$ ( $\theta_K = 330°$) ne sont pas préférées et donc ne jouent pas un rôle essentiel dans la distribution SEQD.

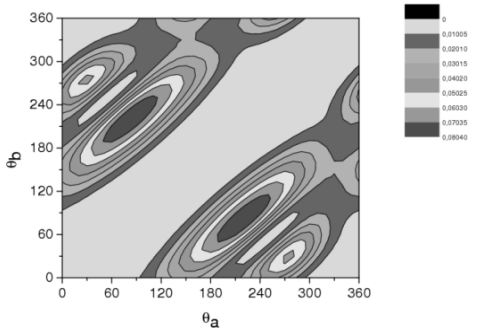



**Figure 4-15(1) :** *SEQD pour la double ionisation de la molécule d'eau par impact électronique de 1keV avec* $\theta_d$ = 1°, *en de* $\theta_1$ *et* $\theta_2$. *Les deux électrons sont de même énergie* $E_1 = E_2 = 10$ *eV*.

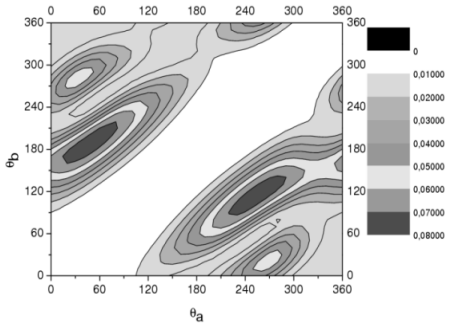



**Figure 4-15(2) :** *même que la figure 4-15-1 sauf pour les énergies des deux électrons* $E_1$ *=5eV et* $E_2$*=15 eV*.

**La figure 4-15(2)** représente la même situation que celle de la figure 4-15-1 mais pour différentes énergies d'éjections ($E_1$= 5eV, $E_2$= 15eV). Dans ce cas on observe aussi que les directions $\pm\vec{K}$ ne jouent pas un rôle important dans la structure de la SEQD, et donc on peut conclure que le mécanisme SO n'est pas le mécanisme de la double ionisation de la molécule d'eau. On distingue quatre crêtes différentes : deux gros lobes correspondant au groupe de maximum indiqué par $|\theta_1 - \theta_2| = 140°$ allant de $\theta_1 = 0°$ jusqu'à $\theta_1 = 130°$ pour la première crête et de $\theta_1 = 170°$ jusqu'à $\theta_1 = 350°$ pour la deuxième. A part la même valeur de l'angle relatif $\theta_{12} = \theta_1 - \theta_2$ , on note ici que la position des maxima est différente de celle de la figure 4-15(1). Ceci est dû aux valeurs asymétriques de l'énergie d'éjection. Si on considère que le mécanisme TS1 est responsable du comportement de la SEQD comme pour la figure 4-15(1), on a donc un électron éjecté suivant$-\vec{K}$ , puis la seconde étape est la collision de ce premier électron éjecté avec un autre électron de la cible. Dans notre cas, l'électron lent de 5eV est éjecté le long de la direction $\theta_1 = \theta_{-K} + 90° \approx 240°$, alors que l'électron rapide est suivant la direction $\theta_2 = \theta_{-K} - 50° \approx 100°$ tel que $|\theta_1 - \theta_2| \approx 140°$. Pour le deuxième gros lobe, on

peut avoir $\theta_1 = \theta_{-K} - 90° \approx 60°$ et $\theta_2 = \theta_{-K} + 50° \approx 200°$ de façon qu'on ait toujours$|\theta_1 - \theta_2| \approx 140°$. Par conséquent et comme première conclusion on peut dire que l'éjection a lieu vers l'arrière (cas similaire à celui de la figure 4-15(1). De plus, la même conclusion que celle trouvée pour la figure 4-15(1), est de nouveau observée pour les deux autres crêtes définies par $|\theta_1 - \theta_2| \approx 250°$ à partir de $\theta_1 = 10°$ jusqu'à $\theta_1 = 60°$ pour le premier maximum et de $\theta_1 = 240°$ jusqu'à $\theta_1 = 290°$ pour le second lobe. Ce dernier groupe est lié à une diffusion vers l'avant, qui est aussi due au mécanisme TS1. On peut d'ailleurs noter qu'on ne peut pas favoriser une situation cinématique par rapport à l'autre (figure 4-15(1 et2)) car le maximum ($\approx 0.08\ au$) de l'amplitude de la SEQD est presque le même dans les deux cas.

#### 4.2.2.6. Distribution angulaire de la SEQD

La SEQD est ici représentée dans des diagrammes polaires (figures de 4-16 à 4-20) pour une géométrie coplanaire, en fonction de l'angle d'éjection $\theta_2$ pour des valeurs fixes de $\theta_1$ avec $\theta_d = 1°$.

**Sur la figure 4-16 :** les électrons éjectés sont de même énergie $E_1$=$E_2$=10eV et le premier éjecté est suivant le sens du transfert $\vec{K}$ ($\theta_1 = \theta_K = 330°$). Le maximum ici est obtenu pour $\theta_2 = -\theta_1(\theta_2 = \theta_{-K})$. Cette position correspond au minimum du moment de recul $\vec{q}$ défini par : $\vec{q} = \vec{K} - \vec{k}_1 - \vec{k}_2$; avec $\vec{q} = \vec{K}$. Ce résultat peut être expliqué par le mécanisme SO où un électron est émis suivant $\vec{K}$ alors que le deuxième se trouve obligé de prendre la direction donnée par le minimum $\vec{q} = \vec{K}$ . Cette direction ( $\vec{k}_2 = -\vec{k}_1$) est due à la forte répulsion dans l'état final. L'émission de dos à dos (Back to Back) des électrons éjectés a toujours été observée (voir [Dor 02]) pour la double ionisation de l'hélium par impact d'électrons.

On en conclut que l'émission dos à dos est ici très faible (0.02ua) devant celle trouvée dans la figure 4-15(1) (0.08 ua).

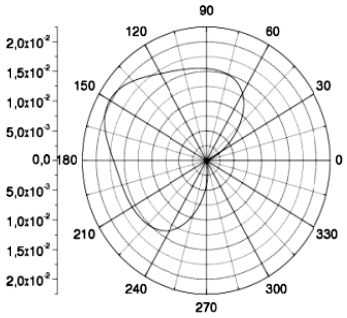



**Figure 4-16 :** *SEQD pour DI-1b$_1$ par impact électronique de 1keV, $\theta_d$ =* 1°, *en fonction $\theta_2$ avec $\theta_1 = \theta_K$. E$_1$ =E$_2$= 10 eV.*

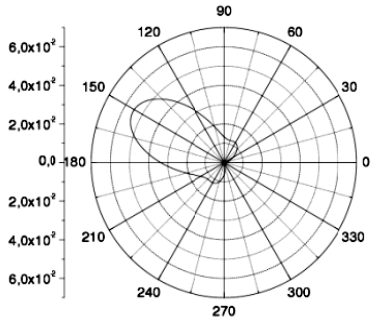



**Figure 4-17 :** *même que pour la figure 4-*16 *où E$_1$ =5ev, E$_2$ =15 eV.*

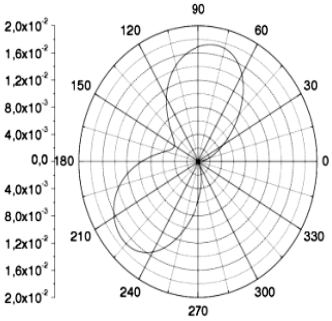



**Figure 4-18:** *même que pour la figure 4-*17 *avec E$_1$ =15ev, E$_2$ =5 eV.*

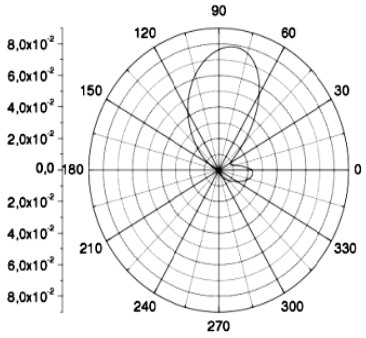



**Figure 4-19 :** *même que pour la figure 4-* 16 *avec $\theta_1 = 220°$. E$_1$=E$_2$=10eV.*

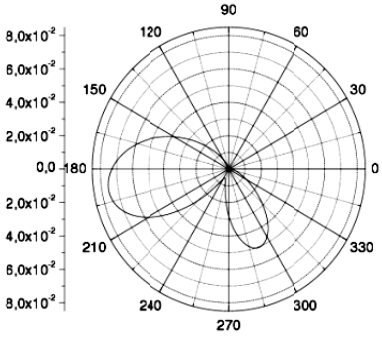



**Figure 4-20 :** *même que pour la figure 4-*17 *avec $\theta_1 = 50°$.*

**La figure 4-17 :** représente la SEQD pour $\theta_1 = \theta_K$ mais pour différentes énergies d'éjections. L'électron lent (5eV) est éjecté le long de $\vec{K}$. On obtient le même résultat que celui de la figure 4-16 où le deuxième électron (15eV) est éjecté dans la direction $\theta_2 = -\theta_K$, ce qui correspond à une émission dos à dos expliquée par le processus SO.

Quand on permute les deux électrons $E_1$=15eV et $E_2$=5eV sur la figure **4-18,** où l'électron rapide est éjecté selon $\vec{K}$, l'autre électron (5eV) est éjecté suivant $\theta_2 = \theta_K \pm 110°$. Ce résultat peut être attribué à une interférence entre les deux mécanismes SO et TS1. On note ainsi que la direction du minimum de recul n'est pas la plus probable pour l'éjection.

**La figure 4- 19** correspond aussi au cas d'égales énergies d'éjection ($E_1$=$E_2$=10eV) mais pour $\theta_1 = 220°$. La SEQD présente un maximum pour $\theta_2 = 80°$ qu'on a expliqué par le TS1 (discussion de la figure 4-15(1)). On observe un autre maximum d'amplitude plus faible à $\theta_2 \approx 350°$, ainsi que la direction du moment de recul minimal qui correspond ici à un minimum de la SEQD.

**La figure 4-20** montre la SEQD comme fonction de $\theta_2$ pour $\theta_1 = 50°$ et pour des énergies d'éjection dissymétriques. L'électron lent (5eV) est éjecté le long de $\theta_1 = 50°$ alors que le second (15eV) est éjecté préférentiellement selon la direction 190°. On trouve aussi $|\theta_1 - \theta_2| \approx 140°$, et ce cas peut également être expliqué par le mécanisme TS1 (comme la figure4-15(2)). D'autre part on note la différence de l'amplitude du deuxième maximum $\theta_2 = 290°$ qui est plus grande que celui de la figure 4-19.

## 3. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté les résultats de l'étude de la double ionisation de l'hélium ainsi que ceux de la double ionisation de la molécule d'eau. La première partie décrit le cas de la réaction (e, 3e) sur l'atome d'hélium à basse énergie. Nos résultats obtenus par le modèle 2CWG et la première approximation de Born ont été comparés à ceux obtenus par d'autres modèles théoriques [Dey06], [El Az05]. L'étude met en valeur le rôle important joué par le choix de la fonction d'onde initiale. La seconde partie présente, pour la première fois, l'étude de la double ionisation de la molécule d'eau par impact d'électrons de 1keV par les modèles 2CWG et BBK. A cause de l'absence des études théoriques et expérimentales de ce processus nous avons effectué des calculs de la section efficace en faisant varier les différents paramètres énergétiques et directionnels, afin de déterminer les conditions les plus favorables pour la réalisation de la double ionisation de la molécule d'eau. L'étude réalisée pour les deux types de processus possibles, où l'éjection des deux électrons provient de la

même couche ou bien de deux couches différentes, nous a permis de déterminer les différents mécanismes réactionnels responsables de la double ionisation de la molécule d'eau.

# Conclusion

L'objectif de ce travail est l'étude de la double ionisation de la molécule d'eau par impact d'électrons rapides. Ce sujet est important dans plusieurs domaines scientifiques, particulièrement dans la modélisation de l'interaction particule chargée- matière vivante.

Après avoir décrit les généralités fondamentales du processus de collision, nous avons rappelé l'historique des réactions (e,3e), le calcul des sections efficaces associées et les différents mécanismes gouvernant cette dernière.

L'étude comparative, sur la double ionisation de l'hélium à basse énergie, basé sur la première approximation de Born et le modèle 2CWG nous a permis d'examiner la validité de ce modèle théorique (ou A3C) vis-à-vis d'autres modèles (6C, GA, SAB) considérés comme généralement en bon accord avec l'expérience. Les résultats encourageants de cette étude confirment l'importance de la bonne description des corrélations de la voie initiale et son influence sur l'accord théorie-expérience.

Dans la deuxième partie nous avons présenté une première étude de la double ionisation de la molécule d'eau par impact d'électrons rapides de 1keV, en décrivant l'état final du système par le modèle 2CWG. Le calcul des sections efficaces quintuplement différentielles SEQD, effectué avec le premier terme de l'approximation de Born, nous a permis d'étudier les divers processus conduisant à la double ionisation. Nous avons pour cela utilisé une fonction d'onde mono-centrique de Moccia. En fait, le processus (e, 3e) peut résulter de l'éjection de deux électrons provenant de la même couche ou bien de deux couches différentes. Ce dernier cas ne peut être ignoré ou sous-estimé, car l'amplitude de la SEQD correspondante est du même ordre que celle d'un processus simple. Les conditions cinématiques et géométriques les plus favorables pour réaliser l'expérience de la double ionisation de la molécule d'eau ont été soigneusement étudiées, et les résultats montrent que le choix de ces conditions est sélectif et semblable à celles déjà utilisées dans les cas des cibles atomiques de même nombre d'électrons (telle que le néon) [Schr98].

D'autre part cette première étude de la double ionisation de la molécule d'eau nous a permis de déterminer le mécanisme réactionnel responsable de chaque processus simple (d'une seule couche) ou mixte (de deux couches). Dans les résultats obtenus ici on peut donc distinguer, selon les conditions cinématiques utilisées, la contribution du mécanisme Shake off ou de TS1 d'un processus à l'autre (pour chaque couche), en plus des effets d'interférences entre ces deux derniers qui se trouvent dans quelques situations (DI-$1b_1 1b_2$).

Enfin, et pour l'étude de la double ionisation de la molécule d'eau en utilisant le modèle BBK, le calcul est réalisé avec une quadruple somme au lieu d'une intégrale à 3 dimensions, ce qui a largement réduit le temps de calcul numérique. Les

résultats montrent ici que les formes de la SEQD sont aussi semblables à celles trouvés par Schröter dans le cas du néon [Schr98]. De plus, et en comparant les résultats de l'étude par 2CWG (de la DI-$1b_1$) avec celle effectuée par BBK on peut voir une ressemblance dans la forme de la SEQD ainsi que les mécanismes réactionnels responsables du processus associé. Ceci nous permet de confirmer la conclusion faite dans la première partie (DI-Hélium) où la validité du modèle 2CWG a été établie.

# Annexes

## A. Comportement asymptotique de la fonction 3C

Pour les grandes valeurs de *r* les fonctions hypergéométriques ont le comportement suivant :

$$ {}_1F_1\left(i\alpha, 1, -i\left(\vec{k}.\vec{r}+kr\right)\right) \rightarrow \frac{e^{-i\alpha\,\ln\left(\vec{k}.\vec{r}+kr\right)}}{e^{-\frac{\pi\alpha}{2}}\,\Gamma(1-i\alpha)} \qquad \text{(A-1)} $$

La fonction 3C s'écrit donc sous la forme :

$$ \Psi_{3C} \rightarrow \frac{e^{i\left(\vec{k}_1.\vec{r}_1+\vec{k}_2.\vec{r}_2\right)}}{(2\pi)^3}\, e^{-i\phi} \qquad \text{(A-2)} $$

où la phase ϕ est donnée par :

$$ \phi = \alpha_1 \ln\left(\vec{k}_1.\vec{r}_1 + k_1 r_1\right) + \alpha_2 \ln\left(\vec{k}_2.\vec{r}_2 + k_2 r_2\right) + \alpha_{12} \ln\left(\vec{k}_{12}.\vec{r}_{12} + k_{12} r_{12}\right) \qquad \text{(A-3)} $$

D'autre part, et pour un potentiel à grande portée, la fonction d'onde solution de l'équation de Schrödinger peut être écrite comme un produit de fonctions

$$ \psi_f^c = \psi_f e^{i\phi} \qquad \text{(A-4)} $$

avec

$$ \psi_f = \frac{e^{i\left(\vec{k}_1.\vec{r}_1+\vec{k}_2.\vec{r}_2\right)}}{(2\pi)^3} \qquad \text{(A-5)} $$

une onde plane, décrivant les particules libres, modulée par la phase $\phi$ générée par le potentiel.

Après de nombreuses étapes simplificatrices et arrangements mathématiques, que nous évitons de détailler ici, la résolution de l'équation :

$$ H\psi_f^c = E_f \psi_f^c \qquad \text{(A-6)} $$

nous permet d'avoir l'expression du déphasage :

$$ \phi^{\pm} = \frac{-Z}{k_1} \ln\left(\vec{k}_1.\vec{r}_1 + k_1 r_1\right) + \frac{-Z}{k_2} \ln\left(\vec{k}_2.\vec{r}_2 + k_2 r_2\right) + \frac{1}{k_{12}} \ln\left(\vec{k}_{12}.\vec{r}_{12} + k_{12} r_{12}\right) \qquad \text{(A-7)} $$

où

$$ \frac{-Z}{k} = \alpha \qquad \text{(A-8)} $$

Par conséquent nous obtenons la forme finale de la fonction d'onde asymptotique totale pour le problème à trois corps dans un potentiel coulombien telle que

$$ \psi_f^c = \psi_f e^{i\phi} \qquad \text{(A-9)} $$

## B. Calcul de l'intégrale I

Nous voulons évaluer l'élément de matrice

$$I = \left\langle \frac{e^{i\vec{k}.\vec{r}}}{(2\pi)^{3/2}} \phi_c(\vec{k};\vec{r}) \middle| e^{i\vec{K}.\vec{r}} \middle| \psi_{n,\ell,m}(\vec{r}) \right\rangle \quad \text{(B-1)}$$

Où $\phi_c(\vec{k};\vec{r})$est une fonction d'onde coulombienne et $\psi_{n,\ell,m}(\vec{r})$ une fonction de type Clémenti. Cette fonction est la somme de termes de fonctions de Slater écrite sous la forme :

$$\psi_{n,\ell,m}(\vec{r}) = \sum_{n,\xi,\alpha} R_{nl}(\xi, r) Y_l^m(\theta, \varphi) \quad \text{(B-2)}$$

avec

$R_{nl}(\xi, r) = \frac{2\xi^{n+1/2}}{\sqrt{(2n)!}} r^{n-1} e^{-\xi r}$ la partie radiale et $Y_l^m(\theta, \varphi)$ les harmoniques sphériques.

L'élément I s'écrit donc sous la forme de plusieurs termes du type :

$$J = \left\langle \frac{e^{i\vec{k}.\vec{r}}}{(2\pi)^{3/2}} e^{\frac{-\pi\alpha}{2}} \Gamma(1 - i\alpha)\, {}_1F_1\left(i\alpha, 1, -i(\vec{k}.\vec{r} + kr)\right) \middle| e^{i\vec{K}.\vec{r}} \middle| R_{nl}(\xi, r) Y_l^m(\theta, \varphi) \right\rangle \quad \text{(B-3)}$$

${}_1F_1\left(i\alpha, 1, -i(\vec{k}.\vec{r} + kr)\right)$ est une fonction hypergéométrique

$\alpha$ est un coefficient de Sommerfeld : $\alpha = \frac{Z}{k}$

et $\Gamma(x)$ la fonction gamma usuelle.

Le calcul de ce terme se fait en utilisant la même méthode développée par Brothers et Bonham [Brot84]. Nous explicitons le calcul des termes 1s et 2p0 à titre d'exemples.

**1) Calcul de J (1s) :**

Dans ce cas l'élément **J** s'écrit comme :

$$J = \left\langle \frac{e^{i\vec{k}.\vec{r}}}{(2\pi)^{3/2}} e^{\frac{-\pi\alpha}{2}} \Gamma(1 + i\alpha)\, {}_1F_1\left(-i\alpha, 1, -i(\vec{k}.\vec{r} + kr)\right) \middle| e^{i\vec{K}.\vec{r}} \middle| \frac{\xi^{3/2}}{\sqrt{\pi}}\, e^{-\xi r} \right\rangle \quad \text{(B-4)}$$

En utilisant la propriété de la fonction ${}_1F_1$ :

$${}_1F_1(a, c; z) = \frac{\Gamma(c)}{\Gamma(a)\Gamma(c-a)} \int_0^1 t^{a-1}(1-t)^{c-a-1} e^{zt} dt \quad \text{(B-5)}$$

on obtient:

$${}_1F_1\left(i\alpha, 1, -i(\vec{k}.\vec{r} + kr)\right) = \frac{1}{\Gamma(i\alpha)\Gamma(1-i\alpha)} \int_0^1 t^{i\alpha-1}(1-t)^{-i\alpha} e^{ikrt} e^{i\vec{k}.\vec{r}t} dt \quad \text{(B-6)}$$

d'où l'expression intégrale de l'élément J :

$$J = C \int_0^1 t^{i\alpha-1}(1-t)^{-i\alpha}\, dt \underbrace{\int e^{i(\vec{K}-\vec{k}).\vec{r}} e^{i\vec{k}.\vec{r}} e^{ikr} e^{-\xi r} \overrightarrow{dr}}_{\text{Transformée de Fourier}} \quad \text{(B-7)}$$

$$C = \left[\frac{e^{\pi\alpha/2}}{(2\pi)^{3/2}} \Gamma(1 - i\alpha)\right] \frac{\xi^{3/2}}{\sqrt{\pi}} \left[\frac{1}{\Gamma(i\alpha)\Gamma(1 - i\alpha)}\right]$$

En utilisant le résultat mathématique :

$$\int e^{i\vec{q}.\vec{r}} e^{-\beta r} y_l^m \overrightarrow{dr} = 4\pi(2i)^l l! \left(\frac{-d}{d\xi}\right)^{1+k} \left(\frac{q^l y_l^m(\theta_p,\phi_p)}{(q^2+\beta^2)^{l+1}}\right) \quad \text{(B-8)}$$

(k est celui utilisé lors de la description des fonctions de Slater: k=0 pour 1s, 2p, 3d ; K=1 pour2s, 3p, …)

on obtient l'expression simple:

$$J = C.4\pi \left(\frac{-d}{d\xi}\right) \int_0^1 \frac{t^{i\alpha-1}(1-t)^{-i\alpha}}{q^2+\beta^2}\, dt \quad \text{(B-9)}$$

où on a posé

$$\begin{cases} \vec{q} = \vec{K} - \vec{k}(1-t) \\ \beta = \xi - ikt \end{cases} \quad \text{(B-10)}$$

avec

$$\begin{cases} q^2 + \beta^2 = A + Bt \\ A = \left(\vec{K} - \vec{k}\right)^2 + \xi^2 \\ B = -2\left(k^2 + i\xi k - \vec{K}.\vec{k}\right) \end{cases} \quad \text{(B-11)}$$

Donc :

$$J = C.4\pi \left(\frac{-d}{d\xi}\right) \int_0^1 t^{i\alpha-1}(1-t)^{-i\alpha} \left(\frac{1}{A}\right)(1+wt)^{-1} dt \quad \text{(B-12)}$$

avec $w = \frac{-B}{A}$ et $A + B = K^2 + \xi^2 - k^2 - 2i\xi k.$

Nous nous servons maintenant de la forme intégrale des fonctions ${}_2F_1$ :

$$\int_0^1 t^{b-1}(1-t)^{c-b-1}(1-wt)^{-a} dt = \frac{\Gamma(b)\Gamma(c-b)}{\Gamma(c)}\, {}_2F_1(a,b,c;w) \quad \text{(B-13)}$$

où on a dans notre cas : $b = i\alpha$ ; $a = 1$; $c - b - 1 = -i\alpha \implies c = 1.$

on obtient donc :

$$\int_0^1 t^{i\alpha-1}(1-t)^{-i\alpha}(1-wt)^{-1} dt = \frac{\Gamma(i\alpha)\Gamma(1-i\alpha)}{\Gamma(1)}\, {}_2F_1(1,i\alpha,1;w) \quad \text{(B-14)}$$

La fonction ${}_2F_1$ peut s'écrire sous la forme :

$${}_2F_1(a,b,c;w) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(a)_n (b)_n}{(c)_n} \frac{w^n}{n!} \quad \text{(B-15)}$$

avec $(a)_0 = 1$ et $(a)_n = a(a+1)\dots(a+n-1).$

et

$${}_2F_1(1,i\alpha,1;w) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(1)_n (i\alpha)_n}{(1)_n} \frac{w^n}{n!} = 1 + i\alpha w + i\alpha(i\alpha+1)\frac{w^2}{2!} + \cdots \quad \text{(B-16)}$$

qui n'est rien d'autre que le développement limité de $(1-w)^{-i\alpha}$ ; donc :

$${}_2F_1(1,i\alpha,1;w) = (1-w)^{-i\alpha} \quad \text{(B-17)}$$

par conséquent :

$$J = \left[\frac{e^{\pi\alpha/2}}{(2\pi)^{3/2}}\Gamma(1-i\alpha)\right]\frac{\xi^{3/2}}{\sqrt{\pi}} 4\pi \left(\frac{-d}{d\xi}\right)\left[\frac{1}{A}\left(1+\frac{B}{A}\right)^{-i\alpha}\right] \quad \text{(B-18)}$$

ou encore

$$J = e^{\pi\alpha/2}\Gamma(1-i\alpha)\frac{\xi^{3/2}}{\pi}\sqrt{2}\left(\frac{-d}{d\xi}\right)\left[A^{i\alpha-1}\,(A+B)^{-i\alpha}\right] \quad \text{(B-19)}$$

On pose $f = A^{i\alpha-1}$ et $g = (A+B)^{-i\alpha}$ on obtient :

$$\frac{d}{d\xi}(f.g) = f'g + fg' \quad \text{(B-20)}$$

où

$$\begin{cases} f' = 2\xi(i\alpha-1)A^{i\alpha-2} \\ g' = 2(\xi-ik)(-i\alpha)(A+B)^{-i\alpha-1} \end{cases} \quad \text{(B-21)}$$

Enfin :

$$J = e^{\pi\alpha/2}\Gamma(1-i\alpha)\frac{\xi^{3/2}}{\pi}\sqrt{2}\begin{bmatrix} 2\xi(i\alpha-1)A^{i\alpha-2}(A+B)^{-i\alpha} + \\ A^{i\alpha-1}2(\xi-ik)(-i\alpha)(A+B)^{-i\alpha-1} \end{bmatrix} \quad \text{(B-22)}$$

On peut vérifier ainsi

- qu'on retrouve la simple transformée de Fourier quand z=0 :

$$z = 0 \Longrightarrow J = \frac{\xi^{3/2}}{\pi}\sqrt{2}[2\xi A^{-2}] = \frac{2^{3/2}\xi^{5/2}}{\pi(\xi^2+p^2)} \quad \text{(B-23)}$$

$$J = \chi_{1s}(\vec{p}) = \frac{2^{5/2}\xi^{5/2}}{\sqrt{\pi}2\sqrt{\pi}(\xi^2+p^2)} \quad \text{(B -24)}$$

- que $J_{1s}(K=0) = 0$ quand $z = \xi$ et $K = 0$.

**2) Calcul de J ($2p_0$) :**

$$J = \left\langle \frac{e^{i\vec{k}.\vec{r}}}{(2\pi)^{3/2}} e^{\frac{-\pi\alpha}{2}}\Gamma(1+i\alpha)\ {}_1F_1\left(-i\alpha, 1, -i(\vec{k}.\vec{r}+kr)\right)\left| e^{i\vec{K}.\vec{r}}\right| 2\frac{\xi^{5/2}}{\sqrt{3}}\ re^{-\xi r}y_1^0\right\rangle \quad \text{(B-25)}$$

En utilisant l'expression (B-5) de ${}_1F_1$ on trouve :

$$J = C\int_0^1 t^{i\alpha-1}(1-t)^{-i\alpha}\,dt \underbrace{\int e^{i(\vec{K}-\vec{k}).\vec{r}}e^{i\vec{k}.\vec{r}}e^{ikr}re^{-\xi r}y_1^0\overrightarrow{dr}}_{\text{Transformée de Fourier}} \quad \text{(B -26)}$$

avec $C = \left[\frac{2e^{\pi\alpha/2}\xi^{5/2}}{\sqrt{3}(2\pi)^{3/2}\Gamma(i\alpha)}\right]$.

en mettant

$$\begin{cases} \vec{q} = \vec{K} - \vec{k}(1-t) \\ \beta = \xi - ikt \end{cases}$$

Et en se servant du résultat (B -8) on obtient:

$$J = C.8\pi i\left(\frac{-d}{d\xi}\right)\int_0^1 \frac{t^{i\alpha-1}(1-t)^{-i\alpha}qy_1^0(\theta_q,\phi_q)}{(q^2+\beta^2)^2}\,dt \quad \text{(B-27)}$$

Sachant que $y_1^0(\theta,\phi) = \sqrt{\frac{3}{4\pi}}\cos\theta$ nous arrivons à :

$$J = C.8\pi i\sqrt{\frac{3}{4\pi}}\left(\frac{-d}{d\xi}\right)\int_0^1 \frac{t^{i\alpha-1}(1-t)^{-i\alpha}q\cos(\theta_q)}{(q^2+\beta^2)^2}\,dt \qquad \text{(B-28)}$$

Et au moyen des définitions de $\vec{q}$ et de $\beta$ on obtient facilement :

$$J = -C'\frac{d}{d\xi}\left[\int_0^1 \frac{(1-t)^{-i\alpha}(\gamma t^{i\alpha-1}+\delta t^{i\alpha})}{(A+Bt)^2}dt\right] \qquad \text{(B-29)}$$

car

$$\begin{cases} q\cos\theta_q = [K\cos\theta_K - k\cos\theta] + [k\cos\theta]t = \gamma + \delta t \\ q^2+\beta^2 = A + Bt \end{cases} \qquad \text{(B-30)}$$

$C' = C.8\pi i\sqrt{\frac{3}{4\pi}}$ , A et B sont données par l'expression (B -11).

La forme intégrale de la fonction ${}_2F_1$ (B-13) nous permet d'écrire :

$$J = -C'\frac{d}{d\xi}\left(\gamma\frac{\Gamma(i\alpha)\Gamma(1-i\alpha)}{A^2\Gamma(1)}\ {}_2F_1(2,i\alpha,1;w) + \delta\frac{\Gamma(1+i\alpha)\Gamma(1-i\alpha)}{A^2\Gamma(2)}\ {}_2F_1(2,1+i\alpha,2;w)\right) \qquad \text{(B-31)}$$

En plus des expressions (B-15,17) on a les deux formules :

$$\frac{d^n}{dw^n}[\,{}_2F_1(a,b,c;w)] = \frac{(a)_n(b)_n}{(c)_n}\ {}_2F_1(a+n,b+n,c+n,w) \qquad \text{(B-32)}$$

$$\frac{d^n}{dw^n}[\,{}_2F_1(a,b,c;w).w^{a+n+1}] = (a)_n w^{a-1}\ {}_2F_1(a+n,b,c,w) \qquad \text{(B-33)}$$

qui nous donnent:

$$\begin{aligned} {}_2F_1(2,i\alpha,1;w) &= \frac{d}{dw}\left[w(1-w)^{-i\alpha}\right] \\ &= (1-w)^{-i\alpha} + i\alpha w(1-w)^{-i\alpha-1} \end{aligned} \qquad \text{(B-34)}$$

$${}_2F_1(2,i\alpha+1,2;w) = (1-w)^{-i\alpha-1} \qquad \text{(B-35)}$$

Ce qui nous permet d'avoir:

$$\frac{{}_2F_1(2,i\alpha,1;w)}{A^2} = (A+B)^{-i\alpha}A^{i\alpha-2} - i\alpha B(A+B)^{-i\alpha-1}A^{i\alpha-2} \qquad \text{(B-36)}$$

$$\frac{{}_2F_1(2,i\alpha+1,2;w)}{A^2} = (A+B)^{-i\alpha-1}A^{i\alpha-1} \qquad \text{(B-37)}$$

sachant que $\Gamma(1+i\alpha) = i\alpha\Gamma(i\alpha)$ et que $\Gamma(1) = 1$ on peut écrire l'élément **J** sous la forme :

$$J = -C''\frac{d}{d\xi}\left[(A+B)^{-i\alpha-1}A^{i\alpha-2}\left(\gamma\left(A+B(1-i\alpha)\right)+\delta i\alpha A\right)\right] \qquad \text{(B-38)}$$

$C'' = \frac{i\sqrt{2}e^{\pi\alpha/2}\Gamma(1-i\alpha)\xi^{5/2}}{\pi}$

Il suffit de mettre

$$f = A^{i\alpha-2}\ ,\ \ g = (A+B)^{-i\alpha-1} \text{ et } h = \gamma\big(A + B(1-i\alpha)\big) + \delta i\alpha A$$

Pour obtenir la forme finale de **J :**

$$J = -C"[f'gh + fg'h + fgh'] \tag{B-39}$$

$(f', g', h')$ sont les dérivées partielle de $(f, g, h)$ par rapport à $\xi$ données par :

$$\begin{cases} f' = 2\xi(i\alpha-2)A^{i\alpha-3} \\ g' = -2(i\alpha+1)(\xi-ik)(A+B)^{-i\alpha-2} \\ h' = \gamma\big(2\xi - 2ik(1-i\alpha)\big) + 2i\alpha\delta\xi \end{cases} \tag{B-40}$$

Ce calcul était effectué pour la première foi par Brothers et Bonham[Brot84] pour les états 1s, 2s, $2p_0$, $2p_1$, $2p_{-1}$, $3p_0$, $3p_1$, $3p_{-1}$, $4p_0$, $4p_1$, $4p_{-1}$ puis étendu par C. Dal Cappello dans sa thèse de doctorat (non publiée) aux états : 3s, 4s, $3d_0$, $3d_1$, $3d_{-1}$, $3d_2$, $3d_{-2}$, $4f_0$, $4f_1$, $4f_{-1}$, $4f_2$, $4f_{-2}$, $4f_3$, $4f_{-3}$.

Le même raisonnement peut être appliqué dans le calcul des autres termes. Toutes ces expressions analytiques ont été vérifiées par un calcul numérique (intégrales triples B-1).

## C. Calcul des termes $T_{K,i}^{l_j,l_k,m_j,m_k}$(i=0,1,2)

le calcul des termes de l'équation (3-70) exige une intégrale de base plus générale que celle utilisée par Joulakian [Joul92].

$$J(\lambda,a,b,\vec{u},\vec{v},\vec{p},\vec{w},\vec{k}_1,\vec{k}_2)=\iint \overrightarrow{dr_1}\overrightarrow{dr_2}\frac{exp(-\lambda r_{12})}{r_{12}}\frac{exp(-ar_1)}{r_1}\frac{exp(-br_2)}{r_2}$$
$$\times exp\left(i(\vec{u}+\vec{p}-\vec{k}_1).\vec{r}_1\right)exp\left(i(\vec{v}+\vec{w}-\vec{k}_2).\vec{r}_2\right)$$
$$\times\ {}_1F_1\left(i\alpha_1,1,i(\vec{k}_1.\vec{r}_1+k_2r_2)\right)$$
$$\times\ {}_1F_1\left(i\alpha_2,1,i(\vec{k}_2.\vec{r}_2+k_1r_1)\right)$$
$$\times\ {}_1F_1\left(-i\alpha_{12},1,i(\vec{k}_{12}.\vec{r}_{12}+k_{12}r_{12})\right) \qquad \text{(C-1)}$$

L'intégrale à six dimensions peut être réduite à une intégrale double si on utilise la méthode de Roy [Roy 80] et celle de Brauner [Bra 89].
Dans notre cas nous avons à calculer :

$$I(\xi,\xi',\vec{K},\vec{k}_1,\vec{k}_2)=\iint \overrightarrow{dr_1}\overrightarrow{dr_2}exp\left(i(\vec{K}-\vec{k}_1).\vec{r}_1\right)exp\left(-i\vec{k}_2.\vec{r}_2\right)$$
$$\times\ {}_1F_1\left(i\alpha_1,1,i(\vec{k}_1.\vec{r}_1+k_1r_1)\right)$$
$$\times\ {}_1F_1\left(i\alpha_2,1,i(\vec{k}_2.\vec{r}_2+k_2r_2)\right)$$
$$\times\ {}_1F_1\left(-i\alpha_{12},1,i(\vec{k}_{12}.\vec{r}_{12}+k_{12}r_{12})\right)$$
$$\times R_{n_j,l_j}(r_1)R_{n_k,l_k}(r_2)Y_{l_j}^{m_j}(\hat{r}_1)Y_{l_k}^{m_k}(\hat{r}_2) \qquad \text{(C-2)}$$

Si on prend $n_j=n_k=2$ , $l_j=l_k=1$ et $m_j=m_k=0$ :

$$I_{1,1,0,0}(\xi,\xi',\vec{K},\vec{k}_1,\vec{k}_2)=\frac{(\xi\xi')^{5/2}}{\pi}\frac{d^5}{dp_z dw_z d\lambda d\xi d\xi'}$$
$$\times J(\lambda=0,a,b,\vec{u}=\vec{K},\vec{v}=0,\vec{p}=0,\vec{w}=0,\vec{k}_1,\vec{k}_2)$$

## D. Exemple d'evaluation du terme $T_{K,1}^{l_j,l_k,m_j,m_k}$ au moyen des propriétés des matrices de rotations

Nous partons de l'équation (3-67) avec :

$$n_j = n_k = 2 \ , l_j = l_k = 1 \text{ et } m_j = m_k = 1 :$$

Nous avons

$$T_0^{1,1,1,1} = \left\langle \Psi_{3C}^{-} \middle| R_{2,1}(r_1) R_{2,1}(r_2) y_1^1(\hat{r}_1) y_1^1(\hat{r}_1) \right\rangle \qquad \text{(D-1)}$$

Puis nous considérons un terme typique de la SEQD. En utilisant l'équation (3-73) nous obtenons :

$\frac{1}{8\pi^2} \iint T_0^{1,1,1,1} \left(T_0^{1,1,1,1}\right)^* \mathrm{d}\Omega_{\mathrm{Euler}} =$

$$\begin{aligned}
&\tfrac{1}{5}\Big[T_0^{1,1,-1,-1}\left(T_0^{1,1,-1,-1}\right)^* + \\
&\left(\tfrac{1}{2}\right)\Big(T_0^{1,1,-1,0}\left(T_0^{1,1,-1,0}\right)^* + T_0^{1,1,-1,0}\left(T_0^{1,1,0,-1}\right)^* \\
&\quad + T_0^{1,1,0,-1}\left(T_0^{1,1,0,-1}\right)^* + T_0^{1,1,0,-1}\left(T_0^{1,1,-1,0}\right)^* \\
&\quad + T_0^{1,1,0,1}\left(T_0^{1,1,0,1}\right)^* + T_0^{1,1,0,1}\left(T_0^{1,1,1,0}\right)^* \\
&\quad + T_0^{1,1,1,0}\left(T_0^{1,1,1,0}\right)^* + T_0^{1,1,1,0}\left(T_0^{1,1,0,1}\right)^*\Big) + \\
&\left(\tfrac{1}{6}\right)\Big(T_0^{1,1,-1,1}\left(T_0^{1,1,-1,1}\right)^* + T_0^{1,1,-1,1}\left(T_0^{1,1,1,-1}\right)^* \\
&\quad + T_0^{1,1,1,-1}\left(T_0^{1,1,1,-1}\right)^* + T_0^{1,1,1,-1}\left(T_0^{1,1,-1,1}\right)^*\Big) + \\
&\left(\tfrac{1}{3}\right)\Big(T_0^{1,1,-1,1}\left(T_0^{1,1,0,0}\right)^* + T_0^{1,1,0,0}\left(T_0^{1,1,-1,1}\right)^* \\
&\quad + T_0^{1,1,0,0}\left(T_0^{1,1,1,-1}\right)^* + T_0^{1,1,1,-1}\left(T_0^{1,1,0,0}\right)^*\Big) + \\
&\left(\tfrac{2}{3}\right)\Big(T_0^{1,1,0,0}\left(T_0^{1,1,0,0}\right)^*\Big) + T_0^{1,1,1,1}\left(T_0^{1,1,1,1}\right)^*\Big]
\end{aligned} \qquad \text{(D-2)}$$

Les autres termes sont obtenus en suivant la même procédure de ce développement pour toutes les valeurs permises par les règles de sélections.

# Bibliographie

[Agre75] *H Agren, S Svensson et U I Wahlgren, Chem. Phys. Lett.* ***35,*** *336 (1975).*

[Alle62] *J C Allen, J. Chem. Phys.* ***37****, 200 (1962).*

[Anca04] *L U Ancarani, T Montagnese et C Dal Cappello, Phys. Rev. A* ***70****, L2711 (2004).*

[Anca05] *L U Ancarani, T Montagnese et C Dal Cappello, Int Conference Electron and Photon impact ionisation and related topics, IOP publishing (2005).*

[Atki] *P Atkins* and *R Friedman, Molecular Quantum Mechanics, Oxford University Press 4Ed.*

[Bera93] *J Berakdar et H Klar, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***26****, 4219(1993).*

[Bera96] *J Berakdar, Phys. Rev. A* ***53****, 2281(1996).*

[Bera00] *J Berakdar, Phys. Rev. Lett.* ***85,*** *4036 (2000).*

[Bera02] *J Berakdar, From few body scattering to phase transition in the series Recent Research Development in physics, vol2, Transworld Research Network Trivandrum, (2002), ISBN 81, 7895-024-3.*

[Bera03] *J Berakdar, A Lahmam-Bennani et C Dal Cappello, Phys. Rep.* ***374,*** *91(2003).*

[Beth30] *H A Bethe, Ann. Phys., Lpz,* ***5,*** *325 (1930).*

[Boey06] *R W Boeyen, N Watanabe, J W Cooper, J B Doering, J H Moore et M A Coplan, Phys. Rev. A* ***73****, 032703(2006).*

[Born26] *M Born, Z. Phys.****38****, 803 (1926).*

[Bola86] *M A Bolarisadeh et M E Rudd, Phys. Rev. A* ***33,*** *888 (1986).*

[Bolo03] *P Bolognesi, C C Jia, L Avaldi, A Lahmam-Bennani, K A Kouzakov et Yu V Popov, Phys. Rev. A* ***67****, 034701(2003).*

[Boud00] *B Boudaiffa, P Cloutier, D Hunting, M A Huels et L Sanche, Science* ***287****, 1658 (2000).*

[Boud07] *O Boudrioua thèse de doctorat, Université Paul Verlaine Metz France (2007).*

[Boud07] *O Boudrioua, C Champion, C Dal Cappello Et Yu V Popov, Phys. Rev. A* ***75,*** *022720 (2007).*

[Brau89] *M Brauner, J S Briggs et H Klar, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***22****, 2265 (1989).*

[Bray92] *I Bray et A T Stelbovics, Phys. Rev. A* ***46,*** *6995 (1992).*

[Brow04] *D S Milne Brownlie, S J Cavanagh, B Lohmann, C Champion, P A Hervieux et J Hanssen, Phys. Rev. A* ***69,*** *032701 (2004).*

[Byro66] *F W Jr Byron et C J Joachain, Phys. Rev. Lett.* ***16****, 1139 (1966).*

[Byro67] *F W Jr Byron et C J Joachain, Phys. Rev. Lett.* ***157,*** *1 (1967).*

[Byro83] *F W Jr Byron, C J Joachain et B Piraux, Phys. Rev. Lett.* ***9,*** *427 (1983).*

[Cham01] *C Champion, J Hanssen et P A Hervieux, Phys. Rev. A* ***63,*** *052720 (2001).*

[Cham02] *C Champion, J. Hanssen et P A Hervieux, J. Chem. Phys.****117,*** *197 (2002).*

[Chou03] *R Choubisa, G Porohit et K K Sud, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***36****, 1731 (2003).*

[Coop04] *J W Cooper et R W Van Boeyen, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***37****, L77 (2004).*

[Chul08] *O Chuluunbaatar, B Joulakian, IV Puzynin, Kh Tsookhuuet S I Vinitsky, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***41****, 015204 (2008).*

[Dal91] *C Dal Cappello et H Le Rouzo, Phys. Rev. A* ***43,*** *1395 (1991).*

[Dal95] *C Dal Cappello, H Hda et A C Roy, Phys. Rev. A* ***51,*** *3735(1995).*

[Dal98] *C Dal Cappello, R El Mkhanter et P A Hervieux, Phys. Rev. A* ***57,*** *R693 (1998).*

[Dey06] *R Dey, C Roy et C Dal Cappello, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***39,*** *955 (2006).*

[Dorn99] *A Dorn, R Moshammer, C D Schröter, T J M Zouros, W Schmitt, H Kollmus, R Mann et J Ullrich, Phys. Rev. Lett* ***82****, 2496 (1999)*

[Dorn01] *A Dorn , A Kheifets, C D Schröter, B Najjari, C Höher, R Moshammer et J Ullrich, Phys. Rev. A* ***86****, 3755 (2001)*

[Dorn02] *A Dorn , A Kheifets, C D Schröter, B Najjari, C Höher, R Moshammer et J Ullrich, Phys. Rev. A* ***65****, 032709 (2002)*

[Dùrr07] *M Dürr, A Dorn, J Ullrich, S P Cao, A Czasch, A S Kheifets, J R Götz, et J S Briggs, Phys. Rev. Lett.* ***98****, 193201 (2007)*

[El Az05] S *El Azzouzi, C Dal Cappello, A Lahmam-Bennani et F Catoire, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***38,*** *1391 (2005)*

[El Ma95] *B El Marji, A Duguet, A Lahmam-Bennani, M Lecas et H F Wellenstein, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***28,*** *L733-L737 (1995)*

[El Ma97] *B El Marji, C Schröter, A Duguet, A Lahmam-Bennani et M Lecas, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***30,*** *3677 (1997)*

[El Mk98] *R El Mkhanter et C Dal Cappello J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***31,*** *301 (1998)*

[Ford98] *M J Ford, B El Marji, J P Doering, J H Moore, M A Coplan et J W Cooper Phys. Rev.* ***57,*** *325(1998)*

[Gari80] *C R Gariboti et J E Miraglia, Phys. Rev.* ***21,*** *572(1980)*

[Götz03] *J R Götz, M Walter et J S Briggs J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***36,*** *L777 (2003)*

[Gobe01]*F Gobet, B Farizon, M Farizon, M J Gaillard, M Carré, M Lezius, P Scheier et T D Märk, Phys. Rev. Lett.* ***86****, 3751 (2001).*

[Gold01] *N Goldman, R S Felers, C Leforestier et R J Saykally, J. Phys. Chem. A* ***105****, 515 (2001).*

[Grin00] *M Grin, C Dal Cappello, R EL Mkhanter et J Rasch, J . Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***33,*** *131 (2000).*

[Guir82] *J H MC Guire, Phys. Rev. Lett.* ***49****, 1153 (1982).*

[Hyll29] *E A Hylleraas, Z. phys.* ***54,*** *347(1929).*

[Hda94] *H Hda, C Dal Cappello et J Langlois, Z. Phys. D* ***29****, 25 (1994).*

[Jia02] *C C Jia, A Lahmam-Bennani, A Duguet, L Avaldi, M Lecas et C Dal Cappello, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***35****, 1113(2002).*

[Jia03] *C C Jia, A Lahmam-Bennani, C Dal Cappello, A Duguet et L Avaldi, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***36****, L17-L24 (2003).*

[Jone03]$_1$ *S Jones et D H Madison, (2003) Correlations and Polarisation in Photonic, Electronic and atomic Collisions Ed F Hanne, L Malegat and H Schmidt-Bocking, pp70-75 (AIP Conference Proceedings 697).*

[Jone03]$_2$ *S Jones et D H Madison, Phys. Rev. Lett.* ***91*** *073201 (2003).*

[Joul92] *B Joulakian, C Dal Cappello et M Brauner, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***25*** *2863 (1992).*

[Joul93] *B Joulakian, C Dal Cappello Phys. Rev. A* ***21,*** *572 (1993).*

[Khei99] *A Kheifets, I Bray, A Lahmam-Bennani, A Duguet et I Taouil, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***32,*** *5047 (1999).*

[Khei01] *A Kheifets, I Bray, J Berakdar et C Dal Cappello, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***35,*** *L15-L21 (2001).*

[Khei04] *A Kheifets, I Bray, Phys. Rev. A* ***69,*** *050701 (R) (2004).*

[Kosu80] *N Kosugi, T Ohta et H Kuroda, Chem. Phys.* ***50****,373 (1980).*

[Lahm89] *A Lahmam-Bennani, C Dupré et A Duguet Phys. Rev. Lett.* ***63*** *1582 (1989).*

[Lahm91] *A Lahmam-Bennani, H Ehrhardt, C Dupré et A Duguet, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***24,*** *3645 (1991).*

[Lahm92] *A Lahmam-Bennani, A Duguet, A M Grisogono et M Lecas, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***25,*** *2873 (1992).*

[Lahm03] *A Lahmam-Bennani, A Duguet , C Dal Cappello, H Nebdi et B Piraux Phys.Rev.A* ***67,*** *10701 (2003).*

[Lahm02] *A Lahmam-Bennani, A Duguet, et S Roussin, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***35,*** *L59-L63 (1992).*

[Lahm01] *A Lahmam-Bennani, A Duguet, M N Gaboriaud, I Taouil, M Lecas, A Kheifets J Berakdar et C. Dal Cappello,J. Phys.B: At. Mol. Opt. Phys.****34,*** *3073-3087 (2001).*

[Lahm99] *A Lahmam-Bennani, I Taouil, A Duguet M Lecas, L Avaldi et J Berakdar, Phys. Rev. A* ***59*** *3548 (1999).*

[Lamy94] *P Lamy, C Dal Cappello, B Joulakian et C Lesech, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***27,*** *3559 (1994).*

[Land75] *L Landau et E Lifschitz, Quantum Mechanics (Mir, Moscow) Vol3 (1975).*

[Lang28] *E Langmuir et Jones, Phys. Rev.* ***31****, 357 (1928).*

[Mala97] *A W Malcherek, et J S Briggs, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***30,*** *4419 (1997).*

[Mans04]$_1$ *A Mansouri, C Dal Cappello, S Houamer, I Charpentier et A Lahmam Bennani, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***36,*** *1203 (2004).*

[Mans04]$_2$ *A Mansouri, Thèse de Doctorat d'état, Université F A Sétif, (2004).*

[McQu] *D A McQuarrie et J D Simon, Chimie physique Approche Moléculaire, Ed Dunod.*

[Mass33] *H S W Massey et C B O Mohr, Proc. R. Soc. A* ***140*** *613(1933).*

[Mess61] *A Messiah, Quantum Mechanics (North Holland, Amsterdam) Vol2 (1961).*

[Mocc64]$_1$ *R Moccia, J. Chem. Phys. A* ***40****, 2164 (1964).*

[Mocc64]$_2$ *R Moccia, J. Chem. Phys. A* ***40****, 2176 (1964).*

[Mocc64]$_3$ *R Moccia, J. Chem. Phys. A* ***40****, 2186 (1964).*

[Mort] *R G Mortimer, Physical Chemistry, Harcourt- Academic- Press, 2Ed.*

[Mota99] *A Motassim et B Joulakian, Physica Scripta* ***60****, 142 (1999).*

[Mull06] *I B Muller et L S Cederbaum, J. Chem. Phys.* ***125****, 204305 (2006).*

[Nebd99] *H Nebdi, G K Lagmago et B Piraux, J. Physique IV* ***9****,105 (1999).*

[Opal72] *C B Opal, E C Beaty et W K Peterson, At. Data* ***4****, 209 (1972).*

[Popo94] *YU V Popov, C Dal Cappello, B Joulakian et N M Kuzmina, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***27,*** *1599 (1994).*

[Roy80] *A Roy, K Roy, et N C Sil, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***13,*** *3446 (1980).*

[Rudb30] *E Rudberg, Proc. R. Soc. A* ***129*** *628 (1930).*

[Schi92] *W. Schimmerling, Radiat. Environ. Biophys.* ***31****,197 (1992).*

[Schr98] *C Schröter, B El Marji, A Lahmam-Bennani, A Duguet, M Lecas et L Spielberger, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***31,*** *131 (1998).*

[Sero07] *V Serov, V Derbov, B Joulakian et S Vinitsky, Phys. Rev. A* ***75,*** *012715 (2007).*

[Sieg75] *H Siegbahn, L Asplund et P Kelfve, Chem. Phys. Lett.* ***35****, (1975).*

[Silv60] *J N Silvermann, O Platas et F A Matsen, J. Chem. Phys.* ***32,*** *1402 (1960).*

[Smir78] *Yu F Smirnov, A V Pavlitchenkov, V G Levin et V G Neudatchin, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***11*** *3587(1978).*

[Sriv96] *M K Srivastava, S Gupta et C Dal Cappello, Phys. Rev. A* ***53*** *4104 (1996.)*

[Tann] *C C Tannoudji, B Diu et F Laloë 'Mécanique quantique' TII Ed Hermann.*

[Taka03] *M Takahashi, Y Khajuria et Y Udagawa, Phys. Rev. A* ***68****,042710 (2003).*

[Taka04] *M Takahashi, N Watanabe, Y Khajuria, K Nakayama, Y Udagawa, et J H D Eland, J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* ***141****, 83 (2004).*

[Taou98] *I Taouil, A Lahmam-Bennani, A Duguet, M Lecas and L Avaldi, Phys. Rev. Lett.* ***81*** *4600 (1998).*

[Tomb84] *T A Tombrello Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* ***2*** *555 (1984).*

[Twee73] *R J Tweed, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***6*** *259 (1973)$_1$.*

[Twee73] *R J Tweed, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* ***6*** *270 (1973)$_2$.*

[Twee92] *R J Tweed, Z. Phys. D* ***23*** *309 (1992).*

[Wata05] *N Watanabe, Y Khajuria, M Takahashi, Y Udagawa, P S Vinitsky, Yu v Popov, O Chuluunbaatar et K A Kouzakov, Phys. Rev. A* ***72****, 032705 (2005).*

[Wata08] *N Watanabe, K A Kouzakov, Yu V Popov et M Takahashi, Phys. Rev. A* ***77,*** *032725 (2008).*

[Zayt07] *S A Zaytsev, V A Knyr, Yu V Popov, Phys. At. Nucl.**70** 676 (2007).*
[Zhan00] *S Zhang, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **33** 3545 (2000).*