REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE

MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE FERHAT ABBAS – SETIF1

FACULTE DES SCIENCES

DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE

THESE

Présentée pour l'obtention du diplôme de

DOCTORAT 3eme cycle

En : *Physique*

Spécialité : *Atomes, molécules et matière condensée*

Par : ***Amine HERBADJI***

THÈME

ÉTUDE DES EFFETS DE DISTORSION DANS LA DOUBLE IONISATION DE CIBLES ATOMIQUES ET MOLÉCULAIRES

Soutenue publiquement le 04/07/2022 devant la commission d'examen :

M.	*Salim HOUAMER*	*Prof. à l'U. Sétif-1*	*Président*
M.	*Boumédienne LASRI*	*Prof. à l'U. Saida*	*Examinateur*
Mme.	*Dahbia OUBAAZIZ*	*Prof. à l'U Tizi Ouzou*	*Examinatrice*
Mme.	*Imene KADA*	*MCA à l'U. Sétif-1*	*Examinatrice*
M.	*Abdelaziz MANSOURI*	*Prof. à l'U. Sétif-1*	*Directeur de thèse*
M.	*Claude DAL CAPPELLO*	*Prof. à l'U. Lorraine France*	*Co-Directeur de thèse*
M.	*Kamel BENCHIKH*	*Prof. à l'U. Sétif-1*	*Invité*

Remerciement

La formation doctorale dont j'ai bénéficié pour la préparation de ce travail de thèse s'est déroulée au Laboratoire de physique quantique et systèmes dynamiques (LPQSD) de l'université Ferhat Abbas Sétif 1. Les travaux et les résultats que j'ai l'honneur de vous présenter dans cette thèse ont été effectués sous la direction de Mr. Abdelaziz Mansouri, Professeur à l'Université Ferhat Abbas Sétif 1 et la codirection de Mr. Claude Dal Cappello, Professeur à l'Université de Metz (France).

Il m'est particulièrement agréable de remercier Mr. Abdelaziz Mansouri qui m'a proposé un sujet permettant de rejoindre le domaine de la recherche scientifique qu'il a dirigé avec un grand intérêt. Je le remercie vivement pour toute la confiance et la considération qu'il m'a toujours accordées durant ces années, pour l'attention jamais relâchée qu'il a portée à mon travail tout en me laissant les marges de liberté nécessaire pour qu'un étudiant devienne un chercheur autonome, ainsi que pour ses conseils durant les nombreuses discussions scientifiques. Je lui adresse tous mes sincères respects pour ses qualités humaines, son professionnalisme et sa connaissance scientifique, sa gentillesse rassurante et sa disponibilité au quotidien. Merci pour le temps que vous avez pu consacrer à lire ce manuscrit. Vos remarques et commentaires ainsi que votre soutien ont grandement participé à l'évolution de ce travail.

Je remercie également Mr. Claude Dal Cappello le codirecteur de ce travail pour la confiance qu'il m'a donnée, et toute autre aide précieuse qu'il a pu m'accorder et donner de près ou de loin malgré ses nombreuses occupations, ce fut pour moi un plaisir de travailler avec vous.

Mes sincères remerciements sont adressés à l'ensemble des membres du jury de thèse pour l'intérêt qu'ils ont exprimé à l'égard de ce travail. Tout d'abord, je remercie Mr Salim Houamer, Professeur à l'Université Ferhat Abbas Sétif 1, pour toute aide que ce soit en relation avec mon travail de thèse ou en dehors, de m'avoir encouragé à travers ses conseils exprimés en toute simplicité et générosité, et pour m'avoir fait l'honneur de présider le jury de cette thèse.

Je remercie Mme Imene Kada maitre de conférences à l'université de Sétif1 pour ses remarques qui m'ont été très utiles, son aide en documentation, son attention et ses nombreux encouragements.

J'adresse aussi mes remerciements à Mr. Boumédienne Lasri, Professeur à l'Université Saida et à Mme Dahbia Oubaaziz, Maître de conférence à l'Université de Tizi Ouzou, pour le temps qu'ils m'ont accordé pour étudier ce travail de thèse. Je suis honoré par votre présence dans ce jury.

Je remercie Mr. Kamel Benchikh, Professeur à l'Université Ferhat Abbas Sétif 1 a accepté notre invitation.

Sincères remerciement vont aussi à :

A tous nos enseignants, qui nous ont transmis leur savoir et qui ont contribué à notre formation durant ces années.

A mes très chers parents, pour leur soutien moral et matériel, leur amour, et leurs conseils qui m'ont permis de réaliser les études que j'ai voulues et par conséquent cette thèse.

Je remercie aussi l'ensemble du personnel de notre laboratoire avec qui j'ai passé des moments très agréables, je vous adresse mes plus vifs remerciements et gratitudes pour vos encouragements et votre support moral en vous souhaitant beaucoup de succès.

SOMMAIRE

LISTE DES FIGURES VII

LISTE DES TABLEAUX X

INTRODUCTION GENERALE 1

Références Bibliographiques 6

I. **CHAPITRE I : THEORIE GENERALE DE DIFFUSION** 9

I.1 Introduction 9

I.2 Notion de sections efficaces : Différentielle et totale 10

I.3 Section efficace différentielle et Amplitude de diffusion 11

I.3.1 Amplitude de diffusion 12

I.3.1.1 Matrice de transition 14

I.3.2 Section efficace différentielles 14

I.3.2.1 Section Efficace Simplement, Doublement et Triplement Différentielle ... 15

I.3.2.2 Section Efficace Quadruplement Différentielle 16

I.3.2.3 Section Efficace Quintuplement Différentielle 16

I.4 Approximation de Born 17

I.4.1 Validité de Born 1 18

I.5 Analyse par les ondes partielles 19

I.5.1 L'équation radiale 19

I.5.1.1 L'équation radiale d'une particule libre 21

I.5.1.2 Cas d'un potentiel purement coulombien 21

I.5.1.3 Cas d'un potentiel de distorsion 22

I.6 Conclusion 24

Références bibliographiques 25

II. **CHAPITRE II : THEORIE DE LA DOUBLE IONISATION** 26

II.1 Introduction 26

II.2 La réaction (e, 3e) 26

II.2.1 Description de la réaction (e, 3e) 26
II.2.2 Géométries et cinématiques de la réaction (e, 3e) 28
II.2.3 Mécanismes de la réaction (e, 3e) 29
II.2.3.1 Shake Off 31
II.2.3.2 Two-Step 1 (TS1) 32
II.2.3.3 Two-Step 2 (TS2) 33
II.3 Etude des états liés et du continuum des systèmes atomiques à deux électrons actifs 34
II.3.1 Notion et importance de corrélation électronique 34
II.3.2 Les fonctions d'ondes d'un système à deux électrons actifs 35
II.3.3 Représentation des états liés de la cible (état fondamental de la cible) 36
II.3.3.1 Méthode d'interaction de configuration « CI » 37
II.4 Modèles théoriques pour la représentation du double continuum 37
II.4.1 Dans le cadre de la première approximation de Born 37
II.4.1.1 Modèle « Approximation de Born aux ondes planes » (PWBA) 38
II.4.1.2 Modèle des ondes coulombiennes 38
II.4.1.3 Modèle « Approximation de Born aux ondes distordues » (DWBA) 39
II.4.1.4 Modèle « Brauner, Briggs et Klar » (BBK ou 3C) 39
II.4.1.5 Modèle « Convergent Close Coupling » (CCC) 41
II.4.2 Au-delà de la première approximation de Born 42
II.4.2.1 Seconde approximation de Born (SBA) 42
II.4.2.2 La fonction d'onde de Coulomb à quatre corps : l'approche 6C 42
II.5 Conclusion 43
Références bibliographiques 44
III. **CHAPITRE III : APPLICATION AUX ATOMES ET MOLECULES** 47
III.1 Introduction 47
III.2 Description théorique du processus de double ionisation 48

III.2.1 Section Efficace Quintuplement Différentielle (e,3e) 49
III.2.2 Le modèle BBK 49
III.2.3 Le modèle 2CWG/2CWWM 51
III.2.3.1 Description de l'état initial 51
III.2.3.2 Description de l'état final 55
III.2.3.3 Potentiel d'interaction ressenti par le projectile 56
III.2.4 Le modèle 2DW (effet de distorsion) 57
III.2.4.1 Calcule de la charge variable.....58
III.2.5 Le modèle 2CWSR (effet du potentiel de courte portée) 61
III.2.6 Le modèle 2DWSR (effet de distorsion et du potentiel de courte portée).....63
III.3 Section efficace quadruplement différentielle 4DCS (e,3e-1).....63
III.4 Description physique de la molécule d'ammoniac NH_3.....64
III.5 Repère du laboratoire et repère de la molécule 67
III.6 La FDCS de la molécule NH_3.....68
III.7 Conclusion.....69
Références bibliographiques.....71
IV : **CHAPITRE IV : RESULTATS ET DISCUSSION**.....73
IV.1 Effet des corrélations dans l'état final 73
IV.1.1 L'interaction post-collisionnel (Le modèle BBK) 73
IV.1.2 Comparaison entre les deux facteurs F_{WM} et F_G:.....75
IV.2 Effet des corrélations dans l'état initial 78
IV.3 Etude de la FDCS en géométrie asymétrique.....79
IV.4 Etude de la FDCS en géométrie symétrique.....81
IV.4.1 La FDCS en géométrie symétrique à haute énergie.....81
IV.4.1.1 La FDCS en géométrie symétrique à haute énergie de l'Argon.....81
IV.4.1.2 La FDCS en géométrie symétrique à haute énergie du Néon.....83
IV.4.2 La FDCS en géométrie symétrique à une énergie intermédiaire 86

IV.5 La FDCS $\sigma^5 = f(\theta_1, \theta_2)$: 88

IV.5.1 La FDCS $\sigma^5 = f(\theta_1, \theta_2)$ de l'Argon 88

IV.5.2 La FDCS $\sigma^5 = f(\theta_1, \theta_2)$ du Néon 90

IV.6 Etude du processus (e,3-1e) : La 4DCS de l'Argon 91

IV.7 La FDCS $\sigma^5 = f(\theta_1, \theta_2)$: Les courbes orientées 92

IV.8 La FDCS $\sigma^5 = f(\theta_1, \theta_2)$: Les courbes non orientées 94

IV.9 La FDCS $\sigma^5 = f(\theta_d)$ 94

IV.10 La FDCS $\sigma^5 = f(E_1, E_2)$ 96

IV.11 La FDCS $\sigma^5 = f(\theta_1)$; $\theta_2 = \theta_K$: 99

IV.12 Etude du processus (e,3-1e) : La 4DCS de la DI du NH_3 100

IV.13 Conclusion 102

Références bibliographiques 103

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES 105

Références bibliographiques 107

V. **Annexe A : Calcul de la charge variable et du potentiel de courte portée** 108

LISTE DES FIGURES

Figure I.1 : Expérience de diffusion 9
Figure I.2 : Illustration des déférentes quantités utilisées dans cette section 11
Figure I.3 : Une comparaison entre la distance r entre la cible et le détecteur et r' la taille de la cible : r >> r' 13
Figure I.4 : Schémas simplifier du développement de Born.....18
Figure I.5 : Illustration du vecteur de l'état initial ki , le vecteur de l'état final kd et le vecteur de moment de transfert k 18
Figure I.6 : Représentation schématique du déphasage δ_l dans le cas d'un potentiel attractive [2].....23
Figure I.7 : SETD pour l'ionisation du Néon 2p dans son état fondamental. L'électron est diffusé avec une énergie E_a = 500 eV et détecté sous un angle θ_a = 20º en coïncidence avec l'électron éjecté avec une énergie E_b = 74 eV. Le modèle 1dwn numérique (ligne noire continue) est comparé avec et le modèle 1dw approximatif (ligne discontinue)[15] 24
Figure II.1 : Illustration des paramètres cinématiques utilisées dans la réaction (II.1).....27
Figure II.2 : Schémas simplifier des différents mécanismes de la double ionisation.....30
Figure II.3 : Illustration du processus *Shake off (SO).* 31
Figure II.4 : Illustration du processus *Two-Step 1 (TS1).*.....32
Figure II.5 : Illustration du processus *Two-Step 2 (TS2).*.....33
Figure III.1 : Variation de la charge effective *Z(r)* en fonction de la distance *r* dans le cas de la double ionisation de l'orbitale atomique $2p$ de Néon.....60
Figure III.2 : Variation de la charge effective $Z(r)$ en fonction de la distance *r* dans le cas de la double ionisation de l'orbitale atomique $3p$ de l'argon.....61
Figure IV.1a : la FDCS= $f(\theta_2)$ pour (e,3e) de l'argon. $E_d = 5500$ eV, $E_1 = E_2 = 10$ eV. $\theta_1 = \theta_k\ 120^{\circ}, \theta_d = 0.45°$. Les résultats du modèle BBK pour l'état des ions ^3P sont représentés à l'aide d'une fonction d'onde (Hartree-Fock) pour décrire l'état initial cible……..74
Figure IV.1b : Identique à la figure 1a mais les résultats du modèle BBK (avec β =0,005) pour l'état ionique ^3P sont représentés en utilisant deux fonctions d'onde (Hartree-Fock et CI) pour décrire l'état initial cible……...74
Figure IV.2 : la FDCS= $f(\theta_1)$ pour (e,3e) de l'argon. $E_i = 561.5$ eV, $E_1 = E_2 = 9$ eV. $\theta_2 = 120^{\circ}, \theta_d = 6.5°$. En rouge les résultats obenus avec le facteur Ward et Macek, en noir avec le facteur de Gamow……76
Figure IV.3 : Identique à la figure IV.2 avec des énergies : $E_d = 5500$eV, $\theta_d = 0.45°$, $\theta_d = 0.45°, \theta_2 = \theta_K$ et $E_1 = E_2 = 10$ eV……77
Figure IV.4 : Identique aux figures IV-2, 3 mais pour le Ne, les énergies sont $E_i = 5582.3$eV, $\theta_d = 0.45°, \theta_2 = \theta_K$et $E_1 = E_2 = 10$ eV……..77
Figure IV.5: la FDCS= $f(\theta_2)$ pour (e,3e) de l'argon. $E_d = 5500$eV, $E_1 = E_2 = 10$ eV. $\theta_2 = \theta_K, \theta_d = 0.45°$. Les résultats des états ioniques ^1S, ^1D and ^3P sont représentés à l'aide de deux fonctions d'onde (Hartree-Fock et Interaction de Configuration) pour décrire l'état initial cible……79
Figure IV.6: la FDCS= $f(\theta_1)$ pour (e,3e) de l'argon. $E_d = 5480$eV, $E_1 = 10$eV, $E_2 = 20$ eV.

$\theta_2 = 255^{\circ}, \theta_d$ = -0.45°. Les résultats du quatrième modèle 2DWGSR pour les états ioniques ^1S, ^1D, ^3P et ($^1S + {}^1D + {}^3P$) sont représentées. L'expérience de Lahmam-Bennani et al. [10] est représenté par des carrés…….....80

Figure IV.7: la FDCS= $f(\theta_1)$ pour (e,3e) de l'argon. $E_d = 5500$eV, $E_1 = E_2 = 10$eV. $\theta_d = 0.45°$. Les résultats des états ioniques $^1S + {}^1D + {}^3P$ sont représentées. L'expérience d'El Marji et al [9] est représentée par des carrés, des facteurs multiplicatifs sont utilisés pour comparer les résultats de nos modèles à l'expérience : 0,0110 pour le modèle 2DWG, 0,0026 pour le modèle 2CWGSR et 0,0376 pour le modèle 2DWGSR…….82

Figure IV.8 : la FDCS= $f(\theta_1)$ pour (e,3e) du Néon. $E_i = 5582.3$eV, $E_1 = E_2 = 10$eV. $\theta_d = 0.45°$. Les résultats des états ioniques $^1S + {}^1D + {}^3P$ sont représentées. L'expérience de Schröter et al., est représentée par des carrés, des facteurs multiplicatifs sont utilisés pour comparer les résultats de nos modèles à l'expérience : $4*10^5$ pour le modèle 2DWWM, 10^6 pour le modèle 2CWWMSR et 10^4 pour le modèle 2DWWMSR…….85

Figure IV.9 : la FDCS= $f(\theta_1)$ pour (e,3e) de l'argon. $E_i = 561.5$eV, $E_1 = E_2 = 9$eV. $\theta_d = 6.5°$. Les résultats des états ioniques $^1S + {}^1D + {}^3P$ sont représentées. L'expérience de Jia et al., est représentée par des carrés, des facteurs multiplicatifs sont utilisés pour comparer les résultats de nos modèles à les données relatifs : 17 pour le modèle 2DWG, 70 pour le modèle 2CWGSR et 20 pour le modèle 2DWGSR……87

Figure IV.10: la FDCS= $f(\theta_1, \theta_2)$ pour (e,3e) de l'argon. $E_d = 5500$eV, $E_1 = E_2 = 10$eV. $\theta_d = 0.45°$. Les résultats des trois modèles (a) : 2DWG, (b) : 2DWGSR et (c) : 2CWGSR pour les états ioniques ($^3P + {}^1D + {}^1S$) sont représentés……...89

Figure IV.11 : la FDCS= $f(\theta_1, \theta_2)$ pour (e,3e) du néon. $E_i = 5582.3$eV, $E_1 = E_2 = 10$eV. $\theta_d = 0.45°$. Les résultats des trois modèles (a): 2CWWMSR, (b): 2DWWM et (c): 2DWWMSR pour les états ioniques ($^3P + {}^1D + {}^1S$) sont représentés…….91

Figure IV.12 : la 4DCS= $f(\theta_1)$ pour (e,3e-1) de l'argon. $E_d = 5500$eV, $\theta_d = 0.55°$, $E_2 = 5$eV. L'électron $E_1 = 75$eV non détecté. Les résultats des états ioniques $^1S + {}^1D + {}^3P$ sont représentées. Les expériences de lahmam-bennani et al., sont représentées par des carrés, des facteurs multiplicatifs sont utilisés pour comparer les résultats de nos modèles à les données relatifs : 17 pour le modèle 2DWG, 70 pour le modèle 2CWGSR et 20 pour le modèle 2DWGSR……92

Figure IV.13: Variations de la *FDCS* de la double ionisation de la molécule d'ammoniac orientée dans la direction (0°,0°,0°) en fonction des angles d'éjection θ_1 et θ_2 : avec $E_i = 1000$eV, $E_1 = E_2 = 10$ eV, $\theta_d = 0°$ a) FDCS-DI-3a_1 ; b) FDCS-DI-1e_x, (1) nos résultats et (2) résultats de la référence [19]……93

Figure IV.14: Variation des *FDCSs* de DI de la molécule d'ammoniac dans une géométrie coplanaire symétrique en fonction des angles d'éjection θ_1 et θ_2 dans les conditions : $E_i = 1000$eV, $E_1 = E_2 = 10$ eV. $\theta_d = 0°$ pour a-b et $\theta_d = 1°$ pour c-d : (1) FDCS-DI-1e_x et (2) FDCS-DI-3a_1……95

Figure IV.15: Variation des *FDCSs* de DI de la molécule d'ammoniac dans une géométrie coplanaire en fonction des énergies d'éjections E_1 et E_2 dans les conditions $E_i = 1000$eV et $\theta_d = 1°$. Le premier électron est détecté suivant $+\vec{K}$ tandis que le deuxième est suivant $-\vec{K}$ (1) FDCS-DI-1e_x et (2) FDCS-DI-3a_1……96

Figure IV.16: Variation des *FDCSs* de DI de l'orbitale 1e_x d'ammoniac dans une géométrie coplanaire en fonction des directions d'éjections θ_1 et θ_2 dans les conditions $E_i = 1000$eV et $\theta_d = 1°$……98

Figure IV.17: Variation des *FDCSs* de DI de de l'orbitale 3a_1 d'ammoniac dans une géométrie coplanaire en fonction des directions d'éjections θ_1 et θ_2 dans les conditions $E_i = 1000$eV et $\theta_d = 1°$. ……99

Figure IV.18: FDCS= f(θ_1) pour (e,3e) de l'ammoniac. $E_i = 1000$eV, $\theta_d = 1°$ et $\theta_2 = \theta_k$. La flèche indique la direction du moment transfert $(-\vec{K})$. Les énergies des deux électrons éjectés sont : en rouge $E_1 = E_2 = 10$ eV, en noir $E_1 = 5$ eV, $E_2 = 15$ eV……100

Figure IV.19: 4DCS pour (e,3e-1) de NH_3 des orbitales 1e_x et 3a_1. $E_d = 500$eV et $\theta_d = -6°$. L'électron d'énergie E_1 non détecté. La courbe noir $(E_1 : E_2) = (12:12)$ eV, la courbe rouge $(E_1 : E_2) = (37:37)$eV. La courbe bleu $(E_1 : E_2) = (12:37)$ eV……101

LISTE DES TABLEAUX

Tableau II.1 : Représentation des différentes géométries et cinématiques de la réaction (e,3e) 29

Tableau III.1 : Paramètres des fonctions d'onde de Hartree-Fock de Clementi et Roetti de l'atome de Néon $2p^6$.....53

Tableau III.2 : Paramètres des fonctions d'onde de d'onde de Hartree-Fock de Clementi et Roetti de l'atome d'Argon $\mathbf{3p6}$.....53

Tableau III.3 : Les fonctions propres du premier cas et leur énergie de DI $\boldsymbol{I}++$.....54

Tableau III.4: Les fonctions propres du deuxième cas et leur énergie de DI $\boldsymbol{I}++$.....54

Tableau III.5 : Les paramètres des fonctions d'onde de Moccia [28] et les énergies de DI des orbitales moléculaires de la molécule NH_3 [29] : 66

INTRODUCTION GENERALE

L'analyse des informations qu'apporte la théorie des collisions représente l'un des moyens les plus important pour l'investigation de la structure de la matière. Cette importance apparait aussi dans de nombreux domaines de la physique comme la physique des plasmas et l'astrophysique ainsi que dans les sciences de la vie.

L'ionisation est l'un des processus importants d'une collision. C'est le phénomène par lequel un atome ou une molécule est bombardé par une particule (dans le présent travail des électrons) est par conséquent la cible perd un ou plusieurs électrons et devient porteur de charges électriques positives. Si l'atome ou la molécule perd un seul électron le processus s'appelle simple ionisation et la réaction est notée (e,2e) où les deux électrons diffusé et éjecté sont détectés en coïncidence. Si la cible perd deux électrons le processus s'appelle double ionisation (DI). Dans cette réaction, notée (e,3e), les trois électrons dans la voie de sortie (le diffusé et les deux éjectés) sont détectés en coïncidence. Ces expériences sont difficiles à réaliser en raison de la faiblesse des sections efficaces de la DI, et nécessite également la détection d'un triple signal d'électrons en coïncidence dans l'état final. Pour cette réaction de DI, une expérience moins difficile à réaliser qui demande seulement deux détections en coïncidence (deux électrons sur trois sont détectés) notée (e,3e-1). Les quantités les plus importantes pour la compréhension du processus de double ionisation sont la sections efficaces quintuplement différentielle notée *FDCS* (pour la réaction (e,3e)) et la section efficace quadruplement différentielle notée *4DCS* (pour la réaction (e,3e-1)) puisqu'elles sont mesurables et contiennent les informations les plus détaillées sur les mécanismes réactionnels de la collision. Ces grandeurs sont évaluées à travers le calcul de l'amplitude de diffusion définie comme étant l'élément de transition d'un état initial vers un état final sous l'effet du potentiel d'interaction.

La simple ionisation des cibles atomiques et moléculaires est largement étudiée. De nombreuses études théoriques et expérimentales ont été réalisées pour différents projectiles. Les études ont débuté avec les expériences de Langmuir et Jones [1] et Rudberg [2]. Les auteurs ont analysé la dépendance des sections efficaces totales en fonction de l'énergie incidente. Les premiers calculs quantiques des sections efficaces ont été effectués par les travaux de Bethe [3], puis Massy et Mohr [4]. Les premières expériences utilisant la technique de détection en coïncidence ont été réalisés par Ehrhardt et al. [5] et Amaldi et al. [6] en 1969 dans le cas de la simple ionisation de l'Hélium [5] et sur les atomes de carbone d'un film mince [6].

Par la suite, les expériences et les travaux théoriques sur la simple ionisation se sont multipliés pour diverses conditions cinématiques.

La double ionisation, par contre, est peu traitée du point de vue expérimental en raison de la faiblesse des sections efficaces correspondantes. Ce processus est également est aussi moins étudié théoriquement du fait que dans le cas le plus simple de la double ionisation de l'hélium, par exemple, on doit résoudre un problème à 4 corps.

Les travaux pionniers du groupe d'Orsay (Lahmam-Bennani et al [7]) ont montré qu'une expérience de double ionisation pouvait être réalisée en détectant les trois électrons dans le canal de sortie en coïncidence : les auteurs ont pu mesurer la section efficace quintuplement différentielle (FDCS).

Plus tard, le groupe d'Orsay a publié d'autres résultats expérimentaux, nous citons en particulier leurs travaux sur le krypton [8] et sur l'hélium [9-10] à haute énergie incidente (5500 eV). Plus récemment, d'autres expériences ont été réalisées pour différentes cibles et à différentes énergies d'impact (1099-601) eV, sur l'hélium [11-12], sur l'argon à 5563 eV [13], 561,4 eV [14-15] et 953 eV [16], puis sur le néon à 5583 eV [17]. Il faut aussi citer les expériences réalisées par Dorn et al [18] sur l'hélium pour une énergie incidente de 3 keV, puis 2 keV [19] et 106 eV [20], et enfin une expérience (e, 3e) a également été réalisée sur le magnésium par El Marji et al [21]. Des expériences de DI pour lesquelles seulement deux électrons sont détectés (4DCS), ont été réalisées, nous citons en particulier, les travaux des groupes d'Orsay et de Max Planck institut [22-31]. Néanmoins, ces expériences sont plus difficiles à analyser sur le plan théorique car un des trois électrons émis n'a pas été détecté, et donc une intégration est faite sur toutes les directions d'émission de celui-ci.

Sur le plan théorique, les méthodes qui traitent la double ionisation ne cessent d'évoluer, des modèles ne cessent d'être proposés, seulement, plus les modèles sont corrigés plus les difficultés de calcul (analytiques ou numériques) s'accentuent. Nous citons en particulier le modèle BBK [32-34], parfois appelé 3C, dans lequel les conditions aux limites de Coulomb sont satisfaites exactement dans la région asymptotique. Dans ce modèle, les deux électrons éjectés sont décrits par deux ondes coulombiennes pour décrire l'interaction entre chaque électron éjecté et le noyau, et la répulsion mutuelle entre ces deux électrons éjectés est représentée aussi par une fonction coulombienne. Ce modèle améliore beaucoup les résultats théoriques mais la formulation analytique devient plus lourde et les calculs numériques plus lents. Pour alléger le formalisme de calcul dans ce modèle des approximations sont proposées

pour décrire l'interaction mutuelle entre les électrons éjectés, nous citons en particulier le facteur de Gamow et le facteur de Ward et Macek [35]. Dans ces approximations les modèles ne sont pas capables de donner la bonne amplitude mais peuvent souvent bien décrire la forme des résultats expérimentaux.

Dans une autre étape les théoriciens ont proposé de tenir compte des distorsions ressenties par les électrons éjectés en incluant les effets de la charge variable et les effets du potentiel de courte portée. Nous citons aussi, la théorie non perturbative CCC (convergente close coupling) [36-37], le modèle 6C [38], la matrice J [39-40], la fonction Sturmienne généralisée [41-42]. Seulement, ces théories justes sont appliquées à la DI de l'hélium et n'ont pas été appliqués à d'autres atomes. Un autre modèle utilisant des ondes distordues pour décrire les électrons incidents, diffusés et éjectés a été proposé pour étudier le DI de l'argon [43] à faible énergie incidente (561,4 eV). Cependant, ce modèle n'inclut aucune corrélation à l'état initial ou à l'état final. Watanabe et al [44] ont utilisé un modèle incluant la corrélation à l'état initial et à l'état final (facteur de Gamow), en décrivant les électrons éjectés par des ondes distordues pour étudier le DI du magnésium, avec une énergie incidente plus élevée (1059 eV). Les mêmes auteurs, Watanabe et al [44] ont utilisé la deuxième approximation de Born selon la méthode utilisée par Grin et al [45] pour l'étude du DI de l'hélium par impact d'électrons. Plus récemment, Kada et al [46] ont présenté une nouvelle étude sur la double ionisation du néon basée sur la première approximation de Born et utilisant le modèle 3C. Les auteurs ont utilisé deux fonctions d'onde différentes pour décrire l'état initial de la cible (en incluant la corrélation dans l'état initial) et ont obtenu un accord modéré avec les résultats expérimentaux bien que les électrons éjectés n'aient pas été décrits par des ondes distordue. Dans notre travail nous avons également appliqué le modèle 3C [46] pour la double ionisation de l'argon mais nous avons trouvé un fort désaccord avec les résultats expérimentaux.

Contrairement aux cas des atomes, les travaux expérimentaux concernant la double ionisation des molécules restent très peu et limités aux expériences de type (e,3-1e). Nous citons par exemple les travaux récents de Li et al. [28], sur l'azote moléculaire (N_2), les expériences sur H_2 portés par Lahmam-Bennani et al. [25] et l'étude de R. El-Mir [35] sur la double ionisation de la couche externe $1t_2$ de CH_4. Sur le plan théorique les études sont également limitées en raison de l'incapacité de décrire avec précision les fonctions d'ondes des orbitales moléculaires pour les molécules qui contiennent plusieurs atomes. L'un des nouveaux outils capables de simplifier les calculs en gardant la précision du modèle théorique est celui dans lequel la fonction d'onde moléculaire multicentrique est réduite en une fonction d'onde

monocentrique [47-48]. Un autre problème qui se pose dans ce cas est l'incapacité de déterminer l'orientation des molécules cibles. Les données expérimentales des molécules ont été fournies pour une orientation moléculaires inconnues et par conséquent les FDCS doivent être calculées pour une orientation moléculaire moyenne, ce qui nécessite une triple intégration sur les angles d'Euler. Cette méthode offre un bon accord entre les résultats expérimentaux et théoriques, mais elle nécessite un calcul très lourd pour des modèles simple (surtout dans le calcul de 4DCS dans lequel une autre intégration sur dΩ de l'électron non détecté est nécessaire).

Nous nous proposons, dans ce travail, de développer une étude systématique pour inclure les effets de corrélation dans l'état initial et dans l'état final ainsi que les effets de distorsion, dans les modèles développés auparavant dans le laboratoire, dans le but d'améliorer la description du processus de double ionisation par impact d'électrons. L'étude sera réalisée pour les cibles atomiques en un premier lieu pour la généraliser aux systèmes plus complexes.

Dans le premier chapitre nous présentons les éléments de base concernant la théorie de diffusion d'une manière générale. Nous présentons la notion de la section efficace différentielle et totale, l'amplitude de diffusion et la matrice de transition. Une définition des sections efficaces différentielles qui permettent de déduire les différents processus d'ionisation sera exposée. A la fin du chapitre, nous rappelons la série et l'Approximation de Born, et pour conclure nous rappelons le formalisme des ondes partielles.

La théorie de la double ionisation est exposée au deuxième chapitre. Les réactions (e,3e), (e-3e-1) y sont décrites ainsi que la géométrie et les cinématiques de ces réactions. Nous détaillons par la suite, les mécanismes réactionnels du processus (e,3e) en donnant l'expression de chaque mécanisme dans le cas le plus simple de l'atome d'Hélium. Une deuxième partie est consacré à l'étude des états liés et du continuum des systèmes atomiques incluant la notion et l'importance des corrélations électroniques. A la fin du chapitre une description des fonctions d'ondes d'un système à deux électrons actifs et les divers modèles théoriques représentant le double continuum est exposée.

Une description théorique du processus de double ionisation sera présentée dans le troisième chapitre. Nous décrirons les modèles théoriques utilisés pour l'étude de la double ionisation, en particulier le modèle BBK et ses approximations. Nos contributions concernant les distorsions y seront exposées, les calculs nécessaires seront détaillés.

Les résultats de nos calculs seront exposés au chapitre quatre, où nous étudions en un premier lieu la réaction (e,3e) à haute énergie de l'atome d'argon dans une géométrie coplanaire avec un partage d'énergie égale pour les éjectés. Nous montrons l'importance des effets de corrélations entre les électrons de la cible dans l'état initial (utilisation des fonctions d'ondes d'interaction de configurations). Nous montrons aussi l'importance des effets liés aux corrélations des deux électrons émergents dans la voie de sortie pour les mêmes conditions, et pour une énergie incident intermédiaire (utilisation du modèle BBK et BBK approximée '2CWG et 2CWWM').

L'action de la cible résiduelle sur les deux électrons éjectés est prise en charge par le modèle 2DW. Le modèle incluant les corrections dû au potentiel de courte portée (2CWSR) entre l'électron incident et la cible décrit l'interaction du projectile avec la cible au cours de la réaction, sera associé à l'effet de la charge variable (2DWSR) pour une meilleure description des effets de distorsion. Les résultats de ces modèles sont comparés avec différentes données expérimentales (différentes géométries et cinématiques). Pour le cas de l'argon nous comparons nos résultats avec : les données expérimentales de Lahmam Bennani et al [8], celle de El-Marji et al [14] et celle de Jia et al., [15]. Nos calculs pour la réaction (e,3e) du néon, sont comparés avec les données expérimentales de Schröter et al [18] (les conditions expérimentales sont similaires aux conditions de El-Marji). Nous concluons la partie sur la double ionisation des atomes par une comparaison des résultats de ces modèles avec la première expérience de la réaction (e,3e-1) de l'argon réalisée Lahmam Bennani et al [8].

La double ionisation des cibles moléculaire (NH_3) est exposé à la fin du chapitre quatre. Cette molécule est très peu étudiée, pour pouvoir comparer nos résultats, nous calculons la FDCS de la réaction (e,3e) pour la molécule orientée dans l'espace et nous comparons avec les résultats obtenus par Z. AitElhadjAli et al [49] pour les deux orbitales $1e_x$ et $3a_1$.

A cause de l'absence des données expérimentales sur cette molécule nous avons effectué une étude sur l'ensemble des différents paramètres énergétiques et directionnels afin de déterminer les meilleures conditions pour une éventuelle expérience (e,3e) et (e,3e-1) de la DI de l'atome d'ammoniac.

Références Bibliographiques

[1] J. J. Langmuir and T. Jones, Phys. Rev. 31,357 (1928)

[2] E. Rudberg, Proc. Roy. Soc. London A129,628 (1930)

[3] H. A. Bethe, Ann. Phys. Lp2.5,325-400, (1930)

[4] H. S. V. Massey, and C. B. O. Mohr, Proc. R. Soc. A. 140,613-36 (1933)

[5] H. Ehrhardt, M. Schulz, T. Tekaat and K. William, Phys. Rev. Lett. 22, 89 (1969).

[6] U. Amaldi, A. Egidi, R. Marconero and G. Pizella, Rev. Sci. Instrum. 40, 1001 (1969).

[7] A. Lahmam-Bennani, C. Dupré and Duguet Phys. Rev. Lett. 63 1582 (1989)

[8] A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, A M. Grisogono and M J. Lecas Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 25 2873 (1992)

[9] I. Taouil, A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, and L. Avaldi Phys. Rev. Lett. 81 4600 (1998)

[10] A. Lahmam-Bennani, I. Taouil, A. Duguet, M. Lecas, L. Avaldi and J. Berakdar Phys. Rev. A 59 3548 (1999)

[11] A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, M N. Gaboriaud, I. Taouil, M. Lecas, A. Kheifets, J. Berakdar and C. Dal Cappello J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 34 3073(2001)

[12] A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, C. Dal Cappello, H. Nebdi and B. Piraux Phys. Rev. A 67 010701R (2003)

[13] B. El Marji, C. Schröter, A. Duguet, A. Lahmam-Bennani, M. Lecas and L. Spielberger J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 30 3677(1997)

[14] C C. Jia, A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, L. Avaldi, M. Lecas and C. Dal Cappello J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 35 1103 (2002)

[15] C C. Jia, A. Lahmam-Bennani, C. Dal Cappello, A. Duguet and L. Avaldi J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 36 1103 (2003)

[16] A. Naja, E M. Staicu-Casagrande, X G. Ren, F. Catoire, A. Lahmam-Bennani, C. Dal Cappello and C T. Whelan J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 40 2871 (2007)

[17] C. Schröter, B. El Marji, A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, M. Lecas and L. Spielberger J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 31 131 (1998)

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

[19] A. Dorn, A. Kheifets, C D. Schröter, B. Najjari, C. Höhr, R. Moshammer and J. Ullrich Phys. Rev. Lett. 86 3755 (2001)

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

[21] B. El Marji, J P. Doering, J H. Moore and M. Coplan Phys. Rev. Lett. 83 1574 (1999)

[22] A. Duguet, C. Dupré and A. Lahmam-Bennani J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 24 675(1991)

[23] A. Lahmam-Bennani, H. Ehrhardt, C. Dupré and A. Duguet, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 24 3645 (1991)

[24] B. El Marji, A. Lahmam-Bennani, A. Duguet and T J. Reddish, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 29 L157 (1996)

[25] A. Lahmam-Bennani, A. Duguet and S. Roussin, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 35 L59 (2002)

[26] E M. Staicu Casagrande, C. Li, A. Lahmam-Bennani, C. Dal Cappello, M. Schulz and M. Ciappina J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 43 105201 (2011)

[27] X G. Ren, A. Dorn and J. Ullrich Phys. Rev. Lett. 101 093201 (2008)

[28] C. Li, A. Lahmam-Bennani, E M. Staicu Casagrande and C. Dal Cappello J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 44 115201 (2011)

[29] E M. Staicu Casagrande, C. Li, A. Lahmam-Bennani and C. Dal Cappello J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 47 115203 (2014)

[30] P. Bolognesi, C C. Jia, L. Avaldi, A. Lahmam-Bennani, K A. Kouzakov and Y V. Popov Phys. Rev. A 67 34701 (2003)

[31] M J. Ford, J H. Moore, M A. Coplan, J W. Cooper and J P. Doering Phys. Rev. Lett. 77 2650 (1996)

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

[33] B. Joulakian, C. Dal Cappello and M. Brauner J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 25 2863 (1992)

[34] B. Joulakian and C. Dal Cappello Phys. Rev. A 47 3788 (1993)

[35] R ElMir, E M. Staicu Casagrande, C. Dal Cappello, A. Naja, A. Mansouri and I. Kada J. Phys.: Conf. Ser. 601 012005 (2015)

[36] A. Kheifets, I. Bray, A. Lahmam-Bennani, A. Duguet and I. Taouil J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 32 5047 (1999)

[37] A S. Kheifets, I. Bray, J. Berakdar and C. Dal Cappello J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 35 L15 (2002)

[38] S. Jones and D H. Madison Phys. Rev. Lett. 91 073201 (2003)

[39] S A. Zaytsev, V A. Knyr and Y V. Popov Phys. At. Nucl. 70 676 (2007)

[40] M. Silenou Mengoue, M G. Kwato Njock, B. Piraux, Y V. Popov and S A. Zaytsev Phys. Rev. A 83 052708 (2011)

[41] M J. Ambrosio, F D. Colavecchia, G. Gasaneo, D M. Mitnik and L U. Ancarani J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 48 055204 (2015)

[42] G. Gasaneo, L U. Ancarani, D M. Mitnik, J M. Randazzo, A L. Frapiccini and F D. Colavecchia Adv. Quantum Chem. 67 153 (2013)

[43] J W. Cooper and R W. van Boeyen J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 37 L77 (2004)

[44] N. Watanabe, J W. Cooper, R W. van Boeyen, J P. Doering, J H. Moore and M A.Coplan J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 37 4551 (2004)

[45] M. Grin, C. Dal Cappello, R E. Mkhanter and J. Rasch J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 33 131 (2000)

[46] I. Kada C. Dal Cappello and A. Mansouri Eur. Phys. J. D 71 41 (2017)

[47] H. Hafied, A. Eschenbrenner, C. Champion, M F. Ruiz-Lopez, C. Dal Cappello, I. Charpentier et PA. Hervieux J. Chem. Phys. ***439*** *55 (2007)*

[48] Dal Cappello C, PA. Hervieux, I. Charpentier et F. Ruiz-Lopez Phys. Rev. A ***78*** *042702 (2008)*

[49] Z. AitElhadiAli. Thèse de doctorat, Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou (2017).

CHAPITRE I : THEORIE GENERALE DE DIFFUSION

I.1 Introduction

Une grande partie de notre compréhension de la structure de la matière est extraite de la diffusion des particules. Sans la diffusion, la structure du monde microphysique serait restée inaccessible aux humains. C'est grâce à des expériences de diffusion que d'importants éléments constitutifs de la matière, tels que le noyau atomique, les nucléons et les divers quarks, ont été découverts.

L'expérience consiste à envoyer un faisceau de particules ayant un flux $\vec{J}_i$ (dans ce travail des électrons) de même nature et de moment $\vec{k}$ bien déterminée sur une cible (atome ou molécule) qui crée un potentiel de courte portée $V(r)$, et à observer la distribution angulaire et énergétique des particules diffusées (des électrons) à l'aide d'un détecteur mobile D placé à une distance r de la cible. Si celles-ci ont la même nature et la même énergie cinétique que les particules incidentes, on dit qu'il s'agit de collision élastique. La collision est au contraire inélastique, si une partie de l'énergie cinétique incidente est convertie en énergie d'excitation interne du corps diffuseur ou de la particule diffusée (ionisation).

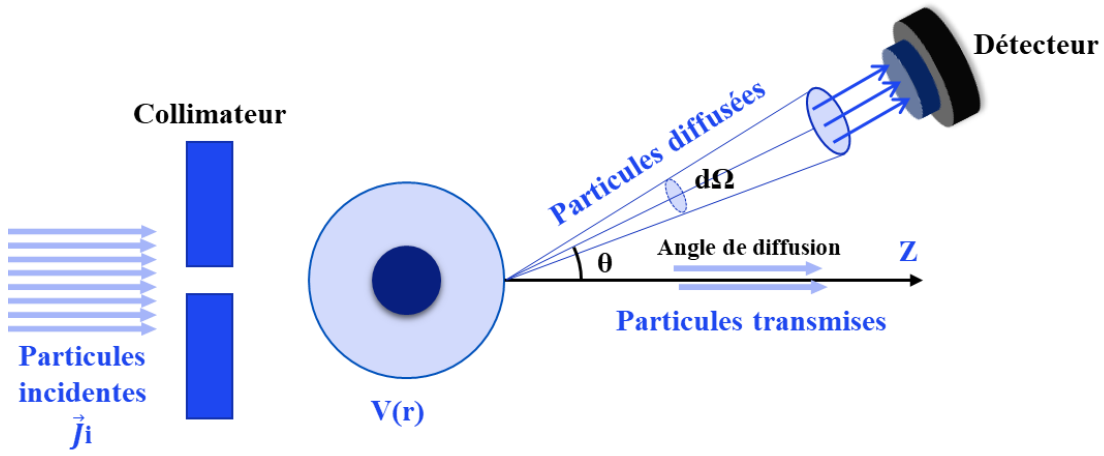


Figure I.1 : Expérience de diffusion

Le processus de diffusion le plus simple est celui d'une collision élastique entre deux particules (sans spin et non relativistes) ayant une masse réduite μ $\left(\mu = \frac{m_1.m_2}{m_1+m_2}\right)$, le potentiel diffuseur V(r) dépend de la coordonnée relative $\vec{r} = \vec{r}_1 - \vec{r}_2$ et de moment $\vec{k}$:

$$2\mu E = \hbar^2 k^2 \qquad (I.1)$$

L'équation de Schrödinger stationnaire hors de la région de diffusion s'écrit :

$$[\vec{\nabla}^2 + k^2]\Psi_i(\vec{r}) = 0 \qquad (I.2)$$

La solution de cette équation est une onde plane de vecteur d'onde $\vec{k}_i$ de forme :

$$\Psi_i(\vec{r}) = A\, e^{i\vec{k}_i.\vec{r}} \qquad (I.3)$$

Dans la région de diffusion l'équation de Schrödinger devient :

$$[\vec{\nabla}^2 + k^2]\Psi(\vec{r}) = U(\vec{r})\Psi(\vec{r}), \qquad \text{Avec} \qquad U(\vec{r}) = \frac{2\mu}{\hbar^2}V(\vec{r}) \qquad (I.4)$$

Une partie de l'onde va être diffusée alors qu'une autre partie va être transmise (figure.I.1). Donc la solution décrivant notre système sera composée d'une onde transmise poursuivant sa propagation dans le même sens et d'une onde diffusée :

$$\Psi(\vec{r}) = \Psi_i(\vec{r}) + \Psi_d(\vec{r}) \qquad (I.5)$$

L'onde diffusée doit être décrite à une grande distance du centre de diffusion, par une onde sphérique de forme :

$$\Psi_d(\vec{r}) = A\, f_k(\theta,\varphi)\frac{e^{ik_d r}}{r} \qquad (I.6)$$

Ou la fonction de proportionnalité $f_k(\theta,\varphi)$ est appelée amplitude de diffusion et qui dépend de la direction (θ,φ) (décrit l'anisotropie de la diffusion).

La forme asymptotique de l'onde totale à une grande distance du centre de diffusion est :

$$\Psi(\vec{r}) = A(e^{i\vec{k}_i.\vec{r}} + f_k(\theta,\varphi)\frac{e^{ik_d r}}{r}) \qquad (I.7)$$

Avec $\vec{k}_d$ le vecteur d'onde de la particule diffusée et θ l'angle entre $\vec{k}_d$ et $\vec{k}_i$. A est le constant de normalisation qui ne dépend pas de $\vec{r}$, θ et φ.

I.2 Notion de sections efficaces : Différentielle et totale

Dans une expérience de diffusion, les résultats sont exprimés généralement par une grandeur qui joue un rôle important dans la physique des collisions dite Section efficace. Par définition, la section efficace notée $\frac{d\sigma(\theta,\varphi)}{d\Omega}$ est le nombre de particules diffusées dn à travers un angle solide $d\Omega$ autour d'une direction moyenne repérée par deux angles (θ,φ) par unité de temps et flux incident [1] (figure.I.2) :

$$\frac{d\sigma(\theta,\varphi)}{d\Omega} = \frac{1}{J_i}\frac{dn(\theta,\varphi)}{d\Omega} \qquad (I.8)$$

Où J_i est le flux incident (densité de courant incidente) ; c'est le nombre de particules incidentes par unité de temps et de surface. L'analyse dimensionnelle montre que $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ a les dimensions d'une surface. En intégrant sur Ω, nous obtenons la section efficace totale σ_{tot} :

$$\sigma_{tot} = \int \frac{d\sigma(\theta,\varphi)}{d\Omega} = \int_0^{\pi}\int_0^{2\pi} \frac{d\sigma(\theta,\varphi)}{d\Omega}\, d\varphi \sin\theta\, d\theta \qquad (I.9)$$

I.3 Section efficace différentielle et Amplitude de diffusion

L'amplitude de diffusion $f(\theta,\varphi)$ joue un rôle central dans la théorie de la diffusion, car elle détermine la section efficace différentielle. Pour voir cela, introduisons d'abord les densités de flux incident et diffusé :

$$\vec{J}_i = \frac{i\hbar}{2\mu}\left(\Psi_i\vec{\nabla}\Psi_i^* - \Psi_i^*\vec{\nabla}\Psi_i\right) = \frac{\hbar k_i}{\mu}|A|^2 \qquad (I.10)$$

$$\vec{J}_d = \frac{i\hbar}{2\mu}\left(\Psi_d\vec{\nabla}\Psi_d^* - \Psi_d^*\vec{\nabla}\Psi_d\right) = \frac{\hbar k_d}{\mu r^2}|f(\theta,\varphi)|^2|A|^2 \qquad (I.11)$$

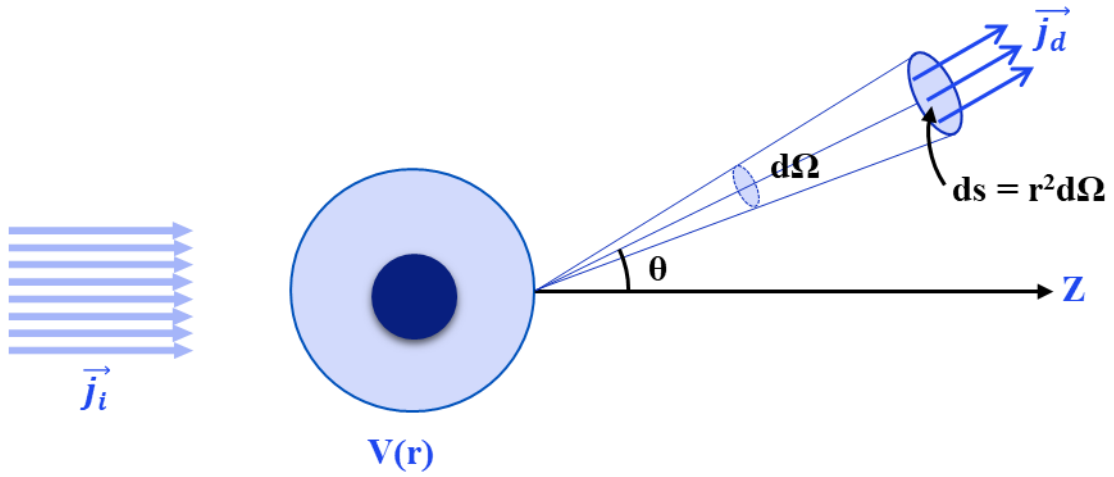


Figure I.2 : Illustration des déférentes quantités utilisées dans cette section

Le nombre de particules qui frappe la surface ds du détecteur par unité de temps dans l'angle solide $d\Omega$, est $dn(\theta,\varphi)$ donné par :

$$dn(\theta,\varphi) = j_d ds = j_d r^2 d\Omega \qquad (I.12)$$

En remplaçant j_d par sa relation (I.11), cette relation donne :

$$\frac{dn}{d\Omega} = \frac{\hbar k_d}{\mu}|f(\theta,\varphi)|^2\,|A|^2 \qquad (I.13)$$

L'insertion de (I.13) et (I.10) dans (I.8), donne :

$$\frac{d\sigma(\theta,\varphi)}{d\Omega} = \frac{k_d}{k_i}|f(\theta,\varphi)|^2 \qquad (I.14)$$

Pour le cas d'une diffusion élastique, $k_d = k_i$:

$$\frac{d\sigma(\theta,\varphi)}{d\Omega} = |f(\theta,\varphi)|^2 \qquad (I.15)$$

Le problème de la détermination de la section efficace différentielle $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ se réduit donc à la détermination de l'amplitude de diffusion $f(\theta,\varphi)$.

I.3.1 Amplitude de diffusion

Le calcul de l'amplitude de diffusion revient à la résolution de l'équation (I.4) qui peut s'écrire comme une superposition des ondes planes (solution homogène de l'eq. I.4) et des ondes diffusées. Ce dernier est obtenu facilement à l'aide la fonction de Green :

$$\Psi_d(\vec{r}) = \frac{2\mu}{\hbar^2}\int G(\vec{r}-\vec{r}')V(\vec{r}')\Psi(\vec{r}')\,d\vec{r}' \qquad (I.16)$$

Ou $G(\vec{r}-\vec{r}')$ est la fonction de Green d'une particule libre, qui satisfait l'équation suivant :

$$\left[\vec{\nabla}^2 + k^2\right]G(\vec{r}-\vec{r}') = \delta(\vec{r}-\vec{r}') \qquad (I.17)$$

$G(\vec{r}-\vec{r}')$ et $\delta(\vec{r}-\vec{r}')$ sont données par les transformées de Fourier suivantes :

$$\begin{cases} G(\vec{r}-\vec{r}') = \dfrac{1}{(2\pi)^3}\displaystyle\int e^{i\vec{q}(\vec{r}-\vec{r}')}\,\widetilde{G}\,(\vec{q})d^3q \\ \delta(\vec{r}-\vec{r}') = \dfrac{1}{(2\pi)^3}\displaystyle\int e^{i\vec{q}(\vec{r}-\vec{r}')}\,d^3q \end{cases} \qquad (I.18)$$

En substituant (I.18) dans (I.16), nous aurons :

$$[-q^2+k^2]\widetilde{G}\,(\vec{q}) = 1 \Longrightarrow \widetilde{G}\,(\vec{q}) = \frac{1}{[-q^2+k^2]} \qquad (I.19)$$

L'expression de $G(\vec{r}-\vec{r}')$ est obtenu après l'insertion de (I.19) dans (I.18) et l'intégrer par rapport à d^3q :

$$G_{\pm}(\vec{r}-\vec{r}') = -\frac{1}{4\pi}\frac{e^{\pm ik|\vec{r}-\vec{r}'|}}{|\vec{r}-\vec{r}'|} \qquad (I.20)$$

Les signes + et – correspondant à une fonction sortante et entrante respectivement. Puisque les particules diffusées sont des ondes sortantes, donc nous utiliserons $G_+(\vec{r}-\vec{r}')$, la fonction totale est donc comme suit :

$$\Psi(\vec{r}) = \mathrm{A}(\mathrm{e}^{\mathrm{i}\vec{k}_i.\vec{r}} - \frac{\mu}{2\pi\hbar^2}\int \frac{e^{ik_d|\vec{r}-\vec{r}'|}}{|\vec{r}-\vec{r}'|}\, V(\vec{r}')\Psi(\vec{r}')d\vec{r}') \qquad (\mathrm{I}.21)$$

Cette équation est dite : équation intégrale de diffusion.

A grande distance $r \gg r'$, comme le montre la figure I.3, nous pouvons écrire :

$$|\vec{r}-\vec{r}'| = \sqrt{r^2 + r'^2 - 2\vec{r}.\vec{r}'} = r\sqrt{1 + \frac{r'^2}{r^2} - \frac{2\vec{r}.\vec{r}'}{r^2}} \approx r\left(1 - \frac{\vec{r}.\vec{r}'}{r^2}\right) = \mathrm{r} - \vec{r}'\vec{\mathrm{u}}_r$$

Donc : $k_d|\vec{r}-\vec{r}'| = k_d.r - \vec{k}_d\vec{r}'$ et $\frac{1}{\vec{r}-\vec{r}'} \approx \frac{1}{r}$ avec $k_d\vec{\mathrm{u}}_r = \overrightarrow{k_d}$

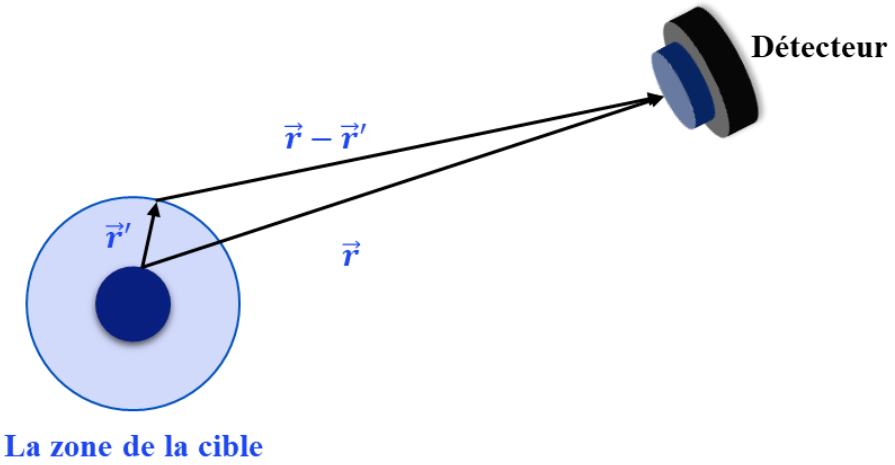


Figure I.3 : Une comparaison entre la distance r entre la cible et le détecteur et r'la taille de la cible : **r** >> **r'**

La forme asymptotique de $\Psi(\vec{r})$ est donc :

$$\Psi(\vec{r}) = \mathrm{A}(\mathrm{e}^{\mathrm{i}\vec{k}_i.\vec{r}} - \frac{\mu}{2\pi\hbar^2}\frac{e^{ik_d r}}{r}\int e^{-i\vec{k}_d.\vec{r}'}\, V(\vec{r}')\Psi(\vec{r}')d\vec{r}') \qquad (\mathrm{I}.21)$$

Par identification avec (I.7), l'amplitude de diffusion est donc :

$$f_k(\theta,\varphi) = -\frac{\mu}{2\pi\hbar^2}\int e^{-i\vec{k}_d.\vec{r}'}\, V(\vec{r}')\Psi(\vec{r}')d\vec{r}' \qquad (\mathrm{I}.22)$$

Dans la représentation de Dirac, cette amplitude de diffusion s'écrit :

$$f_k(\theta,\varphi) = -(2\pi)^2\langle\varphi(\vec{k}_d)|V|\Psi(\vec{k}_i)\rangle \qquad (\mathrm{I}.23)$$

Donc, la section efficace différentielle est obtenue en remplaçant (I.23) dans (I.14) :

$$\frac{d\sigma(\theta,\varphi)}{\mathrm{d}\Omega} = (2\pi)^4\frac{k_d}{k_i}\left|\langle\varphi(\vec{k}_d)|V|\Psi(\vec{k}_i)\rangle\right|^2 \qquad (\mathrm{I}.24)$$

I.3.1.1 Matrice de transition

L'amplitude de diffusion f qui décrit la transition d'un état initial Ψ_i à un état final Ψ_f sous l'effet d'un potentiel V dans la représentation de Dirac ($\mu = \hbar = 1$) s'écrit :

$$f = -(2\pi)^2 \langle \Psi_f | V | \Psi_i \rangle \qquad (\mathrm{I.}\,25)$$

Cette équation peut être écrite en termes de matrice de collision qui relie la fonction d'onde du système avant la collision $|\Psi_i\rangle$ à la fonction d'onde du système après la collision $|\Psi_f\rangle$ [2], on peut citer par exemple la matrice-R, la matrice-K, la matrice de diffusion S, la matrice de transition T. Cette dernière est définie par :

$$T|\Psi_i\rangle = V|\Psi_f\rangle \qquad (\mathrm{I.}\,26)$$

Nous pouvons réécrire l'équation (I.25) sous la forme :

$$f = -(2\pi)^2 \langle \Psi_f | T | \Psi_i \rangle \qquad (\mathrm{I.}\,27)$$

Et l'équation (I.24) peut être encore écrite en termes de matrice de collision comme suit :

$$\frac{d\sigma(\theta,\varphi)}{\mathrm{d}\Omega} = (2\pi)^4 \frac{k_d}{k_i} |T_{fi}|^2 \qquad (\mathrm{I.}\,28)$$

I.3.2 Sections efficaces différentielles

Nous avons vu précédemment la relation entre la section efficace de diffusion en général, et l'amplitude de diffusion ainsi que la matrice de transition. Nous allons à présent énuméré les différentes sections efficaces différentielles, leurs expressions donnent des informations plus ou moins détaillées sur le processus réactionnel. Les premiers outils théoriques permettant le calcul de ces sections efficaces ont été établis par Bethe [3] et Massey et Mohr [4] qui ont réussi à mettre en œuvre l'essentiel des aspects du processus dans le cadre de l'approximation de Born.

Lors d'une collision, la transition, de l'état initial constitué d'une cible à **N** électrons et d'un électron incident de moment $\vec{k}_i$ vers l'état final constitué d'un ion résiduel de N-2 électrons (dans le cas de la double ionisation qui fait l'objet de ce travail) et trois électrons dans le continuum (de moments $\vec{k}_1$, $\vec{k}_2$, et $\vec{k}_d$ et d'énergies respectives E_1,E_2 , $et\ E_d$) est décrite à travers la section efficace multiplement différentielle ou totale.

La section efficace totale est calculée en intégrant sur toutes les valeurs et les directions possibles des différentes quantités de mouvement [2] :

$$\sigma = \frac{(2\pi)^4}{k_i} \int d\vec{k}_1 d\vec{k}_2 \dots d\vec{k}_{n+1} \delta(E_i - E_f) \delta(\vec{k}_i - \vec{k}_f) |T_{fi}|^2 \qquad (\mathrm{I.29})$$

Les transitions qui sont permises sont celles respectant les conditions de conservation d'énergies et des quantités de mouvement :

$$E_i = E_f \qquad \text{et} \qquad \vec{k}_i = \vec{k}_f$$

A l'aide des propriétés mathématiques de la fonction de Dirac δ, L'intégration de l'équation (I.29) donne :

$$\sigma = \frac{(2\pi)^4}{k_i} \int d\vec{k}_1 d\vec{k}_2 \dots d\vec{k}_n \delta(E_i - E_f) |T_{fi}|^2 \qquad (\mathrm{I.30})$$

Dans une expérience de collision, pour limiter la détection des particules émises (diffusée et éjectée) à des valeurs précises d'énergie et d'angles de direction, les détecteurs n'occupent qu'un angle solide $d\Omega$ et n'observent par conséquent qu'une partie des particules diffusées ou éjectées. Dans ce cas, on parle de sections efficaces différentielles.

I.3.2.1 Section Efficace Simplement, Doublement et Triplement Différentielle

A partir de l'expression (I.30), nous pouvons définir la section efficace simplement différentielle SESD en angle, expérimentalement, l'une des particules dans la voie de sortie (l'électron diffusée par exemple) est détectée sélectivement dans la direction $\vec{k}_d$ sous un angle solide $d\Omega_d$:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega_d} = \frac{(2\pi)^4}{k_i} \int k_d^2 dk_d \prod_{j=1(j\neq d)}^{n} d\vec{k}_j \delta(E_i - E_f) |T_{fi}|^2 \qquad (\mathrm{I.31})$$

Avec : $d\vec{k}_d = k_d^2 dk_d d\Omega_d$

Une autre section efficace simplement différentielle si on s'intéresse aux aspects spectroscopiques de la cible dite section efficace simplement différentielle en énergie notée $\frac{d\sigma}{dE}$.

Si le détecteur permet aussi la détermination de l'énergie de l'un des électrons émergeants (l'électron diffusé aussi), nous pouvons définir à l'aide d' une seconde dérivation de l'équation (I.31) et on tient compte de $dE_d = k_d dk_d$, la section efficace doublement différentielle SEDD :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega_d dE_d} = \frac{(2\pi)^4}{k_i} k_d \int \prod_{j=1(j\neq d)}^{n} d\vec{k}_j \delta(E_i - E_f) |T_{fi}|^2 \qquad (\mathrm{I.32})$$

La section efficace sera dite triplement différentielle SETD que l'on note (e,2e), si l'électron incident transfère à la cible une énergie suffisante pour éjecter un électron détecté en coïncidence à l'aide d'un détecteur dans une direction $\vec{k}_1$et un angle solide $d\Omega_1$:

$$\frac{d^3\sigma}{d\Omega_d dE_d d\Omega_1} = \frac{(2\pi)^4}{k_i} k_d k_1 |T_{fi}|^2 \qquad (I.33)$$

I.3.2.2 Section Efficace Quadruplement Différentielle

Le système dans l'état final est constitué de quatre corps : un électron diffusé, deux électrons éjectés et l'ion résiduel, c'est le processus de double ionisation par impact électronique, que l'on note (e,3e). Les paramètres cinématiques qui caractérisent l'état final correspondent aux quantités de mouvement $\vec{k}_d, \vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{q}$ et les énergies respectives associées E_d, E_1, E_2, E_{ion}. Parmi les différentes sections efficaces différentielles qui caractérisent ce processus, la section efficace quadruplement différentielle 4DCS associé à la réaction notée (e,3e-1). Nous remarquons deux types de ces sections efficaces :

- Si le détecteur détecte en coïncidence seulement les deux électrons éjectés, la section correspondante s'écrit :

$$\frac{d^4\sigma}{d\Omega_1 dE_1 d\Omega_2 dE_2} = \frac{(2\pi)^4}{k_i} k_d k_1 k_2 \int d\Omega_d |T_{fi}|^2 \qquad (I.34)$$

- Si le détecteur détecte en coïncidence l'électron diffusé et un des deux électrons éjectés, l'expression de la section efficace associée s'écrit [5] :

$$\frac{d^4\sigma}{d\Omega_d dE_d d\Omega_1 dE_1} = \frac{(2\pi)^4}{k_i} k_d k_1 k_2 \int d\Omega_2 |T_{fi}|^2 \qquad (I.35)$$

De nombreuses expériences de ce type ont été réalisées par Lahmam Bennani et al. [6,7] pour étudier le principe de double ionisation avec détection de deux électrons en coïncidence après la collision sans tenir compte du sort du troisième électron.

I.3.2.3 Section Efficace Quintuplement Différentielle

La section efficace quintuplement différentielle **SEQD (**en anglais **FDCS)** donne le maximum de détails sur le processus de la double ionisation puisqu'elle fait intervenir tous les paramètres cinématiques. Cette quantité est définie après dérivation de l'expression (I.34) ou (I.35) par rapport à la direction de l'électron diffusé ou l'un des deux électrons éjectés respectivement :

$$\frac{d^5\sigma}{d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1 dE_2} = \frac{(2\pi)^4}{k_i} k_d k_1 k_2 \left|T_{fi}\right|^2 \qquad (I.36)$$

Cette grandeur mesure la distribution angulaire et énergétique des électrons diffusés et éjectés d'une même double ionisation. Elle est en fonction de l'énergie E_0 , E_d, E_1, E_2 de projectile, des électrons diffusés et éjectés et leurs directions de détection respectives $d\Omega_d, d\Omega_1$et $d\Omega_2$.

I.4 Approximation de Born

Parmi les approches les plus utilisées pour résoudre l'équation (I.21), l'approximation de Born. Le principe de cette approximation repose sur le fait que le potentiel d'interaction entre le projectile et les différentes particules de la cible est faible devant l'énergie totale de la cible ainsi que celle du projectile incident. Par conséquent, le potentiel diffuseur peut être traité comme une perturbation. Cette approximation permet d'exprimer l'amplitude de diffusion en termes du potentiel d'interaction $V(r)$.

Rappelons l'expression de l'amplitude de diffusion calculée auparavant :

$$f_k(\theta,\varphi) = -\frac{\mu}{2\pi\hbar^2}\int e^{-i\vec{k_d}.\vec{r}}\, V(\vec{r})\Psi(\vec{r})d\vec{r} \qquad (I.37)$$

Puisque $\Psi(\vec{r})$ est inconnu, nous cherchons une forme de cette amplitude de diffusion sans contenir le terme $\Psi(\vec{r})$. Nous avons :

$$\Psi(\vec{r}) = \mathrm{A}(\mathrm{e}^{\mathrm{i}\vec{k}_i.\vec{r}} + \frac{2\mu}{\hbar^2}\int G_+(\vec{r}-\vec{r}')\; V(\vec{r}')\Psi(\vec{r}')d\vec{r}') \qquad (I.38)$$

Nous pouvons écrire cette expression sous la forme :

$$\Psi(\vec{r}') = \mathrm{A}(\mathrm{e}^{\mathrm{i}\vec{k}_i.\vec{r}'} + \frac{2\mu}{\hbar^2}\int G_+(\vec{r}'-\vec{r}'')\; V(\vec{r}'')\Psi(\vec{r}'')d\vec{r}'') \qquad (I.39)$$

Introduire (I.39) dans (I.38), nous obtenons :

$$\Psi(\vec{r}) = \mathrm{A}\left(\mathrm{e}^{\mathrm{i}\vec{k}_i.\vec{r}} + \frac{2\mu}{\hbar^2}\int G_+(\vec{r}-\vec{r}')\; V(\vec{r}')\left[\mathrm{e}^{\mathrm{i}\vec{k}_i.\vec{r}'} + \frac{2\mu}{\hbar^2}\int G_+(\vec{r}'-\vec{r}'')\; V(\vec{r}'')\Psi(\vec{r}'')d\vec{r}''\right]d\vec{r}'\right)$$

$$\Psi(\vec{r}) = A\left(\mathrm{e}^{\mathrm{i}\vec{k}_i.\vec{r}} + \frac{2\mu}{\hbar^2}\int G_+(\vec{r}-\vec{r}')\; V(\vec{r}')\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}\vec{k}_i.\vec{r}'}d\vec{r}' + \frac{4\mu^2}{\hbar^4}\int G_+(\vec{r}-\vec{r}')\; V(\vec{r}')\left[\int G_+(\vec{r}'-\vec{r}'')\; V(\vec{r}'')\Psi(\vec{r}'')d\vec{r}''\right]d\vec{r}'\right) \qquad (I.40)$$

Puisque le potentiel est faible on peut négliger le dernier terme, et écrire l'expression de $f_k(\theta,\varphi)$ aussi en développement de plusieurs termes :

$$f_k(\theta,\varphi) = -\frac{\mu}{2\pi\hbar^2}\int e^{-i\vec{k_d}.\vec{r}}\, V(\vec{r}) e^{i\vec{k}_i.\vec{r}} d\vec{r}$$

$$-\frac{\mu^2}{\pi\hbar^4}\int e^{-i\vec{k_d}.\vec{r}}\, V(\vec{r}) \left[\int e^{i\vec{k}_i.\vec{r}} G_+(\vec{r}-\vec{r}')\; V(\vec{r}') d\vec{r}'\right] d\vec{r} \qquad (\mathrm{I}.41)$$

Le premier et le second terme du développement de Born appelé aussi la première et la seconde approximation de Born *FBA* (First Born Approximation) et *SBA* (Second Born Approximation) successivement.

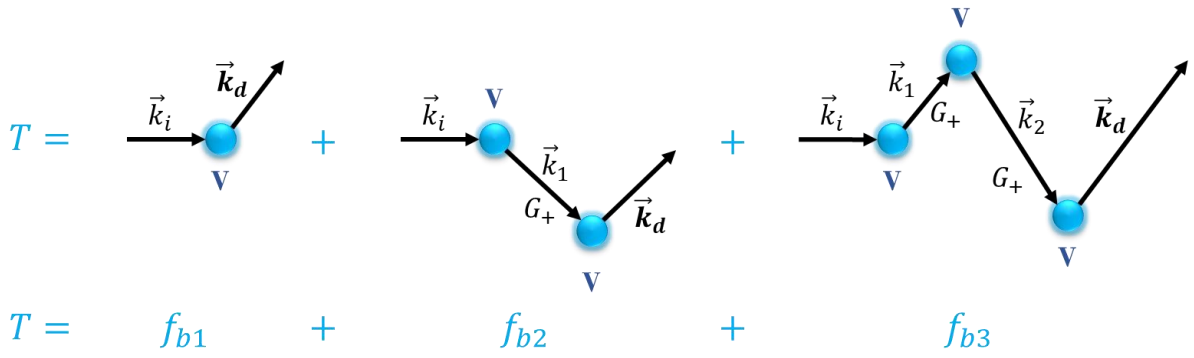


Figure I.4 : Schémas simplifier du développement de Born

I.4.1 Validité de Born 1

Born 1 : ce premier terme décrit le passage de la particule incidente de son état initial (décrit par une onde plane $Ae^{i\vec{k}_i.\vec{r}}$), sous l'effet de la potentiel $V(r)$, vers un état final (décrit par l'onde $Ae^{i\vec{k_d}.\vec{r}}$):

$$f_{b1} = -\frac{\mu}{2\pi\hbar^2}\int e^{-i\vec{k_d}.\vec{r}}\, V(\vec{r}) e^{i\vec{k}_i.\vec{r}} d\vec{r} = -\frac{\mu}{2\pi\hbar^2}\int e^{i\vec{k}.\vec{r}}\, V(\vec{r}) d\vec{r} \qquad (\mathrm{I}.42)$$

Avec $\vec{k} = \vec{k}_i - \vec{k}_d$ appelé le moment de transfert.

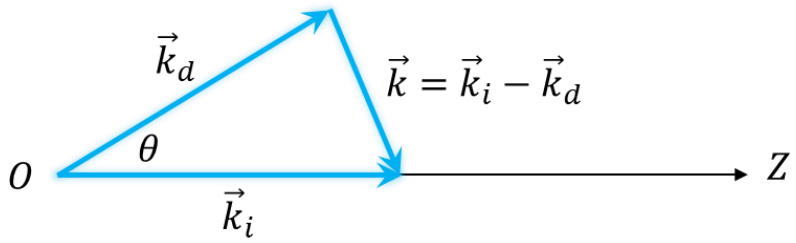


Figure I.5 : Illustration du vecteur de l'état initial $\vec{k}_i$, le vecteur de l'état final $\vec{k}_d$ et le vecteur de moment de transfert $\vec{k}$

Born 2 : Le système passe par deux interactions successives. Sous l'effet du potentiel $V(\vec{r}')$, l'état initial passe vers un état intermédiaire, qui sous l'action du potentiel $V(\vec{r})$ passe vers l'état final.

$$f_{b2} = -\frac{\mu}{2\pi\hbar^2}\int e^{-i\vec{k_d}.\vec{r}}\, V(\vec{r})\left[\iint e^{i\vec{k}_i.\vec{r}'} G_+(\vec{r}-\vec{r}')\; V(\vec{r}')d\vec{r}'\right]d\vec{r} \qquad (\mathrm{I}.43)$$

Ainsi, la première approximation de Born n'est valable que lorsque nous considérons une seule interaction du projectile avec la cible, comme c'est le cas des collisions ionisantes de cibles atomiques ou moléculaires par des électrons ayant une vitesse très grande devant celle des électrons liés à la cible [8-10]

I.5 Analyse par les ondes partielles

Nous avons exposé, jusqu'à présent, un calcul approximatif de l'amplitude de diffusion. Nous allons, à présent, étudier l'équation de Schrödinger d'un électron dans un potentiel $V(r)$ sans mettre aucune contraintes sur ce dernier ; (le potentiel est radial, il est soit coulombien ou distordu). Les solutions de l'équation de Schrödinger, sont cherchées en utilisant la méthode des ondes partielles. Cette méthode consiste essentiellement à décomposer l'onde plane incidente en une série d'ondes partielles sphériques et à étudier ce qu'il advient de chacune de ces ondes partielles [11].

I.5.1 L'équation radiale

Nous considérons la diffusion d'une particule de masse m dans un potentiel central $V(r)$. Nous adoptons le système des coordonnées sphériques.

L'Hamiltonien du système est :

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m}\left[\frac{1}{r^2}\frac{d}{dr}\left(r^2\frac{d}{dr}\right) - \frac{L^2}{r^2}\right] + V(r) \qquad (\mathrm{I}.44)$$

L'équation de Schrödinger stationnaire pour une fonction d'onde stationnaire de diffusion peut être écrite comme suit :

$$\left[\frac{\hbar^2}{2m}\left(\frac{1}{r^2}\frac{d}{dr}\left(r^2\frac{d}{dr}\right) - \frac{L^2}{r^2}\right) - V(r) + E\right]\Psi^+\left(\vec{k},\vec{r}\right) = 0 \qquad (\mathrm{I}.45)$$

Les opérateurs H, L^2 et L_z, commutent [12]. Nous pouvons chercher des fonctions propres communes à ces trois opérateurs. Nous pouvons donc décomposer la fonction d'onde de diffusion $\Psi^+(\vec{k},\vec{r})$ en ondes partielles en fonction des nombres quantiques l et m [2] :

$$\psi^{+}\left(\vec{k}\,,\vec{r}\right)=\sum_{l=0}^{\infty}\sum_{m=-1}^{+l}c_{lm}\left(\vec{k}\right)\cdot R_{lm}\left(\vec{k}\,,\vec{r}\right)\cdot Y_{lm}(\theta,\varphi) \qquad (\mathrm{I}.46)$$

$Y_{l,m}(\vec{k})$: est l'harmonique sphérique :

$$L^2Y_{l,m}(\theta,\varphi)=l(l+1).\hbar^2Y_{l,m}(\theta,\varphi) \quad l\in N \qquad (\mathrm{I}.47)$$

Et l'équation satisfaite par la fonction radiale $R_l(k,r)$ devient :

$$\left[\frac{\hbar^2}{2m}\left(\frac{1}{r^2}\frac{d}{dr}(r^2\frac{d}{dr})-\frac{l(l+1)}{r^2}\right)-V(r)+E\right]R_l(k,r)=0 \qquad (\mathrm{I}.48)$$

On a $U=\frac{2mV(\mathrm{r})}{\hbar^2}$ et $k^2=\frac{2mE}{\hbar^2}$ mentionné dans (I.4), donc l'équation (I.48) s'écrit:

$$\left[\frac{1}{r^2}\frac{d}{dr}(r^2\frac{d}{dr})-\frac{l(l+1)}{r^2}-U(r)+k^2\right]R_l(k,r)=0 \qquad (\mathrm{I}.49)$$

Il est pratique d'utiliser une nouvelle fonction :

$$u_l(k,r)=r\,R_l(k,r) \qquad (\mathrm{I}.50)$$

L'équation (I.49) s'écrit donc sous la forme simplifiée :

$$\left[\frac{d^2}{dr^2}-\frac{l(l+1)}{r^2}-U(r\ \ )+k^2\right]u_l(k,r\ \ )=0 \qquad (\mathrm{I}.51)$$

Les solutions ayant un sens physique, sont celles qui sont régulières à l'origine et qui a le comportement suivant [12,13] :

$$u_l(k,r\ \ )_{r\to 0}\approx\alpha(r^{l+1}) \qquad (\mathrm{I}.52)$$

Avec $u_l(0)=0$. L'équation (I.51) est analogue à celle d'une particule de masse m dans un potentiel effectif [12] tel que :

$$V_{eff}(r)=V(r)+\frac{l(l+1)}{r^2} \qquad (\mathrm{I}.53)$$

Le terme $\frac{l(l+1)}{r^2}$ est appelé *le potentiel centrifuge* (ou barrière centrifuge), c'est un potentiel répulsif à courte portée.

Lors de l'utilisation de la méthode des ondes partielles dans le traitement théorique des phénomènes de collisions (double ionisation qui fait l'objet de ce travail), on rencontre le problème de l'intégration de l'équation de Schrödinger avec un potentiel central purement coulombien (le problème peut être traité analytiquement) et celui où le potentiel coulombien

est modifié par un potentiel de rayon limité (une interaction s'ajoute à l'interaction coulombienne dite à courte portée) .

I.5.1.1 L'équation radiale d 'une particule libre

Avant de faire la résolution de l'équation (I.51), nous examinons tout d'abord la solution de l'équation pour $U(r) = 0$, soit :

$$\left[\frac{d^2}{dr^2} - \frac{l(l+1)}{r^2} + k^2\right] y_l(k,r\ \ ) = 0 \qquad (\mathrm{I.54})$$

C'est une équation radiale d'une particule libre qu'on décrit par une onde plane ψ_p :

$$\psi_p = \frac{e^{i\vec{k}\vec{r}}}{2\pi^{3/2}}, \quad e^{i\vec{k}\vec{r}} = 4\pi \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-1}^{+l} i^l j_l(k,r) Y_{l,m}^*(\hat{k}) Y_{l,m}(\hat{r}) \qquad (\mathrm{I.55})$$

Avec $j_l(k,r)$ est la fonction sphérique de *Bessel* qui est souvent utilisée dans la théorie de diffusion. Pour les grandes distances [2]:

$$j_l(k,r) = \frac{1}{kr} sin\left(kr - l\frac{\pi}{2}\right) \quad (\mathrm{I.56})$$

I.5.1.2 Cas d'un potentiel purement coulombien

Lors d'une interaction coulombienne entre deux particules (un électron et un noyau de charge Z située à une distance r), l'équation de Schrödinger sera écrite comme suit :

$$\left[\frac{\hbar^2}{2m}\left(\frac{1}{r^2}\frac{d}{dr}(r^2\frac{d}{dr}) - \frac{L^2}{r^2}\right) - \frac{z}{r} + E\right] \psi^+(\vec{k},\vec{r}) = 0 \qquad (\mathrm{I.57})$$

Le développement en ondes partielles de la solution de l'équation (I.57) s'écrit comme :

$$\psi^+(\vec{k},\vec{r}) = \sum_{l=0}^{\infty} \frac{u_l(k,r\ \ )}{r} P_l(cos\,\theta) \qquad (\mathrm{I.58})$$

$P_l(\cos\theta)$ est le polynôme de Legendre :

$$P_l(cos\,\theta) = \frac{4\pi}{2l+1} \sum_{m=-1}^{+l} Y_{l,m}^*(\hat{k}) Y_{l,m}(\hat{r}) \quad (\mathrm{I.59})$$

Nous pouvons écrire l'équation de Schrödinger radiale sous la forme :

$$\left[\frac{d^2}{dr^2} + k^2 - \frac{l(l+1)}{r^2} - \frac{2\eta k}{r}\right] u_l(k,r\ \ ) = 0 \qquad (\mathrm{I.60})$$

Tel que $\eta = \frac{Z}{k}$ est le paramètre de Sommerfeld. Si nous remplaçons :

$$u_l(k,r\ \ ) = e^{ikr}(kr)^{l+1} f_l(\alpha r) \qquad (\mathrm{I}.61)$$

Et $\rho = \alpha r$, nous trouvons que la fonction f_l satisfait l'équation de Kummer-Laplace [2] :

$$\rho \frac{d^2 f_l}{d\rho^2} + (2l + 2 - \rho)\frac{df_l}{d\rho} - (l + 1 + \eta) f_l = 0 \qquad (\mathrm{I}.62)$$

La solution de cette équation (I.62), régulière à $r = 0$ si en choisissant $\alpha = -2ik$ est :

$$f_l = C_l\ {}_1F_1(l + 1 + i\eta; 2l + 2; -2ikr) \qquad (\mathrm{I}.63)$$

La substitution de (I.63) dans (I.61) donne la fonction coulombienne sphérique régulière $F_l(\mathrm{k,r})$:

$$F_l = C_l e^{ikr}(kr)^{l+1}\ {}_1F_1(l + 1 + i\eta; 2l + 2; -2ikr) \qquad (\mathrm{I}.64)$$

Avec : $C_1 = \frac{2^l e^{-\frac{\pi\eta}{2}} |\Gamma(l+1+i\eta)|}{(2l+1)!}$

La fonction coulombienne ψ_c décrivant l'électron est proportionnelle à ψ^+solution de l'équation de Schrödinger (I.58), en coordonnées paraboliques donnée par Mott et Massey [14]:

$$\Psi_C(k,r) = (2\pi)^{-\frac{3}{2}} e^{-\frac{\pi}{2}\eta} \Gamma(1 + i\eta) e^{ikz}\ {}_1F_1(-i\eta, 1, ik(r - z)) \qquad (\mathrm{I}.65)$$

Où ${}_1F_1(-i\eta, 1, ik(r - z))$ dite la fonction hypergéométrique confluente et $\Gamma(1 + i\eta)$ la fonction gamma, cette onde coulombienne tend vers l'onde plane pour $Z \to 0$.

I.5.1.3 Cas d'un potentiel de distorsion

Considérons à présent, la situation où un potentiel à courte portée ($V_{cp}(r) = \frac{\hbar U(r)}{2m}$) est ajouté au champ coulombien $V_c(r)$ (potentiel de distorsion). L'équation de Schrödinger ne possède pas en général des solutions analytiques. Les méthodes de résolution numérique ne pourront fournir que des solutions approchées, contrairement au cas du potentiel coulombien où les solutions exactes de l'équation de Schrödinger sont connues. L'équation de Schrödinger radiale s'écrit comme :

$$\left[\frac{d^2}{dr^2} + k^2 - \frac{l(l+1)}{r^2} - \frac{2\eta k}{r} - U(r)\right]\chi(k,r\ \ ) = 0 \qquad (\mathrm{I}.66)$$

Notons que $U(r)$ est une perturbation due à l'effet de la distribution électronique dans l'ion sur les deux électrons sortants dans le cas de la double ionisation [16]. La solution de l'équation de Schrôdinger dans un potentiel de distorsion ayant une forme :

$$\psi(\vec{k},\vec{r}) = \frac{4\pi}{(2\pi)^{\frac{3}{2}}} \sum_{l,m} i^l e^{i\delta_l} \frac{\chi_l(k,r)}{kr} Y^*_{l,m}(\hat{k}) Y_{l,m}(\hat{r}) \qquad (\mathrm{I}.67)$$

Pour $r \to \infty$: $V_c(r)$ domine $V_{cp}(r)$ et $\frac{l+1}{r^2}$, tandis que l'interaction totale intervient aux petits r. Donc la fonction $\chi(k,r)$ s'écrit comme combinaison linéaire des fonctions coulombiennes régulière F_l et irrégulière G_l [2]:

$$\chi_l(k,r)_{r\to\infty} \to A_l\left[H_l^-(k,r) + e^{2i\Delta_l}H_l^+(k,r)\right] \qquad (\mathrm{I}.68)$$

Où A_l est une constante de normalisation,

$$\Delta_l = \sigma_l + \delta_l \quad \text{et} \quad H_l^{\pm}(k,r) = e^{\mp i\sigma_l}\{F_l + iG_l\} \qquad (\mathrm{I}.69)$$

Où $F_l(k,r)$ et $G_l(k,r)$ sont des fonctions de Bessel sphériques régulières et irrégulières. Δ_l représente le déphasage total. Le terme δ_l ajouté au déphasage coulombien σ_l, est dû au potentiel $V_{cp}(r)$. Signalons que le déphasage δ_l; n'est pas le même que celui obtenu en présence uniquement du potentiel de courte portée $V_{cp}(r)$.

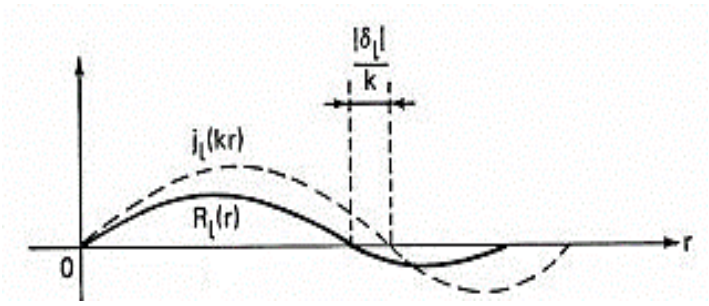


Figure I.6 : Représentation schématique du déphasage $\boldsymbol{\delta_l}$ dans le cas d'un potentiel attractif [2].

La substitution de Δ_l et $H_l^{\pm}$ dans (I.68) donne :

$$\chi(r)_{r\to\infty} \to 2e^{i\delta_l}[cos(\delta_l)F_l(k,r) + sin(\delta_l)G_l(k,r)] \qquad (\mathrm{I}.70)$$

Cette fonction radiale $\chi(k,r)$ est obtenue en intégrant numériquement l'équation de Schrödinger radiale (I.66).

Dans ce travail nous avons proposé une méthode approximative dans le cas du potentiel de distorsion qui repose sur l'utilisation d'une onde coulombienne avec charge variable $Z(r)$.

Cette approximation est validée par notre groupe de laboratoire dans le cas de la simple ionisation [15] qu'ils l'ont comparé avec la vraie onde distordue (purement numérique) dans le cas du Néon (2p). Ils ont aperçu un comportement assez proche des deux modèles avec une légère différence dans l'amplitude.

Notons que cette approximation conduit à une économie de temps de calcul précieuse lorsqu'elle est appliquée dans des modèles plus complexes, c'est ce qui nous a encouragé à l'utiliser dans notre travail de double ionisation.

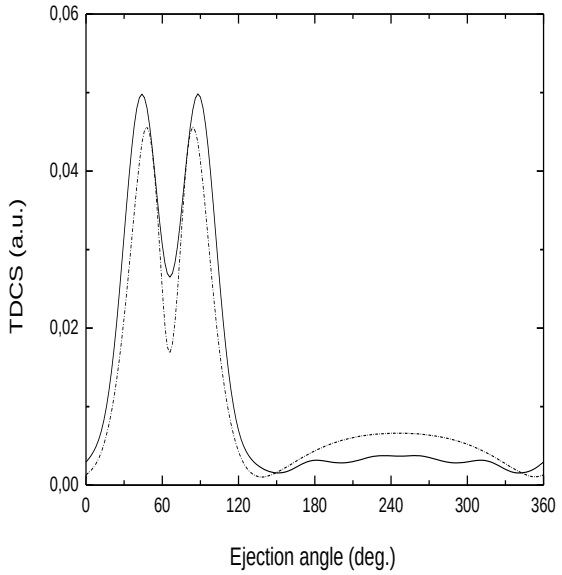


Figure I.7 : SETD pour l'ionisation du Néon 2p dans son état fondamental. L'électron incident est diffusé avec une énergie $E_a = 500$ eV et détecté sous un angle $\theta_a = 20^o$ en coïncidence avec l'électron éjecté avec une énergie $E_b = 74$ eV. Le modèle 1dwn numérique (ligne noire continue) est comparé avec et le modèle 1dw approximatif (ligne discontinue)[15]

I.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les éléments de base concernant la théorie de diffusion d'une manière générale (la section efficace totale et différentielle, l'amplitude de diffusion et la matrice de transition)

Une deuxième partie de ce chapitre est consacrée à la définition de sections efficaces différentielles qui caractérise les différents processus d'ionisation des atomes par impact d'électrons (la grandeur le plus importante dans notre travail).

Nous avons terminé ce chapitre aux déférentes fonctions d'ondes décrivant un électron dans un potentiel radial en utilisant la méthode des ondes partielles.

Nous passons dans le chapitre suivant au processus de double ionisation (e,3e) par impact d'électrons (l'objectif de cette thèse).

Références bibliographiques

[1] N. Zettili, Quantum Mechanics: concepts and applications. John Wiley & Sons, UK (2009).

[2] J. C. Joachain, Quantum Collision Theory, North-Holland publiching, (Amsterdam) (1983)

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

[4] H. S. W. Massey and C. B. O. Mohr, Proc. Roy. Soc. A 140, 613 (1933)

[5] B. Joulakian and C. Dal Cappello, Phys. Rev. A 47,3788-95 (1993).

[6] A. Lahmam Bennani, H. Ehrhardt, C. Dupré and A. Duguet, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 24, 3645 (1991).

[7] A. Lahmam Bennani, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 24, 2401 (1991).

[8] H. Ehrhardt, M. Fischer and K. Jung, Z. Phys. A 304, 119 (1982).

[9] F. W. Jr. Byron, C. J. Joachain and B. Piraux, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 13, L673 (1980).

[10] M. J. Brother and R. A. Bonham, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 17, 4235 (1980).

[11] A. Messiah, Mecanique Quantique, Dunod, Paris (1960)

[12] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu et F. Lalôe, Mécanique quantique I et II, Hermann (çtans) (1977).

[13] Landau L. et Lifchitz E., Physique Théorique, Editions Mir Moscou (1965).

[14] N. F. Mott and H.S.W Massey., The Theory of Atomic collision, 3eme edition, Clarendon (Oxford) (1965)

[15] T. Khatir, S. Houamer, C. Dal Cappello J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 52 245201 (2019)

[16] S. El Ghazouani Thèse de doctorat en physique, Université de Metz-France (2018).

CHAPITRE II : THEORIE DE LA DOUBLE IONISATION

II.1 Introduction

L'interaction particule-matière peut induire une diversité de phénomènes, parmi ceci : l'ionisation. Ce dernier correspond à l'arrachement d'un ou plusieurs électrons de la cible. On peut distinguer différents types d'ionisation, directe et indirecte, simple ou multiples. La simple ionisation consiste à l'arrachement d'un seul électron et par conséquence la cible devient un ion avec une charge positive. La double ionisation (l'objective de notre travail) repose à l'arrachement de deux électrons et la cible devient doublement chargé. Ce processus présente un intérêt considérable non seulement en physique mais aussi en sciences de la vie où il est primordial de comprendre les différents mécanismes responsables du dépôt d'énergie dans l'interaction avec la matière.

REM : Dans la suite de cette thèse, toutes les expressions mathématiques seront données en unités atomiques :

$$\boldsymbol{a_0 = m_e = \hbar = e = 1}$$

Avec:

$\boldsymbol{a_0 = 0.53 \times 10^{-10} m}$ Rayon de Bohr

$\boldsymbol{m_e = 2.7 \times 10^{-27} g}$ La masse d'un électron

$\hbar = \boldsymbol{\frac{h}{2\pi}}$; $\boldsymbol{h = 6.62 \times 10^{-34} J/s}$ *h:* la constante de Planck

$\boldsymbol{e = -1.6 \times 10^{-19} C}$ La charge d'un électron

II.2 La réaction (e, 3e)

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

Ce type de réaction consiste comme nous l'avons déjà dit dans le chapitre I à l'arrachement par un électron projectile $\boldsymbol{e_i}$ de deux électrons (e_1, e_2) d'une cible C (atomique ou moléculaire) pour qu'elle devienne doublement chargée C^{++} selon l'équation suivante :

$$e_i(\vec{k}_i, E_i) + C \rightarrow C^{++} + e_d(\vec{k}_d, E_d) + e_1(\vec{k}_1, E_1) + e_2(\vec{k}_2, E_2) \qquad \text{(II. 1)}$$

Les paramètres cinématiques qui caractérisent cette réaction sont résumés dans la figure II.1.

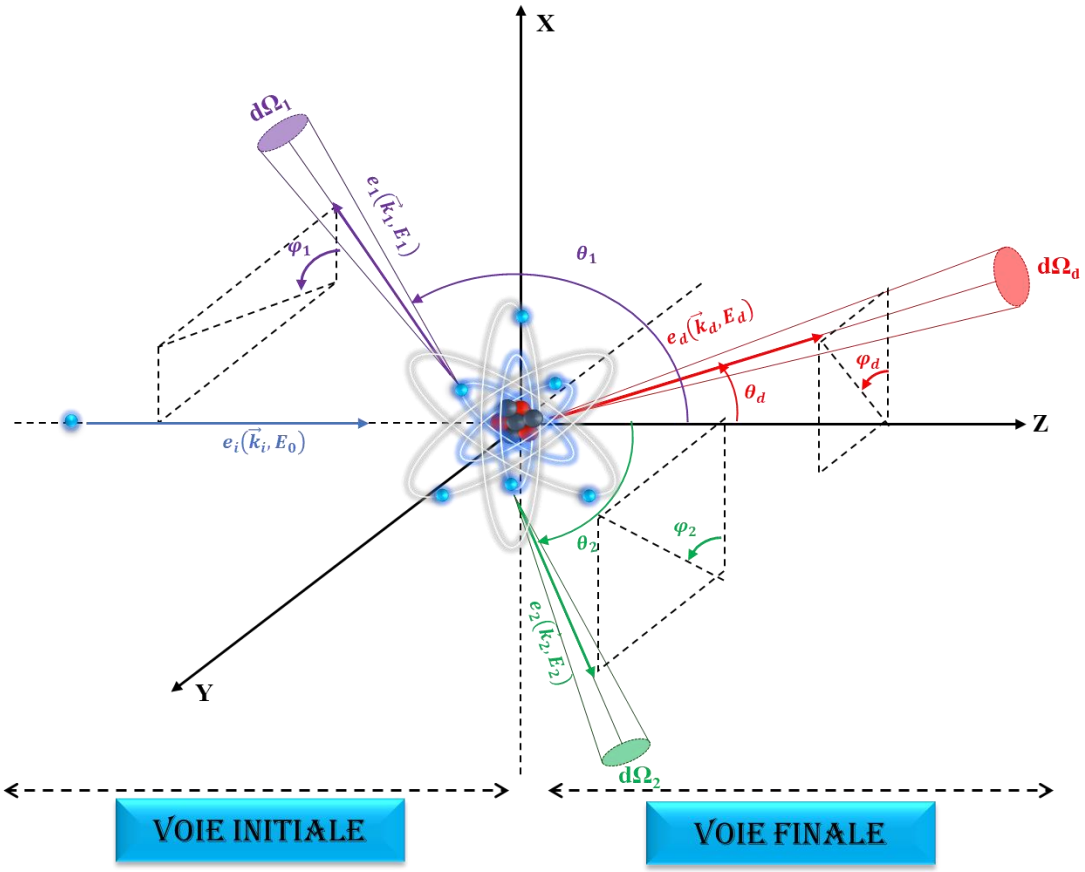


Figure II.1 : Illustration des paramètres cinématiques utilisés dans la réaction (II.1)

Cette réaction est notée (e,3e) à cause de la présence d'un électron projectile dans la voie initiale du système et trois électrons (un électron diffusé qui est généralement rapide par rapport aux deux autres qu'ils sont éjectés plus lents) détectés en coïncidence dans la voie finale. Ces expériences sont difficiles à réaliser en raison de la section efficace de la DI correspondante, qui est très petite, et nécessite également un triple signal de coïncidence des trois électrons de la voie finale. Pour ces raisons, une expérience moins difficile à réaliser qui demande seulement deux détections en coïncidence notées (e,3e-1) où seulement deux électrons sur trois sont détectés.

Les lois de conservations des énergies et des quantités de mouvement indiquer dans le premier chapitre ($E_i = E_f$ et $\vec{k}_i = \vec{k}_f$) seront écrites comme suit :

$$E_i + E_c = E_1 + E_2 + E_{c^{++}} + E_d + E_{recul} \qquad (\mathrm{II.2})$$

$$\vec{k}_i = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 + \vec{k}_d + \vec{q} \qquad (\mathrm{II.3})$$

E_c et $E_{c^{++}}$ sont respectivement les énergies de l'état fondamental de la cible C et d'un état quelconque de l'ion résiduel doublement ionisé C^{++}, $\vec{q}$ représente la quantité de

mouvement de recul transférée à l'ion résiduel après le choc. Nous définissons également le moment de transfert $\vec{k}$ comme suit :

$$\vec{k} = \vec{k}_i - \vec{k}_d \qquad (\text{II. 4})$$

$$\vec{q} = \vec{k} - \left(\vec{k}_1 + \vec{k}_2\right) \qquad (\text{II. 5})$$

Si on note $I^{++} = E_{c^{++}} - E_c$ l'énergie de double ionisation de la cible, et on sait que l'énergie de recul E_{recul} de l'ion est très petite comparée aux énergies des autres particules, vue que la grande masse de l'ion, l'équation (II. 2) devient :

$$E_i \ = \ E_1 \ + \ E_2 \ + E_d + I^{++} \qquad (\text{II. 6})$$

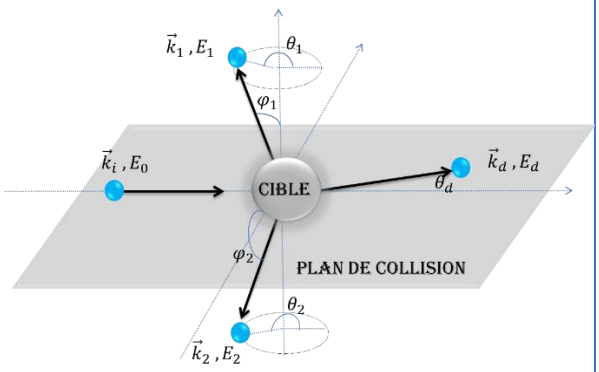
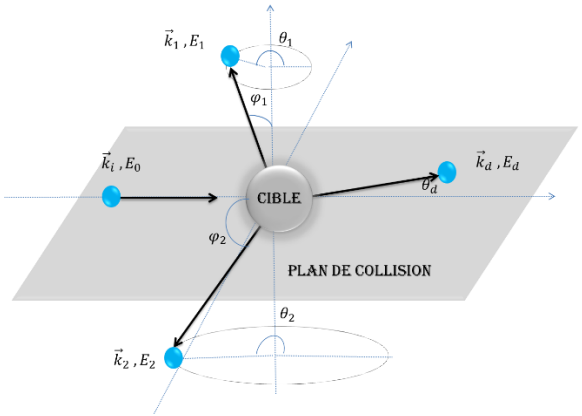
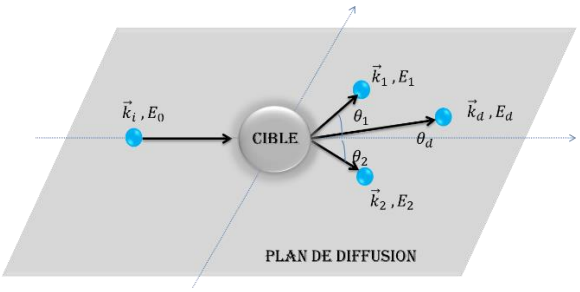
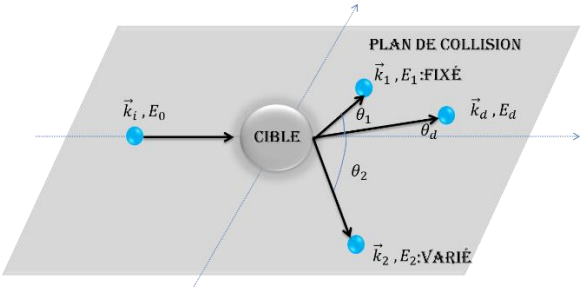
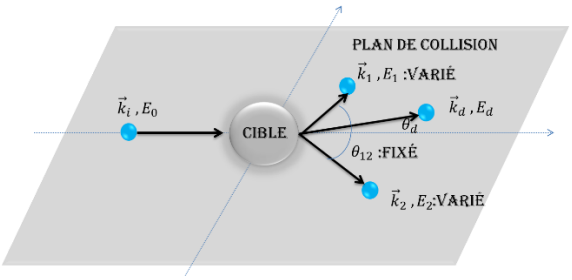
Il faut noter que, si la valeur du moment de transfert à la cible k est faible, nous obtiendrons des informations concernant la dynamique de la collision. Par contre, si k est grande, nous trouvons des informations reliées à la structure de la particule cible [1].

II.2.2 Géométries et cinématiques de la réaction (e, 3e)

Les paramètres cinématiques précédents ($\vec{k}_1 et\ \vec{k}_2, E_1\ et\ E_2$) déterminent le type de géométrie que l'expérimentateur peut envisager. Nous distinguons deux types de géométries, coplanaires ou non coplanaires, chacune d'elles peut être soit symétrique ou asymétrique (tous les cas possibles sont résumés dans le tableau II.1).

Notons qu'un plan de collision est un plan défini par les deux vecteurs $\vec{k}_i et\ \vec{k}_d$. Chacune de ces géométries est utilisée pour un but bien précis lors de l'étude du processus d'ionisation. Nous citons par exemple, les travaux de A. Lahmam-Bennani et al., sur l'Hélium [2] et C. Schröter et al., sur le Néon [3] pour une géométrie coplanaire symétrique. Les études de N. Watanabe et al., sur l'Hélium [4] dans une géométrie non coplanaire symétrique. Les expériences de Kheifets et al., [5] et A. Lahmam-Bennani et al. sur l'Hélium [2] dans le cas d'une géométrie coplanaire asymétrique, mode angle individuel fixé, pour l'autre mode (l'angle relatif constant), les mesures expérimentales de Taouil et al., [6] et Dorn et ses collaborateurs [7] sur une cible d'Hélium.

Tableau II.1 : Représentation des différentes géométries et cinématiques de la réaction (e,3e)

Symétrique	**Asymétrique**
$E_1 = E_2$, $\theta_1 = 2\pi - \theta_2$	$E_1 \neq E_2$, $\theta_1 \neq \theta_2$
Non coplanaire : $\vec{k}_1 et\ \vec{k}_2$ chacun dans un plan en dehors du plan de collision, $\varphi = \lvert\varphi_1 - \varphi_2 - \pi\rvert$	
	
Coplanaire : $\vec{k}_1 et\ \vec{k}_2$ dans le plan de collision, $\varphi = \lvert\varphi_1 - \varphi_2\rvert = 0, \pi$	
	**Mode de l'angle individuel fixé :** θ_1: Fixé, θ_2 : Varié ou l'inverse  **Mode de l'angle relatif constant :** $\theta_1\ et\ \theta_2$: varié, $\theta_{12} = \lvert\theta_1 - \theta_2\rvert$ constant 

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

La double ionisation des atomes ou des molécules par impact d'électrons est due aux différents processus, à savoir un processus indirect aboutissant à l'éjection d'un seul électron

de la couche interne suivie d'une désintégration Auger et un processus direct [8] que nous expliquerons dans ce qui suit.

D'un point de vue phénoménologique, soutenu par l'approximation de Born (mentionné dans le chapitre I), trois mécanismes principaux ont été suggérés qui peut donner lieu à la double ionisation d'un atome ou molécule. Ces mécanismes ont été classés en fonction de leurs étapes et le nombre d'interactions de l'électron projectile avec la cible : deux sont de premier ordre (correspondent à une seule interaction avec la cible) connus sous le nom de Shake Off (se produit en une seule étape) et Two-Step1 (se déroule en deux étapes), et un autre de deuxième ordre (se déroule aussi en deux étapes mais en deux interactions avec l'électron projectile) dit Two-Step2. Notons que le premier mécanisme SO dépend de la corrélation des deux électrons liés à l'état initial [9], tandis que TS1 et TS2 est représenté par la corrélation de l'état final [10] (figure II.2).

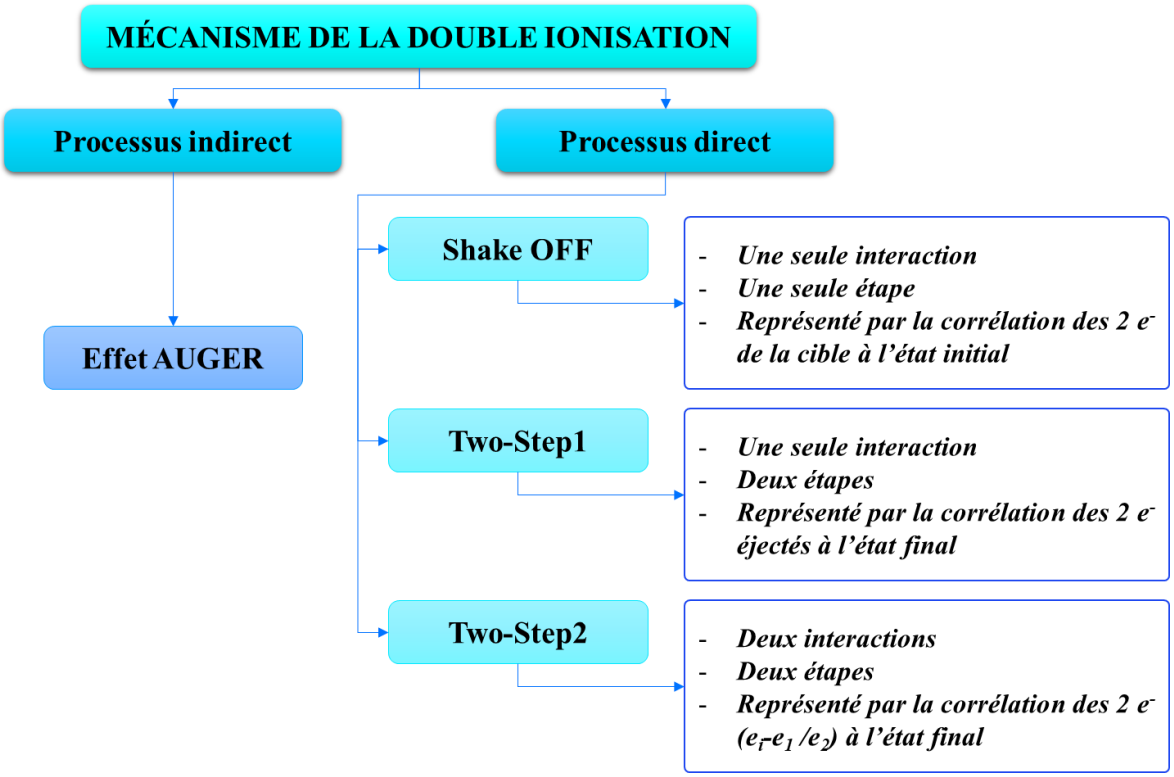


Figure II.2 : Schémas simplifié des différents mécanismes de la double ionisation.

Ces trois mécanismes (SO, TS1 et TS2) peuvent être inclus dans l'expression de la FDCS à travers les deux premiers termes de la série de Born [8] :

$$\frac{d^5\sigma}{d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1 dE_2} = \frac{(2\pi)^4}{k_i} k_d k_1 k_2 |T_{SO} + T_{TS1} + T_{TS2}|^2 \qquad \text{(II.7)}$$

Où T_{SO}, T_{TS1} et T_{TS2} sont les amplitudes de transition de la double ionisation la cible.

Nous représentons dans ce qui suit, les schémas des trois mécanismes de double ionisation accompagnés des expressions de l'amplitude de transition correspondantes.

II.2.3.1 Shake Off

C'est le premier mécanisme, proposé par Tweed [11] pour décrire le processus de la double ionisation de l'Hélium. Ce processus peut être considéré comme un processus du premier ordre au sens du développement de Born puisqu'il se produit en une seule interaction entre l'électron incident et un électron de la cible. Il conduit à un premier électron éjecté. Cette première ionisation est suivie d'un processus de relaxation dû au changement brutal de potentiel (diminution de la charge d'une unité) qui est responsable d'une seconde éjection (figure II.3).

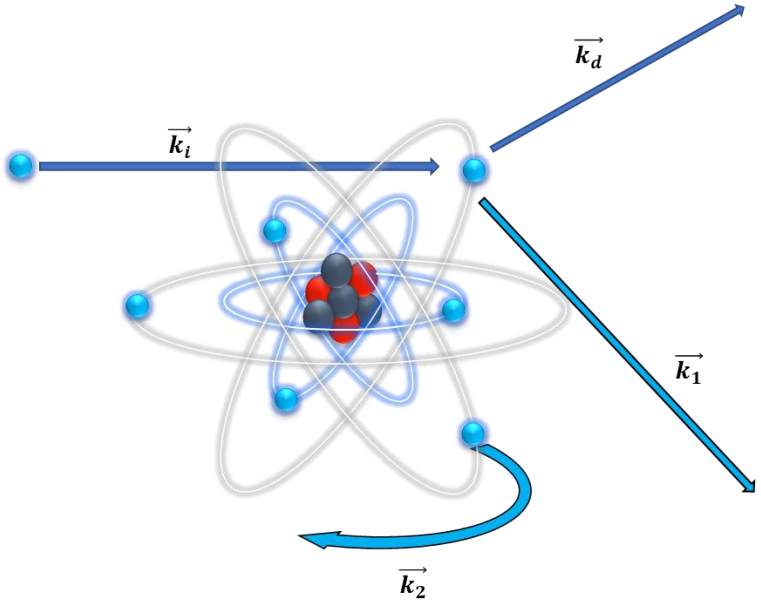


Figure II.3 : Illustration du processus *Shake off (SO).*

L'amplitude de transition T_{SO} associée à ce mécanisme dans le cas de la double ionisation est :

$$T_{SO} = -\frac{1}{2\pi}\langle\varphi_f|V|\varphi_i\rangle \qquad \text{(II. 8)}$$

Dans le cas de l'atome d'hélium, par exemple, l'expression de T_{SO} s'écrit comme suit [8] :

$$T_{SO} = -\frac{1}{2\pi}\left\langle\psi_f^-(\vec{k}_1,\vec{k}_2,\vec{r}_1,\vec{r}_2)e^{i\vec{k}_d.\vec{r}_0}\left|-\frac{2}{r_0}+\frac{1}{|\vec{r}_{01}|}+\frac{1}{|\vec{r}_{02}|}\right|\psi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)e^{i\vec{k}_i.\vec{r}_0}\right\rangle \qquad \text{(II. 9)}$$

Où, $\psi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)$ représente l'état initial de l'Hélium et $\psi_f^-(\vec{k}_1,\vec{k}_2,\vec{r}_1,\vec{r}_2)$ est l'état final. Les ondes planes $\left(e^{i\vec{k}_i.\vec{r}_0}\ et\ e^{i\vec{k}_d.\vec{r}_0}\right)$ représentent respectivement les électrons projectile et diffusé (car ils sont très rapide [8]). V est le potentiel d'interaction entre l'électron projectile et

deux électrons de la cible (2 électrons à cause de l'approximation du cœur gelé ; seuls les électrons actifs sont pris en compte).

II.2.3.2 Two-Step 1 (TS1)

Un deuxième mécanisme, proposé par Carlson et Krauss [10] pour le processus de double ionisation par impact d'électrons c'est le ***TS1***. Ce mécanisme est aussi du premier ordre dans l'interaction projectile-cible mais se déroule en deux étapes. Dans une première étape, l'électron incident éjecte un électron de la cible, en une seconde étape, cet électron éjecté entre en collision avec un deuxième électron de la cible et l'éjecte (figure II.4).

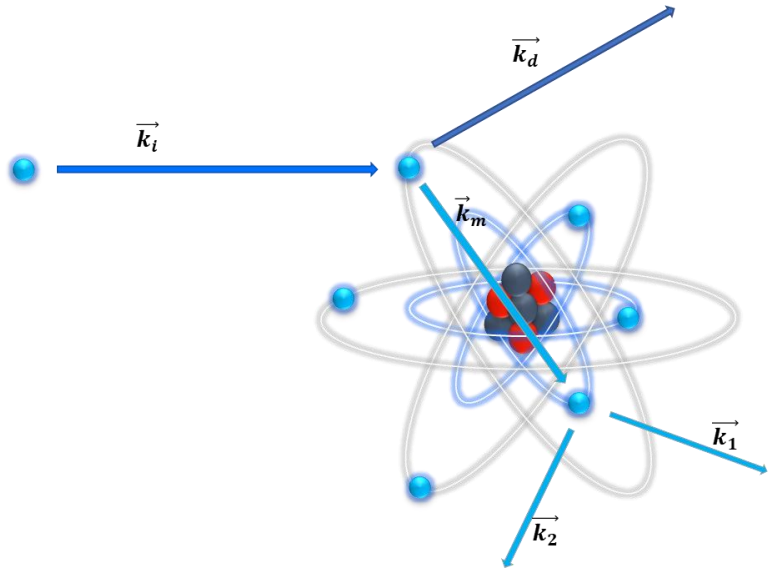


Figure II.4 : Illustration du processus *Two-Step 1 (TS1)*.

L'expression de l'amplitude de transition T_{TS1} associée à ce mécanisme dans le cas de la double ionisation de l'Hélium est [8] :

$$T_{TS1} = -\frac{1}{\pi}\sum_n \int \frac{d\vec{k}_m}{(2\pi)^3[k_i^2 - k_m^2 - k_d^2 - 2I_n]} \left\langle \psi_f^-(\vec{k}_1,\vec{k}_2,\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right| \frac{1}{|\vec{r}_{12}|} \left|\psi_n^+(\vec{k}_m,\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle$$

$$\left\langle \psi_n^-(\vec{k}_m,\vec{r}_1,\vec{r}_2)e^{i\vec{k}_d.\vec{r}_0}\right| -\frac{2}{r_0} + \frac{1}{|\vec{r}_{01}|} + \frac{1}{|\vec{r}_{02}|} \left|\psi_i(,\vec{r}_1,\vec{r}_2)e^{i\vec{k}_i.\vec{r}_0}\right\rangle \qquad (\text{II.}10)$$

ψ_n^+ *et* ψ_n^-: représentent un état intermédiaire du 1er électron éjecté (+ entrante, – sortante) de vecteur d'onde $\vec{k}_m$, $\sum_n$ désigne la sommation sur tous ces états intermédiaires possibles, I_n est l'énergie nécessaire pour arracher un électron de l'ion He^+ dans son état fondamental (n = 1) ou excité (n > 1). $V_1 = -\frac{2}{r_0} + \frac{1}{|\vec{r}_{01}|} + \frac{1}{|\vec{r}_{02}|}$ est le potentiel d'interaction entre

l'électron incident et les deux électrons éjectés et $V_2 = \frac{1}{|\vec{r}_{12}|}$ représente le potentiel d'interaction entre les deux électrons de la seconde étape.

II.2.3.3 Two-Step 2 (TS2)

C'est le troisième mécanisme, proposé aussi par Carlson et Krauss [10]. Contrairement aux deux premiers mécanismes, ce mécanisme est un processus de second ordre, où l'électron incident interagit successivement avec deux électrons différents de la cible, les éjectant un par un (figure II.5).

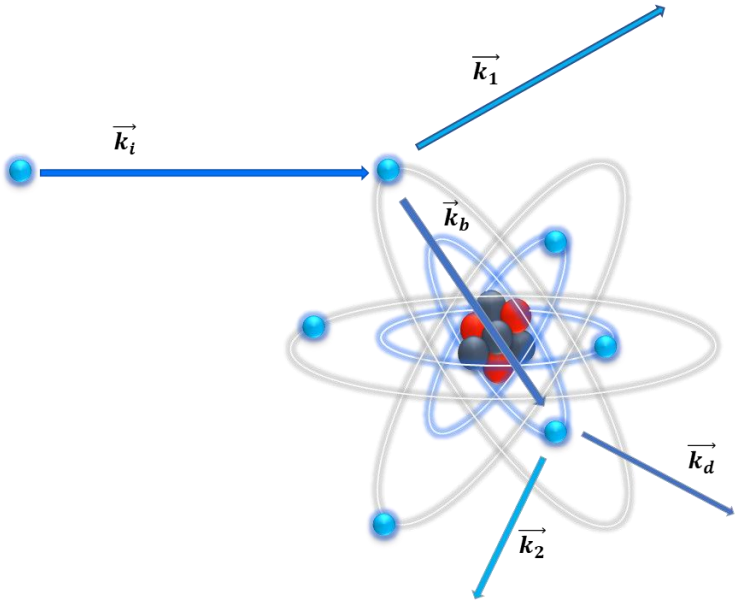


Figure II.5 : Illustration du processus *Two-Step 2 (TS2)*.

Pour ce mécanisme, l'amplitude de diffusion T_{TS2} est donnée par le deuxième terme du développement de Born et s´écrit pour la double ionisation de l'Hélium comme suit [8] :

$$\begin{aligned} T_{TS2} = & -\frac{1}{\pi}\sum_n \int \frac{d\vec{k}_b}{(2\pi)^3[k_i^2 - k_b^2 - k_1^2 - 2I_n]} \left\langle \psi_f^-(\vec{k}_2,\vec{r}_2)e^{i\vec{k}_d.\vec{r}_0}\left|\frac{1}{|\vec{r}_{02}|}\right|e^{i\vec{k}_b.\vec{r}_0}\psi_n(\vec{r}_2)\right\rangle \varphi(|\vec{k}_1 \\ & - \vec{k}_2|)\left\langle \psi_n^-(\vec{k}_1,\vec{r}_1,\vec{r}_2)e^{i\vec{k}_b.\vec{r}_0}\left|-\frac{2}{r_0}+\frac{1}{|\vec{r}_{01}|}+\frac{1}{|\vec{r}_{02}|}\right|\psi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)e^{i\vec{k}_i.\vec{r}_0}\right\rangle \\ & -\frac{1}{\pi}\sum_n \int \frac{d\vec{k}_b}{(2\pi)^3[k_i^2 - k_b^2 - k_2^2 - 2I_n]} \left\langle \psi_f^-(\vec{k}_1,\vec{r}_1)e^{i\vec{k}_d.\vec{r}_0}\left|\frac{1}{|\vec{r}_{01}|}\right|e^{i\vec{k}_b.\vec{r}_0}\psi_n(\vec{r}_1)\right\rangle \varphi(|\vec{k}_1 \\ & - \vec{k}_2|)\left\langle \psi_n^-(\vec{k}_2,\vec{r}_1,\vec{r}_2)e^{i\vec{k}_b.\vec{r}_0}\left|-\frac{2}{r_0}+\frac{1}{|\vec{r}_{01}|}+\frac{1}{|\vec{r}_{02}|}\right|\psi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)e^{i\vec{k}_i.\vec{r}_0}\right\rangle \qquad (\mathrm{II.11}) \end{aligned}$$

Cette équation représente les interactions successives de l'électron incident avec les deux électrons de la cible. L'électron diffusé intermédiaire, décrit par une onde plane $e^{i\vec{k}_b.\vec{r}_0}$, entre avec le second électron de la cible et l'éjecte.

II.3 Etude des états liés et du continuum des systèmes atomiques à deux électrons actifs

La section efficace quintuplement différentielle FDCS, comme nous l'avons souligné plus haut, est une quantité importante pour la compréhension du processus de DI puisqu'elle contient les informations les plus détaillées sur les mécanismes réactionnels de la collision. Cependant, ce processus s'est vu heurté à la difficulté qui réside dans la complexité de calcul de cette quantité, qui contient des états initial et final à plusieurs corps, et dans la description des corrélations entre les électrons dans les états initial et final et leurs interactions avec la cible ionisée. Tout d'abord nous allons mentionner brièvement la notion et l'importance de la corrélation.

II.3.1 Notion et importance de corrélation électronique

Pour les systèmes atomiques, le mot corrélation a été introduit la première fois en 1930 (Wigner et Seitz) [12]. La définition moderne du mot corrélation a été introduite par Löwdin en 1959 pour un système atomique. Cette corrélation signifie, dans le cadre de physique atomique et moléculaire, que toute perturbation appliquée a une partie identifiable du système se répercute alors sur toutes les autres parties [13]. Un de nos objectifs de l'étude de la double ionisation des atomes est de mettre en évidence l'importance des corrélations interélectroniques pour une bonne description du système dans son état initial et final.

Un des types de corrélation qui intervient de manière la plus fondamentale dans les collisions qui nous concernent est celle qui existe entre les électrons de la cible ainsi que celles entre les électrons du continuum, c'est ce qu'on appelle la corrélation structurelle. Plusieurs travaux montrent l'importance de la corrélation dans l'état initial, nous citons les travaux de Byron et Joachain [14], puis Smirnov et al., [15], Dal Cappello et Le Rouzo [16] dans leurs travaux portant sur la distribution angulaire de la double ionisation de l'Hélium par impact d'électrons, ont montré aussi l'importance de la corrélation dans l'étal final et, dans une moindre mesure, dans l'état initial.

Ces corrélations (de l'état initial) se traduisent par des interactions coulombiennes entre les électrons de la cible, exprimées par des potentiels de la forme $1/r_{ij}$, qui rendent impossible la détermination exacte des solutions de l'équation de Schrôdinger pour tout atome possédant au moins deux électrons. Par conséquence, La description de la structure de ces atomes nécessite des approximations qui produisent des solutions approchées.

Un autre type de corrélation peut aussi être engendré lors de la collision, appelée corrélation dynamique. En effet, lors de l'impact électronique, le projectile (ayant une faible énergie) interagit avec la cible ce qui introduit une distorsion de l'onde décrivant l'électron incident qui ne peut plus être décrite par une onde plane. Ces effets de corrélation dynamique en voie d'entrée, sont pris en compte par des modèles à ondes distordues.

Ces derniers deviennent pratiquement négligeables, à grande énergie d'impact, car le projectile reste un temps très court "en face" de la cible. Par contre, la répulsion coulombienne entre les électrons émergeant de la cible (ayant une faible énergie par rapport à l'électron diffusé) et l'action de l'ion résiduel sur ces électrons devrait être prise en compte.

II.3.2 Les fonctions d'ondes d'un système à deux électrons actifs

Les fonctions d'ondes totales pour un système atomique à deux électrons actifs s'écrivent :

$$\psi(\xi_1,\xi_2) = \varphi(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\chi(\sigma_1,\sigma_2) \qquad (\text{II.}12)$$

Les fonctions d'ondes orbitales $\varphi(\vec{r}_1,\vec{r}_2)$ sont soit symétriques (qui conservent leur signe) soit antisymétriques (changent de signe) à la suite d'une permutation des coordonnées des deux électrons dans l'équation de Schrôdinger :

$$\varphi(\vec{r}_1,\vec{r}_2) = \phi(\vec{r}_1,\vec{r}_2) \pm \phi(\vec{r}_2,\vec{r}_1) \qquad (\text{II.}13)$$

$\chi(\sigma_1,\sigma_2)$ est une fonction d'onde de spin (dépendant des spins des deux électrons). A l'aide des lois de l'addition des moments cinétiques $\vec{S} = \vec{S}_1 + \vec{S}_2$ et sa projection sur l'axe z $S_Z = S_{z1} + S_{z2}$, nous pouvons construire les quatre états de spin comme états propres aux opérateurs S^2 et S_z dont les valeurs propres sont respectivement $S(S+1)$ où $S = 1{,}0$ et $Ms = [-S,+S]$.

Pour l'état de spin total ($S = 1$ et $Ms = -1{,}0\ ou\ 1$), les fonctions d'ondes de spin possibles correspondent aux trois (triplet) états orthogonaux symétriques :

$$\chi_T(\sigma_1,\sigma_2) = \begin{cases} \alpha(1)\alpha(2) \quad , \quad Ms = 1 \\ \frac{1}{\sqrt{2}}\big(\alpha(1)\beta(2) + \beta(1)\alpha(2)\big) \quad , \quad Ms = 0 \\ \beta(1)\beta(2) \quad , \quad Ms = -1 \end{cases} \qquad (\text{II.}14)$$

Avec α est l'état de spin up (↑) et β l'état de spin down(↓). Donc, la fonction d'onde totale décrivant un système de deux électrons pour les états triplet s'écrie :

$$\psi(\xi_1,\xi_2) = \big(\phi(\vec{r}_1,\vec{r}_2) - \phi(\vec{r}_2,\vec{r}_1)\big)\chi_T(\sigma_1,\sigma_2) \qquad (\text{II.}15)$$

L'autre état de spin est un état antisymétrique singulet ($S = 0$ et $Ms = 0$) orthogonal aux trois ci-dessus :

$$\chi_s(\sigma_1, \sigma_2) = \frac{1}{\sqrt{2}}\big(\alpha(1)\beta(2) - \beta(1)\alpha(2)\big), \quad Ms = 0 \qquad \text{(II. 16)}$$

Et la fonction d'onde totale pour l'état singulet est :

$$\psi(\xi_1, \xi_2) = \big(\phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) + \phi(\vec{r}_2, \vec{r}_1)\big)\chi_S(\sigma_1, \sigma_2) \qquad \text{(II. 17)}$$

II.3.3 Représentation des états liés de la cible (état fondamental de la cible)

L'une des étapes les plus importantes pour évaluer l'amplitude de diffusion de la DI est la bonne représentation des états liés de la cible. Cette dernière revient à la résolution de l'équation de Schrôdinger de la cible considérée. Mais pour une meilleure interprétation, il faut tenir compte des corrélations électroniques représenées par les interactions mutuelles entre les électrons V_{ee} qui ne permettent pas de séparer les mouvements et par conséquence, il n'y a pas de solutions exactes sauf dans le cas de l'atome d'hydrogène où les fonctions propres $\phi_{n\,l\,m}(r, \theta, \varphi)$ sont connues avec des énergies correspondantes :

$$E_n = -\frac{E_1}{n^2} \qquad \text{(II. 18)}$$

Nous devons donc avoir recours pour la construction des fonctions propres $\phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ aux méthodes d'approximation comme la méthode des particules indépendantes**,** la méthode des perturbations et la méthode variationelle.

Dans ce travail, nous utiliserons une fonction d'onde Hartree-Fock de Clementi et Roetti [17]. Cette fonction ne contient aucune corrélation par définition. Elle prend comme fonction de base les orbitales atomiques : elle est alors dans le cadre de l'approximation LCAO (Linear Combination of Atomic Orbitals) :

$$\phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \phi(\vec{r}_1)\phi(\vec{r}_2), \qquad \phi(\vec{r}_j) = \sum_{k=1}^{N_i} C_{ik} U_k(\vec{r}_j) \qquad \text{(II. 19)}$$

Avec k un nombre caractéristique de l'orbitale atomique, N_i est le nombre d'orbitales atomiques introduites dans le développement. Les coefficients C_{ik} représentent la contribution de chaque orbitale atomique. Ces coefficients sont déterminés par la méthode variationelle, les orbitales atomiques $U_k(\vec{r})$ sont développées sur une base d'harmonique sphérique $Y_{l,m}(\theta, \varphi)$.

Dans le but de tenir compte des effets de corrélations dans l'état initial, nous utiliserons des fonctions corrélées de type interaction de configurations [18].

II.3.3.1 Méthode d'interaction de configuration « CI »

L'interaction de configuration « CI » est une méthode variationelle qui consiste à développer la fonction d'onde sur une base de fonctions à une particule. Le premier terme « configuration » décrit simplement la combinaison linéaire des fonctions d'ondes à une particule, et le deuxième mot « interaction » signifie le mélange (interaction) de différentes configurations électroniques (états). Ces fonctions peuvent être de type de Slater, Gaussiennes ou une base orthogonale de Laguerre [19]. Dans le cas de système à deux électrons, la fonction d'onde s'écrit comme suit :

$$\phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \sum_{ij} C_{ij}(\phi_i, \phi_j) \qquad (\mathrm{II.}\,20)$$

Avec C_{ij} sont des coefficients choisis tels que l'énergie soit minimisée, et (ϕ_i, ϕ_j) est un produit antisymétrisé de fonctions à une particule.

II.4 Modèles théoriques pour la représentation du double continuum

Après avoir décrit les états liés de la cible, dans cette partie nous allons se concentrer à la description de l'état final du système constitué d'un électron diffusé (généralement très rapide) et deux électrons éjectés (lents) dans un champ coulombien de l'ion résiduel. Ce problème est connu sous le nom de double continuum électronique dont la description est l'un des problèmes les plus importants, et non résolus exactement, de la physique atomique. A cet effet, plusieurs modèles théoriques ont été proposés par les chercheurs dans le cadre de l'approximation de Born. Les critères permettant de choisir un modèle bien meilleur qu'un autre sont la simplicité, la rapidité des calculs et la qualité des résultats obtenus. Nous présentons, brièvement, les modèles les plus utilisés.

II.4.1 Dans le cadre de la première approximation de Born

Les modèles de cette approximation donnent généralement de bons résultats avec l'expérience pour des grandes énergies d'impact et des petites valeurs du moment de transfert, par conséquence, les électrons incident et diffusé sont représentés par des ondes planes. Notons que ces modèles ne peuvent décrire que les processus du premier ordre tels que SO et TS1. Dans la suite, nous présentons, brièvement, le principe des différents modèles théoriques utilisés en soulignant leurs limites et la fonction d'onde de l'état final.

II.4.1.1 Modèle « Approximation de Born aux ondes planes » (PWBA)

Ce modèle consiste à négliger toutes les interactions dans la voie final (soit les interaction ***e-e***, soit les interactions ***e-ion résiduel***). Donc, tous les électrons participant à l'interaction (l'incident, le diffusé et les deux éjectés) sont représentés par des ondes planes. Il ne peut donc être appliqué que dans le cas de haute énergie des quatre corps. Ce modèle a été utilisé par Popov et al., [9], Smirnov et al., [15] et par Neudatchin et al., [16] afin d'étudier la double ionisation des cibles atomiques et moléculaires à haute énergie. Ce modèle a toutefois montré ses limites pour des énergies d'éjection faibles à moyennes lorsque les corrélations entre les électrons éjectés deviennent fortes. La fonction d'onde des deux électrons éjectés dans la voie finale peut être écrite, en tenant compte de leur échange possible, de la façon suivante :

$$\Phi_f(\vec{k}_1,\vec{r}_1;\vec{k}_2,\vec{r}_2) = \frac{1}{(2\pi)^3}\left[\frac{1}{\sqrt{2}}\left(e^{i(\vec{k}_1\vec{r}_1+\vec{k}_2\vec{r}_2)} + e^{i(\vec{k}_2\vec{r}_1+\vec{k}_1\vec{r}_2)}\right)\right] \qquad (\mathrm{II.21})$$

II.4.1.2 Modèle des ondes coulombiennes

Dans ce modèle, introduit par Byron et Joachain [14, 20], l'interaction coulombienne dans la voie de sortie (entre les électrons éjectés et l'ion résiduel) est prise en compte tandis que les interactions entre ces deux électrons est négligée, ainsi ces derniers sont représentés par deux ondes coulombiennes non corrélées écrite de la façon suivante (en tenant compte de leur échange possible) :

$$\Phi_f(\vec{k}_1,\vec{r}_1;\vec{k}_2,\vec{r}_2) = \frac{1}{\sqrt{2}}\left[\varphi_c(\vec{k}_1,\vec{r}_1)\varphi_c(\vec{k}_2,\vec{r}_2) + \varphi_c(\vec{k}_1,\vec{r}_2)\varphi_c(\vec{k}_2,\vec{r}_1)\right] \qquad (\mathrm{II.22})$$

$$\varphi_c(\vec{k},\vec{r}) = (2\pi)^{-\frac{3}{2}}e^{-\frac{\pi}{2}\eta}\Gamma(1+i\eta)e^{i\vec{k}.\vec{r}}\ {}_1F_1\left(-i\alpha, 1, i(\vec{k}.\vec{r} - kr)\right) \qquad (\mathrm{II.23})$$

$\eta = z/k$, Γ et ${}_1F_1$ désignent respectivement la fonction gamma et la fonction hypergéométrique confluante (voir chapitre1).

Une amélioration possible du modèle consiste à définir des charges effectives qui tiennent compte de l'écrantage dynamique du noyau par les deux électrons. Ces charges effectives dépendent des impulsions des deux électrons et doivent satisfaire l 'équation de Peterkop [21] :

$$\frac{z_1}{k_1} + \frac{z_2}{k_2} = \frac{z}{k_1} + \frac{z}{k_2} - \frac{1}{|\vec{k}_1 - \vec{k}_2|} \qquad (\mathrm{II.24})$$

Plusieurs auteurs tels que Dal Capello et Le Rouzo [22], et plus récemment Gupta et Srivastava [23] dans le cadre de la double ionisation, utilisaient la fonction proposée par Byron et Joachain dans laquelle ils ont introduit des charges effectives.

II.4.1.3 Modèle « Approximation de Born aux ondes distordues » (DWBA)

Ce modèle tient compte des effets de distorsion dans la voie d'entrée (due au potentiel d'échange statique de l'atome) et de sortie (due à l'ion résiduel), les fonctions d'onde associées à ces électrons sont des fonctions d'ondes distordues, la solution de l'équation de Schrôdinger avec un potentiel coulombien modifié par un potentiel de courte portée, en tenant compte de leur échange possible, s'écrits comme suit :

$$\Phi_f(\vec{k}_1,\vec{r}_1;\vec{k}_2,\vec{r}_2) = \frac{1}{\sqrt{2}}\left[\varphi_{DW}(\vec{k}_1,\vec{r}_1)\varphi_{DW}(\vec{k}_2,\vec{r}_2) + \varphi_{DW}(\vec{k}_1,\vec{r}_2)\varphi_{DW}(\vec{k}_2,\vec{r}_1)\right] \quad (\text{II. 25})$$

$$\varphi_{dw}(\vec{k},\vec{r}) = \frac{4\pi}{(2\pi)^{\frac{3}{2}}}\sum_{l,m} i^l\, e^{i\Delta_l}\frac{\chi_l(k,r)}{kr}Y^*_{l,m}(\hat{k})Y_{l,m}(\hat{r}) \qquad (\text{II. 26})$$

Δ_l représente le déphasage totale et $\chi_l(k,r)$ est la fonction d'onde radiale (voir chapitre1).

L'utilisation du modèle DWBA a conduit à un bon accord avec les expériences à énergie intermédiaire (< 1 keV) de Bickert et al., [24] et de Lohmann *et al.*, [25].

Plusieurs modifications ont été apportées à ce modèles par plusieurs auteurs, ce qui a conduit à plusieurs versions, par exemple, le modèle hybride DWBA-R qui a été introduit par Bartschat et Burke [26] et le modèle DWBA-G qui a été décrit par Kheifets et al [27].

Les modèles développés par les auteurs cités ci-dessus tiennent compte de l'interaction entre l'ion et les électrons du continuum, mais négligent en partie la répulsion électrostatique entre ces deux électrons. Prendre en compte un tel effet nécessite une autre description plus élaborée.

II.4.1.4 Modèle « Brauner, Briggs et Klar » (BBK ou 3C)

Afin de tenir compte de la corrélation entre les électrons dans la voie de sortie, Brauner, Briggs et Klar BBK ont introduit ce modèle dans le cadre de l'ionisation simple de l'atome d'hydrogène. Ils ont utilisé une description asymptotique exacte de la fonction d'onde de l'état final. Cet état est défini comme le produit de trois ondes coulombiennes (d'où l'autre nom du modèle, 3C), deux ondes coulombiennes décrivant l'interaction des deux électrons éjectés avec l'ion résiduel, et la troisième décrivant l'interaction post-collisionnelle (notée PCI) entre ces

deux électrons. La fonction d'onde des deux électrons éjectés dans la voie finale peut être écrite, en tenant compte de leur échange possible, de la façon suivante :

$$\Phi_f(\vec{k}_1,\vec{r}_1;\vec{k}_2,\vec{r}_2) =$$

$$\frac{1}{\sqrt{2}}\left[\varphi_c(\vec{k}_1,\vec{r}_1)\varphi_c(\vec{k}_2,\vec{r}_2)\mathrm{C}(\alpha_{12},\vec{k}_{12},\vec{r}_{12}) + \varphi_c(\vec{k}_1,\vec{r}_2)\varphi_c(\vec{k}_2,\vec{r}_1)\mathrm{C}(\alpha_{12},\vec{k}_{12},\vec{r}_{12})\right] \quad (\mathrm{II.27})$$

Où $\varphi_c(\vec{k},\vec{r})$ représente la fonction d'onde Coulombienne et $\mathrm{C}(\alpha_{12},\vec{k}_{12},\vec{r}_{12})$ terme décrivant le PCI.

$$\mathrm{C}(\alpha_{12},\vec{k}_{12},\vec{r}_{12}) = e^{-\frac{\pi}{2k_{12}}}\Gamma\left(1-\frac{i}{2k_{12}}\right)\ {}_1F_1\left(-i\alpha_{12},1,-i\left(k_{12}r_{12}+\vec{k}_{12}\vec{r}_{12}\right)\right) \quad (\mathrm{II.28})$$

Avec : $\vec{k}_{12} = \frac{(\vec{k}_1-\vec{k}_2)}{2}$ et $\alpha_{12} = \frac{1}{2k_{12}}$

Ce modèle est l'un des modèles les plus appropriés pour décrire le double continuum, mais présente un grand inconvénient qui est le temps de calcule. Plusieurs auteurs ont utilisé des traitements simplifiés de l'interaction post-collisionnel (la troisième terme $\mathrm{C}(\alpha_{12},\vec{k}_{12},\vec{r}_{12})$), nous mentionnons par la suite quelques versions de ce modèle que nous utiliserons dans notre travail :

- **2CWG-facteur de Gamow**

Ce modèle proposé par Dal Cappello et al., [28] consiste à la normalisation de la fonction$\mathrm{C}(\alpha_{12},\vec{k}_{12},\vec{r}_{12})$ imposé arbitrairement au terme ${}_1F_1\left(-i\alpha_{12},1,-i\left(k_{12}r_{12}+\vec{k}_{12}.\vec{r}_{12}\right)\right)$ la valeur unité tout en conservant le facteur $e^{-\frac{\pi}{2k_{12}}}\Gamma\left(1-\frac{i}{2k_{12}}\right)$ qui apparaît suffisant pour exprimer la forte corrélation entre les deux électrons éjectés dans la voie finale. Par conséquence, la troisième onde coulombienne décrivant l'interaction post-collisionnelle sera nommé le **facteur de Gamow $\boldsymbol{F_G}(\mathbf{k_{12}})$**et s'écrit sous la forme **:**

$$\boldsymbol{F_G}(\mathbf{k_{12}}) = \left|e^{-\frac{\pi}{2k_{12}}}\Gamma\left(1-\frac{i}{2k_{12}}\right)\right|^2 = \frac{\pi}{k_{12}\left(e^{\frac{\pi}{k_{12}}}-1\right)} \quad (\mathrm{II.29})$$

Parmi les différentes caractéristiques fournies par ce facteur, c'est d'interdire aux électrons d'être émis dans la même direction.

Cette nouvelle version du BBK rend les calculs beaucoup plus simples et le temps de calcul plus court sans pour autant perdre l'aspect physique de la répulsion coulombienne entre

les deux électrons du continuum. Mais cette approximation conduit à une sous-estimation de l'amplitude.

Signalons que le 2CWG donne un accord assez satisfaisant avec les expériences (e,3-1e) et (e,3e) menées par l'équipe d'Orsay [29-31] sur les gaz rares.

- **2CWWM-facteur de Ward et Macek**

Ce modèle repose sur l'évaluation de la distorsion $C(\alpha_{12}, \vec{k}_{12}, \vec{r}_{12})$ à une distance fixe différente de zéro. Mais établir un point dans l'espace qui satisfait les conditions appropriées peut être une tâche difficile. Ward et Macek [32] ont abordé ce problème en analysant des situations asymptotiques pour le problème de deux électrons. La distance que Ward et Macek ont trouvée en fonction des énergies entre les électrons, était :

$$\bar{X}_{12} = \frac{\pi^2}{16\varepsilon}\left[1 + \frac{0.627}{\pi}\sqrt{\varepsilon}\, ln\varepsilon\right]^2 \vec{k}_{12} \qquad (\text{II.}30)$$

Où $\varepsilon = (k_1^2 + k_2^2)/2$ est l'énergie totale des électrons. L'insertion de cette distance dans la fonction $C(\alpha_{12}, \vec{k}_{12}, \vec{r}_{12})$ donne le facteur :

$$\boldsymbol{F_{WM}(k_{12})} = \frac{\pi}{k_{12}\left(e^{\frac{\pi}{k_{12}}} - 1\right)} \left|\, {}_1F_1(-i\alpha_{12}, 1, -2ik_{12}\bar{x}_{12})\right|^{\mathbf{2}} \qquad (\text{II.}31)$$

On remarque bien que ce facteur dépend que du moment électronique k_i. Le premier terme représente le facteur de Gamow tandis que le deuxième désigne la fonction hypergéométrique à une distance fixe $\bar{x}_{12}$.

Une comparaison entre ces deux versions approximatives sera effectuée dans ce travail.

II.4.1.5 Modèle « Convergent Close Coupling » (CCC)

Cette approche proposée par Massey et Mohr pour l'ionisation de l'Hélium est complètement numérique [15]. La fonction d'onde totale du système est développée en termes de somme de produits des états propres de l'Hamiltonien. Pour décrire le mouvement du projectile, il faut générer des fonctions dont les coefficients de développement sont déterminés en résolvant un ensemble d'équations intégro-différentielles couplées.

Ce modèle est parmi les modèles les plus fiables qui a réussi de reproduire avec succès, d'abord les expériences de Chandrasekhar et al., sur l'Hélium [33] puis une série d'expériences complètes soit par impact électronique, type (e,2e), soit de photo-ionisation. Ce modèle a été appliqué aussi dans le cas de la DI de l'atome d'Hélium [5], [34].

II.4.2 Au-delà de la première approximation de Born

Le traitement de l'interaction projectile-cible dans la théorie des perturbations du premier ordre (c'est-à-dire dans FBA) apporte des simplifications importantes dans la mesure où les résultats expérimentaux indiquent une certaine déficience du traitement FBA, même dans le régime à haute énergie. Par conséquent, et compte tenu des expériences envisagées dans le régime de basse énergie, un traitement théorique est souhaitable tenant compte de l'interaction projectile-cible de manière dynamique (l'inclusion des termes d'ordres supérieurs du potentiel d'interaction à travers la seconde approximation de Born).

II.4.2.1 Seconde approximation de Born (SBA)

Cette approximation prend en compte les interactions successives de l'électron entrant avec les deux électrons cibles [8,35]. Ces interactions sont responsables de l'apparition des effets secondaires dans les sections efficaces, en particulier, la brisure de symétrie autour de la direction du moment de transfert traduite par la présence du mécanisme TS2. L'utilisation de cette approximation dans l'étude de la réaction (e ,3e) nécessite une grande attention et un temps de calcul très long. Pour cette raison, les études réalisées jusqu'ici, pour des cibles atomiques [35-37] et moléculaires [38] ont été effectuées dans le contexte du modèle 2CWG permettent de réduire le temps de calcul. Notons aussi, que des calculs impliquant le modèle BBK jusqu'au deuxième terme de Born développés par Ancarani [39], ont montré une légère différence avec ceux menés dans le cadre de la première approximation de Born.

II.4.2.2 La fonction d'onde de Coulomb à quatre corps : l'approche 6C

Une autre méthode qui va au-delà du FBA 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 ondes coulombiennes (d'où l'appellation 6C) traduisant les différentes interactions coulombiennes. L'utilisation de la fonction d'onde sophistiquée 6C nécessite un temps de calcul considérable puisqu'il faut évaluer numériquement en calculant l'intégrale à neuf dimensions dans le continuum. La comparaison des résultats de ce modèle avec les expériences montre un très bon accord [40-43].

Afin de réduire le temps de calcule, Elazzouzi et al. [43] ont proposés de remplacer les trois fonctions d'ondes décrivant la répulsion ***e-e*** par trois facteurs de Gamow sous le nom A6C (6C approximé), une fois avec des charges variables et l'autre fois dans la seconde

approximation de Born. Chacun donne un bon accord avec les données expérimentales (de 601 eV de l'électron incident) pour des situations expérimentales et déficit pour des autres.

II.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté la théorie de la DI. Nous avons commencé de décrire les réaction (e,3e), (e-3e-1) puis la géométrie et les cinématiques de cette réaction. Les différents mécanismes (SO, TS1, TS2) impliqués dans le processus de la DI par impact d'électrons sont rappelés. Une deuxième partie est consacré aux études des états liés et du continuum des systèmes atomiques à deux électrons incluant la notion et l'importance de corrélation électronique, les fonctions d'ondes d'un système à deux électrons et les divers modèles théoriques représentant le double continuum. Nous présentons dans le chapitre suivant le formalisme théorique développé dans le cadre de ce travail pour étudier la DI des atomes et des molécules par impact d'électrons.

Références bibliographiques

[1] A. Naja Thèse de doctorat en sciences, Université PARIS-SUD 11 (2008).

[2] A. Lahmam-Bennani, I. Taouil, A. Duguet, M. Lecas, L. Avaldi and J. Berakdar, Phys. Rev. A 59, 3548 (1999).

[3] C. Schröter, B. El Marji, A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, M. Lecas and L. Spielberger, J. Phys. B 31, 131 (1998).

[4] N. Watanabe, Y. Khajuria, M. Takahashi, Y. Udagawa, P. S. Vinitsky, Yu. V. Popov, O. Chuluunbaatar and K. A. Kouzakov, Phys. Rev. A 72, 032705 (2005).

[5]A Kheifets, I Bray, A Lahmam-Bennani, A Duguet et I Taouil, J. Phys. B: At.Mol. Opt. Phys 32, 5047 (1999).

[6] I. Taouil, A. Lahmam-Bennani, A. Duguet and L. Avaldi, Phys. Rev. Lett. 81, 4600 (1998).

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

[8] C. Dal Cappello and R. El Mkhanter, P. A Hervieux, Phys. Rev. A 57, 693 (1998)

[9] Y. V. Popov, C. Dal Cappello, B. Joulakian, and N. M. Kuzmina, J. Phys. B 27, 1995 ~1994

[10] J. A. Carlson and M. O. Krause, Phys. Rev. A 140, 1057 (1965).

[11] R. Tweed, Z. Phys. D 23, 109 (1992)

[12] J. H. McGuire, "Introduction to Dynamic Correlation in Atomic Collisions", Cambridge University Press (1997).

[13] F. Catoire Thèse de doctorat en physique, Université PARIS-SUD XI (2006).

[14] F. W. Jr. Byron, and C. J. Joachain, Phys. Rev. A 164, (1967)

[15] Y. F. Smirnov, A. V. Pavlitchenkov, V. G. Levin and V. G. Neudatchin, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. ***11,*** *20 (1978).*

[16] V. Neudatchin, Y. F. Smirnov, Pavlitchenkov Phys. Lett. A ***64****, 31 (1977).*

[17] E. Clementi and C. Roetti At. Data Nucl. Data Tables 14 177-478 (1974)

[18] C. Dal Cappello, J. Langlois, M. C. Dal Cappello, B. Joulakian, A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, R. Tweed, Z. Phys. D ***23*** *389 (1992)*

[19] Z. Rezkallah Thèse de doctorat, université de setif1 (2011).

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

[21] R. K. Peterkop, Opt. Spectros. ***13****, 87 (1962).*

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

[23] S. Gupta and M. K. Srivastava, phys. Rev. A52, 2083-7, (1995).

[24] P. Bickert, W. Hink, C. Dal Cappello and A. Lahmam-Bennani, J. Phys. B, 24, 4603, (1991)

[25] B. Lohmann, S. Cavanagh, M. A. Haynes, I. Taouil, A. Lahmam-Bennani, Aust. J. Phys., ***51****, 679, (1998)*

[26] K. Bartschat and P. G. Burke, J. Phys. B, ***20****, 3191 (1987)*

[27] A. S. Kheifets, A. Naja, E. M. Staicu Casagrande and A. Lahmam-Bennani, J. Phys. B, ***41,*** *145201 (2008)*

[28] C. Dal Cappello, B. Joulakian and J. Langlois, J. Phys. ***3*** *125 (1993).*

[29] A. Lahmam-Bennani, C. Dupré and A. Duguet, Phys. Rev. Lett. ***63****, 1582 (1989).*

[30] A. Lahmam-Bennani, H. Ehrhardt, C. Dupre, and A. Duguet, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. ***24,*** *3645(1991).*

[31] A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, A. M. Grisogono and M. Lecas, J. Phys. ***825,*** *2873 (1992).*

[32] S. J. Ward and J. H. Macek Phys. Rev. A 49, 1049 (1994)

[33] S. Chandrasekhar and G. Herzberg, Phys. Rev., ***98****, 1050 (1955)*

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

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

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

[37] M Grin, C Dal Cappello, R EL Mkhanter et J Rasch, J. Phys. B : At. Mol. Opt.Phys. ***33,*** *131 (2000).*

[38] A Mansouri, C Dal Cappello, S Houamer, I Charpentier et A Lahmam Bennani, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. ***36,*** *1203 (2004).*

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

[40] A W Malcherek, et J S Briggs, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. ***30,*** *4419 (1997).*

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

[42] S. Jones and D. H. Madison, Phys. Rev. Lett. ***91****, 073201 (2003).*

[43] S. Elazzouzi, C. Dal Cappello, A. Lahmam Bennani and F. Catoire, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.38, 1391 (2005).

CHAPITRE III : APPLICATION AUX ATOMES ET MOLECULES

DOUBLE IONISATION DES ATOMES : Ar/Ne

III.1 Introduction

La DI par impact d'électrons des cibles atomiques et moléculaires fournit un outil puissant pour étudier la dynamique et les corrélations électroniques dans la structure des atomes et des molécules. Les travaux pionniers du groupe d'Orsay (Lahmam-Bennani et al [1]) ont montré qu'une expérience de DI peut être réalisée en détectant les trois électrons dans le canal de sortie en coïncidence : ce type d'expérience est appelé ***(e,3e)*** et la section efficace quintuplement différentielle ***FDCS*** est mesurée.

Bien que l'expérience ***(e, 3e)*** a été utilisée principalement pour étudier la dynamique de DI, l'expérience a été initialement proposée comme moyen d'étudier la fonction d'onde des deux électrons active de la cible à l'état initial [15].

Sur le plan théorique, les effets liés aux corrélations dans la cible (effets de structure) ont été étudié par Dal Cappello et al [2] mais la description des deux électrons éjectés ne tient pas compte des interactions avec l'ion résiduel et des interactions mutuelles entre eux. Tandis que Byron et Joachain [3] décrivent les deux électrons éjectés par le produit de deux fonctions coulombiennes. Cette description possède également le défaut de négliger les interactions mutuelles entre ces électrons. Les résultats obtenus par ces modèles peuvent être en contradiction avec l'expérience lorsqu'on ne prend pas en considération les corrélations dans la voie de sortie entre les électrons éjectés. Joulakian et al [4], Joulakian et Dal Cappello [5] ont suggéré des modèles permettant de tenir compte des corrélations dans les deux états initial et final. Ils ont utilisé les fonctions de Bonham et Kohl [6] pour la corrélation dans la voie d'entrée et les fonctions 3C de Redmond-Merkuriev pour décrire les deux électrons éjectés (la voie de sortie). Mais ces modèles qui donnent d'assez bons résultats ne prennent pas en compte les distorsions pour les deux électrons éjectés.

Jusqu'à présent ce calcul n'a pas été effectué et une approximation a par contre souvent été utilisée dans le cas de la DI des gaz rares [7-8] et de la molécule d'eau [9] : elle consiste à inclure le facteur de Gamow qui prend en compte la répulsion entre les deux électrons éjectés. Une autre manière de décrire cette répulsion serait d'inclure le facteur de Ward et Macek [10], qui a été proposé dans le cas de la simple ionisation d'atomes et de molécules. De manière

générale, ces modèles ne sont pas capables de donner la bonne amplitude mais peuvent souvent bien décrire la forme des résultats expérimentaux. Un autre modèle utilisant des ondes distordues pour décrire l'électron incident, diffusé et éjectés qui a été proposé pour étudier le DI de l'argon à une énergie intermédiaire du projectile (561,4 eV) [11]. Cependant, ce modèle n'inclut aucune corrélation à l'état initial ou à l'état final. Watanabe et al [12] ont utilisé un modèle incluant la corrélation à l'état initial et à l'état final (facteur de Gamow) et décrivant les électrons éjectés par des ondes distordues pour étudier la DI du magnésium avec une énergie incidente de 1059 eV. Watanabe et al [12] ont utilisé la *SBA* selon la méthode utilisée par Grin et al [13] pour l'étude de la DI de l'hélium par impact d'électrons.

Dans une première partie de ce travail, nous examinerons l'importance de la corrélation dans l'état initial (la corrélation des électrons dans l'état fondamental) et dans l'état final (la corrélation entre les deux électrons éjectés).

Dans la deuxième partie, nous étudierons l'effet de distorsion des deux électrons éjectés (***2DWG***), l'effet du potentiel de courte portée (***2CWGSR***) ainsi que leurs effets simultanés « effets de distorsion et le potentiel de courte portée » (***2DWGSR***).

Pour une dernière étude, nous allons appliquer nos modèles aux expériences ***(e, 3e-1)*** qui consistent à la détection en coïncidence de l'électron diffusé et l'un des deux électrons éjectés. Dans ce chapitre, nous décrivons les étapes de calcul des modèles utilisés dans notre travail.

III.2 Description théorique du processus de double ionisation

Le processus (e, 3e) conduisant à une DI d'une cible atomique $\boldsymbol{C}$ (np^6) schématisée la figure II.1 (chapitre II) :

$$e_i(\vec{k}_i, E_0) + C \quad \rightarrow \quad C^{++} + e_d(\vec{k}_d, E_d) + e_1(\vec{k}_1, E_1) + e_2(\vec{k}_2, E_2) \qquad \text{(III. 1)}$$

Où les indices d, 1 et 2 représentent respectivement l'électron diffusé ainsi que les deux électrons éjectés avec les quantités de mouvement $\vec{k}_d$, $\vec{k}_1$ et $\vec{k}_2$ respectant les lois de conservation :

$$\frac{k_i^2}{2} = \frac{k_d^2}{2} + \frac{k_1^2}{2} + \frac{k_2^2}{2} + I^{++} \quad \text{et} \quad \vec{k}_i = \vec{k}_d + \vec{k}_1 + \vec{k}_2 + \vec{q} \qquad \text{(III. 2)}$$

Où I^{++} représente l'énergie nécessaire pour éjecter deux électrons de la cible et $\vec{q}$ représente le moment de recul. La cible C, dans ce travail, sera l'atome de Néon ou de l'Argon dans son état fondamental.

Notons que l'ion résultant peut être obtenu comme un C^{2+} (np^4) dans l'un des trois états spectroscopiques (^3P, ^1D, ^1S) ou comme un C^{2+} (ns^1np^5) ^3P.

III.2.1 Section Efficace Quintuplement Différentielle (e,3e)

Nous considérons, dans ce qui suit, des situations où l'électron incident et diffusé sont rapides, et nous pouvons faire l'étude dans le cadre de la première approximation de Born (*FBA*).

La section efficace quintuplement différentielle associée à cette réaction est :

$$\frac{d^5\sigma}{d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1 dE_2} = \frac{(2\pi)^4}{k_i} k_d k_1 k_2 \left|f_{B1}\right|^2 \qquad \text{(III. 3)}$$

L'élément de matrice f_{B1} représente la transition de l'état initial Ψ_i à l'état final Ψ_f sous l'effet d'un potentiel V. Ce premier terme s'écrit :

$$f_{B1} = -\langle \Psi_f | V | \Psi_i \rangle \qquad \text{(III. 4)}$$

Afin d'évaluer les *FDCSs* des réactions (e, 3e) dans le cas des atomes (***Ne*** ou ***Ar***), une série de calculs a été effectuée à travers des modèles théoriques développés basés sur les modèles et d'approches décrits dans le deuxième chapitre.

III.2.2 Le modèle BBK

Dans ce modèle, l'état final est représenté par un produit de trois fonctions d'onde coulombiennes défini comme :

$$\Phi_f(\vec{k}_1,\vec{r}_1;\vec{k}_2,\vec{r}_2) = \frac{1}{\sqrt{2}}\left[\varphi_c(\vec{k}_1,\vec{r}_1)\varphi_c(\vec{k}_2,\vec{r}_2) \pm \varphi_c(\vec{k}_1,\vec{r}_2)\varphi_c(\vec{k}_2,\vec{r}_1)\right] C(\alpha_{12},\vec{k}_{12},\vec{r}_{12}) \quad \text{(III. 5)}$$

L'expression de l'onde Coulombienne est donnée par :

$$\varphi_c(\vec{k}_j,\vec{r}_j) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} e^{i\vec{k}_j\vec{r}_j} C(\alpha_j,\vec{k}_j,\vec{r}_j) \quad \text{(III. 6)}$$

Ou j = 1, 2. La troisième fonction d'onde $C(\vec{k}_{12},\vec{r}_{12})$ représente l'interaction post-collisionnelle entre les deux électrons éjectés dans le continuum d'ions résiduels :

$$C(\alpha_j,\vec{k}_j,\vec{r}_j) = e^{-\frac{\pi\alpha_j}{2}} \Gamma(1+i\alpha_j)\ {}_1F_1\left(-i\alpha_j, 1, -i(k_j r_j + \vec{k}_j\vec{r}_j)\right) \quad \text{(III. 7)}$$

Et : $\alpha_i = -\frac{Z}{k_j}$, $\alpha_{12} = \frac{1}{2k_{12}}$, $\vec{k}_{12} = \frac{1}{2}(\vec{k}_1 - \vec{k}_2)$, $z = 2$

Les expressions ${}_1F_1(a,b,z)$ et $\Gamma(z)$ sont respectivement la fonction hypergéométrique confluente et la fonction gamma d'Euler :

$$ {}_1F_1(a,b,z) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(a)_n}{(b)_n} \frac{z^n}{n!} ; (a)_0 = 1 \quad et \quad (a)_n = a(a+1)\ldots(a+n-1) \quad \text{(III. 8)} $$

On peut constater que pour *Z=0*, l'onde coulombienne devient une onde plane.

Le calcul de l'élément de matrice f_{B1} dans ce modèle est très difficile et prend beaucoup de temps en raison de l'évaluation d'une intégrale à six dimensions. Pour cela, nous utilisons dans ce travail une version approximative du ce modèle. Cette version est introduite par Miraglia et al [14] et utilise-la transformée de Fourier permettant de réduire l'intégrale à six dimensions à une intégrale à trois dimensions.

Rappelons la propriété de la double transformée de Fourier :

$$ f(\vec{r}) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int e^{i\vec{p}\vec{r}} d\vec{p} \int e^{-i\vec{p}\vec{r'}} f(r') d\vec{r'} \quad \text{(III. 9)} $$

L'application de cette propriété à la fonction $C(\alpha_{12}, \vec{k}_{12}, \vec{r}_{12})$ donne :

$$ C(\alpha_{12}, \vec{k}_{12}, \vec{r}_{12}) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int e^{i\vec{p}\vec{r}_{12}} d\vec{p} \int e^{-i\vec{p}\vec{r'}_{12}} C(\alpha_{12}, \vec{k}_{12}, \vec{r}_{12}) d\vec{r'}_{12} \quad \text{(III. 10)} $$

L'amplitude de diffusion dans le cadre de l'approximation du cœur gelé pour ce modèle est écrite comme suit :

$$ f_{B1} = -\frac{1}{2\pi} \left\langle \phi_d(\vec{k}_d, \vec{r}_0) \varphi_c(\vec{k}_1, \vec{r}_1) \varphi_c(\vec{k}_2, \vec{r}_2) C(\alpha_{12}, \vec{k}_{12}, \vec{r}_{12}) \middle| -\frac{2}{r_0} + \frac{1}{r_{01}} + \frac{1}{r_{02}} \middle| \phi_i(\vec{k}_0, \vec{r}_0)\, \varphi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \quad \text{(III. 11)} $$

En utilisant la relation de Bethe [19], cette expression devient :

$$ f_{B1} = -\frac{2}{k^2} \left\langle \varphi_c(\vec{k}_1, \vec{r}_1) \varphi_c(\vec{k}_2, \vec{r}_2) C(\alpha_{12}, \vec{k}_{12}, \vec{r}_{12}) \middle| -2 + e^{i\vec{k}\vec{r}_1} + e^{i\vec{k}\vec{r}_2} \middle| \varphi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \quad \text{(III. 12)} $$

L'insertion de (III. 10) dans (III. 12) donne :

$$ f_{B1} = -\frac{1}{(2k)^2 \pi^3} \int \left(-2.\, I_0(\vec{p}) + I_1(\vec{p}) + I_2(\vec{p}) \right) d\vec{p} \quad \text{(III. 13)} $$

Avec :

$$\begin{cases} I_0 = \iint \varphi_c^*(\vec{k}_1,\vec{r}_1)\varphi_c^*(\vec{k}_2,\vec{r}_2)e^{i\vec{p}\vec{r}_{12}}\,\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \int e^{-i\vec{p}\vec{r}'_{12}}C(\alpha_{12},\vec{k}_{12},\vec{r}_{12})d\vec{r}'_{12} \\ I_1 = \iint \varphi_c^*(\vec{k}_1,\vec{r}_1)\varphi_c^*(\vec{k}_2,\vec{r}_2)e^{i\vec{p}\vec{r}_{12}}e^{i\vec{k}\vec{r}_1}\,\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \int e^{-i\vec{p}\vec{r}'_{12}}C(\alpha_{12},\vec{k}_{12},\vec{r}_{12})d\vec{r}'_{12} \\ I_2 = \iint \varphi_c^*(\vec{k}_1,\vec{r}_1)\varphi_c^*(\vec{k}_2,\vec{r}_2)e^{i\vec{p}\vec{r}_{12}}\,e^{i\vec{k}\vec{r}_2}\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \int e^{-i\vec{p}\vec{r}'_{12}}C(\alpha_{12},\vec{k}_{12},\vec{r}_{12})d\vec{r}'_{12} \end{cases} \qquad (\text{III.}14)$$

Ces expressions peuvent être écrit comme suit :

$$\begin{cases} I_0 = \lim_{\beta\to 0}\int e^{-\beta\vec{r}_{12}}e^{-i\vec{p}\vec{r}_{12}}C(\alpha_{12},\vec{k}_{12},\vec{r}_{12})d\vec{r}_{12}\int \varphi_c^*(\vec{k}_1,\vec{r}_1)e^{i\vec{p}\vec{r}_1}\,\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)d\vec{r}_1 \\ \qquad \int \varphi_c^*(\vec{k}_2,\vec{r}_2)\,e^{-i\vec{p}\vec{r}_2}\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)d\vec{r}_2 \\ I_1 = \lim_{\beta\to 0}\int e^{-\beta\vec{r}_{12}}e^{-i\vec{p}\vec{r}_{12}}C(\alpha_{12},\vec{k}_{12},\vec{r}_{12})d\vec{r}_{12}\int \varphi_c^*(\vec{k}_1,\vec{r}_1)e^{i(\vec{k}+\vec{p})\vec{r}_1}\,\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)d\vec{r}_1 \\ \qquad \int \varphi_c^*(\vec{k}_2,\vec{r}_2)\,e^{-i\vec{p}\vec{r}_2}\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)d\vec{r}_2 \\ I_2 = \lim_{\beta\to 0}\int e^{-\beta\vec{r}_{12}}e^{-i\vec{p}\vec{r}_{12}}C(\alpha_{12},\vec{k}_{12},\vec{r}_{12})d\vec{r}_{12}\int \varphi_c^*(\vec{k}_1,\vec{r}_1)e^{i\vec{p}\vec{r}_1}\,\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)d\vec{r}_1 \\ \qquad \int \varphi_c^*(\vec{k}_2,\vec{r}_2)\,e^{i(k-\vec{p})\vec{r}_2}\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)d\vec{r}_2 \end{cases} \qquad (\text{III.}15)$$

Où β est un paramètre proche de 0. Ces intégrales tridimensionnelles nécessitent de nombreux points d'intégration. Nous avons trouvé un accord parfait avec les résultats de la méthode utilisée par Joulakian et al., [4] dans le cas de la DI de l'argon pour $\beta = 0.005$ mais avec un nombre de points d'intégration de très grand (plus de détail dans le chapitre IV).

Nous avons appliqué le modèle BBK dans le calcul des sections efficaces mais il donne un fort désaccord avec les résultats expérimentaux, en particulier dans l'amplitude de la FDCS qui est 1000 fois plus grande. Pour cette raison et d'autres mentionnées dans le quatrième chapitre nous avons décidé de ne pas appliquer ce modèle dans cette étude.

III.2.3 Le modèle 2CWG/2CWWM

Ce modèle est considéré comme un modèle de base dans notre étude du fait que les autres modèles sont des corrections à ce modèle (soit dans le potentiel d'interaction soit dans l'état final).

III.2.3.1 Description de l'état initial

L'état initial du système projectile-cible s'écrit comme suit :

$$|\Psi_i\rangle = |\phi_i(\vec{k}_0,\vec{r}_0)\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2,\dots\vec{r}_N)\rangle \qquad (\text{III.}16)$$

$\phi_i\left(\vec{k}_{0,}\vec{r}_0\right)$ est une onde plane décrivant l'électron incident et $\vec{r}_0$ désigne le vecteur position de l'électron incident :

$$\phi_i\left(\vec{k}_{0,}\vec{r}_0\right) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} e^{i\vec{k}_i\vec{r}_0} \qquad \text{(III. 17)}$$

$\varphi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots \vec{r}_N)$ représente la fonction d'onde pour l'état fondamental de la cible et $\vec{r}_{i=1,2,\dots N}$ désignent les vecteurs de position des électrons de la cible.

Le problème de cible à N électrons peut être simplifié en un problème à deux électrons actifs en utilisant l'approximation du cœur gelé, si on suppose que les autres électrons de la cible ne sont pas affectés par le processus de collision, nous aurons donc :

$$|\varphi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots \vec{r}_N)\rangle = |\varphi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2)\rangle \qquad \text{(III. 18)}$$

- **La fonction d'onde de la cible**

La fonction d'onde de la cible est un déterminant de Slater qui doit etre une fonction propre des opérateurs L^2 et S^2. Afin d'examiner l'importance des corrélations dans l'état initial, deux des fonctions d'onde ont été choisies : la fonction d'onde de Hartree-Fock de Clementi et Roetti [15] et une fonction d'onde calculée par superposition de configurations [16].

Nous décrivant tout d'abord la première fonction d'onde qui ne contient aucune corrélation :

Dans ce travail, pour décrire les deux électrons actifs du cible (np^6), nous utiliserons une fonction d'onde Hartree-Fock de Clementi et Roetti :

$$\varphi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \phi(\vec{r}_1)\phi(\vec{r}_2) \qquad \text{(III. 19)}$$

$$\phi_i(\vec{r}_j) = Y_l^m(\vec{r}_j) \sum_i \xi_i^{3/2} \alpha_i r_j^{n_i - 1} e^{\xi_i r_j} \qquad \text{(III. 20)}$$

Les paramètres $(n_i, l, m, \xi_i, \alpha_i)$ de l'atome du néon $2p^6$ sont donnés dans le Tableau III.1 et de l'atome d'argon $3p^6$ dans le Tableau III.2

Tableau III.1 : Paramètres des fonctions d'onde de Hartree-Fock de Clementi et Roetti de l'atome de Néon ***2p⁶***.

n_i	l	m	ξ_i	α_i
				2p
2	1	m	1.4700	0.22430
2	1	m	2.3717	0.51826
2	1	m	4.4545	0.33902
2	1	m	9.4550	0.01765

Tableau III.2 : Paramètres des fonctions d'onde de d'onde de Hartree-Fock de Clementi et Roetti de l'atome d'Argon ***3p⁶***

n_i	l	m	ξ_i	α_i
				3p
2	1	M	9.0000	-0.18072
4	1	M	15.0000	-0.01234
4	1	M	11.9644	0.02183
4	1	M	8.7924	-0.12559
4	1	M	6.3011	0.10518
4	1	M	3.4327	0.58041
4	1	M	1.9409	0.46149
4	1	M	1.0309	0.02249

Dans le but de tenir compte des effets de corrélations dans l'état initial, nous utiliserons des fonctions corrélées de type interaction de configurations [16].

$$\phi_i^j(\vec{r}_1,\vec{r}_2) = \sum_{j=1}^{k} C_j(\phi_1,\phi_2) \qquad \text{(III. 21)}$$

Où les coefficient C_j sont les coefficients de la combinaison linéaire du produit des orbitales monoélectroniques.

Deux cas possibles de la double ionisation de l'argon ont été étudiés :

- ***Premier cas*** : Les deux électrons sont éjectés de la couche externe (np^6) ; alors nous devons prendre les 15 combinaisons possibles ($k = C_6^2 = 15$) sous couplage LS ; 9 pour l'état $C^{2+}(np^4)$ ^3P, 5 pour l'état $C^{2+}(np^4)$ ^1D et un pour l'état ionique $C^{2+}(np^4)$ ^1S.

➢ ***Deuxième cas*** : Les électrons éjectés partent des couches extérieures (ns^2np^6) ; et nous avons ici (k = 9) neuf combinaisons possibles pour l'état ionique $C^{2+}(ns^1np^5)$ ^3P.

Toutes les fonctions propres du premier cas sont présentées dans le tableau III.3 et de deuxième cas dans le tableau III.4 avec n = 2 pour le Néon et n = 3 pour l'Argon.

Tableau III.3 : Les fonctions propres et leur énergie de DI $\left(I^{++}\right)$ du premier cas

J	États	m_l	m_s	$\phi_i^j(\vec{r}_1,\vec{r}_2)$	I^{++}
1	^3P	+1	+1	$\lvert np_1np_0\rvert$	$Ne^{2+}(2p^4)$: 62.6 eV $Ar^{2+}(3p^4)$: 43.2 eV
2	^3P	+1	-1	$\lvert n\bar{p}_1n\bar{p}_0\rvert$	
3	^3P	0	+1	$\lvert np_1np_{-1}\rvert$	
4	^3P	0	-1	$\lvert n\bar{p}_1n\bar{p}_{-1}\rvert$	
5	^3P	-1	+1	$\lvert np_{-1}np_0\rvert$	
6	^3P	-1	-1	$\lvert n\bar{p}_{-1}n\bar{p}_0\rvert$	
7	^3P	1	0	$1/\sqrt{2}\left(\lvert np_1n\bar{p}_0\rvert+\lvert n\bar{p}_1np_0\rvert\right)$	
8	^3P	0	0	$1/\sqrt{2}\left(\lvert np_1n\bar{p}_{-1}\rvert+\lvert n\bar{p}_1np_{-1}\rvert\right)$	
9	^3P	-1	0	$1/\sqrt{2}\left(\lvert np_{-1}n\bar{p}_0\rvert+\lvert n\bar{p}_{-1}np_0\rvert\right)$	
10	^1D	2	0	$\lvert np_1n\bar{p}_1\rvert$	$Ne^{2+}(2p^4)$: 65.3 eV $Ar^{2+}(3p^4)$: 45.1 eV
11	^1D	-2	0	$\lvert np_{-1}n\bar{p}_{-1}\rvert$	
12	^1D	+1	0	$1/\sqrt{2}\left(\lvert np_1n\bar{p}_0\rvert-\lvert n\bar{p}_1np_0\rvert\right)$	
13	^1D	-1	0	$1/\sqrt{2}\left(\lvert np_0n\bar{p}_{-1}\rvert-\lvert n\bar{p}_0np_{-1}\rvert\right)$	
14	^1D	0	0	$\frac{1}{\sqrt{6}}\left(\lvert np_1n\bar{p}_{-1}\rvert-\lvert n\bar{p}_1np_{-1}\rvert+2\lvert np_0n\bar{p}_0\rvert\right)$	
15	^1S	0	0	$\frac{1}{\sqrt{3}}\left(-\lvert np_1n\bar{p}_{-1}\rvert+\lvert n\bar{p}_1np_{-1}\rvert+\lvert np_0n\bar{p}_0\rvert\right)$	$Ne^{2+}(2p^4)$: 69.3 eV $Ar^{2+}(3p^4)$: 47.4 eV

Tableau III.4: Les fonctions propres et leur énergie de DI $\left(I^{++}\right)$ du deuxième cas :

j	*États*	M_L	M_S	$\phi_i^j(\vec{r}_1,\vec{r}_2)$	I^{++}
1	^3P	0	+1	$\lvert nsnp_0\rvert$	$\boldsymbol{Ne^{2+}(2s^12p^5)}$: ***87.8 eV*** $\boldsymbol{Ar^{2+}(3s^13p^5)}$: ***57.7 eV***
2	^3P	0	-1	$\lvert n\bar{s}n\bar{p}_0\rvert$	
3	^3P	+1	+1	$\lvert nsnp_1\rvert$	
4	^3P	+1	-1	$\lvert n\bar{s}n\bar{p}_1\rvert$	
5	^3P	-1	+1	$\lvert nsnp_{-1}\rvert$	
6	^3P	-1	-1	$\lvert n\bar{s}n\bar{p}_{-1}\rvert$	
7	^3P	0	0	$1/\sqrt{2}\left(\lvert nsn\bar{p}_0\rvert+\lvert n\bar{s}np_0\rvert\right)$	

8	^3P	+1	0	$^1/_{\sqrt{2}}(\lvert nsn\bar{p}_{-1}\rvert + \lvert n\bar{s}np_1\rvert)$
9	^3P	-1	0	$^1/_{\sqrt{2}}(\lvert nsn\bar{p}_{-1}\rvert + \lvert n\bar{s}np_{-1}\rvert)$

REMARQUE : la notation s/p signifie que l'on considère une orbitale de spin qui dépend de (r,θ,ϕ) avec un spin up et $\bar{s}/\bar{\mathrm{p}}$ signifie un spin down.

III.2.3.2 Description de l'état final

L'état final est exprimé par :

$$\left|\Psi_f(\vec{k}_d,\vec{r}_0;\vec{k}_1,\vec{r}_1;\vec{k}_2,\vec{r}_2)\right\rangle = \left|\phi_d(\vec{k}_d,\vec{r}_0)\Phi_f(\vec{k}_1,\vec{r}_1;\vec{k}_2,\vec{r}_2)\right\rangle \qquad \text{(III. 22)}$$

$\phi_d(\vec{k}_d,\vec{r}_0)$ est une onde plane qui représente la fonction d'onde de l'électron diffusé :

$$\phi_d(\vec{k}_d,\vec{r}_0) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} e^{i\vec{k}_d\vec{r}_0} \qquad \text{(III. 23)}$$

$\Phi_f(\vec{k}_1,\vec{r}_1;\vec{k}_2,\vec{r}_2)$ représente la fonction d'onde des deux électrons éjectées. Dans le cadre du modèle BBK [14], l'état final est représenté par un produit de trois ondes de Coulomb :

$$\Phi_f(\vec{k}_1,\vec{r}_1;\vec{k}_2,\vec{r}_2)$$

$$= \frac{1}{\sqrt{2}}\left[\varphi_c(\vec{k}_1,\vec{r}_1)\varphi_c(\vec{k}_2,\vec{r}_2) \pm \varphi_c(\vec{k}_1,\vec{r}_2)\varphi_c(\vec{k}_2,\vec{r}_1)\right]C(\alpha_{12},\vec{k}_{12},\vec{r}_{12}) \quad \text{(III. 24)}$$

Le signe (+) dans l'équation (III.24) correspond à une fonction symétrique pour la partie spatiale (^{1}D et ^{1}S) tandis que le signe (–) correspond à une fonction antisymétrique (^{3}P).

Cette méthode (BBK) nécessite un temps de calcule très grand à cause de la troisième fonction Coulombienne $C(\alpha_{12},\vec{k}_{12},\vec{r}_{12})$ qui décrit la répulsion entre les deux électrons éjectés.

Afin de réduire le temps de calcul du FDCS, nous avons approximés cette fonction $C(\alpha_{12},\vec{k}_{12},\vec{r}_{12})$ par deux facteurs mentionnés dans le deuxième chapitre :

- ***Le facteur de Gamow F_G (k_{12})*** **:** Ce facteur est capable d'expliquer la répulsion qui existe entre des électrons lents ayant des vitesses voisines [7]. Il ne dépend que du moment électronique k_i ($i = 1\ ou\ 2$) des électrons éjectés et est défini par l'expression :

$$\mathrm{G}(\mathrm{k}_{12}) = \left|e^{-\frac{\pi}{2k_{12}}}\Gamma\left(1-\frac{i}{2k_{12}}\right)\right|^2 = \frac{\pi}{k_{12}\left(e^{\frac{\pi}{k_{12}}}-1\right)} \qquad \text{(III. 25)}$$

- ***Le facteur de Ward et Macek $F_{WM}(k_{12})$*** **:** Ce modèle repose sur l'évaluation de la fonction $C(\alpha_{12}, \vec{k}_{12}, \vec{r}_{12})$ à une distance fixe différente de zéro. Il dépend aussi du moment électronique k_i $(i = 1\ ou\ 2)$.

$$F_{WM}(k_1, k_2) = \frac{\pi}{k_{12}\left(e^{\frac{\pi}{k_{12}}} - 1\right)} \left| {}_1F_1(-i\alpha_{12}, 1, -2ik_{12}\bar{x}_{12})\right|^2 \quad \text{(III. 26)}$$

Le premier terme représente le facteur de Gamow tandis que le deuxième désigne la fonction hypergéométrique à une distance fixe $\bar{x}_{12}$ donnée par Ward et Macek [18].

III.2.3.3 Potentiel d'interaction ressenti par le projectile

Le potentiel d'interaction entre le projectile et la cible atomique ne dépend que des charges électriques et des distances entre elles. Sa forme est définie comme suit :

$$V = -\frac{z}{r_0} + \sum_i \frac{1}{r_{0i}} \qquad \text{(III. 27)}$$

Où : z est la charge du noyau, $r_{0i} = |\vec{r}_0 - \vec{r}_i|$

Ce potentiel s'écrit dans le cadre de l'approximation du cœur gelé sous la forme :

$$V(\vec{r}_0, \vec{r}_1, \vec{r}_2\ ) = -\frac{2}{r_0} + \frac{1}{r_{01}} + \frac{1}{r_{02}} \qquad \text{(III. 28)}$$

L'intégration sur les coordonnées du projectile r_0 peut être effectuée analytiquement en utilisant la relation de Bethe [19] :

$$\int \frac{e^{i\vec{K}\vec{r}_0}}{|\vec{r}_i - \vec{r}_0|} d\vec{K} = \frac{4\pi}{K^2} e^{i\vec{K}\vec{r}_i} \qquad \text{(III. 29)}$$

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

$$f_{B1} = -\frac{2}{K^2}\left\langle \Phi_f\left(\vec{k}_1, \vec{r}_1; \vec{k}_2, \vec{r}_2\right)\middle| -2 + e^{i\vec{K}\vec{r}_1} + e^{i\vec{K}\vec{r}_2}\middle|\varphi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2)\right\rangle \quad \text{(III. 30)}$$

Où encore : $$f_{B1} = -\frac{2}{K^2}\left(f_{e_1} + f_{e_2} - 2.f_N\right) \qquad \text{(III. 31)}$$

Avec :

$$\begin{cases} f_{e_1} = \left\langle \Phi_f\left(\vec{k}_1, \vec{r}_1; \vec{k}_2, \vec{r}_2\right)\middle| e^{i\vec{K}\vec{r}_1}\middle|\varphi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2)\right\rangle \\ f_{e_2} = \left\langle \Phi_f\left(\vec{k}_1, \vec{r}_1; \vec{k}_2, \vec{r}_2\right)\middle| e^{i\vec{K}\vec{r}_2}\middle|\varphi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2)\right\rangle \\ f_N = \left\langle \Phi_f\left(\vec{k}_1, \vec{r}_1; \vec{k}_2, \vec{r}_2\right)\middle|\varphi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2)\right\rangle \end{cases} \qquad \text{(III. 32)}$$

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

On peut obtenir une expression analytique pour chaque terme f_{e_1} , f_{e_2} et f_N dans le cas d'une fonction d'onde de type Slater. Les calculs de cet élément sont effectués dans plusieurs thèses [20-22].

III.2.4 Le modèle 2DW (effet de distorsion)

Une première correction du modèle 2CW est le modèle 2DW où l'état initial et le potentiel d'interaction reste inchangé :

Dans ce modèle, l'interaction entre les deux électrons éjectés et la cible résiduelle est décrite par une onde distordue approximative au lieu d'une onde coulombienne. De sort que l'état finale s'écrit :

$$\Phi_f(\vec{k}_1,\vec{r}_1;\vec{k}_2,\vec{r}_2) = \frac{1}{\sqrt{2}}\left[\varphi_{DW}(\vec{k}_1,\vec{r}_1)\varphi_{DW}(\vec{k}_2,\vec{r}_2) \pm \varphi_{DW}(\vec{k}_1,\vec{r}_2)\varphi_{DW}(\vec{k}_2,\vec{r}_1)\right]\mathrm{F}(\alpha_{12},\vec{k}_{12},\vec{r}_{12}) \quad \text{(III. 33)}$$

Ou $\mathrm{F}(\alpha_{12},\vec{k}_{12},\vec{r}_{12})$ représente le facteur de Gamow dans le modèle 2DWG et le facteur Ward et Macek dans l'autre modèle 2DWWM.

Dans cette approche, l'onde distordue approximative représentant chaque électron éjecté est constituée d'une onde coulombienne (où l'électron est soumis à l'attraction coulombienne de l'ion résiduel) avec une charge variable Z(r) qui est vue par chaque électron éjecté. Il s'agit d'une approximation du modèle habituel DWBA [23] (mentionner dans le chapitre II) :

$$\varphi_{DW}(\vec{k}_j,\vec{r}_j) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} e^{i\vec{k}_j\vec{r}_j}\, e^{-\frac{\pi z(r_j)}{2k_j}}\, \Gamma\left(1 + i\frac{z(r_j)}{k_j}\right)\, {}_1F_1\left(-i\frac{z(r_j)}{k_j}, 1, -i\left(k_j r_j + \vec{k}_j\vec{r}_j\right)\right) \quad \text{(III. 34)}$$

Chaque électron voit la charge du noyau Z à r = 0 ($z(0) = z$) et Z = 2 à r → ∞. Si l'on prend une charge effective constante vue par chaque électron éjecté (Z(r) = 2) le modèle 2DW se réduit au modèle 2CW [24]. L'avantage de cette méthode est d'utiliser un calcul analytique permettant de minimiser considérablement le temps de calcule. Il faut remarquer que :

$$\begin{cases} \varphi_{DW}(\vec{r}) = \varphi_{DW}(\vec{r}) & r \le d \\ \varphi_{DW}(\vec{r}) = \varphi_c(\vec{r}) & r > d \end{cases} \quad \text{(III. 35)}$$

Où d est la portée du potentiel. Pour les atomes légers et dans le cas d'une DI, d est de l'ordre de 6*u.a*, l'amplitude de diffusion de ce modèle s'écrit :

$$f_{B1} = -\frac{2}{K^2}\left\langle \Phi_{DW}\left(\vec{k}_1,\vec{r}_1;\vec{k}_2,\vec{r}_2\right)\middle| -2 + e^{i\vec{K}\vec{r}_1} + e^{i\vec{K}\vec{r}_2}\middle|\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle \quad (\text{III. 36})$$

Prenant par exemple le terme f_{e_1} (les deux autres termes $f_{e_2} et\ f_N$ sont calculés de la même manière) :

$$f_{e_1} = \left\langle \Phi_{DW}\left(\vec{k}_1,\vec{r}_1;\vec{k}_2,\vec{r}_2\right)\middle| e^{i\vec{K}\vec{r}_1}\middle|\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle$$

À l'aide du propriété (éq.III.35) on peut écrire f_{e_1} comme suit :

$$f_{e_1} = \int\int_0^d \Phi_{DW}^*(\vec{r}_1,\vec{r}_2)e^{i\vec{K}\vec{r}_1}\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)r_1^2 dr_1 d\Omega + \int\int_d^\infty \varphi_c^*(\vec{r}_1,\vec{r}_2)e^{i\vec{K}\vec{r}_1}\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)r_1^2 dr_1 d\Omega \quad (\text{III. 37})$$

Ou : $I_2 = \int\int_d^\infty \varphi_c^*(\vec{r}_1,\vec{r}_2)e^{i\vec{K}\vec{r}_1}\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)r_1^2 dr_1 d\Omega$

On peut écrire le deuxième terme I_2 sous la forme :

$$I_2 = \int\int_0^\infty \varphi_c^*(\vec{r}_1,\vec{r}_2)e^{i\vec{K}\vec{r}_1}\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)r_1^2 dr_1 d\Omega - \int\int_0^d \varphi_c^*(\vec{r}_1,\vec{r}_2)e^{i\vec{K}\vec{r}_1}\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)r_1^2 dr_1 d\Omega \quad (\text{III. 38})$$

Donc f_{e_1} devient :

$$f_{e_1} = \left(\int\int_0^\infty \varphi_c^*(\vec{r}_1,\vec{r}_2)e^{i\vec{K}\vec{r}_1}\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\, r_1^2 dr_1 d\Omega \right.$$
$$\left. + \int\int_0^d \left(\varphi_{DW}^*(\vec{r}_1,\vec{r}_2) - \varphi_c^*(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right) e^{i\vec{K}\vec{r}_1}\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)r_1^2 dr_1 d\Omega\right) \quad (\text{III. 39})$$

Dans cette expression le premier terme est calculé analytiquement (comme le cas du modèle précédant 2CW), tandis que le second terme est calculé à l'aide d'une méthode d'intégration usuelle (Gauss-Legendre par exemple) entre deux points de $r = 0$ à $r = d$.

III.2.4.1 Calcule de la charge variable

Pour calculer la charge variable Z(r) on utilise le potentiel statique V_{stat} de la cible vue par l'électron éjecté. Dans le cas des atomes, le potentiel V_{stat} est donné par :

$$V_{stat}(\vec{r}_j) = -\frac{z}{r_j} + \sum_{i=1}^{N_0} N_i \int \frac{|\varphi_i(\vec{r})|^2}{|\vec{r} - \vec{r}_j|} d\vec{r} = -\frac{z(r_j)}{r_j} \quad (\text{III. 40})$$

Où : j = 1, 2 et i ≠ j. Z est la charge du noyau, N_0 est le nombre d'orbitales atomiques de la cible, N_i est le nombre des électrons dans l'orbitale i et $\varphi_i(\vec{r})$ représente la fonction d'onde de l'électron lié.

On note que $V_{stat}(\vec{r}_j)$ est un potentiel anisotrope et difficile à traiter, pour cela nous utilisons un potentiel plus pratique, c'est le potentiel radial moyenné $U_m(r_j)$:

$$U_m(r_j) = \frac{1}{4\pi}\int V_{stat}(\vec{r}_j)d\Omega_j = -\frac{z(r_j)}{r_j} \qquad \text{(III. 41)}$$

- **Pour le Néon :** Le potentiel $V_{stat}(r)$ s'écrit pour la DI de l'orbitale 2p du Ne comme suit :

$$U_{2p}(r_j) = \frac{1}{4\pi}\int\left(-\frac{10}{r_j}+\sum_{i=1}^{3}N_i\int\frac{|\varphi_i(\vec{r})|^2}{|\vec{r}-\vec{r}_j|}d\vec{r}\right)d\Omega_j = -\frac{z(r_j)}{r_j} \qquad \text{(III. 42)}$$

Ou encore :

$$U_{2p}(r_j) = \frac{1}{4\pi}\int\left(-\frac{10}{r_j}+2\int\frac{|\varphi_{1s}(\vec{r})|^2}{|\vec{r}-\vec{r}_j|}d\vec{r}+2\int\frac{|\varphi_{2s}(\vec{r})|^2}{|\vec{r}-\vec{r}_j|}d\vec{r}+4\int\frac{|\varphi_{2p}(\vec{r})|^2}{|\vec{r}-\vec{r}_j|}d\vec{r}\right)d\Omega_j \qquad \text{(III. 43)}$$

On peut écrire :

$$U_{2p}(r_j) = -\frac{10}{r_j}+2\frac{z_{1s}}{r_j}+2\frac{z_{2s}}{r_j}+4\frac{z_{2p}}{r_j} = -\frac{z(r_j)}{r_j} \qquad \text{(III. 44)}$$

La charge variable peut être écrite sous la forme :

$$z(r_j) = 10 - 2.z_{1s} - 2.z_{2s} - 4.z_{2p} \qquad \text{(III. 45)}$$

Avec : $$Z_{1S} = \int\frac{|\varphi_{1s}(\vec{r})|^2}{|\vec{r}-\vec{r}_j|}d\vec{r} \qquad \text{(III. 46)}$$

La charge variable est calculée analytiquement en utilisant le développement multipolaire :

$$\frac{1}{r_{ij}} = \sum_{l,m}\frac{4\pi}{2l+1}\frac{r^l{}_<}{r_>{}^{l+1}}Y^*_{l,m}(\Omega_i)Y_{l,m}(\Omega_j) \qquad \text{(III. 47)}$$

Le détaille de calcul est donné dans l'annexe A pour des fonctions d'ondes de type Slater dans le cas des atomes.

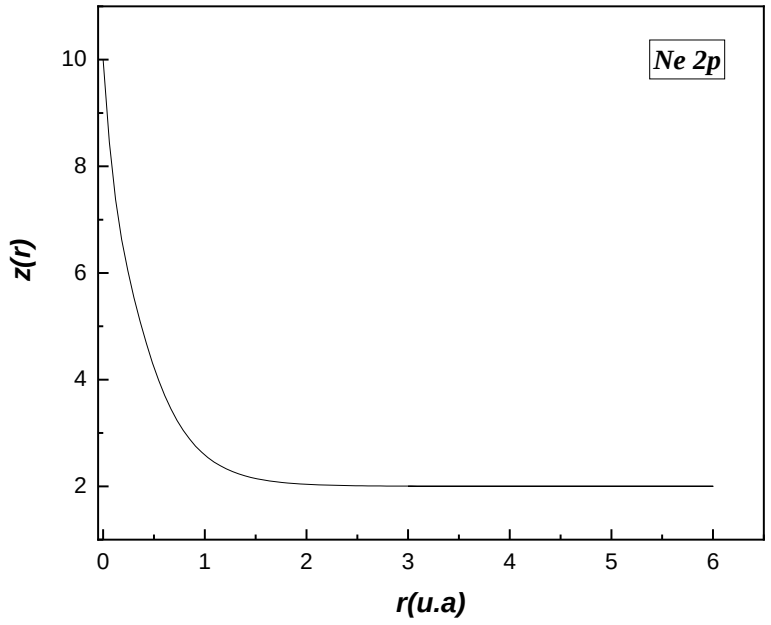


Figure III.1 : Variation de la charge effective *Z(r)* de l'orbitale atomique $\mathbf{2p}$ du Néon.

La Figure III.1 représente la variation de la charge variable Z(r) dans le cas de la double ionisation de l'orbitale atomique 2p du Néon. Nous pouvons observer que la charge décroît de Z = 10 à la valeur asymptotique Z = 2

- **Pour l'Argon :** Le potentiel $V_{stat}(r)$ s'écrit pour la DI de l'orbitale 3p de l'Argon comme suit :

$$U_{3p}(r_j) = \frac{1}{4\pi}\int\left(-\frac{18}{r_j}+\sum_{i=1}^{5}N_i\int\frac{|\varphi_i(\vec{r})|^2}{|\vec{r}-\vec{r}_j|}d\vec{r}\right)d\Omega_j = -\frac{z(r_j)}{r_j} \quad \text{(III. 48)}$$

Ou encore :

$$U_{3p}(r_j) = \frac{1}{4\pi}\int\left(-\frac{18}{r_j}+2\int\frac{|\varphi_{1s}(\vec{r})|^2}{|\vec{r}-\vec{r}_j|}d\vec{r}+2\int\frac{|\varphi_{2s}(\vec{r})|^2}{|\vec{r}-\vec{r}_j|}d\vec{r}+6\int\frac{|\varphi_{2p}(\vec{r})|^2}{|\vec{r}-\vec{r}_j|}d\vec{r}\right.$$
$$\left.+2\int\frac{|\varphi_{3s}(\vec{r})|^2}{|\vec{r}-\vec{r}_j|}d\vec{r}+4\int\frac{|\varphi_{2p}(\vec{r})|^2}{|\vec{r}-\vec{r}_j|}d\vec{r}\right)d\Omega_j = -\frac{z(r_j)}{r_j} \quad \text{(III. 49)}$$

On peut écrire :

$$U_{3p}(r_j) = -\frac{18}{r_j}+2\frac{Z_{1S}}{r_j}+2\frac{Z_{2S}}{r_j}+6\frac{Z_{2p}}{r_j}+2\frac{Z_{3S}}{r_j}+4\frac{Z_{3p}}{r_j} = -\frac{Z(r_j)}{r_j} \quad \text{(III. 50)}$$

Avec :

$$Z(r_j) = 18 - 2.Z_{1S} - 2.Z_{2S} - 6.Z_{2p} - 2.Z_{3S} - 4.Z_{3p} \quad \text{(III. 51)}$$

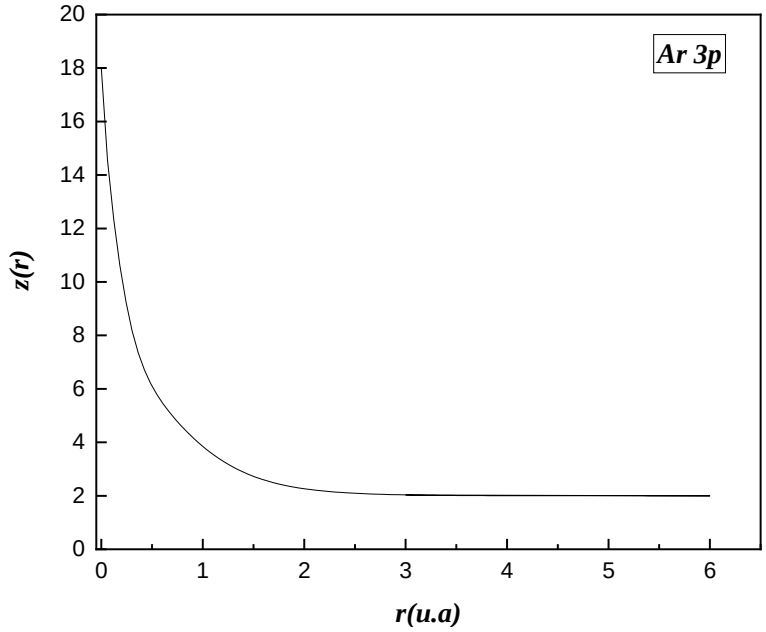


Figure III.2 : Variation de la charge effective $\boldsymbol{Z(r)}$ de l'orbitale atomique $\boldsymbol{3p}$ de l'argon.

La Figure III.2 représente la variation de la charge variable Z(r) dans le cas de la double ionisation de l'orbitale atomique 3p de l'Argon. Il est bien observé que la charge décroît de Z = 18 à la valeur asymptotique Z = 2.

III.2.5 Le modèle 2CWSR (effet du potentiel de courte portée)

Une deuxième correction du modèle *2CW* c'est le *2CWSR* de telle sorte que l'état initial et l'état final reste inchangé :

Dans le modèle 2CW, l'interaction entre le projectile et la cible est considérée comme une interaction purement coulombienne $V_C(r)$, mais en réalité il existe en plus un potentiel de courte portée $V_{SR}(r)$ qui est dû aux effets de la distribution électronique dans la cible sur l'électron incident.

Nous pouvons écrire le potentiel d'interaction entre le projectile et la cible dans le cas de deux électrons actives sous la forme :

$$V = \frac{1}{r_{01}} + \frac{1}{r_{02}} + U_m \qquad (\text{III.}52)$$

Tel que $r_{0j} = |\vec{r}_0 - \vec{r}_j|$ est la distance entre le projectile est l'un des deux électrons actives et V_i représente le potentiel entre le projectile et le reste des électrons de la cible. Ce potentiel est similaire au potentiel statique U_m utiliser dans le modèle précédent mais : pour le modèle 2DW l'expression final du potentiel est en fonction de r_j (l'interaction entre l'un des

deux électrons éjectées et l'ion résiduel), tandis que pour ce modèle 2CWSR, elle est en fonction de r_0(l'interaction entre le projectile et la cible)

$$U_m(r_0) = \frac{1}{4\pi}\int\left(-\frac{z}{r_0}+\sum_{\substack{i=1\\ i\neq j}}^{N_0} N_i \int \frac{|\varphi_i(\vec{r})|^2}{|\vec{r}_0-\vec{r}|}d\vec{r}\right)d\Omega_0 = -\frac{z(r_0)}{r_0} \qquad \text{(III. 53)}$$

Le calcul du potentiel de courte portée se fait comme celle du modèle 2DW. Ce potentiel est de la forme :

$$U_m(r_0) = -\frac{2}{r_0} + V_{SR} \qquad \text{(III. 54)}$$

Avec :

$$\begin{cases} V_{SR} = \sum_{m=1}^{8} e^{-a_m r_0}\left[\frac{A_m}{r_0} + B_m + C_m r_0 + D_m {r_0}^2 + E_m {r_0}^3\right] \ \textit{pour } \boldsymbol{Ne} \\ V_{SR} = \sum_{m=1}^{18} e^{-a_m r_0}\left[\begin{array}{c}\frac{A_m}{r_0} + B_m + C_m r_0 + D_m {r_0}^2 \\ +E_m {r_0}^3 + F_m {r_0}^4 + G_m {r_0}^5 + H_m {r_0}^6\end{array}\right] \ \textit{pour } \boldsymbol{Ar} \end{cases} \qquad \text{(III. 55)}$$

Où $A_m, B_m, C_m, D_m, E_m, F_m, G_m, H_m$ et a_m sont obtenus à partir de la fonction d'onde de Roothaan-Hartree-Fock de Clementi et Roetti ou de la fonction d'onde corrélée calculé par interaction de configuration. Le détail du calcule de V_{SR} est donné dans l'annexe A.

Le potentiel d'interaction entre le projectile et la cible s'écrit alors :

$$V = -\frac{2}{r_0} + \frac{1}{r_{01}} + \frac{1}{r_{02}} + V_{SR} \qquad \text{(III. 56)}$$

Et l'amplitude de diffusion :

$$f_{B1} = -\frac{1}{2\pi}\left\langle \phi_d(\vec{k}_d,\vec{r}_0)\Phi_C(\vec{k}_1,\vec{r}_1;\vec{k}_2,\vec{r}_2)\middle| -\frac{2}{r_0}+\frac{1}{r_{01}}+\frac{1}{r_{02}}+V_{SR}(r_0)\middle|\phi_i(\vec{k}_0,\vec{r}_0)\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle \text{(III. 57)}$$

L'application de la relation de Bethe donne :

$$f_{B1} = -\frac{2}{K^2}\left(\left\langle \Phi_C(\vec{k}_1,\vec{r}_1;\vec{k}_2,\vec{r}_2)\middle| -2 + e^{i\vec{K}\vec{r}_1} + e^{i\vec{K}\vec{r}_2}\middle|\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle + \frac{K^2}{4\pi}\left\langle \Phi_C(\vec{k}_1,\vec{r}_1;\vec{k}_2,\vec{r}_2)\middle|\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle \int e^{i\vec{K}\vec{r}_0}V_{SR}(r_0)d\vec{r}_0\right) \qquad \text{(III. 58)}$$

Nous pouvons constater que le premier terme est identique à l'amplitude de diffusion du modèle 2CW et le deuxième terme se divise en deux parties : la première partie est identique au terme f_N est la deuxième partie est calculé analytiquement.

III.2.6 Le modèle 2DWSR (effet de distorsion et du potentiel de courte portée)

Dans cette correction l'état initial reste inchangé

Ce modèle est une extension du modèle 2CWSR, où l'interaction entre le projectile et la cible n'est plus purement coulombienne mais inclut en plus le potentiel de courte portée, tandis que l'effet de distorsion des deux électrons éjectés sera pris en considération via deux ondes distordues approximatives.

L'amplitude de diffusion de ce modèle s'écrit donc comme suit :

$$f_{B1} = -\frac{1}{2\pi}\left\langle \phi_d(\vec{k}_d,\vec{r}_0)\Phi_{DW}(\vec{k}_1,\vec{r}_1;\vec{k}_2,\vec{r}_2)\middle| -\frac{2}{r_0}+\frac{1}{r_{01}}+\frac{1}{r_{02}}+V_{SR}(r_0)\middle|\phi_p(\vec{k}_0,\vec{r}_0)\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle \quad \text{(III. 59)}$$

Comme le modèle précédent, on peut écrire l'amplitude de diffusion :

$$f_{B1} = -\frac{2}{K^2}\left(\left\langle \Phi_{DW}(\vec{k}_1,\vec{r}_1;\vec{k}_2,\vec{r}_2)\middle| -2+e^{i\vec{K}\vec{r}_1}+e^{i\vec{K}\vec{r}_2}\middle|\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle + \frac{K^2}{4\pi}\left\langle \Phi_{DW}(\vec{k}_1,\vec{r}_1;\vec{k}_2,\vec{r}_2)\middle|\varphi_i(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right\rangle \int e^{i\vec{K}\vec{r}_0}V_{SR}(r_0)d\vec{r}_0\right) \quad \text{(III. 60)}$$

Ce modèle nécessite un temps de calcul très grand à cause de l'inclusion à la fois des distorsions et du potentiel à courte portée. Pour cela, et comme nous l'avons mentionné précédemment, le calcul de ces deux potentiels se fait analytiquement ce qui nous permet de diminuer considérablement le temps de calcul.

III.3 Section efficace quadruplement différentielle 4DCS (e,3e-1)

Dans les expériences (e,3e-1), les détecteurs détectent en coïncidence l'électron diffusé et l'un des deux électrons éjectés (le plus rapide), donc en intégrant la section efficace quintuplement différentielle sur l'angle solide de l'un des électrons éjectés (lent), nous obtenons :

$$\frac{d^4\sigma}{d\Omega_d dE_d d\Omega_1 dE_1} = \frac{(2\pi)^4}{k_i}k_d k_1 k_2 \int d\Omega_2 \left|T_{fi}\right|^2 \quad \text{(III. 64)}$$

Il existe, comme nous avons noté dans le premier chapitre, une autre espèce des expériences (e,3e-1) qui consiste à détecter les deux électrons éjectés en coïncidence, l'électron

incident est diffusé dans toutes les directions possibles [9], mais nous nous intéressons dans ce travail à la première espèce seulement.

Du point de vue expérimental, les expériences (e,2e) de simple ionisation sont transposables aux mesures des 4DCS et une comparaison des deux techniques permet de mieux comprendre les mécanismes de double ionisation.

DOUBLE IONISATION DES MOLECULES : NH_3

Comme mentionné plus haut, diverses études théoriques et expérimentales de la double ionisation des cibles atomiques ont été effectuées mais restent rares pour les cibles moléculaires, en raison de la structure complexe des molécules, de nombreuses difficultés existent à la fois au niveau de l'expérience et de la théorie. Parmi ces difficultés, le problème des molécules multicentriques rend les calculs très difficiles et parfois impossibles. Moccia [27] propose un outil capable de simplifier les calculs en gardant la précision du modèle théorique est celui dans lequel la fonction d'onde moléculaire multicentrique est réduite en une fonction d'onde monocentrique. Une autre difficulté apparait dans le traitement théorique, elle consiste en l'orientation aléatoire de la molécule, ce qui nécessite une intégration triple sur toutes les orientations de la molécule dans l'espace. Malgré ces difficultés, un intérêt croissant pour l'étude des cibles moléculaires est apparu pendant ces dernières années. Dans ce travail nous proposons d'étudier la double ionisation de l'ammoniac NH_3. Le choix de cette cible est dû à son implication dans de nombreux domaines tel que l'astrophysique [29] et l'environnement [30] ; de plus cette molécule est très peu étudiée théoriquement à cause de l'absence des données expérimentales sur la molécule.

III.4 Description physique de la molécule d'ammoniac NH_3

La molécule d'ammoniac NH_3 est une molécule de type XH_n (formées d'un atome lourd N et 3 atomes d'hydrogène). Elle possède une géométrie pyramidale trigonale, avec un centre de masse (CM) ne correspondant pas à la position de l'atome d'azote. L'angle formé par les liaisons covalentes $\widehat{HNH}$ est de 107°. La longueur de la liaison N-H est 1.912 *u.a.*

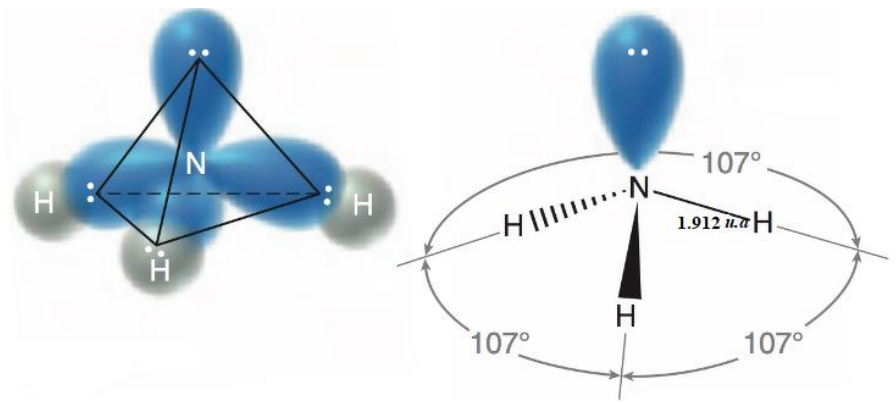


Figure III.3 : Structure et géométrie de la molécule NH_3.

Les orbitales atomiques (de N et H) se combinent linéairement pour former un ensemble d'orbitales moléculaires liantes et anti-liantes (la théorie des orbitales moléculaires) donne lieu à trois niveaux d'énergie de valence. Le niveau d'énergie le plus élevé est simplement dégénéré et a une symétrie $3a_1$ [25], le deuxième niveau d'énergie plus élevée est doublement dégénéré avec une symétrie $1e_1$ et le troisième niveau d'énergie $2a_1$ est simplement dégénéré possédant un caractère de type *s* contrairement aux orbitales externes qui possèdent un caractère de type *p* [26].

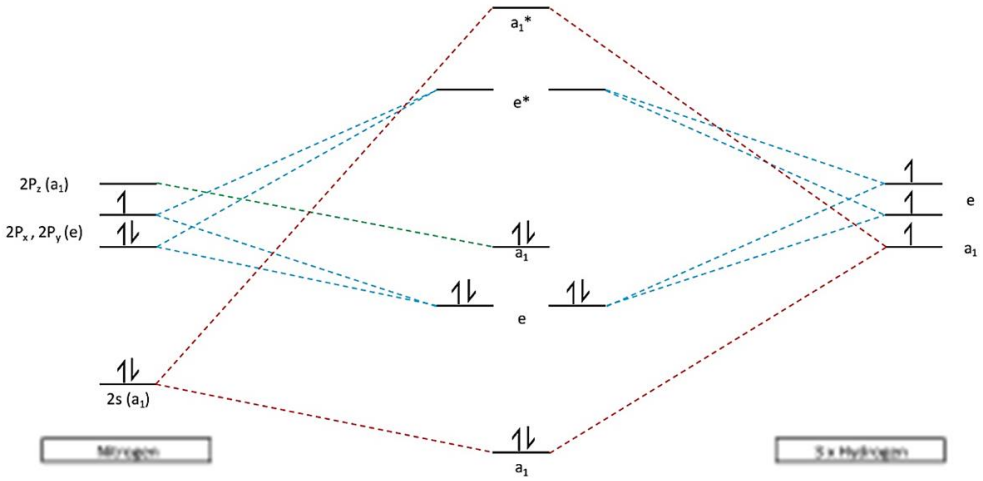


Figure III.4 : Diagramme énergétique d'orbitales moléculaires de valence de NH_3.

La configuration électronique de cette molécule est donnée par :

$$NH_3: (1a_1)^2(2a_1)^2(3a_1)^2(1e_x)^2(1e_y)^2$$

La fonction d'onde d'un orbital moléculaire est écrite comme une combinaison linéaire d'orbitales atomiques. Dans l'approche monocentrique de Moccia [27] ces orbitales moléculaire sont exprimées par des fonctions d'onde de type Slater centrées sur un centre commun (l'atome le plus lourd :X), elles sont écrites sous la forme :

$$\varphi_i\left(\vec{r}\right) = \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik}\, \Phi^{\xi_{ik}}_{n_{ik},l_{ik},m_{ik}}\left(\vec{r}\right) \quad \text{(III. 65)}$$

Avec : $\Phi^{\xi_{ik}}_{n_{ik},l_{ik},m_{ik}}\left(\vec{r}\right) = R^{\xi_{ik}}_{n_{ik}}(r) S_{l_{ik},m_{ik}}(\hat{r}) \quad et \quad R^{\xi_{ik}}_{n_{ik}}(r) = \frac{(2\xi_{ik})^{n_{ik}+\frac{1}{2}}}{\sqrt{2n_{ik}!}} r^{n_{ik}-1} e^{-\xi_{ik} r}$ (III. 66)

Où $S_{lm}(\Omega)$ sont les harmoniques sphériques réelles, et sont données par :

$$S_{l_{ik},m_{ik}}(\hat{r}) = \begin{cases} \left(\frac{2|m|}{m}\right)^{1/2} \left(Y_{l-|m|}(\hat{r}) + (-1)^m \frac{m}{|m|} Y_{l|m|}(\hat{r})\right) \text{ si } m \neq 0 \\ Y_{l0}(\Omega) \text{ si } m = 0 \end{cases} \quad \text{(III. 67)}$$

L'angle formé par les liaisons covalentes H-N-H, la longueur de la liaison N-H, les paramètres $(n_{ik}, l_{ik}, m_{ik}, e_{ik}, a_{ik})$ des fonctions d'ondes de Moccia [27] et les énergies de DI des orbitales moléculaires de la molécule NH_3 [28] sont donnés dans le tableau suivant :

Tableau III.5 : Les paramètres des fonctions d'onde de Moccia [27] et les énergies de DI des orbitales moléculaires de la molécule NH_3 [28] :

				$N-H = 1.928\ u.a$		$\widehat{HNH} = 108,54°$		
N	l	m	e_{ik}	a_{ik}				
				$1a_1$	$2a_1$	$3a_1$	$1e_x$	$1e_y$
1	0	0	11.000	0.06572	0.01157	0.00605		
1	0	0	6.400	0.93704	-0.23268	-0.06461		
2	0	0	1.750	-0.01261	0.75114	0.24313		
2	0	0	1.280	0.00524	0.12576	-0.14177		
2	0	0	2.560	0.01545	0.14793	0.07510		
3	2	0	1.600	0.00002	-0.07830	-0.01440		
3	2	0	2.350	-0.00006	0.00659	-0.00699		
2	1	0	1.340	-0.00164	-0.14357	0.95405		
2	1	0	1.990	0.00393	-0.01826	-0.29504		
2	1	0	2.900	-0.00355	-0.00938	0.40188		
4	3	0	2.000	0.00011	0.04992	-0.04098		
4	3	-3	2.000	-0.00020	-0.08013	0.02420		
3	2	1	1.600				-0.18794	
3	2	1	2.350				0.03710	
3	2	-2	1.6000				-0.22929	
3	2	-2	2.350				0.05282	
2	1	1	1.340				1.00304	
2	1	1	1.990				-0.28579	
2	1	1	2.900				0.31169	

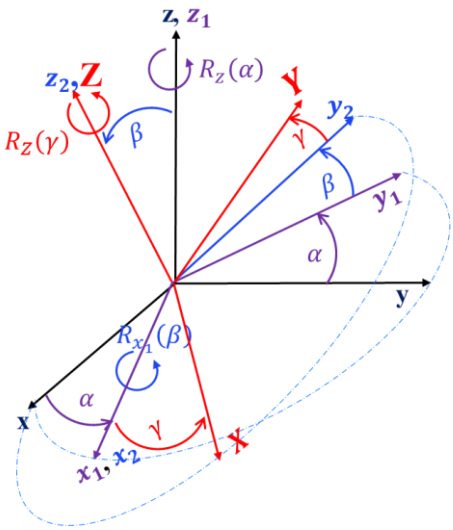
4	3	1	2.000				-0.04008	
4	3	-2	2.000				0.06080	
3	2	2	1.600					-0.22929
3	2	2	2.350					0.05282
3	2	-1	1.600					-0.18794
3	2	-1	2.350					0.03710
2	1	-1	1.340					1.00304
2	1	-1	1.990					-0.28579
2	1	-1	2.900					0.31170
4	3	2	2.000					0.06080
4	3	-1	2.000					-0.04008
Energies de double ionisation (ev)				42.3	41.1	37.5		38.5

III.5 Repère du laboratoire et repère de la molécule

Lors d'une expérience de collision, généralement les cibles (les molécules) sont dans un état gazeux. Pour tenir compte l'orientation aléatoire de ces molécules il faut effectuer une moyenne angulaire sur les angles d'Euler (α, β, γ), ceci nécessite une intégration triple sur ces angles qui définissent l'orientation de la molécule. En d'autres termes, les calculs de la ***FDCS*** se font dans le repère du laboratoire (*OXYZ*), tandis que l'état moléculaire est représenté par une fonction d'onde définie dans un repère (Oxyz) lié à la molécule ; il faut donc faire un passage du repère (Oxyz) vers le repère (OXYZ), via les matrices de rotation par rapport axes Oz,Oy,OZ:

$$R(\alpha,\beta,\gamma) = R_z(\alpha)R_{x_1}(\beta)R_Z(\gamma) \qquad \text{(III. 68)}$$

$$R_z(\alpha) = \begin{pmatrix} \cos\alpha & -\sin\alpha & 0 \\ \sin\alpha & \cos\alpha & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}; R_{x_1}(\beta) = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos\beta & -\sin\beta \\ 0 & \sin\beta & \cos\beta \end{pmatrix}; R_Z(\gamma) = \begin{pmatrix} \cos\gamma & -\sin\gamma & 0 \\ \sin\gamma & \cos\gamma & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$



$$R(\alpha,\beta,\gamma) = R_z(\alpha)\ R_{x_1}(\beta)\ R_Z(\gamma)$$

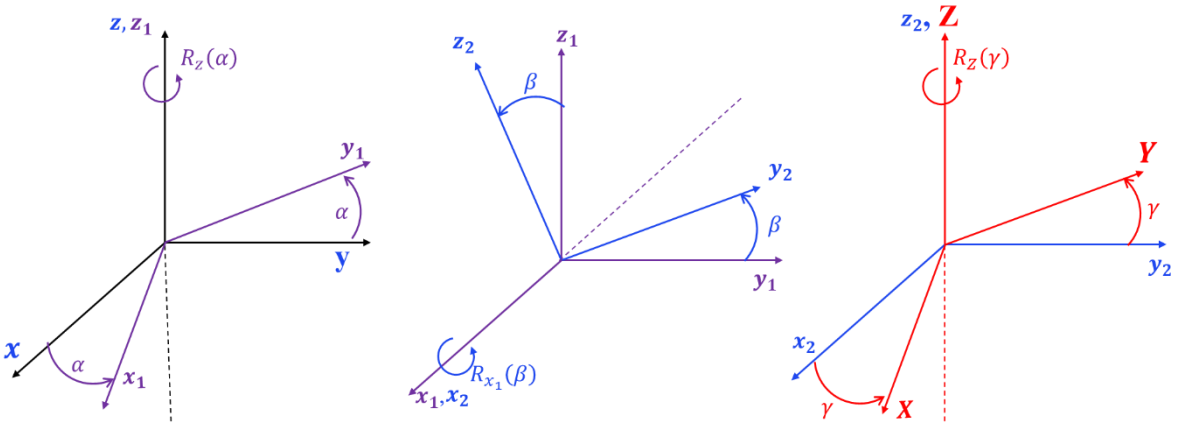


Figure III.5 : Illustration des rotations utilisés avec les angles d'Euler α, β, γ

III.6 La FDCS de la molécule NH_3

On considère la réaction (e, 3e) de la molécule d'ammoniac :

$$e^- + NH_3 \rightarrow 3e^- + NH_3{}^{++} \qquad \text{(III. 69)}$$

Pour une orientation moléculaire définie par les angles d'Euler (α,β,γ), la section efficace sextuple différentielle (6DCS) dans la première approximation de Born est :

$$\sigma^6 = \frac{d^6\sigma}{d\Omega_{Euler}d\Omega_1 d\Omega_2 d\Omega_d dE_1 dE_2} = \frac{k_1 k_2 k_d}{k_i}|f_{B1}\ (\alpha,\beta,\gamma)|^2 \qquad \text{(III. 70)}$$

Où $d\Omega_{Euler} = \sin\beta\ d\beta\ d\alpha\ d\gamma$. Avec l'élément de matrice $f_{B1}\ (\alpha,\beta,\gamma)$ s'écrit :

$$f_{B1}\ (\alpha,\beta,\gamma) = -\frac{1}{2\pi}\langle\Psi_f|V|\Psi_i\rangle \qquad \text{(III. 71)}$$

Où Ψ_i est la fonction d'onde de l'état initial du système et Ψ_f celle de l'état final. V : représente l'interaction entre l'électron incident et la cible donné par :

$$V = -\frac{7}{r_0} - \frac{1}{|\vec{r}_0 - \vec{R}_1|} - \frac{1}{|\vec{r}_0 - \vec{R}_2|} - \frac{1}{|\vec{r}_0 - \vec{R}_3|} + \sum_{i=1}^{10} \frac{1}{|\vec{r}_{0i}|} \quad \text{(III. 72)}$$

Avec : $R_1 = R_2 = R_3 = R_{NH} = 1{,}928\, u.a$, tandis que $\vec{r}_i$ est le vecteur de position du $i^{ème}$ électron lié de la cible par rapport au centre du noyau d'Azote et r_0 désigne la coordonnée de la particule incidente avec $\vec{r}_{0i} = \vec{r}_0 - \vec{r}_i$.

L'utilisation de l'approximation de cœur gelé [7] et la relation de Bethe [19] donne :

$$f_{B1}\,(\alpha, \beta, \gamma\,) = \frac{-2}{k^2} \left\langle \Phi_f\left(\vec{k}_1, \vec{r}_1; \vec{k}_2, \vec{r}_2\right) \left| 2 - e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}_1} - e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}_2} \right| \Phi_i\left(\vec{r}_1, \vec{r}_2\right) \right\rangle \quad \text{(III. 73)}$$

Où $\Phi_i\left(\vec{r}_1, \vec{r}_2\right)$ est la fonction d'onde initiale décrivant les deux électrons actifs est donnée par la fonction d'onde monocentrique de Moccia [27] correspondant dans ce travail à les orbitales $1e_x$ et $3a_1$.

$\Phi_f\left(\vec{k}_1, \vec{r}_1; \vec{k}_2, \vec{r}_2\right)$: représente la fonction d'onde des deux électrons éjectés. Nous avons utilisé pour cette fonction le modèle 2CWG décrit dans le cas des atomes.

La FDCS présenté dans ce travail est obtenu par une intégration analytique de cette 6DCS qui correspond à la DI de la molécule d'ammoniac fixe dont l'orientation est définie au moyen des angles d'Euler (α, β, γ).

La description proposée par Moccia [27] correspond à une orientation moléculaire donnée dans l'espace. Nous devons donc faire la moyenne du 6DCS sur l'angle solide d'Euler afin d'obtenue la FDCS des molécules :

$$\sigma^5 = \frac{d^5\sigma}{d\Omega_1 d\Omega_2 d\Omega_d dE_1 dE_2} = \frac{1}{8\pi^2} \iiint \sin\beta\, d\beta\, d\alpha\, d\gamma\, \sigma^6(\alpha, \beta, \gamma) \quad \text{(III. 74)}$$

Et la section efficace quadruplement différentielle 4DCS est donné :

$$\sigma^4 = \int d\Omega_2\, \sigma^5 = \frac{d^4\sigma}{d\Omega_d dE_d d\Omega_1 dE_1} \quad \text{(III. 75)}$$

III.7 Conclusion

Dans la première partie, nous avons présenté l'étude théorique de la double ionisation de la réaction ***(e,3e)*** et ***(e,3e-1)*** dans le cas des atomes (***Ne*** et ***Ar***) par impact d'électrons. Nous

avons calculé la ***FDCS*** et ***4DCS*** en utilisant plusieurs modèles théoriques dans le cadre de la première approximation de Born (à cause de la grande énergie du projectile). Dans le but d'étudier les effets des corrélations dans l'état initial, nous avons utilisé deux fonctions d'onde : une fonction d'onde de Hartree-Fock de Clementi et Roetti et une fonction d'onde calculée par superposition de configurations. Et pour tenir compte des corrélations dans l'état final, l'interaction entre les deux électrons éjectés est prise en compte complètement par le modèle BBK approximé, le facteur de Gamow et le facteur de Ward et Macek. Différents modèles ont été proposé pour corriger les modèles existants,

Dans la deuxième partie, nous avons présenté l'étude théorique de la DI de la réaction ***(e,3e)*** et ***(e,3e-1)*** dans le cas des molécules (***NH_3***) par impact d'électrons. Nous avons commencé par une petite description physique de la molécule, ces niveaux énergétiques et sa configuration électronique. Enfin, nous avons présenté la fonction d'onde de ces orbitales moléculaires et les calculs de la FDCS et 4DCS pour cette molécule.

Références bibliographiques

[1] A. Lahmam-Bennani, C. Dupré and A. Duguet Phys. Rev. Lett. ***63*** *1582 (1989)*

[2] C. Dal Cappello, V. Yu Popov, G. Stefani, N. M. Kuzmina and H. Hda, J. Phys. B: At. Mol. opt.Phys. 27, 1549-60, (1994).

[3] F. W. Jr. Byron and C. Joachain J, Phys. Rev. 164, I-9, (1967)

[4] B. Joulakian, C. Dal Cappello and M. Brauner, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 25,2863-71, (1992)

[5] B. Joulakian, C. Dal Cappello, Phys. Rev. A 47,3788-95 (1993).

[6] R. A. Bonham and D. A. Kohl, J. Chem. Phys 45,2471-3(1966).

[7] H. Hda, C. Dal Cappello and J. Langlois Z. Phys. D ***29*** *25 (1994)*

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

[9] I. Kada, A. Mansouri, C. Dal Cappello, P.A. Hervieux and A.C. Roy J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. ***42*** *025201 (2009)*

*[10] R. El Mir, E.M. Staicu Casagrande, C. Dal Cappello, A. Naja, A. Mansouri and I. Kada J. Phys. Conf. Ser.****601*** *012005 (2015).*

[11] J.M. Cooper and R.W. van Boeyen J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. ***37*** *L77 (2004)*

[12] N. Watanabe, J. W. Cooper, R.W van Boeyen, J.P. Doering, J. H. Moore and M. A. Coplan J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. ***37*** *4551 (2004)*

[13] M. Grin, C. Dal Cappello, R. El Mkhanter and J. Rasch J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. ***33*** *131 (2000)*

[14] M.A. Kornberg and J. Miraglia Phys. Rev. A 48, 3714 (1989).

[15] E. Clementi and C. Roetti At. Data Nucl. Data Tables 14 177-478 (1974)

[16] C. Dal Cappello, J. Langlois, M. C. Dal Cappello, B. Joulakian, A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, R. Tweed Z. Phys. D 23 389 (1992).

[17] I. Kada, C. Dal Cappello and A. Mansouri Eur. Phys. J. D 71 41 (2017).

[18] S. J. Ward and J. H. Macek Phys. Rev. A 49, 1049 (1994)

[19] H. A. Bethe Ann. Phys. Lpz. 5 325 (1930)

[20] I. Kada Thèse de doctorat, Université de setif-1 (2009)

[21] M. F. Khelladi Thèse de doctorat, Université de setif-1 (2016)

[22] M. Chinoune Thèse de doctorat, Université Houari Boumediene Alger (2017).

[23] I. E. McCarthy and X. Zhang J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 22 2189 (1989)

[24] R. El Mir, E. M. Staicu Casagrande, A. Naja, C. Dal Cappello, S. Houamer and F. El Omar J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 48 175202 (2015).

[25] P. Atkins et J. de Paula Atkins Physical Chemistry, 9éme édition (2010)

[26] A.O. Bawagan, R. Muller-Fiedler, C.R. Brion, E.R. Davidson et C. Boyle J. Chem. Phys. 120 335 (1988)

[27] R. Moccia J. Chem. Phys. 40 2176 (1964)

[28] L. Streit, R. Custodio Chemical Physics Letters. 482 148-152 (2009)

[29] D.L. Huestis, S.W. Bougher, J.L. Fox, M. Galand, R.E. Johnson, J.I. Moses, J.C. Pickering, Space Sci. Rev. 139, 63 (2008).

[30] A. O. Nier, Int. J. Mass Spectrom. Ion Phys. 66, 55 (1985)

IV : CHAPITRE IV : RESULTATS ET DISCUSSION

DOUBLE IONISATION DES ATOMES (Ar/Ne)

IV.1 Effet des corrélations dans l'état final

Nous traitons les réactions (e,3e) pour les atomes de l'argon et du néon par trois modèles : le BBK (ou 3C) avec ses deux versions approximatives, à savoir, le $\boldsymbol{F_{WM}}$ et $\boldsymbol{F_G}$.

IV.1.1 L'interaction post-collisionnel (Le modèle BBK)

Le calcul des FDCS à travers le modèle BBK a été utilisé dans plusieurs travaux pour d'autres cibles nous citons en particulier les travaux suivants :

- Joulakian et al., [1] ont utilisé la méthode pour étudier la DI de l'hélium, puis améliorée par Kada et al., pour la DI de l'eau [2]. Cette méthode permet de réduire une intégrale à six dimensions à une intégrale à trois dimensions en utilisant la fonction hypergéométrique ${}_2F_1$ mais nécessite beaucoup de dérivées, et nous ne l'avons appliquée qu'avec la fonction d'onde initiale de Hartree-Fock de Clementi et Roetti [3].
- La méthode utilisant le double transformé de Fourier [4], qui permet de réduire une intégrale à six dimensions à une intégrale à trois dimensions tout en évitant l'utilisation de la fonction hypergéométrique ${}_2F_1$, permet d'utiliser des fonctions d'onde initiales plus complexes et pourrait donc être appliquée à la fonction d'onde initiale de Clementi et Roetti [3] et à la fonction d'onde d'interaction de configuration [5]. Cette seconde méthode nécessite l'introduction d'un paramètre β (via le terme $e^{-\beta r_{12}}$) qui doit tendre vers 0. Nous avons choisi $\beta = 0{,}005$. Mais cette intégrale tridimensionnelle nécessite de nombreux points d'intégration. Pour le cas de la DI de l'argon, nous avons dû utiliser 25804800 points d'intégration pour que les résultats de cette méthode coïncident avec ceux obtenus avec la première méthode (pour la même valeur du paramètre β).

La figure IV.1a montre un accord parfait entre les résultats donnés par les deux méthodes.

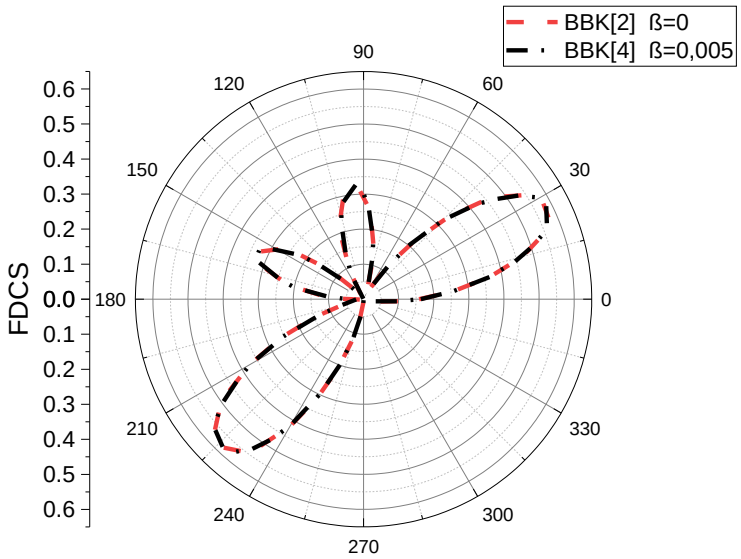


Figure IV.1a : la FDCS= $\mathbf{f(\theta_2)}$ pour (e,3e) de l'argon. $\mathbf{E_d = 5500\ eV}$, $\mathbf{E_1 = E_2 = 10\ eV}$. $\boldsymbol{\theta_1 = \theta_k}$, $\boldsymbol{\theta_d = 0.45°}$. Les résultats du modèle BBK pour l'état des ions ^{3}P sont représentés à l'aide d'une fonction d'onde (Hartree-Fock) pour décrire l'état initial cibl**e**.

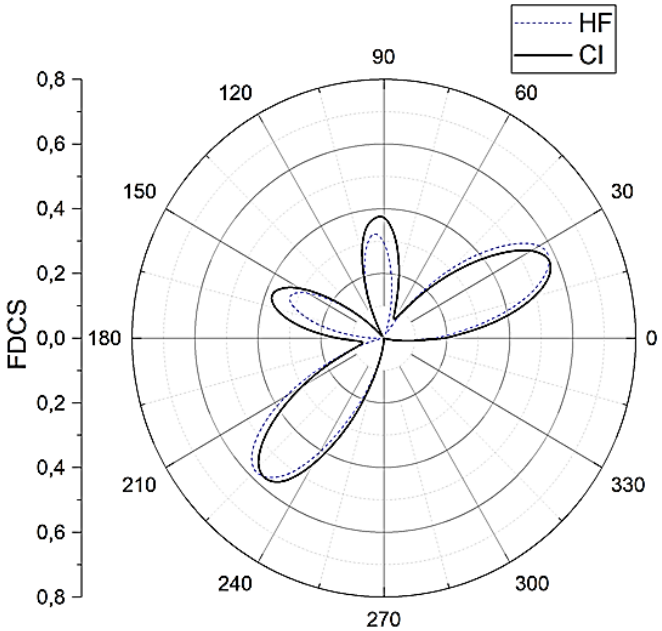


Figure IV.1b : Identique à la figure 1a mais les résultats du modèle BBK (avec β =0,005) pour l'état ionique ^{3}P sont représentés en utilisant deux fonctions d'onde (Hartree-Fock et CI) pour décrire l'état initial cible.

La figure IV.1b indique que la corrélation à l'état initial ne joue pratiquement aucun rôle lorsque le modèle BBK est appliqué. Ce résultat avait déjà été trouvé lors de l'étude de la DI du néon [6].

Nous avons appliqué le modèle BBK dans cette situation mais il donne un fort désaccord avec les résultats expérimentaux. En particulier, l'amplitude du FDCS est 1000 fois plus grande. Ce résultat est surprenant car le modèle BBK a donné un accord

raisonnable pour la DI de l'hélium pour des conditions expérimentales identiques à celles étudiées pour la DI de l'argon. D'autre part, Kada et al [6] ont obtenu un accord raisonnable avec les données expérimentales relatives [7] pour la DI du néon avec les mêmes conditions cinématiques. Nous avons également vérifié que les résultats donnés par le modèle BBK pour la DI de l'argon donnent une amplitude proche de celle donnée par le même modèle pour la DI du néon [6]. Nous pensons que ce modèle doit être utilisé avec d'autres corrections pour traiter la réaction (e,3e) de l'argon.

IV.1.2 Comparaison entre les deux facteurs $\boldsymbol{F_{WM}}$ et $\boldsymbol{F_G}$:

Nous nous proposons de résoudre le problème lié à l'amplitude et au temps de calcul à travers les deux facteurs approximatifs du modèle 3C '$\boldsymbol{F_{WM}}$ / $\boldsymbol{F_G}$' (on sait que cette approximation conduit à une sous-estimation de l'amplitude et une diminution considérable du temps de calcul). Ces modèles approximent le troisième terme de l'état final $C(\alpha_{12,}\vec{k}_{12},\vec{r}_{12})$ par deux facteurs :

$$C(\alpha_{12,}\vec{k}_{12},\vec{r}_{12}) = \begin{cases} e^{-\pi\alpha_{12}/2}\Gamma(1-i\alpha_{12}) & Gamow \\ ou & \\ e^{-\pi\alpha_{12}/2}\Gamma(1-i\alpha_{12})\ {}_1F_1(-i\alpha_{12},1,-2ik_{12}\bar{x}_{12}) & Ward\ et\ Macek \end{cases} \quad (IV.1)$$

Une comparaison entre ces deux facteurs $\boldsymbol{F_{WM}}$ et $\boldsymbol{F_G}$ a été faite pour les deux cibles (Ar et Ne) pour différentes conditions cinématiques utilisées dans cette étude.

Sur la figure IV.2, nous représentons simultanément les FDCSs calculées par nos modèles 2CW, 2CWSR, 2DW et 2DWSR, en utilisant les deux facteurs $\boldsymbol{F_{WM}}$ et $\boldsymbol{F_G}$. Le premier test de comparaison a été effectué avec les résultats de Jia et al [8] pour une énergie intermédiaire de l'électron incident $E_i = 561.5$ eV et une faible énergie d'éjection $E_1 = E_2 =$ 9 eV dans une géométrie coplanaire. L'un des deux électrons est détecté à $\theta_2 = 120^\circ$ tandis que l'autre électron e_1 est détecté à des angles variables.

On constate que les deux approximations donnent presque des résultats identiques avec un facteur de 6 pour le WM(r_{12}) ($\boldsymbol{WM(r_{12}) = 6 \times G(r_{12})}$) dans les quatre modèles.

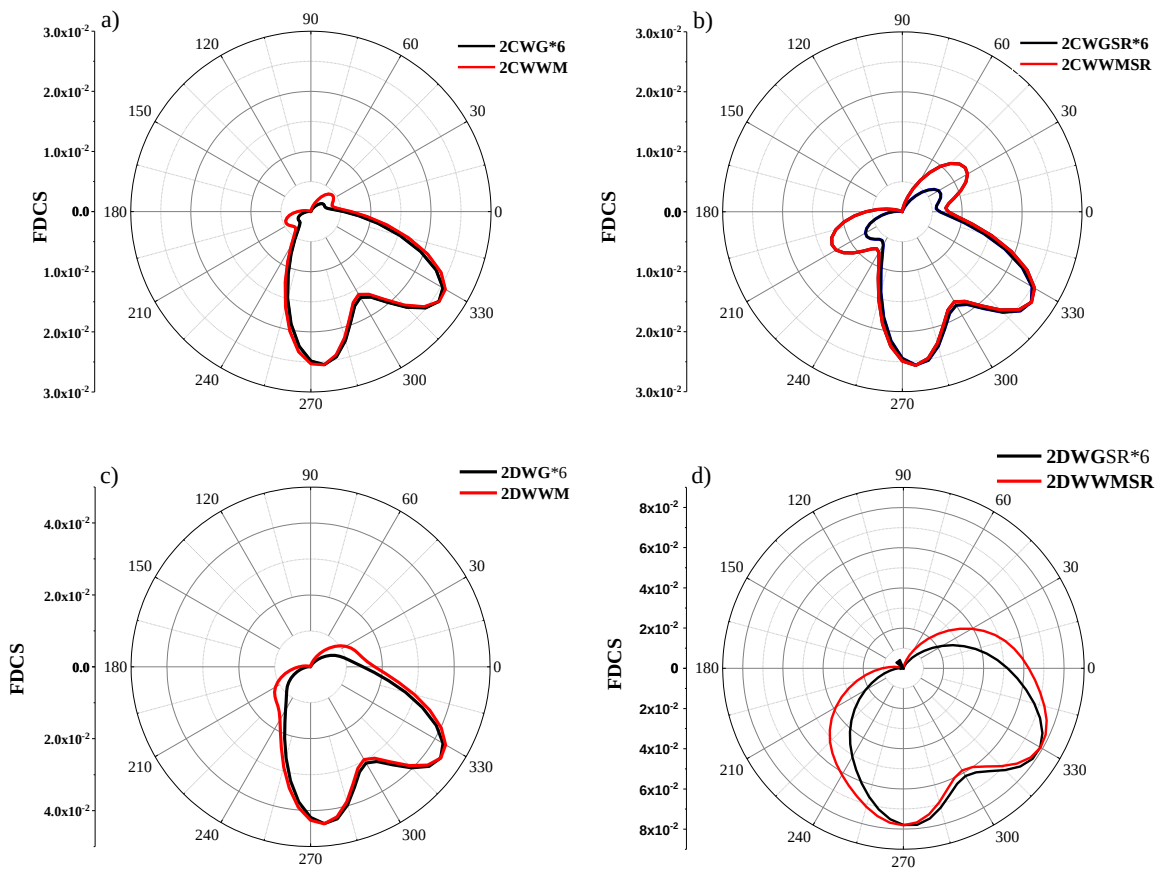


Figure IV.2 : la FDCS= $\mathbf{f(\theta_1)}$ pour (e,3e) de l'argon. $\mathbf{E_i = 561.5\ eV}$, $\mathbf{E_1 = E_2 = 9\ eV}$. $\mathbf{\theta_2 = 120^{\circ}, \theta_d = 6.5°}$. En rouge les résultats obenus avec le facteur Ward et Macek, en noir avec le facteur de Gamow.

Pour les figures IV.3 et IV.4, nous faisons un deuxième test de comparaison à haute énergie du projectile (de l'ordre de 5.5 keV) et une faible énergie d'éjection $E_1 = E_2 = 10$ eV dans une géometrie coplanaire pour l'Argon (l'expérience de El Marji et al [9]) et le Neon (l'expérience de Schröter et al [7]). Dans les deux figures l'un des deux électrons est detecté selon le moment de transfert $\vec{k}$.

Les figures IV.3 et IV.4 montrent des résultats identiques des deux approximation comme celle du cas précident avec un leger décalage du 2DWSR dans le cas de l'Argon. Notons que le facteur multiplicatif pour cette situation (à haute énergie pour les deux cibles) est différent du cas précident (à une énergie intermidiaire): dans cette situation est de **2.5**.

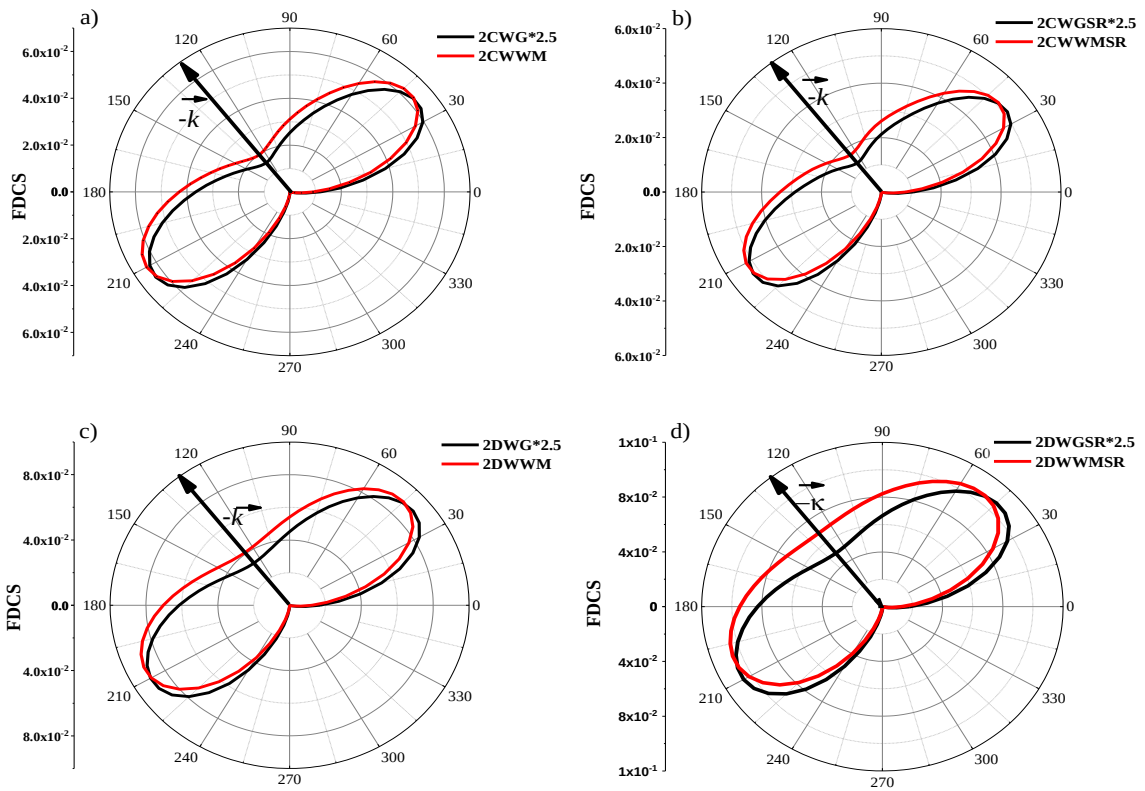


Figure IV.3 : Identique à la figure IV.2 avec des énergies : $\mathbf{E_d = 5500eV, \theta_d = 0.45°, \theta_d = 0.45°, \theta_2 = \theta_K \text{ et } E_1 = E_2 = 10\ eV}$

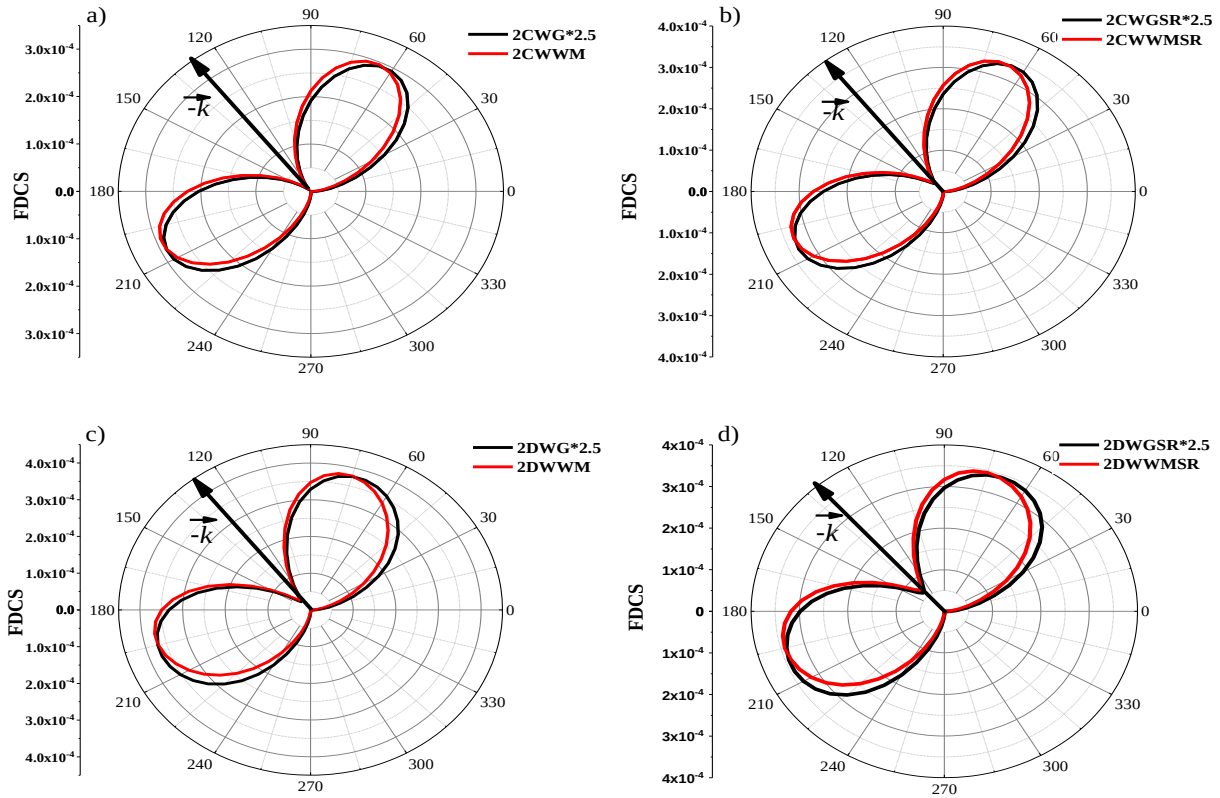


Figure IV.4 : Identique aux figures IV-2, 3 mais pour le Ne, les énergies sont $\boldsymbol{E_i} = \mathbf{5582.3eV,\ \theta_d = 0.45°, \theta_2 = \theta_K \text{et } E_1 = E_2 = 10\ eV}$

On peut tirer comme conclusion, d'après cette comparaison que les résultats obtenus par les deux facteurs sont presque identiques en terme de l'allure de la FDCS et par conséquence l'utilisation de l'un des deux facteurs ne fait pas une grande différence pour tous les modèles.

IV.2 Effet des corrélations dans l'état initial

Les effets des corrélations dans l'état initial apparaissent dans l'expressions de la fonction d'onde de la cible et éventuellement dans les distorsions liées à l'approche du projectile de la cible. Nous utilisons pour décrire les électrons de la cible deux fonctions d'ondes : la fonction d'onde de Hartree-Fock de Clementi et Roetti [3] et une fonction d'onde corrélée construite à partir de l'interaction des configurations [5].

Nous calculons la FDCS dans le cas de la DI de l'argon à haute énergie incidente (5563,2 eV) et à faible angle de diffusion (0,45°), tandis que les électrons éjectés sont détectés pour d'égales énergies (10 eV). Nous traçons, en un premier lieu, les contributions dues à chaque état de l'ion (^{3}P, ^{1}D et ^{1}S) dans une situation particulière : un des deux électrons est éjecté suivant la direction du moment de transfert $\vec{\boldsymbol{K}}$.

Dans la figure IV.5, nous traçons les résultats de la FDCS calculées par les quatre modèles. Les courbes sont symétriques par rapport à la direction du moment de transfert $\vec{\boldsymbol{K}}$. Ce résultat confirme bien la validité de l'application de la première approximation de Born utilisée ici tout au long du présent travail. On remarque une différence notable entre les résultats donnés avec la fonction d'onde non corrélée et ceux donnés par la fonction d'onde corrélée. Ainsi, pour l'état ionique (^{1}D), on a un maximum suivant le moment de transfert lorsqu'on utilise la fonction d'onde corrélée alors que ce n'est pas toujours le cas pour la fonction d'onde non corrélée. En revanche, les différences sont plus faibles dans le cas de l'état ionique (^{3}P).

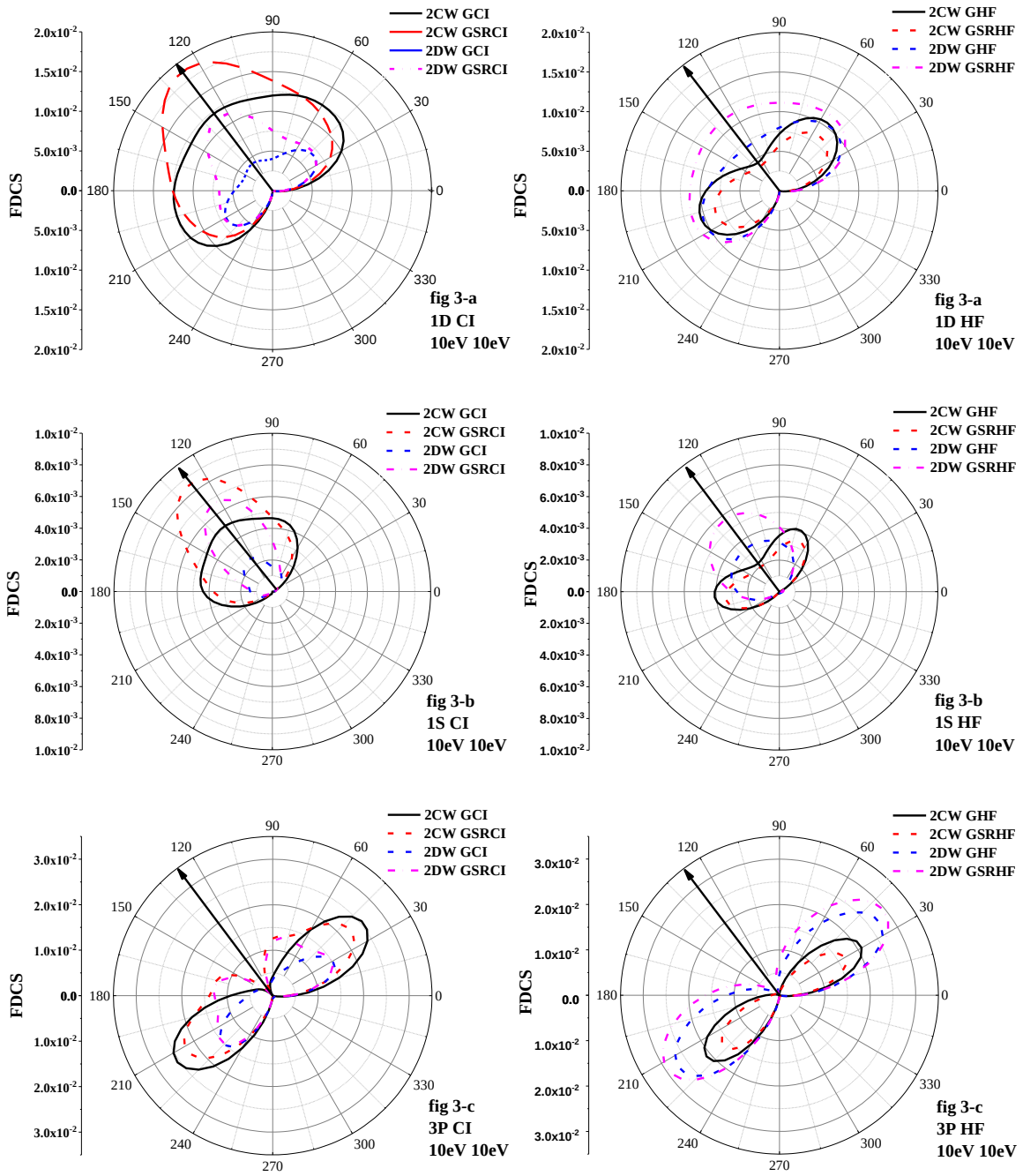


Figure IV.5: la FDCS= $\mathbf{f(\theta_2)}$ pour (e,3e) de l'argon. $\mathbf{E_d = 5500}\boldsymbol{eV}$, $\mathbf{E_1 = E_2 = 10\ eV}$. $\boldsymbol{\theta_2 = \theta_K}$, $\mathbf{\theta_d = 0.45°}$. Les résultats des états ioniques $^1\boldsymbol{S}$, $^1\boldsymbol{D}$ and $^3\boldsymbol{P}$ sont représentés à l'aide de deux fonctions d'onde (Hartree-Fock et Interaction de Configuration) pour décrire l'état initial cible.

IV.3 Etude de la FDCS en géométrie asymétrique

Comme première comparaison des résultats de nos modèles nous reproduisons la première expérience (e,3e) réalisée par Lahmam-Bennani et al [10] pour le cas où : $E_d = 5480eV, E_1 = 10\ eV, E_2 = 20\ eV, \theta_d = -0.45°$ et $\theta_2 = 255°$.

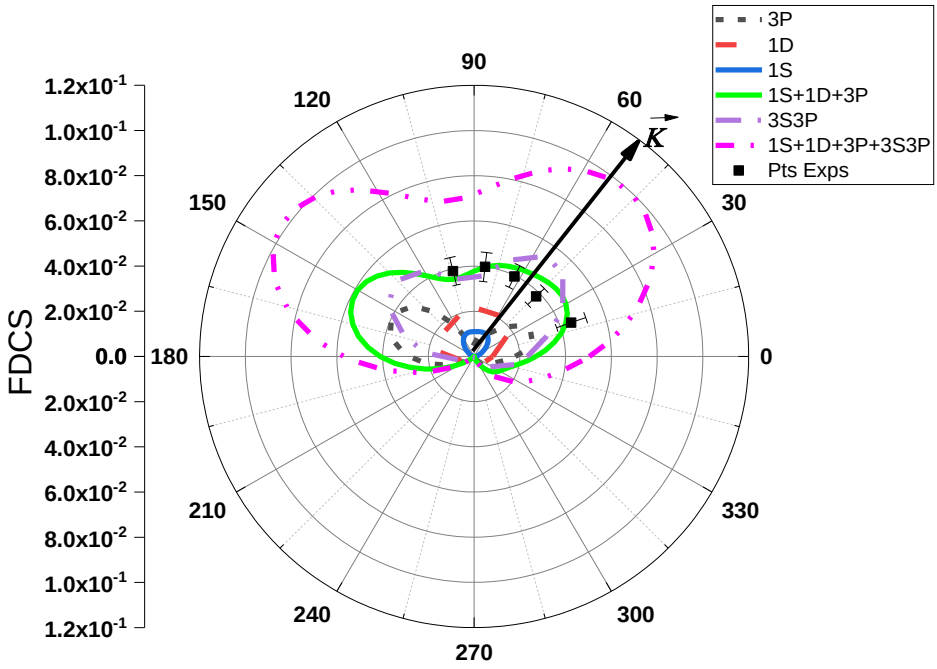


Figure IV.6: la FDCS= $\mathbf{f(\theta_1)}$ pour (e,3e) de l'argon. $\mathbf{E_d = 5480}\boldsymbol{eV}$, $\mathbf{E_1 = 10}\boldsymbol{eV}$, $\mathbf{E_2 = 20\ eV}$. $\boldsymbol{\theta_2} = \mathbf{255^\circ}$, $\boldsymbol{\theta_d} = \mathbf{-0.45°}$. Les résultats du quatrième modèle 2DWGSR pour les états ioniques $^1\boldsymbol{S}$, $^1\boldsymbol{D}$, $^3\boldsymbol{P}$ et ($^1\boldsymbol{S} + {}^1\boldsymbol{D}$+$^3\boldsymbol{P}$) sont représentées. L'expérience de Lahmam-Bennani et al. [10] est représenté par des carrés.

Nous remarquons, pour cette figure (Figure IV.6) représentée dans la référence [10] une erreur dans l'emplacement du vecteur représentant le moment de transfert. Les données expérimentales sont relativement bien reproduites par notre modèle (2DWGSR) à l'aide d'un facteur multiplicateur global. On peut remarquer que c'est bien la somme des contributions (^{3}P + ^{1}D + ^{1}S) de l'ion qui est en bon accord avec l'expérience, et pas seulement la contribution de l'état ^{3}P ou celle de l'état ^{1}D. En revanche, la contribution (^{1}S) de l'ion est faible et pourrait être négligée comme l'ont fait Cooper et van Boeyen [11]. On remarque que la contribution de l'ion ($3s^1 3p^5$,^3P) n'améliore pas l'accord avec l'expérience. C'est un résultat attendu car même si les expériences (e, 3e) réalisées sur l'argon ne permettent pas de différencier chaque état de l'ion, le bilan énergétique a été fait pour l'état fondamental de l'ion ($3p^4$,^3P). Rappelons que l'énergie de DI [9] correspondant à l'ion ($3p^4$,^3P) est de 43,2 eV, celle correspondant à l'ion ($3p^4$,^1D) est de 45,1 eV, celle correspondant à l'ion ($3p^4$,^1S) est de 47,4 eV et enfin, celle correspondant à l'ion ($3s^1 3p^5$,^{3}P) est de 57,7 eV. L'échelle absolue [12] des données a été approchée à un facteur 2 près et on ne sait pas dans quelles proportions les trois états de l'ion contribuent au FDCS. D'autre part, nous savons que les modèles 2CWG ne donnent pas la bonne amplitude [13] et

notre objectif dans ce travail sera de trouver un modèle capable de reproduire les bonnes tendances dans le FDCS.

IV.4 Etude de la FDCS en géométrie symétrique

IV.4.1 La FDCS en géométrie symétrique à haute énergie

IV.4.1.1 La FDCS en géométrie symétrique à haute énergie de l'Argon

Dans un second temps nous choisissons, pour comparer nos calculs, quelques situations expérimentales dans l'étude d'El Marji et al., [9]. Jusqu'à présent, **aucune étude théorique n'a été publiée sur ces expériences**. L'échelle absolue pour le FDCS a également été approchée (avec un facteur estimé de 2) et la précision sur la détermination de l'énergie de l'électron diffusé était de 20 eV, et 5 eV sur les énergies des deux électrons éjectés, et enfin la précision pour déterminer l'angle de chaque électron éjecté $\pm 7°$. Comme précédemment, l'expérience n'est pas en mesure de déterminer l'état de l'ion après la DI, ni les contributions respectives de chaque état de l'ion. Cependant, la contribution de l'état ionique $Ar^{+2}(3s^1 3p^5)^3P$, qui est certainement très faible, ne sera pas prise en compte.

On trace les courbes correspondant à : $\theta_2 = 85°,127°,141°,223°,244°,265°$ et $321°$ sur la figure IV.7.

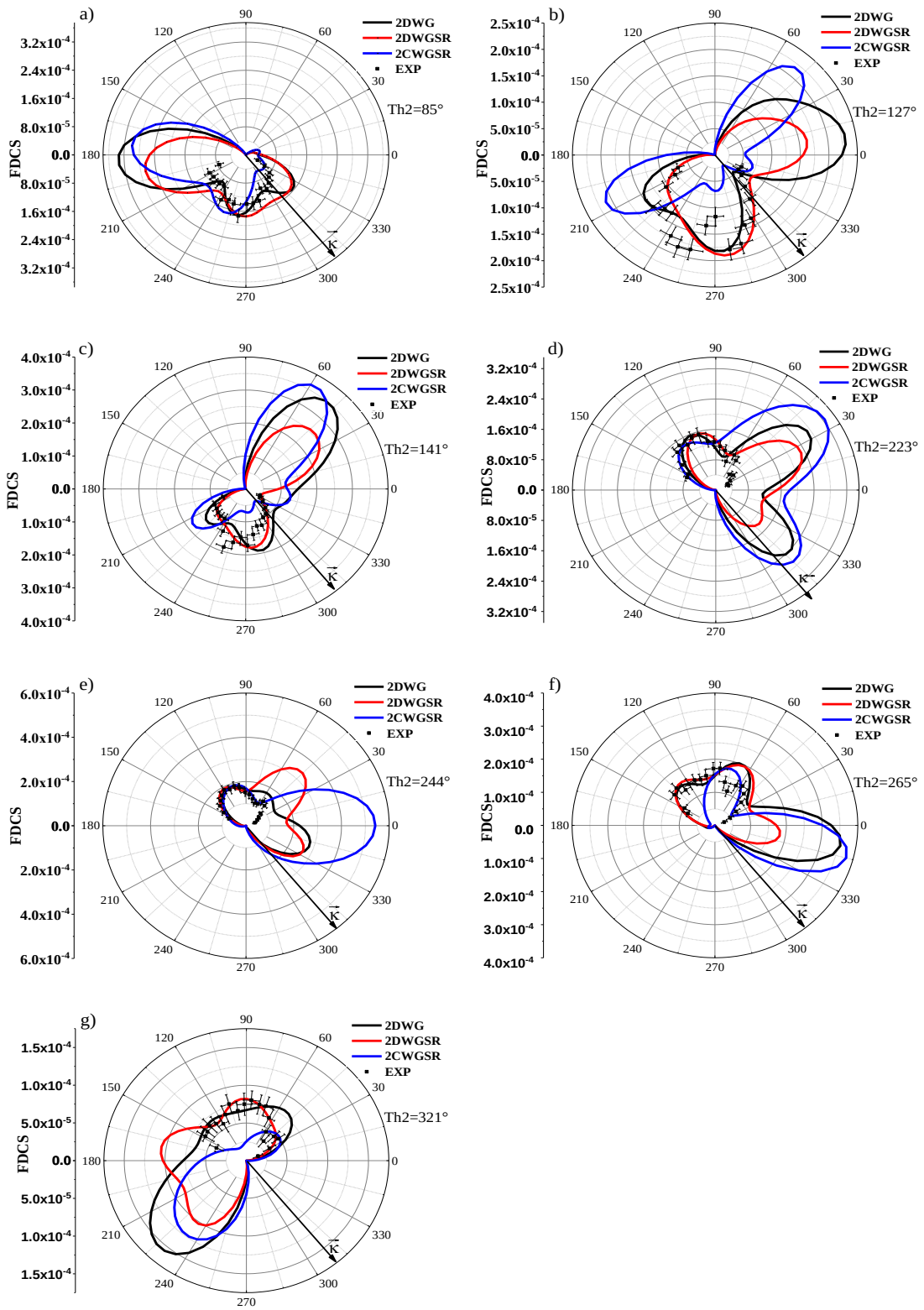


Figure IV.7: la FDCS= $\mathbf{f(\theta_1)}$ pour (e,3e) de l'argon. $\mathbf{E_d = 5500}\boldsymbol{eV}$, $\mathbf{E_1 = E_2 = 10}\boldsymbol{eV}$. $\boldsymbol{\theta_d} = \mathbf{0.45°}$. Les résultats des états ioniques $^1\boldsymbol{S} + {}^1\boldsymbol{D}+{}^3\boldsymbol{P}$ sont représentées. L'expérience d'El Marji et al [9] est représentée par des carrés, des facteurs multiplicatifs sont utilisés pour comparer les résultats de nos modèles à l'expérience : 0,0110 pour le modèle 2DWG, 0,0026 pour le modèle 2CWGSR et 0,0376 pour le modèle 2DWGSR.

Puisque nous sommes dans le cadre de la première approximation de Born, seuls deux mécanismes y sont impliqués : le mécanisme de la cible secouée appelé Shake off (SO) et le mécanisme en deux étapes 1 (TS1). Dans le mécanisme SO, un premier électron est éjecté dans la direction correspondant au maximum de la section efficace différentielle (ce maximum ne correspond pas toujours à la direction du moment de transfert $\pm\vec{\boldsymbol{K}}$ [14]). Puis, un deuxième électron est éjecté suite à un processus de relaxation dû au changement de potentiel après la première ionisation. Les deux électrons sont alors éjectés principalement par le phénomène dos à dos, surtout s'ils ont la même énergie. Cela est dû à la répulsion électronique entre ces deux électrons. Dans le mécanisme TS1, un premier électron est éjecté généralement dans la direction du moment de transfert (comme pour le mécanisme SO). Cet électron interagit alors avec un autre électron dans la cible et l'éjecte. Les deux électrons éjectés doivent alors faire, entre eux, un angle de 90°, cet angle pouvant augmenter si les énergies des électrons éjectés sont proches et faibles.

Nous tenterons d'abord d'expliquer l'origine de tous les maximas présents dans la figure IV.7.

Le mécanisme SO peut expliquer différents maximas : les maximas situés à 262° sur la figure 7a, à 289° sur la figure 7b, à 35° sur la figure 7d, à 52° sur la figure 7e et à 72° sur la figure 7f car l'angle entre les deux électrons éjectés θ_{12} est proche de 180°.

Les autres maximas s'expliquent par le mécanisme TS1 : les maximas situés à 180° et à 320° sur la figure 7a, à 15° et à 251° sur la figure 7b, à 50° et à 251° sur la figure 7c, à 106° et à 318° sur la figure 7d, à 0° et à 120° et enfin à 335° sur la figure 7e, à 135° et à 355° sur la figure 7f, à 50° et à 230° sur la figure 7g car l'angle entre le deux électrons éjectés θ_{12} est proche de 90-120°.

En examinant la figure IV.7 on peut dire que le modèle 2DWGSR décrit une grande partie des résultats expérimentaux, mieux que le modèle 2DWG et surtout mieux que le modèle 2CWGSR.

IV.4.1.2 La FDCS en géométrie symétrique à haute énergie du Néon

Nous considérons à présent la double ionisation de l'atome du Néon, et nous choisissons pour cette étude les conditions expérimentales de Schröter et al. [7]. Ces conditions sont similaires aux conditions précédentes, mais l'échelle de la FDCS est relative. Les FDCS sont représentées dans la figure IV.8, les résultats étant normalisés à l'expérience. Avant de

procéder à l'interprétation des résultats trouvés par nos modèles, il convient de mentionner quelques points :

- Comme celle de l'argon, la contribution de l'état ionique $Ne^{+2}(2s^1 2p^5)$ ne sera pas prise en compte à cause de la grande énergie d'ionisation de cet état (contrairement aux résultats trouver par [6])
- Contrairement aux cas de l'argon, le modèle 2CWSR reproduit bien les points expérimentaux, c'est l'un des points que Schröter et al., soulevé dans les perspectives.

Nous traçons les courbes correspondant à : $\theta_2 = 30°,94°,110°,126°,134°,150°,226°$ et 330° sur la figure IV.8.

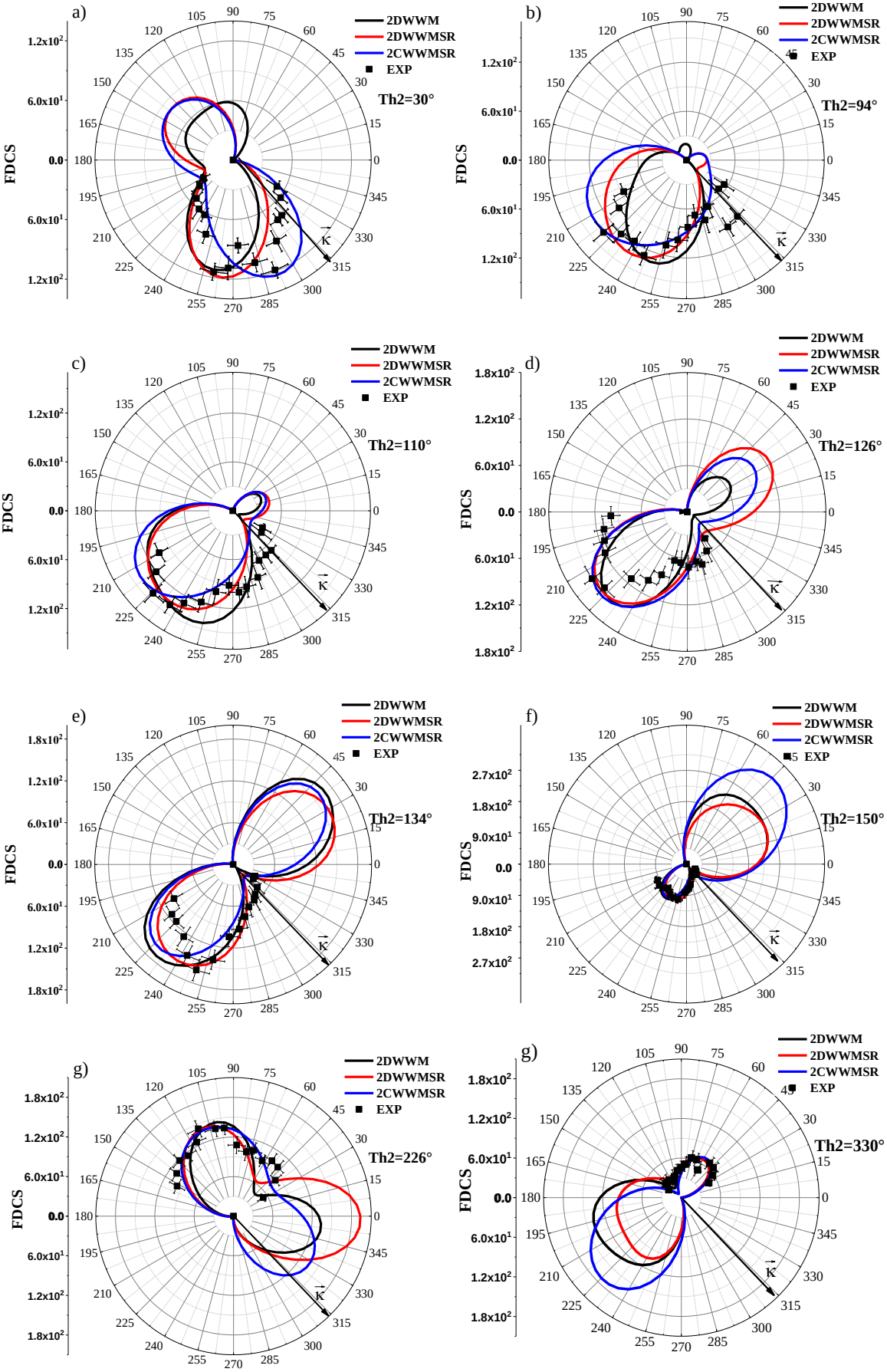

a)
b)
c)
d)
e)
f)
g)
g)
2DWWM
2DWWMSR
2CWWMSR
EXP
Th2=30°
Th2=94°
Th2=110°
Th2=126°
Th2=134°
Th2=150°
Th2=226°
Th2=330°
FDCS
κ

Figure IV.8 : la FDCS= $\mathbf{f(\theta_1)}$ pour (e,3e) du Néon. $\mathbf{E_i = 5582.3}\boldsymbol{eV}$, $\mathbf{E_1 = E_2 = 10}\boldsymbol{eV}$. $\boldsymbol{\theta_d} = \mathbf{0.45°}$. Les résultats des états ioniques $^1\boldsymbol{S} + {}^1\boldsymbol{D}+{}^3\boldsymbol{P}$ sont représentées. L'expérience de Schröter et al., est représentée par des carrés**,** des facteurs multiplicatifs sont utilisés pour comparer les résultats de nos modèles à l'expérience : 4*10^5 pour le modèle 2DWWM, 10^6 pour le modèle 2CWWMSR et 10^4 pour le modèle 2DWWMSR.

D'après la figure IV.8, nos modèles montrent un bon accord pour les différentes situations expérimentales avec un léger décalage observé dans les trois premiers cas (6-a,6-b,6-c). Nous notons aussi que toutes les courbes représentent deux lobes l'un vers l'avant et l'autre vers l'arrière par rapport au faisceau incident.

Nous expliquons à présent les mécanismes responsables sur tous les maximas présents dans la figure IV.8 :

Dans toutes les situations expérimentales, le mécanisme dominant est le TS1 car l'angle entre les deux électrons est $\theta_{12} = \pm(90°, 120°)$ sauf pour la figure IV.8-b on a une interférence entre les deux mécanismes : le TS1 à $\theta_1 = 215°$ ($\theta_{12} = 120°$) et le SO à $\theta_1 = 300°$ ($\theta_{12} = 154°$), ce dernier n'est pas décrit par nos modèles (une situation similaire dans la figures IV.8-g à $\theta_1 = 56°$ '$\theta_{12} = 170°$')

El-Marji et al., [9] et Schröter et al. [7] pensaient à l'époque que le mécanisme TS2 (l'électron incident ionise deux fois la cible) était le mécanisme prédominant dans le cas de la DI de l'argon et du néon. Jones et Madison [15], Grin et al., [16] et Kheifets [17] ont montré que ce mécanisme était pratiquement inexistant pour une énergie incidente de 5500 eV mais était bien présent à 1000 eV. Un des arguments d'El Marji et al., [9] et Schröter et al. [7] était d'avoir observé une absence de symétrie des résultats expérimentaux lorsqu'un des électrons est éjecté suivant la direction du moment de transfert. Mais la faible asymétrie observée est certainement due à la faible précision des mesures expérimentales et au fait que le moment de transfert change lorsque l'ion est dans un état ^{3}P ou dans un état ^{1}D.

IV.4.2 La FDCS en géométrie symétrique à une énergie intermédiaire

Pour le cas de la réaction (e,3e) de l'argon à une énergie du projectile intermédiaire nous choisissons les conditions expérimentales de Jia et al. [8]. Dans cette étude, les *FDCS* de la réaction sont relatives et obtenues pour les paramètres cinématiques : l'énergie incidente est choisie égale à $E_i = 561{,}4\ eV$, l'énergie et l'angle des électrons diffusés sont $E_d = 500 \pm 6\ eV$ et $\theta_d = +6{,}5°$, respectivement (L'angle de diffusion est relativement grand entraîne un faible rendement de coïncidence mesuré). Le moment de transfert correspondant est $K =$

0.8 au, dans la direction $\theta_k = 300.3°$. Les énergies des électrons éjectés sont $E_1 = E_2 = 9{,}0 \pm 1{,}5\ eV$ avec une précision de détermination de l'angle de chaque électron éjecté $\pm 10°$.

On trace les courbes correspondant à : $\theta_2 = 100°, 110°, 120°, 150°, 244°$ sur la figure IV.9.

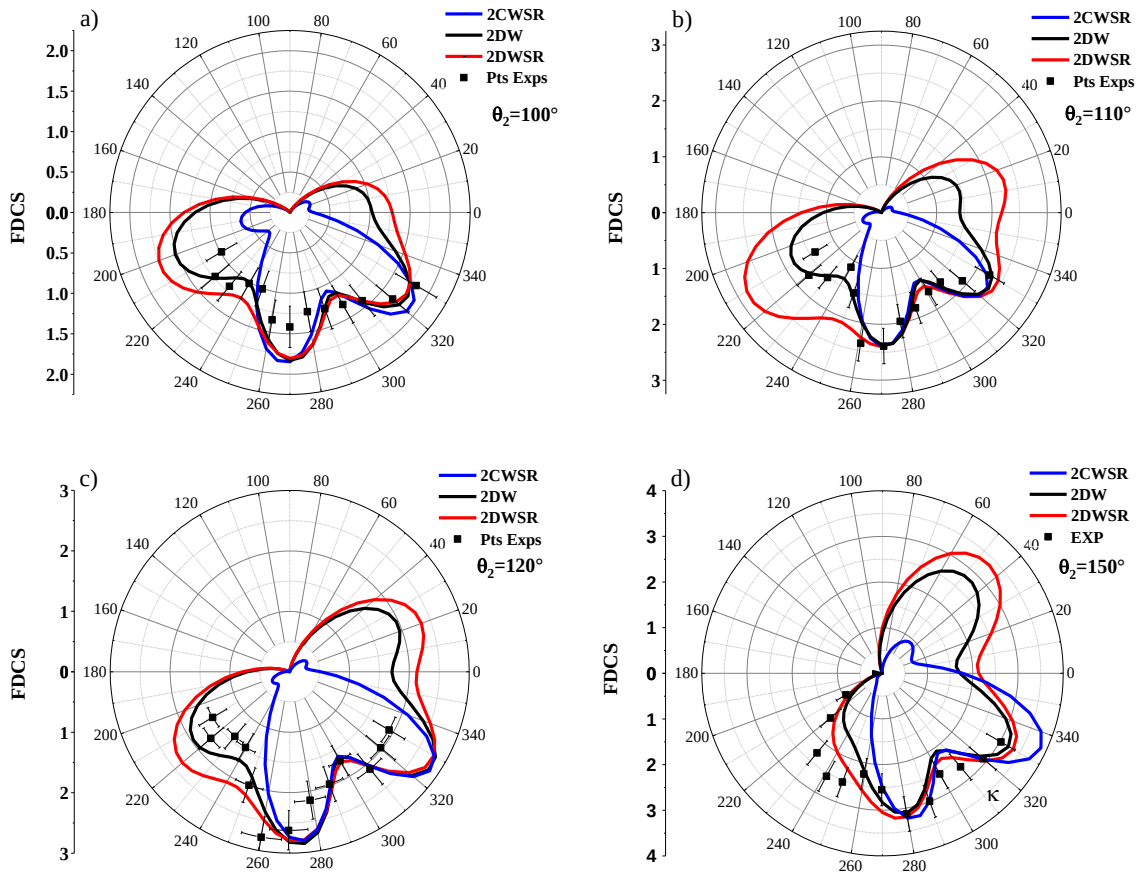


Figure IV.9 : la FDCS= $\mathbf{f(\theta_1)}$ pour (e,3e) de l'argon. $\mathbf{E_i = 561.5}\boldsymbol{eV}$, $\mathbf{E_1 = E_2 = 9}\boldsymbol{eV}$. $\boldsymbol{\theta_d} = \mathbf{6.5°}$. Les résultats des états ioniques $^1\boldsymbol{S} + {}^1\boldsymbol{D} + {}^3\boldsymbol{P}$ sont représentées. L'expérience de Jia et al., est représentée par des carrés, des facteurs multiplicatifs sont utilisés pour comparer les résultats de nos modèles à les données relatifs : 17 pour le modèle 2DWG, 70 pour le modèle 2CWGSR et 20 pour le modèle 2DWGSR.

Nous remarquons que nos modèles reproduisent bien toutes les situations expérimentales de la figure IV.9. Le modèle 2CWSR est incapable de décrire le premier pic contrairement aux modèles qui prennent en considération la distorsion : 2DW et 2DWSR, ceci indique l'importance de cette dernière dans ces situations expérimentales. Les deux autres pics sont bien reproduits par nos trois modèles.

Le mécanisme SO peut expliquer différents maximas : les maximas situés à 270° et 325° sur les figures IV.9-a-b-c, à 280° et 330° sur la figure IV.9-d, car l'angle est entre les deux

électrons éjectés $\theta_{12}\sim(140°, 180°)$. Les autres maximas s'expliquent par le mécanisme TS1 : les maximas sont situés à 200°, 210°, 220° et 280° sur les figures IV.9-a-b-c et d respectivement car l'angle entre le deux électrons éjectés $\theta_{12}\sim(90°, 130°)$. On remarque pour toutes les situations expérimentales qu'on a deux maximas qui représentent le SO (situé à 270° et 325°) et un autre représente le mécanisme TS1 situé à 210° $\pm 10°$, sauf pour la dernière situation où on remarque plutôt l'inverse : deux TS1 et un SO.

IV.5 La FDCS $\sigma^5 = f(\theta_1, \theta_2)$:

Dans cette partie nous étudions la variation de la FDCS en fonction des directions d'éjection des deux électrons θ_1 et θ_2 pour le cas de l'argon et du néon à haute énergie ($\sim 5.5keV$) et dans une géométrie coplanaire (les deux électrons éjectés dans le plan de diffusion $\varphi_d = \varphi_1 = \varphi_2 = 0°$) avec un partage d'énergie égale entre les deux électrons éjectés, $E_1 = E_2 = 10\ eV$. L'angle de l'électron diffusé est $\theta_d = 0.45°$.

IV.5.1 La FDCS $\sigma^5 = f(\theta_1, \theta_2)$ de l'Argon

Les *FDCSs* correspondant à nos modèles (2CWGSR, 2DWG et 2DWGSR) pour l'argon sont portés sur la Figure IV.10.

Nous remarquons que toutes les distributions angulaires de ces sections efficaces présentent deux plages symétriques par rapport à la direction $\theta_1 = \theta_2$. Par conséquent, nous nous intéressons seulement à la description et à l'analyse d'une partie de chaque figure, l'autre partie étant simplement déduite par simple symétrie par rapport à l'axe $\theta_1 = \theta_2$.

Les résultats obtenus pour la DI de l'argon pour les deux modèles qui tiennent compte de la distorsion 2DWG et 2DWGSR (figure IV.10-a et b) montrent clairement trois lobes : deux lobes principaux (A et A') qui sont du même ordre de grandeur 10^{-1} et un autre lobe secondaire avec une amplitude réduite d'ordre 8.10^{-2}. Le premier lobe A situé dans l'intervalle $\theta_1 \epsilon [0°, 87°]$ et $\theta_2 \epsilon [200°, 310°]$ présente un pic localisé en $(\theta_1, \theta_2) = (7°, 255°)$ alors que le second lobe, situé dans $\theta_1 \epsilon [165°, 300°]$ et $\theta_2 \epsilon [300°, 360°]$, présente un maximum situé en $(\theta_1, \theta_2) = (244°, 353°)$. Le lobe secondaire, s'étend de $\theta_1 \epsilon [10°, 225°]$ et $\theta_2 \epsilon [125°, 250°]$ présente un pic localisé en $(\theta_1, \theta_2) = (63°, 190°)$

Pour les deux lobes, on note un angle relatif $\theta_{12} \approx 105°$ entre les deux directions d'éjection. Cette situation est caractéristique du mécanisme TS1. Pour le lobe secondaire l'angle relatif entre les deux directions d'éjection $\theta_{12} \approx 130°$ le mécanisme TS1 en est aussi responsable.

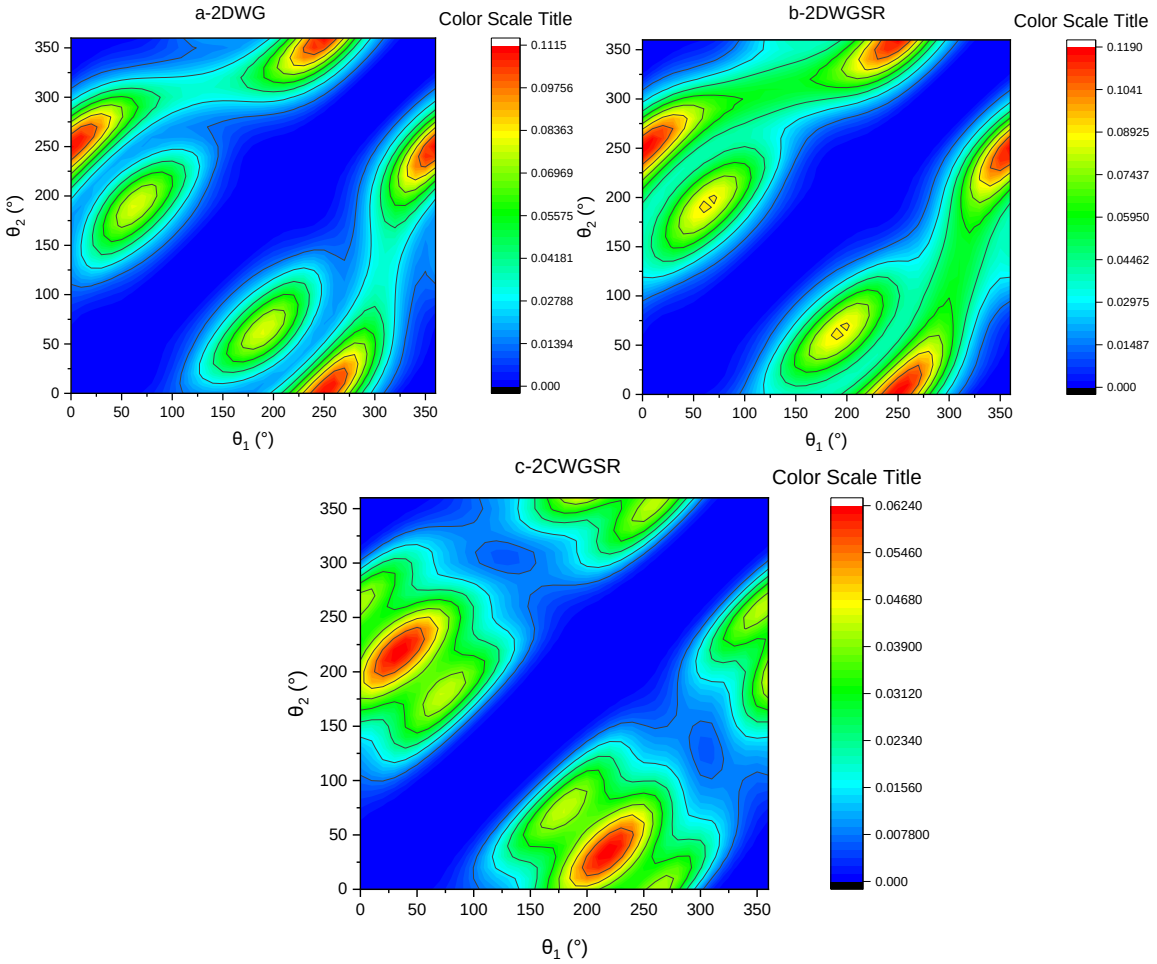


Figure IV.10: la FDCS= $\mathbf{f(\theta_1, \theta_2)}$ pour (e,3e) de l'argon. $\mathbf{E_d = 5500}\boldsymbol{eV}$, $\mathbf{E_1 = E_2 = 10}\boldsymbol{eV}$. $\boldsymbol{\theta_d} = \mathbf{0.45°}$. Les résultats des trois modèles (a) : 2DWG, (b) : 2DWGSR et (c) : 2CWGSR pour les états ioniques ($^3P + {}^1D + {}^1S$) sont représentés.

Les résultats obtenus par le troisième modèle 2CWGSR (figure IV.10-c) montrent un changement de la structure et d'amplitude par rapport aux deux premiers modèles. Dans ce modèle on observe un seul lobe principal d'ordre 6.10^{-2} allant de $\theta_1 \epsilon [0°, 100°]$ et $\theta_2 \epsilon [175°, 255°]$. Le maximum de cette structure est centré autour de $(\theta_1, \theta_2) = (30°, 215°)$. Ce lobe principal est dû au mécanisme SO puisque l'angle $\theta_{12} \approx 175°$. Ce groupe de maxima correspond à une éjection l'un vers l'avant et l'autre vers l'arrière.

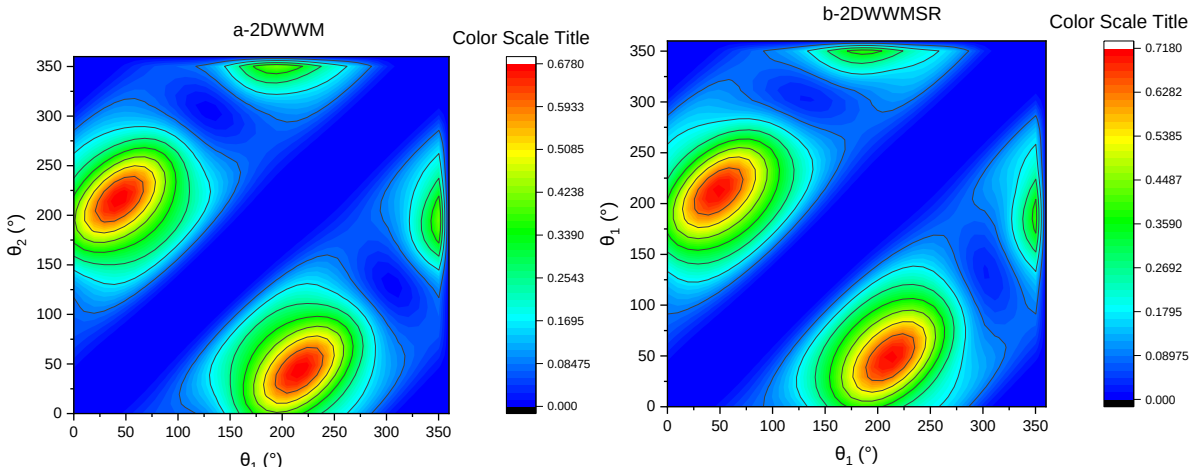
Deux lobes secondaires sont situés autour du couple d'angles (75°,180°) et (250°,350°). Ces deux lobes secondaires sont caractérisés par un angle relatif $\theta_{12} \approx 105°$, ce qui illustre un mécanisme de type TS1.

IV.5.2 La FDCS $\sigma^5 = f(\theta_1, \theta_2)$ du Néon

Les *FDCS* calculées par nos modèles (2CWGSR, 2DWG et 2DWGSR) pour la réaction (e,3e) du néon sont portés sur la Figure IV.11.

Comme le cas de l'argon, toutes les distributions angulaires de ces sections efficaces (figure IV.11) présentent deux groupes séparés symétriques par rapport à la direction $\theta_1 = \theta_2$. Par conséquent, nous nous intéressons seulement à la description et à l'analyse d'une partie de chaque figure, l'autre partie étant déduite par simple symétrie par rapport à l'axe considéré $\theta_1 = \theta_2$.

Une structure similaire (comme celle l'argon) entre les deux modèles qui contiennent la distorsion 2DWWM et 2DWWMSR (figure IV.9-a-b) avec un petit changement en amplitude (10^{-2}). La distribution angulaire de ces sections efficaces (figure IV.11-a-b) présente deux structures de maxima. Une première structure principale s'étend dans la gamme angulaire allant de $\theta_1 \epsilon [0°, 130°]$ et θ_2 de ϵ[130°,290°]. Le maximum de cette structure est centré autour de $\theta_1 = 42°$ et $\theta_2 = 215°$. La seconde structure avec une amplitude réduite s'étend de $\theta_1 \epsilon [144°, 260°]$ à $\theta_2 \epsilon [320°, 360°]$, son maximum est centré autour de $(\theta_1, \theta_2) = (190°, 345°)$. L'angle relative entre les deux directions d'éjections : $\theta_{12} = 170°$ et $\theta_{12} = 155°$ pour les deux structures, dons on a une interférence entre le SO et le TS1.



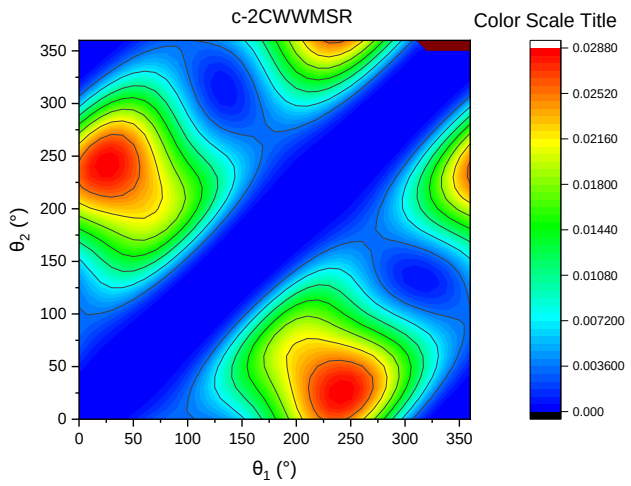


Figure IV.11 : la FDCS= $\mathbf{f(\theta_1, \theta_2)}$ pour (e,3e) du néon. $\mathbf{E_i = 5582.3}\boldsymbol{eV}$, $\mathbf{E_1 = E_2 = 10}\boldsymbol{eV}$. $\mathbf{\theta_d = 0.45°}$. Les résultats des trois modèles (a): 2CWWMSR, (b): 2DWWM et (c): 2DWWMSR pour les états ioniques ($^3P + {}^1D + {}^1S$) sont représentés

Les résultats obtenus par le troisième modèle 2CWWMSR (figure IV.11-c) montrent aussi (comme celle de l'argon) un léger changement de la structure et l'amplitude par rapport aux deux premiers modèles. Dans ce modèle on observe deux lobes principaux d'ordre $2{,}8.10^{-2}$ allant de $\theta_1 \epsilon [0°, 130°]$ et $\theta_2 \epsilon [123°, 330°]$ avec un pic important centré autour de $(\theta_1, \theta_2) = (30°, 240°)$ pour le premier et de $\theta_1 \epsilon [152°, 300°]$ et $\theta_2 \epsilon [295°, 360°]$ avec un pic moins important centré autour de $(\theta_1, \theta_2) = (230°, 360°)$ pour le deuxième. Le premier lobe principal est dû au mécanisme SO parce que l'angle $\theta_{12} \approx 150°$. Par contre le deuxième est dû au mécanisme TS1 ($\theta_{12} \approx 130°$).

IV.6 Etude du processus (e,3-1e) : La 4DCS de l'Argon

Pour conclure notre étude sur les atomes, nous traçons la 4DCS pour les conditions de la première expérience (e,3e-1) réalisée par Lahmam-Bennani et al [10] pour le cas où : $E_d = 5500eV, \theta_d = 0.55°$. L'un des deux électrons éjectés est détecté à un angle variable θ_2 avec une énergie faible $E_2 = 5eV$, tandis que l'autre électron, non détecté, a une énergie $E_1 = 75eV$.

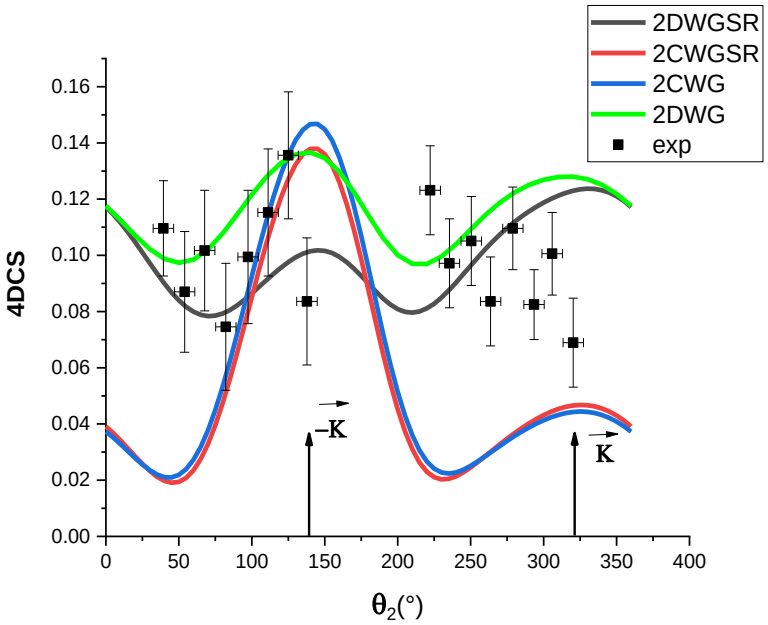


Figure IV.12 : la 4DCS= $\mathbf{f(\theta_1)}$ pour (e,3e-1) de l'argon. $\mathbf{E_d = 5500}\boldsymbol{eV}, \mathbf{\theta_d = 0.55°}$, $\mathbf{E_2 = 5}\boldsymbol{eV}$. L'électron $\mathbf{E_1 = 75}\boldsymbol{eV}$ non détecté. Les résultats des états ioniques $^1\boldsymbol{S} + {}^1\boldsymbol{D}+{}^3\boldsymbol{P}$ sont représentées. Les expériences de lahmam-bennani et al., sont représentées par des carrés, des facteurs multiplicatifs sont utilisés pour comparer les résultats de nos modèles à les données relatifs : 17 pour le modèle 2DWG, 70 pour le modèle 2CWGSR et 20 pour le modèle 2DWGSR.

Les résultats des quatre modèles 2CWGSR, 2DWG, 2DWGSR et 2CWG sont représentés dans la figure IV.12. En observant bien que nos modèles représentent deux pics l'un suivant le moment de transfert $+\vec{K}$ et l'autre est suivant la direction inverse du moment de transfert $-\vec{K}$. On note que les quatre modèles reproduisent le premier pic situé à $\theta_1 = 130°$ (proche de $-\vec{K}$). Les deux modèles 2DWG er 2DWGSR reproduit bien la région $\theta_1 = 0 - 70°$ tandis que les autre modèles 2CWG et 2CWGSR ont échoué. Pour la deuxième région $\theta_1 = [225 - 320°]$ les deux modèles qui contiennent la distorsion décrivent mieux cette région.

DOUBLE IONISATION DES MOLECULES : NH_3

IV.7 La FDCS $\sigma^5 = f(\theta_1, \theta_2)$: Les courbes orientées

On se propose, à la fin de ce chapitre, d'exposer une étude brève des réactions de double ionisation de petites molécules ; Nous choisissons pour cela la molécule NH_3. Ce choix est dû au manque des études théoriques et expérimentales sur la réaction(e,3e) de la cible NH_3. Parmi les rares études de cette molécule nous citons les travaux de Z. AitElhadjAli et al [19] ; dans ce travail les auteurs ont calculé les sections efficaces quintuplement différentielles en fonction

des angles d'éjection(θ_1, θ_2) de la molécule, pour des orientations choisies dans l'espace. Dans le but de comparer et vérifier nos calculs nous nous proposons de refaire les calculs de la référence [19].

Sur la Figure IV.13 nous représentons les résultats de nos tests sur les FDCS, calculées en utilisant le modèle 2CWG en géométrie coplanaire, avec$(E_1 = E_2 = 10\ eV)$, un angle de diffusion $\theta_d = 0°$ et une énergie incidente $E_i = 1000eV$; pour les orbitales $1e_x$ (dégénéré avec $1e_y$) et $3a_1$. Les calculs sont faits pour l'orientation particulière dans l'espace $(\alpha, \beta, \gamma) = (0°, 0°, 0°)$. Nos calculs reproduisent bien les résultats de la référence [19] avec une surestimation d'amplitude d'un facteur de 10^2, cela est peut-être dû au facteur de l'approximation de BBK.

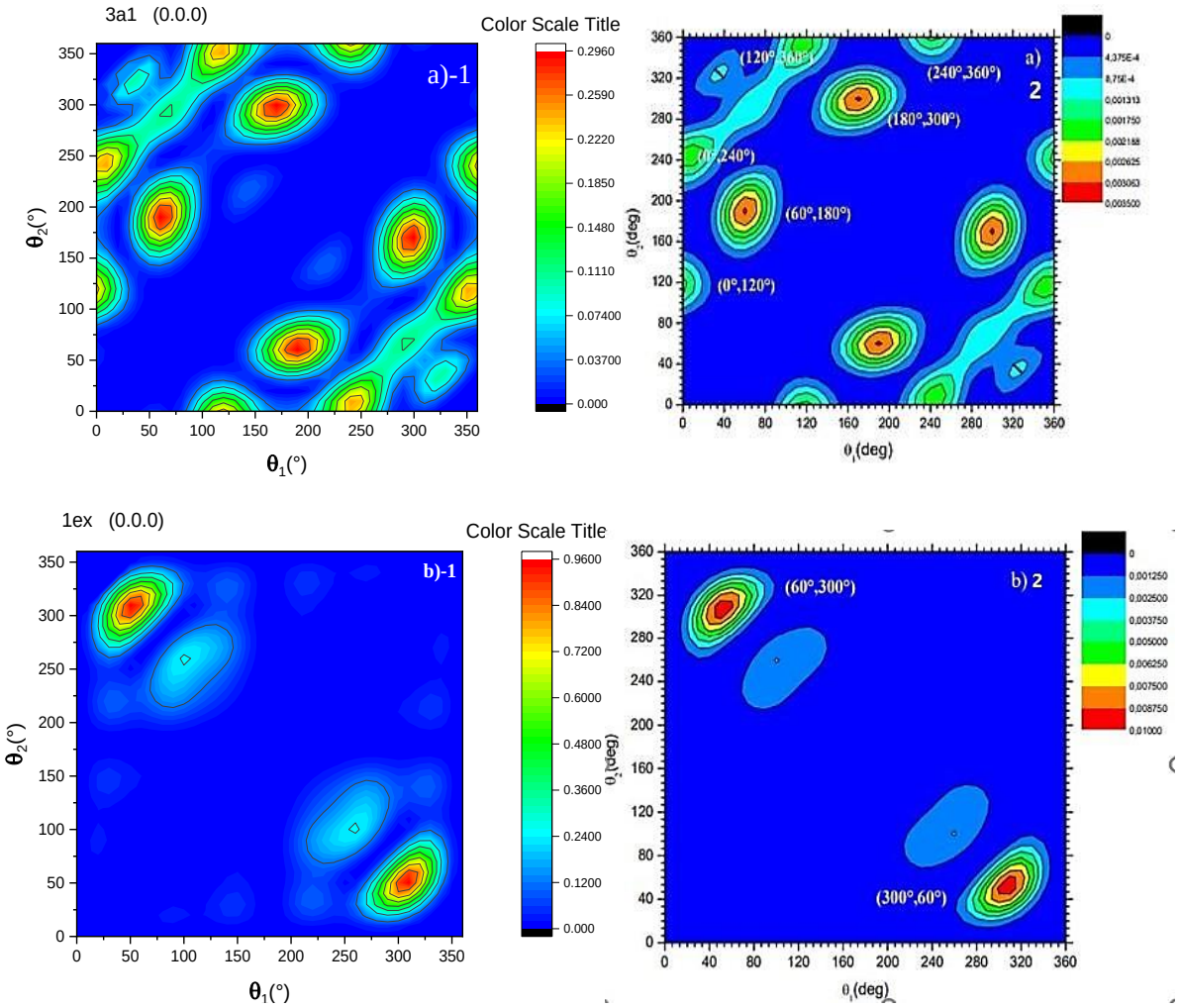


Figure IV.13: Variations de la *FDCS* de la double ionisation de la molécule d'ammoniac orientée dans la direction (0°,0°,0°) en fonction des angles d'éjection $\boldsymbol{\theta_1}$ ***et*** $\boldsymbol{\theta_2}$: avec $\boldsymbol{E_i = 1000eV}$, $\boldsymbol{E_1 = E_2 = 10\ eV}$, $\boldsymbol{\theta_d = 0°}$ a) FDCS-DI-$3a_1$; b) FDCS-DI-$1e_x$, (1) nos résultats et (2) résultats de la référence [19]

Les distributions angulaires des sections efficaces FDCS (figure IV.13) présentent deux groupes de pic symétriques par rapport à la direction $\theta_1 = \theta_2$; nous nous intéressons à l'analyse d'un seul groupe de chaque figure. Le groupe de maxima (a) de l'orbitale $3a_1$ présente plusieurs lobes. Deux lobes principaux, le 1re situé dans la gamme $\theta_1 \epsilon [30°, 100°]$ et $\theta_2 \epsilon [150°, 230°]$ centré en $(\theta_1, \theta_2) = (60°, 190°)$, alors que le 2ème est placé dans la zone $\theta_1 \epsilon [130°, 210°]$ et $\theta_2 \epsilon [270°, 325°]$ présente un maximum localisé en $(\theta_1, \theta_2) = (165°, 295°)$. Ces deux lobes sont caractérisés par $\theta_{12} = 130°$ et correspondent au mécanisme TS1 avec émission d'un électron dans le demi-plan avant, le deuxième électron étant éjecté dans le demi-plan arrière. Quatre lobes secondaires avec une amplitude réduite situé à $(\theta_1, \theta_2) = \left(\theta_{\vec{K}}, \theta_{\vec{K}} + 120\right) = (0°, 120°), (\theta_1, \theta_2) = (7°, 243°)$, $(\theta_1, \theta_2) = (115°, 350°)$ et $(\theta_1, \theta_2) = (240°, 360°)$. Dans tous ces cas, l'un des électrons sort préférentiellement dans la direction du moment de transfert. Le deuxième est alors éjecté dans le demi-plan arrière selon une direction faisant un angle de 120° ou 240° avec le premier ($\theta_{12} = \pm 120°$) et par conséquence la réaction de double ionisation pour ces lobes provient d'un mécanisme TS1.

Pour la FDCS-$1e_x$ présentée sur la figure IV.13-b, nous constatons la présence de deux lobes, le plus important d'amplitude de l'ordre $9.6*10^{-1}$ est situé entre $\theta_1 \epsilon [15°, 90°]$ et $\theta_2 \epsilon [270°, 340°]$ avec un pic localisé à $(\theta_1, \theta_2) = (51°, 307°)$; le pic du lobe secondaire est situé à $(\theta_1, \theta_2) = (100°, 260°)$. Ces deux pics sont le résultat d'une interférence de deux processus TS1($\theta_{12} = 104°$) et SO ($\theta_{12} = 160°$).

IV.8 La FDCS $\sigma^5 = f(\theta_1, \theta_2)$: Les courbes non orientées

En réalité dans une expérience de collision la cible est généralement à l'état gazeux avec une orientation aléatoire dans l'espace. Pour décrire des expériences éventuelles il est impératif de faire une moyenne sur toutes les orientations possibles dans l'espace de la cible et ce par intégration de la FDCS sur les angles d'Euler $d\Omega_{Euler} = sin\beta d\beta d\alpha d\gamma$.

Dans ce qui suit, nous essayons de trouver les meilleures conditions cinématiques pour faciliter la réalisation de futures expériences (e, 3e) de NH_3.

IV.9 La FDCS $\sigma^5 = f(\theta_d)$

Nous choisissons pour cela les conditions cinématiques utilisées dans les références [19], [21] Ces conditions sont similaires sauf pour θ_d ($\theta_d = 0°$ [19] et $\theta_d = 1°$[2]), les énergies de l'électron incident et les deux électrons éjectés sont successivement $E_i = 1000eV$ et $E_1 = E_2 = 10\ eV$.

Les *FDCSs* correspondants aux orbitales $1e_x$ et $3a_1$ pour différentes situations sont portées sur la Figure IV.14. On remarque que, toutes les distributions angulaires obtenues (figure IV.14) se présentent en deux groupes symétriques par rapport à la direction $\theta_1 = \theta_2$. Par conséquent, nous nous intéressons à la description et à l'analyse d'une seule partie de chaque figure.

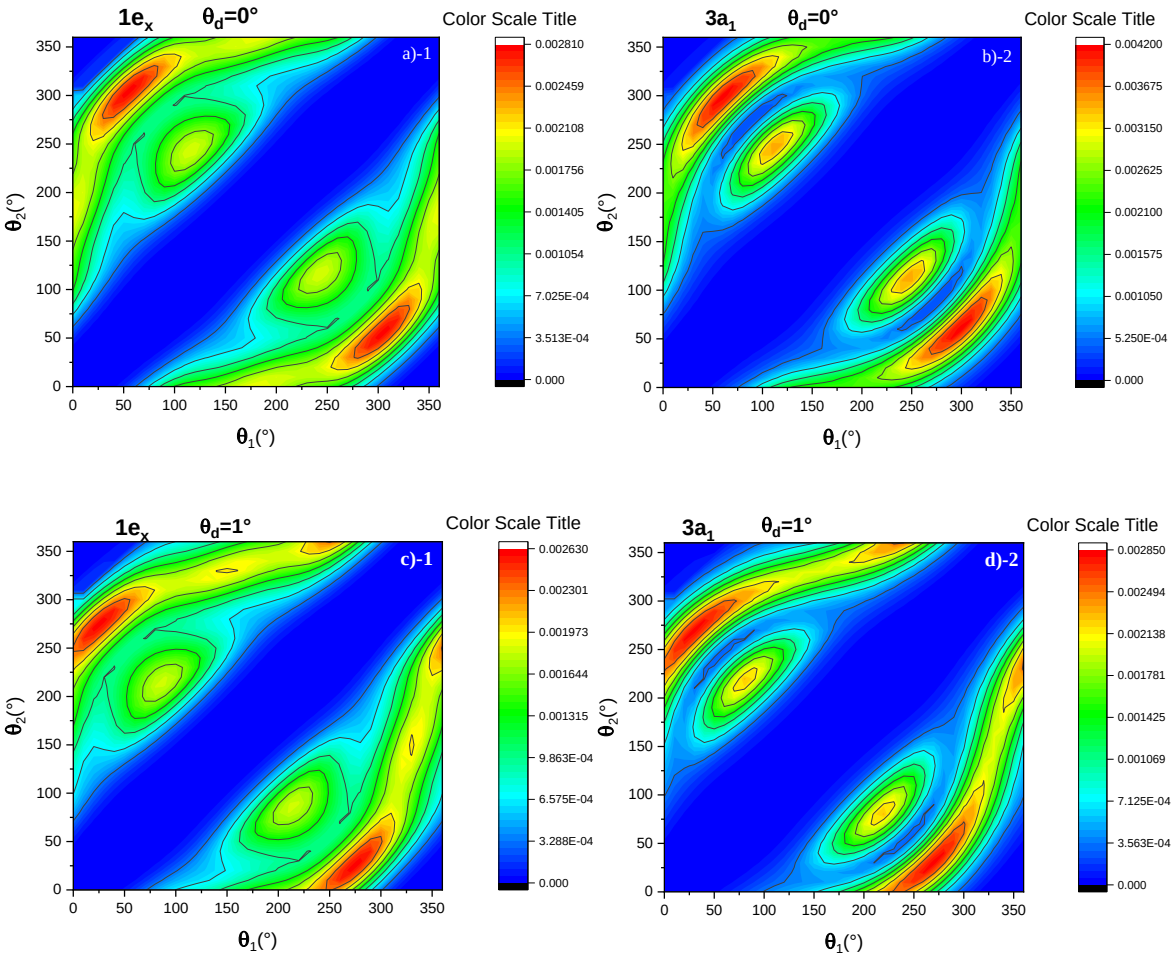


Figure IV.14: Variation des ***FDCSs*** de DI de la molécule d'ammoniac dans une géométrie coplanaire symétrique en fonction des angles d'éjection θ_1 et θ_2 dans les conditions : $E_i = 1000eV$, $E_1 = E_2 = 10\,eV$. $\theta_d = 0°$ pour a-b et $\theta_d = 1°$ pour c-d : (1) FDCS-DI-$1e_x$ et (2) FDCS-DI-$3a_1$

Sur les Figures IV.14-a, c sont représentées les FDCS-DI de l'orbitale $1e_x$ alors que sur les Figures IV.14-b, d (celles correspondant à la DI de l'orbitale $3a_1$). Ces ensembles de figures montrent une structure similaire avec un décalage de $\pm 30°$ entre les deux situations ($\theta_d = 0°$ et $\theta_d = 1°$) avec l'apparition d'un autre lobe pour l'angle $\theta_d = 1°$.

Dans le cas de la DI de l'orbitale $1e_x$: la distribution angulaire pour un angle de diffusion $\theta_d = 0°$ (Figure IV.14-a) présente deux lobes, l'un est principal situé à $(\theta_1, \theta_2) = (56°, 306°)$ et l'autre est secondaire avec une amplitude réduite situé à $(\theta_1, \theta_2) = (155°, 245°)$. Dans ce deuxième groupe un électron est éjecté le long de $-\vec{K}$ tandis que le deuxième est vu à 94° du premier. Dans ces deux lobes l'angle mutuel est $\theta_{12} = 110°$ et $\theta_{12} = 94°$ respectivement ce qui indique que le mécanisme TS1 est le plus probable pour la DI-$1e_x$.

Sur la Figure IV.14-c ($\theta_d = 1°$), on note l'apparition d'un nouveau lobe situé à $(\theta_1, \theta_2) = (240°, 360°)$ qui peut être expliqué par le mécanisme TS1.

Pour la DI de l'orbitale $3a_1$ (figure IV.14-b, d) : les distributions angulaires des *FDCS* présentent pratiquement des caractéristiques semblables à celles notées pour la DI-$1e_x$, avec une séparation entre les deux lobes. L'apparition d'un pic dans le cas $\theta_d = 1°$ situé proche à $\theta_{\vec{K}} \pm 30°$ montre que les directions $\pm\vec{K}$ jouent un rôle assez important dans les structures de la distribution *FDCS* contrairement aux cas de $\theta_d = 0°$.

IV.10 La FDCS $\sigma^5 = f(E_1, E_2)$

Dans cette partie nous nous proposons d'étudier la variation de la FDCS en fonction de l'énergie d'éjection dans une géométrie coplanaire pour une énergie incidente élevée de 1000eV avec petit angle de diffusion $\theta_d = 1°$. Ce choix de θ_d (de 0,45° à 1,5°) est largement utilisé dans les expériences (e,3e) [7], [9] et [21]. Les directions d'éjections sont suivantes $+\vec{K}$ pour le premier électron et $-\vec{K}$ pour le second électron.

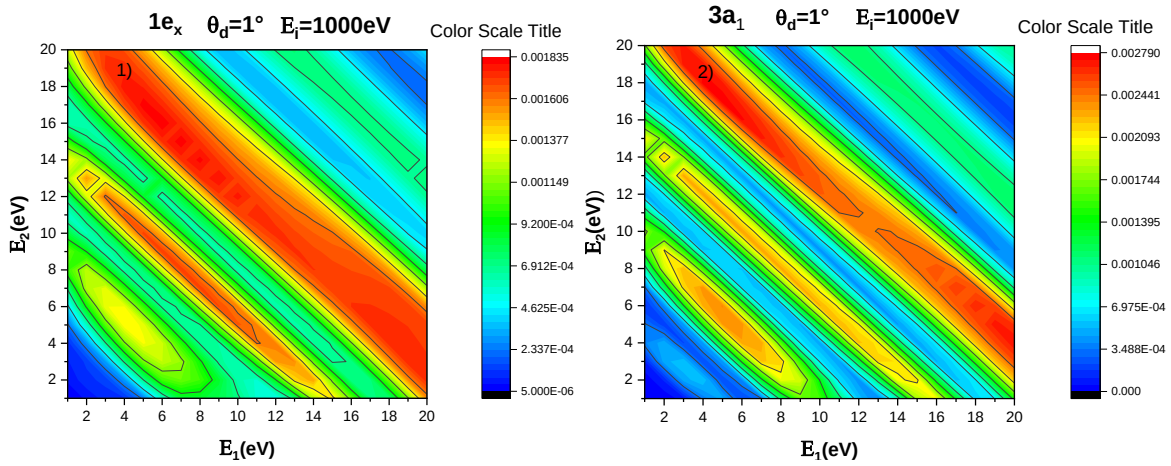


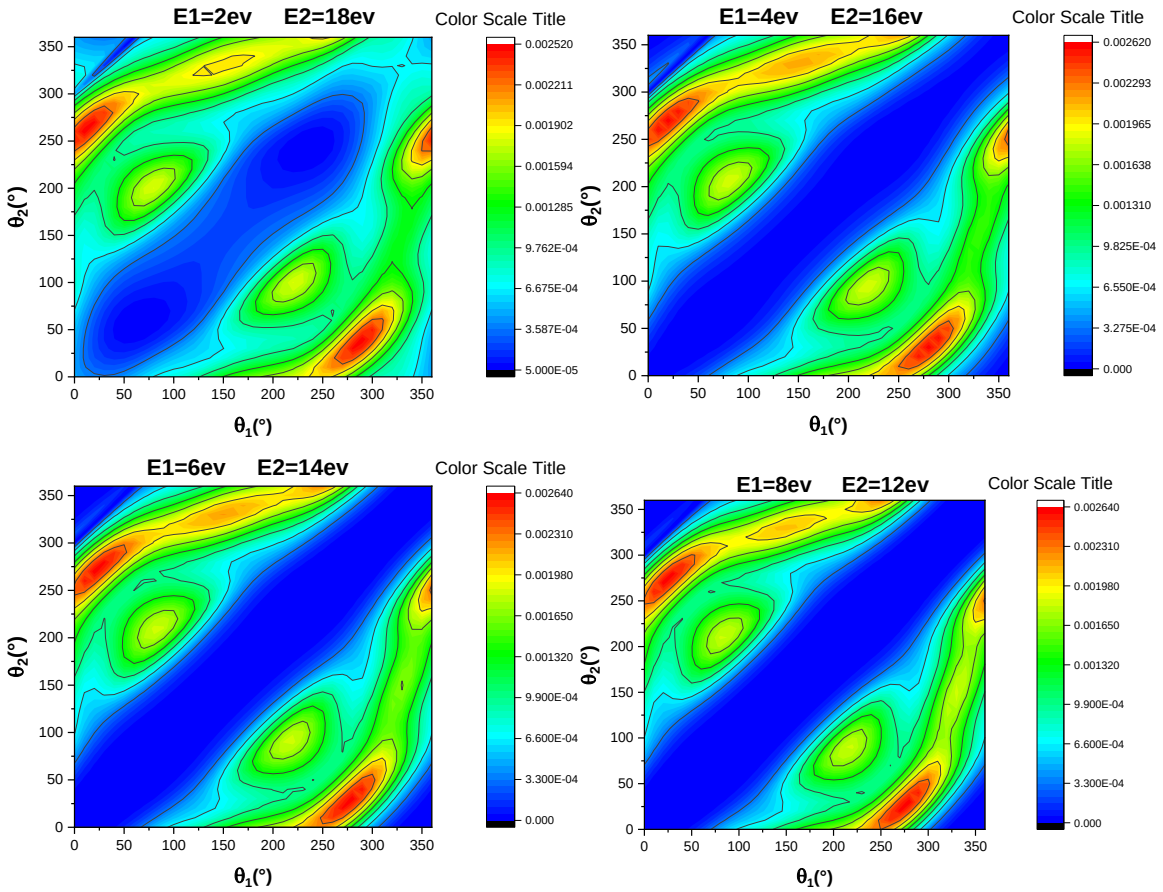
Figure IV.15: Variation des *FDCSs* de DI de la molécule d'ammoniac dans une géométrie coplanaire en fonction des énergies d'éjections $\boldsymbol{E_1 et\ E_2}$ dans les conditions $\boldsymbol{E_i = 1000eV}$ et

$\boldsymbol{\theta_d} = \mathbf{1}°$. Le premier électron est détecté suivant $+\vec{K}$ tandis que le deuxième est suivant $-\vec{K}$ (1) FDCS-DI-1e_x et (2) FDCS-DI-3a_1

Dans la figure IV.15 nous exposons les résultats pour la DI des orbitales 1e_x et 3a_1. L'analyse des courbes de l'orbitale 1e_x montre que le processus de DI est plus favorable pour des énergies $E_{som} = E_1 + E_2$ appartenant à l'intervalle (20eV-24eV) pour une première région importante, et $E_{som} = 15eV$ pour une deuxième région moins importante. Tandis que L'analyse des courbes de l'orbitale 3a_1 montre une seule région importante ayant des énergies E_{som} entre 20eV et 22eV. Dans ce qui suit nous choisissons $E_{som} = 20eV$

Les résultats de la DI de l'orbitale **1e_x** d'ammoniac sont portées dans la figureIV.16. Les courbes montrent une structure semblable dans tous les cas avec presque la même amplitude 2.6*10^{-3} *u.a.* L'angle relative $\boldsymbol{\theta_{12}} = 110°$ et $120°$ pour toutes les situations ce qui confirme que le mécanisme TS1 est le plus probable pour la DI-1e_x. Donc on peut dire ici qu'il n'y a pas de géométrique cinématique plus favorable que l'autre. Les résultats qui incluent les valeurs de l'angle relatif et l'amplitude de la FDCS sont similaires aux résultats trouvés par [2] dans le cas de la DI de l'eau.

FDCS-DI de : 1e_x



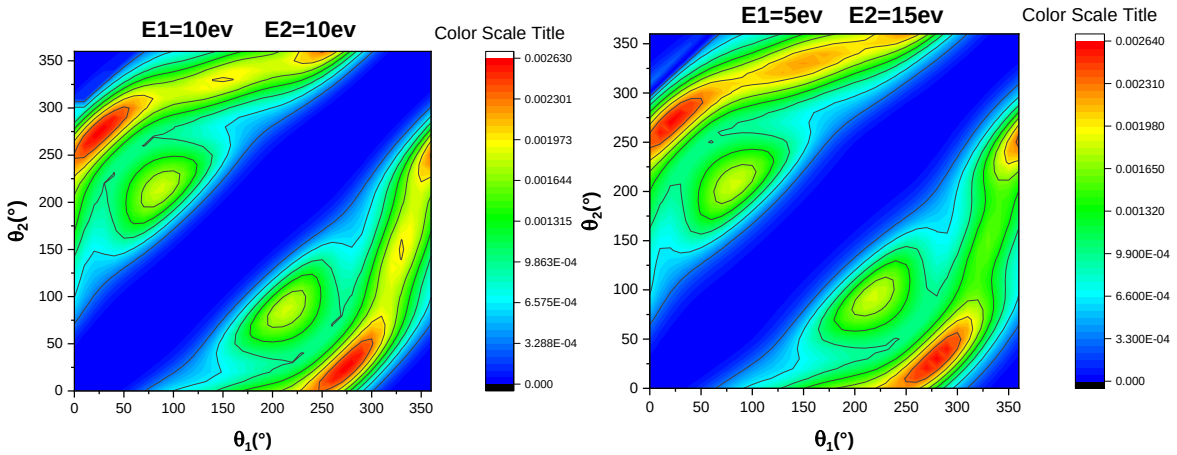
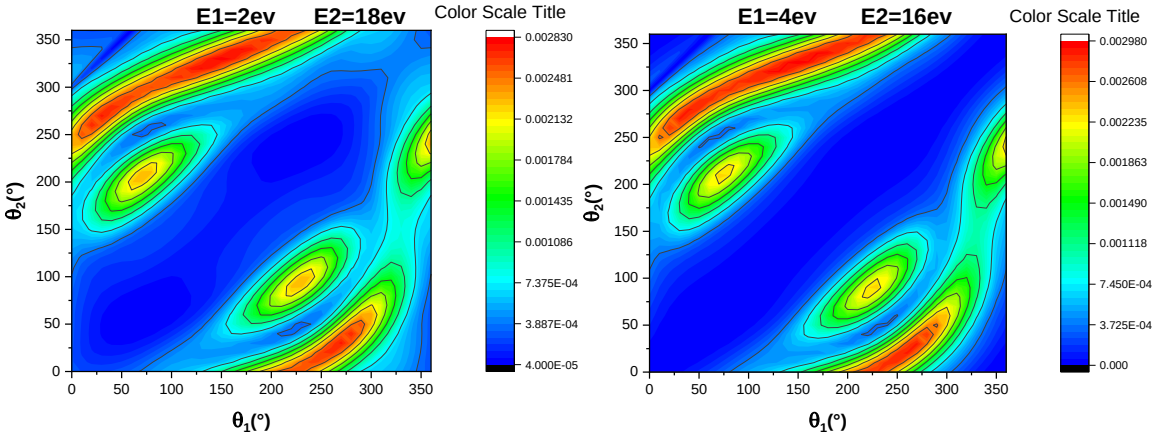


Figure IV.16: Variation des *FDCSs* de DI de l'orbitale **1e$_x$** d'ammoniac dans une géométrie coplanaire en fonction des directions d'éjections $\boldsymbol{\theta_1 et\ \theta_2}$ dans les conditions $\boldsymbol{E_i = 1000eV}$ et $\boldsymbol{\theta_d = 1°}$.

Les résultats de la DI de l'orbitale **3a$_1$** d'ammoniac sont représentés dans la figure IV.17. Les courbes montrent un changement de la structure entre la géométrie symétrique ($E_1 = E_2 = 10\ eV$) et les autres géométries asymétriques (un changement remarquable de la forme et la taille du lobe principal de la géométrie symétrique). Une forme presque identique dans tous les situations cinématiques asymétriques avec une amplitude de 2.9*10^{-3} *u.a*. Les positions des lobes sont presque identiques à celle de l'orbitale **1e$_x$** et par conséquence on aura les mêmes mécanismes.

FDCS-DI de : 3a$_1$



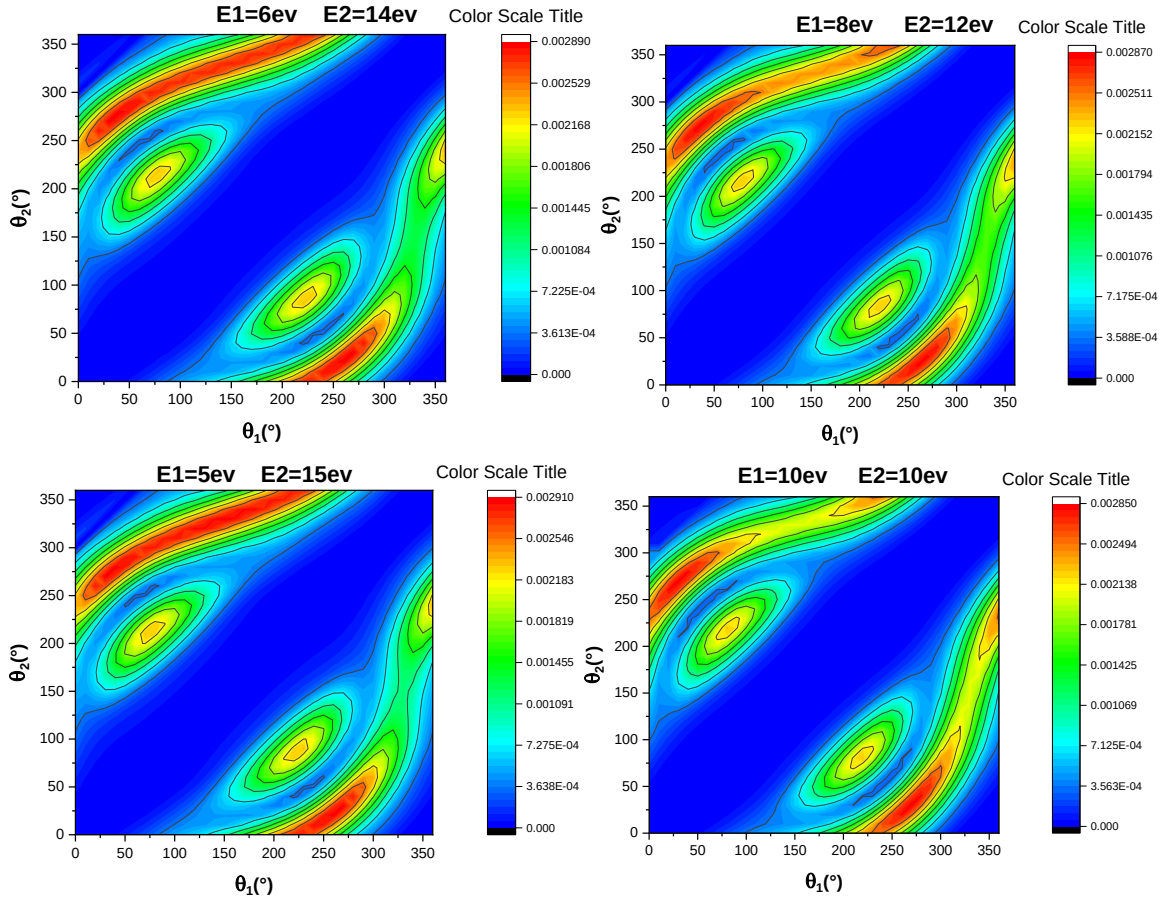


Figure IV.17: Variation des *FDCSs* de DI de de l'orbitale $3a_1$ d'ammoniac dans une géométrie coplanaire en fonction des directions d'éjections $\boldsymbol{\theta_1 et\ \theta_2}$ dans les conditions $\boldsymbol{E_i = 1000eV}$ et $\boldsymbol{\theta_d = 1°}$.

IV.11 La FDCS $\sigma^5 = f(\theta_1);\ \theta_2 = \theta_k$:

Pour mieux comparer les amplitudes des deux situations cinématiques, nous présentons sur la figure IV.18 les FDCS du processus, pour les deux orbitales $1e_x$ et $3a_1$, lorsqu'un électron est éjecté dans la direction du moment de transfert $\vec{K}$.

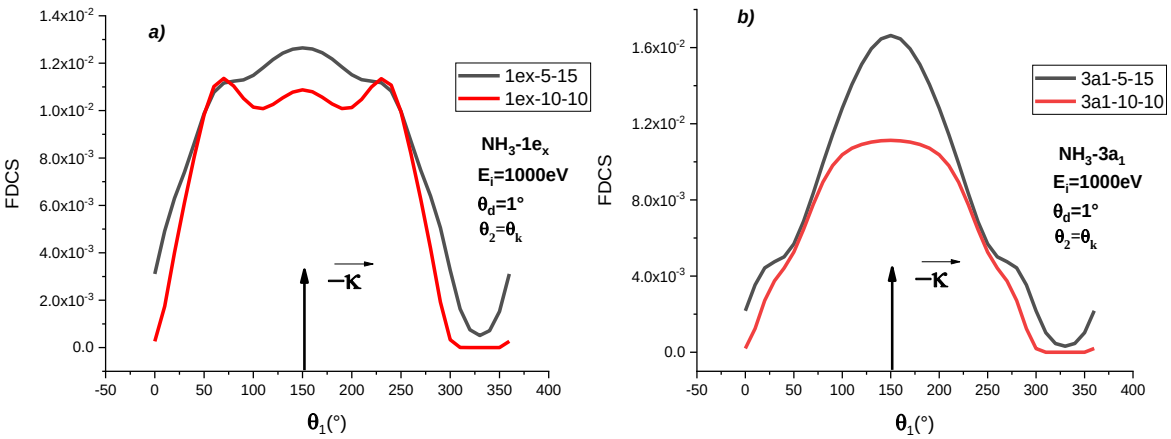


Figure IV.18: FDCS= $f(\theta_1)$ pour (e,3e) de l'ammoniac. $E_i = 1000eV$, $\theta_d = 1°$ et $\theta_2 = \theta_k$. La flèche indique la direction du moment transfert $(-\vec{K})$. Les énergies des deux électrons éjectés sont : en rouge $E_1 = E_2 = 10\ eV$, en noir $E_1 = 5\ eV, E_2 = 15\ eV$

Par comparaison avec les résultats précédents, on peut voir que l'amplitude de la FDCS pour les deux orbitales dans le cas asymétrique ($E_1 = 5eV, E_2 = 15\ eV$) est plus grande que celle du cas symétrique ($E_1 = E_2 = 10\ eV$). Ce qui nous permet de conclure que la cinématique asymétrique ($E_1 = 5eV, E_2 = 15\ eV$) est la plus favorable pour la DI des couches $1e_x$ et $3a_1$ de l'ammoniac.

IV.12 Etude du processus (e,3-1e) : La 4DCS de la DI du NH_3

Dans le même but de trouver les meilleures conditions cinématiques pour les réactions de DI, nous présentons notre étude comparative entre différentes situations de la DI (e,3e-1) de NH_3. Pour cela nous choisissons les conditions de l'expérience de Casagrande et al., [22] de la DI de l'orbitale $1t_2$ du méthane où l'électron diffusé à une énergie $E_d = 500eV$ dans une direction $\theta_d = -6° \pm 3°$. L'un des deux électrons éjectés (e_1) est non détecté. L'expérience a été faite dans les deux situations suivantes : les énergies des électrons éjectés $(E_1, E_2) = (37\ ,37)\ eV$ et $(E_1\ ,E_2) = (12\ ,37)\ eV$.

Les résultats obtenus par notre modèle dans les différentes situations sont portés sur la figure IV.19.

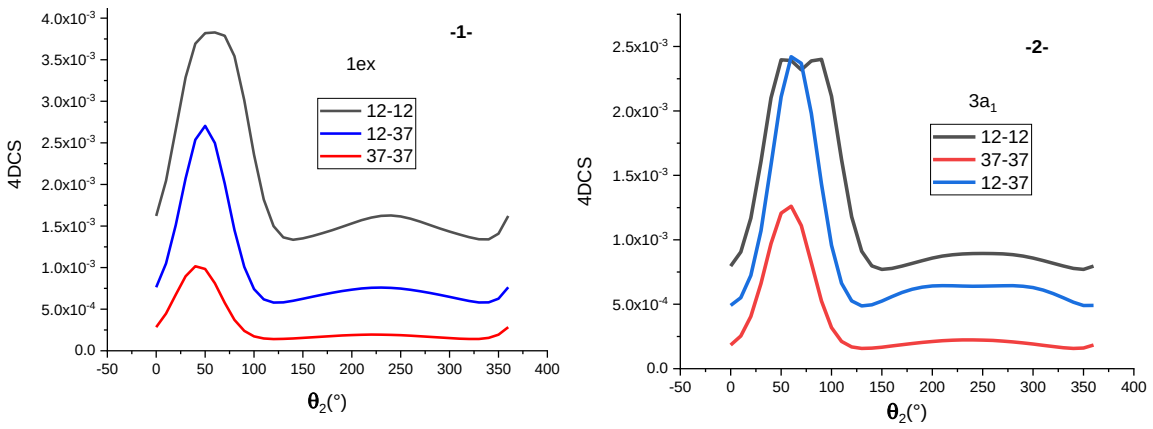


Figure IV.19: 4DCS pour (e,3e-1) de NH_3 des orbitales $1e_x$ et $3a_1$. $\boldsymbol{E_d = 500eV}$ et $\boldsymbol{\theta_d = -6°}$. L'électron d'énergie $\boldsymbol{E_1}$ non détecté. La courbe noir $(\boldsymbol{E_1} : \boldsymbol{E_2}) = (\mathbf{12}: \mathbf{12})\ \boldsymbol{eV}$, la courbe rouge $(\boldsymbol{E_1} : \boldsymbol{E_2}) = (\mathbf{37}: \mathbf{37})\boldsymbol{eV}$. La courbe bleu $(\boldsymbol{E_1} : \boldsymbol{E_2}) = (\mathbf{12}: \mathbf{37})\ \boldsymbol{eV}$.

D'un point de vue général, certaines caractéristiques importantes sont observées à partir des résultats obtenus :

- Toutes les distributions angulaires pour la DI-$1e_x$ et DI- $3a_1$, se présentent en une structure à deux pics bien connus pour la 4DCS : le premier lobe pointant approximativement dans la direction de transfert $(+\vec{K})$ et le second lobe dans le sens opposé $(-\vec{K})$.
- Le décalage entre pics est dû aux différentes valeurs des énergies des électrons éjectés.
- Pour les deux orbitales et pour une géométrie symétrique la situation $(E_1, E_2) = (12, 12)\ eV$ a une amplitude plus grande que celle de la situation $(E_1, E_2) = (37,37)eV$.
- Dans le cas de l'orbitale $3a_1$, la FDCS des deux géométries symétrique $(E_1, E_2) = (12, 12)\ eV$ et asymétrique $(E_1, E_2) = (12,37)\ eV$ a la même amplitude, tandis que dans le cas de l'orbitale $1e_x$ la géométrie symétrique a une amplitude plus grande que celle de la géométrie asymétrique.
- Dans la situation $(E_1, E_2) = (12\ , 12)\ eV$ de l'orbitale $3a_1$ la FDCS montre une structure en deux maximums pour le pic principale ; ce caractère est de type p qui est compatible avec la théorie [24].

Les résultats de $(E_1, E_2) = (12,37)\ eV$ de l'orbitale $3a_1$ sont très similaires aux données expérimentales de Casagrande [22]. Et aussi, les résultats de $(E_1, E_2) = (12,12)\ eV$ sont similaires aux données expérimentales de [22] mais pour $(E_1, E_2) = (37,37)\ eV$

IV.13 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les résultats obtenus par nos modèles théoriques de l'étude de la DI des atomes et des molécules. Dans un premier temps, nous avons examiné les effets de corrélation dans l'état initial, d'une part, nous avons utilisés deux fonctions d'ondes l'un incluant les corrélations et l'autre non. D'autre part, dans l'état final, la corrélation entre les deux électrons éjectés est prise en compte complètement à savoir le BBK, ou partiellement par le facteur de Gamow et le facteur de Ward et Macek. Ces deux facteurs donnent pratiquement les mêmes résultats avec un facteur de 2.5 pour une haute énergie incidente et 6 pour une énergie intermédiaire. Nous avons étudié aussi l'effet de distorsion des deux électrons éjectés (***2DWG***), l'effet du potentiel de courte portée (***2CWGSR***) ainsi que leurs effets simultanés « effets de distorsion et le potentiel de courte portée » (***2DWGSR***). Ce dernier modèle est meilleur que le ***2DWG*** et surtout meilleur que le modèle ***2CWGSR***.

Dans un second temps, nous avons présenté l'étude de la DI des réactions ***(e,3e)*** et ***(e,3e-1)*** de la molécule d'ammoniac. A cause de l'absence des données expérimentales et peu des études théoriques sur cette molécules nous avons effectué un ensemble des comparaisons des différents paramètres énergétiques et directionnels (angle de diffusion et énergie d'éjection) afin de déterminer les meilleures conditions d'une expérience de DI de l'ammoniac. Pour une réaction (e,3e), nous avons trouvé que la cinématique asymétrique (avec une somme réduite des énergies éjectées) est la plus favorables pour la future expérience à l'exception le cas $(E_1, E_2) = (12\,, 12)\ eV$ de l'orbitale $1e_x$ pour la réaction (e,3e-1) qui est plus grand que la cinématique asymétrique.

Références bibliographiques

[1] B. Joulakian, C. Dal Cappello and M. Brauner J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 25 2863 (1992)

[2] I. Kada, A. Mansouri, C. Dal Cappello, PA. Hervieux and A. Roy C J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 42 025201 (2009)

[3] E. Clementi and C. Roetti At. Data Nucl. Data Tables 14 177–478 (1974)

[4] M. A. Kornberg and J. Miraglia Phys. Rev. A 48 3714 (1989)

[5] C. Dal Cappello, J. Langlois, M C.Cappello, B. Joulakian A. Lahmam-Bennani, A. Duguet and R Z. Tweed. Phys. D 23 389 (1992)

[6] I. Kada, C. Dal Cappello and A. Mansouri Eur. Phys. J. D 71 41 (2017)

[7] C. Schröter, B. El Marji, A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, M. Lecas and L. Spielberger J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 31 131(1998)

[8] C. C. Jia, A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, L. Avaldi, M. Lecas and C. Dal Cappello J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 35 1103 (2002)

[9] B. El Marji, C. Schröter, A. Duguet, A. Lahmam-Bennani, M. Lecas and L. Spielberger J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 30 3677 (1997)

[10] A. Lahmam-Bennani, C. Dupré and A. Duguet Phys. Rev. Lett. 63 1582 (1989)

[11] J W. Cooper and R W. van Boeyen J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 37 L77 (2004)

[12] A. Naja, E M. Staicu-Casagrande, X G. Ren, F. Catoire, A. Lahmam-Bennani, C. Dal Cappello and C T. Whelan J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 40 2871 (2007)

[13] C. Dal Cappello and L U. Ancarani J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 41 208001 (2008)

[14] C. Tavard, C. Dal Cappello and M.C. Dal Cappello Chem. Phys. Lett. 113 541 (1985)

[15] S. Jones and D H. Madison Phys. Rev. Lett. 91 073201(2003)

[16] M. Grin, C. Dal Cappello, R E. Mkhanter and J. Rasch J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 33 131 (2000)

[17] A. Kheifets 2004 Phys. Rev. A 69 032712 (2000)

[18] N. Watanabe, J W. Cooper, R W. van Boeyen, J P.Doering, J H. Moore and M A. Coplan J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 37 4551 (2004)

[19] Z. AitElhadjAli. Thèse de doctorat, Université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou (2017)

[20] B. Joulakian and C. Dal Cappello Phys. Rev. 47 3788 (1993)

[21] A. Lahmam-Bennani, A. Duguet and S. Roussin J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 35 L59 (2002)

[22] E. M. Staicu Casagrande1, C. Li1, A. Lahmam-Bennani and C. Dal Cappello J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 47 115203 (2014)

[23] C. Li, A. Lahmam-Bennani, E. M. Staicu Casagrande, C. Dal Cappello J. Phys B: At, Mol. Opt Phys. 44 115201 (2011).

[24] A.O. Bawagan, R. Muller-Fiedler, C.R. Brion, E.R. Davidson et C. Boyle J. Chem. Phys. 120 335 (1988)

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

Dans ce travail, nous avons présenté des résultats théoriques sur la double ionisation par impact d'électrons pour les atomes de l'argon et du néon et la molécule d'ammoniac.

Dans la première partie, nous avons étudié la double ionisation des atomes pour une énergie incidente élevée et intermédiaire nous avons proposé pour cela des modèles incluant la corrélation à l'état initial de la cible et à l'état final. La description des électrons éjectés par des ondes distordues améliore considérablement l'accord avec l'expérience. Le modèle 2DWSR décrit une grande partie des résultats expérimentaux, mieux que le modèle 2DWG et surtout mieux que le modèle 2CWGSR. Il reste cependant plusieurs désaccords théorie-expérience dû probablement à plusieurs causes.

L'expérience n'est pas en mesure de savoir si tel ou tel état de l'ion doit être pris en compte. Néanmoins, ce qui est certain pour l'instant, c'est les contributions des états ioniques ^{3}P et ^{1}D qui demeurent les plus importantes, mais on ne sait pas dans quelles proportions. Il faut aussi rappeler que les expériences (de El-Marji [1] et Schröter et al [2]) ont été réalisées il y a plus de 20 ans et il est dommage qu'elles n'aient pas été poursuivies. En particulier, de nouvelles expériences devraient pouvoir séparer la contribution de chaque état de l'ion.

En revanche, la corrélation prise en compte à l'état initial est loin d'être suffisante et mérite d'être améliorée. Les résultats de l'étude $\sigma^5 = f(\theta_1, \theta_2)$ confirment les mécanismes réactionnels dominants trouvés dans les premières études, également les résultats de la 4DCS montrent aussi que la distorsion améliore l'accord avec l'expérience.

Nous avons appliqué le modèle BBK dans le cas de l'argon mais on a trouvé un fort désaccord avec les résultats expérimentaux. En particulier, l'amplitude du FDCS est 1000 fois trop grande. Ce résultat est surprenant car le modèle BBK a donné un accord raisonnable pour la double ionisation de l'hélium pour des conditions expérimentales similaires. L'utilisation de l'un des deux facteurs du BBK approximé (GAMOW ou WARD et MACEK) ne fait pas une grande différence en terme de l'allure de la FDCS pour tous les modèles (les résultats des deux facteurs sont presque identique à un facteur près).

Ainsi, un modèle incluant BBK avec deux ondes distordues et éventuellement le potentiel de courte portée entre l'électron incident et la cible serait certainement un bon candidat pour améliorer l'accord théorie-expérience..

Dans la deuxième partie, nous avons présenté notre étude sur la double ionisation de la molécule d'ammoniac des deux orbitales $1e_x$ et $3a_1$ par impact d'électrons de haute énergie, à l'aide du modèle 2CWG. Après une comparaison de la distribution spatiale, de la FDCS calculée par notre modèle pour une orientation (0.0.0) fixe dans l'espace, avec les résultats de Ait Elhadj Ali [3], nous avons présenté une étude des propriétés de la molécule d'ammoniac et en particulier nous avons effectué plusieurs comparaisons afin de trouver les situations cinématiques les plus favorables. Ceci pourrait servir pour une éventuelle expérience dans le futur.

Les résultats de la $\boldsymbol{\sigma^5 = f(\theta_1, \theta_2)}$, dans les conditions de la référence [4] en fonction des rapports des énergies de double ionisation montre que l'amplitude de la FDCS est plus importante pour les rapports $E_1 \,/\, E_2$; nous avons fixé $E_1 + E_2 = 20\, eV$. Cette étude montre aussi que l'émission suivant la direction du moment de transfert joue un rôle assez important dans la structure de la FDCS contrairement aux études de [4].

Nous avons conclu notre étude par le calcul de la 4DCS. Cette étude confirme les résultats obtenus dans les études précédentes. Cette étude montre aussi que l'orbitale $3a_1$ a un caractère de type p qui est compatible avec la théorie [5]. Les résultats obtenus de cette étude montrent que les situations : $(E_1, E_2) = (12, 37)\, eV$ et $(E_1, E_2) = (12, 12)\, eV$ de l'orbitale $3a_1$ sont très similaires aux données expérimentales de [6] contrairement à la situation : $(E_1, E_2) = (37{,}37)\, eV$.

Références bibliographiques

[1] B. El Marji, C.Schröter, A. Duguet, A. Lahmam-Bennani, M. Lecas and L. Spielberger J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 30 3677(1997)

[2] C. Schröter, B. El Marji, A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, M. Lecas and L. Spielberger J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 31 131(1998)

[3] Z. AitElhadiAli. Thèse de doctorat, Université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou (2017)

[4] I. Kada, A. Mansouri, C. Dal Cappello, P. A. Hervieux and A. C. Roy J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 42 025201 (2009)

[5] A.O. Bawagan, R. Muller-Fiedler, C.R. Brion, E.R. Davidson et C. Boyle J. Chem. Phys. 120 335 (1988)

[6] E. M. Staicu Casagrande1, C. Li1, A. Lahmam-Bennani and C. Dal Cappello J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 47 115203 (2014)

Annexe A : Calcul de la charge variable et du potentiel de courte portée

Pour calculer la charge variable Z(r) on utilise le potentiel statique V_{stat} de la cible vue par l'électron éjecté. Dans le cas des atomes, le potentiel V_{stat} est donné par :

$$V_{stat}(\vec{r}_j) = -\frac{Z}{r_j} + \sum_{i=1}^{N_0} N_i \int \frac{|\varphi_i(\vec{r})|^2}{|\vec{r} - \vec{r}_j|} d\vec{r} \quad (A.1)$$

Où : j = 1, 2 et i ≠ j. Z est la charge du noyau, N_0 est le nombre d'orbitales atomiques de la cible, N_i est le nombre des électrons dans l'orbitale i et $\varphi_i(\vec{r})$ représente la fonction d'onde de l'électron lié. On note que $V_{stat}(\vec{r}_j)$ est un potentiel anisotrope et difficile à traiter, pour cela nous utilisons un potentiel plus pratique, dit potentiel radial moyenné $U_m(r_j)$:

$$U_m(r_j) = \frac{1}{4\pi} \int V_{stat}(\vec{r}_j) d\Omega_j$$

Les fonctions d'ondes $\varphi_i(\vec{r})$ sont écrites sous la forme d'une combinaison linaires des fonctions de type Slater telles que :

$$\varphi_i(\vec{r}) = \sum_k a_{ik} \varphi_{n_{ik} l_{ik} m_{ik}}^{\epsilon_{ik}}(\vec{r}) \quad (A.2)$$

Avec :

$$\varphi_{nlm}^{\epsilon}(\vec{r}) = N_n r^{n-1} e^{-\epsilon r} Y_{lm}(\Omega) \quad (A.3)$$

Ce qui donne :

$$\int \frac{|\varphi_i(\vec{r})|^2}{|\vec{r} - \vec{r}_j|} d\vec{r} = \sum_{k,k'} a_{ik} a_{ik'} \int \varphi_{n_{ik} l_{ik} m_{ik}}^{\epsilon_{ik}*}(\vec{r}) \varphi_{n_{ik'} l_{ik'} m_{ik'}}^{\epsilon_{ik'}}(\vec{r}) \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}_j|} d\vec{r} \quad (A.4)$$

Le problème revient donc à calculer les éléments de type :

$$T_{12}(\vec{r}_j) = \left\langle \varphi_{n_1 l_1 m_1} \middle| \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}_j|} \middle| \varphi_{n_2 l_2 m_2} \right\rangle \quad (A.5)$$

En utilisant le développement multipolaire :

$$\frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}_j|} = \sum_{l,m} \frac{4\pi}{2l+1} \frac{r_<^l}{r_>^{l+1}} Y_{lm}^*(\Omega) Y_{lm}(\Omega_j) \quad (A.6)$$

Où :

$$\frac{r_<^l}{r_>^{l+1}} = \begin{cases} \frac{r_j^l}{r^{l+1}} & \text{si } r_j < r \\ \frac{r^l}{r_j^{l+1}} & \text{si } r_j > r \end{cases} \quad (A.7)$$

L'équation (A.5) devient :

$$T_{12}(\vec{r}_j) = \int \frac{1}{|\vec{r}-\vec{r}_j|} \varphi^*_{n_1 l_1 m_1}(\vec{r}) \varphi_{n_2 l_2 m_2}(\vec{r}) d\vec{r}$$

$$= N_{n_1} N_{n_2} \sum_{l,m} Y^*_{lm}(\Omega_j) \frac{4\pi}{2l+1} \int_0^\infty \frac{r_<^l}{r_>^{l+1}} r^{n_1+n_2-2} e^{-(\epsilon_1+\epsilon_2)r} r^2 dr$$

$$\int Y^*_{l_1 m_1}(\Omega) Y^*{}_{l_2 m_2}(\Omega) Y_{lm}(\Omega) d\Omega \qquad \text{(A.8)}$$

En posant $n = n_1 + n_2$et $\epsilon = \epsilon_1 + \epsilon_2$ on trouve pour l'intégrale radiale:

$$I_l(r_j) = \int_0^\infty \frac{r_<^l}{r_>^{l+1}} r^n e^{-\epsilon r} dr = \int_0^{r_j} \frac{r^l}{r_j^{l+1}} r^n e^{-\epsilon r} dr + \int_{r_j}^\infty \frac{r_j^l}{r^{l+1}} r^n e^{-\epsilon r} dr$$

$$= \frac{1}{r_j^{l+1}} \int_0^{r_j} r^{n+l} e^{-\epsilon r} dr + r_j^l \int_{r_j}^\infty r^{n-l-1} e^{-\epsilon r} dr \qquad \text{(A.9)}$$

L'équation (A.9) devient :

$$I_l(r_j) = \frac{1}{r_j^{l+1}} \left(\frac{n!}{\epsilon^{n+1}} - e^{-\epsilon r_j} \sum_{k=0}^{n+l} \frac{(n+l)!}{k!} \frac{r_j^k}{\epsilon^{n+l-k+1}} \right)$$

$$+ r_j^l . \begin{cases} e^{-\epsilon r_j} \sum_{k=0}^{n-l-1} \frac{(n-l-1)!}{k!} \frac{r_j^k}{\epsilon^{n-l-k}} & \text{si } l \leq n-1 \\ (-1)^{l-n+1} \frac{\epsilon^{l-n}}{(l-n)!} Ei(-\epsilon r_j) + \frac{e^{-\epsilon r_j}}{\epsilon^{l-n}} \sum_{k=0}^{l-n-1} (-1)^k \frac{(l-n-k-1)!}{(l-n)!} r_j^k \epsilon^k & \text{si } l > n-1 \end{cases} \qquad \text{(A.10)}$$

Donc, on peut écrire l'équation (A.8) sous la forme :

$$T_{12}(\vec{r}_j) = N_{n_1} N_{n_2} \sum_{l,m} Y^*_{lm}(\Omega_j) \frac{4\pi}{2l+1} I_l(r_j) J^{m_1 m_2 m}_{l_1 l_2 l} \qquad \text{(A.11)}$$

En effectuant une moyenne angulaire pour avoir un potentiel à symétrie sphérique :

$$\mathcal{T}_{12}(r_j) = \frac{1}{4\pi} \int T_{12}(\vec{r}_j) d\Omega_j = N_{n_1} N_{n_2} \sum_{l,m} \int Y^*_{lm}(\Omega_j) d\Omega_j \frac{1}{2l+1} I_l(r_j) J^{m_1 m_2 m}_{l_1 l_2 l} \qquad \text{(A.12)}$$

L'équation (A.12) devient :

$$\mathcal{T}_{12}(r_j) = \sqrt{4\pi} N_{n_1} N_{n_2} I_0(r_j) J^{m_1 m_2 0}_{l_1 l_2 0} \qquad \text{(A.13)}$$

et $I_0(r_j)$ est donnée:

$$I_0(r_j) = \frac{1}{r_j} \left(\frac{n!}{\epsilon^{n+1}} - e^{-\epsilon r_j} \sum_{k=0}^{n} \frac{n!}{k!} \frac{r_j^k}{\epsilon^{n-k+1}} \right) + e^{-\epsilon r_j} \sum_{k=0}^{n-1} \frac{(n-1)!}{k!} \frac{r_j^k}{\epsilon^{n-k}}$$

$$= \frac{n!}{r_j \epsilon^{n+1}} \left(1 - e^{-\epsilon r_j} \sum_{k=0}^{n} \frac{1}{k!} (\epsilon r_j)^k + e^{-\epsilon r_j} \sum_{k=0}^{n-1} \frac{1}{k!n} (\epsilon r_j)^{k+1} \right)$$

$$= \frac{n!}{r_j \epsilon^{n+1}} \left(1 - e^{-\epsilon r_j} \left[\sum_{k=1}^{n} \frac{1}{k!} (\epsilon r_j)^k - \sum_{k=0}^{n-1} \frac{1}{k!n} (\epsilon r_j)^{k+1}\right]\right) \qquad (A.14)$$

Donc :

$$I_0 = \frac{n!}{r_j \epsilon^{n+1}} \left(1 - e^{-\epsilon r_j} \sum_{k=0}^{n-1} \frac{(n-k)}{k} \frac{1}{k!} (\epsilon r_j)^k\right) \qquad (A.15)$$

En remplaçant l'équation (A.15) dans l'équation (A.13), on obtient :

$$\mathcal{T}_{12}(r_j) = N_{n_1} N_{n_2} \delta_{l_1 l_2} \delta_{m_1 m_2} \frac{n!}{r_j \epsilon^{n+1}} \left(1 - e^{-\epsilon r_j} \sum_{k=0}^{n-1} \frac{(n-k)}{k} \frac{1}{k!} (\epsilon r_j)^k\right) \qquad (A.16)$$

La moyenne par rapport aux variables angulaires de l'équation (A.4) donne :

$$(A.4) = \frac{1}{4\pi} \int \left(\sum_{k,k'} a_{ik} a_{ik'} \int \varphi^{\epsilon_k *}_{n_k l_k m_k}(\vec{r}) \varphi^{\epsilon_{k'}}_{n_{k'} l_{k'} m_{k'}}(\vec{r}) \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}_j|} d\vec{r} \right) d\Omega_j = \sum_{k,k'} a_{ik} a_{ik'} \mathcal{T}_{kk'}(r_j)$$

$$(A.4) = \sum_{k,k'} a_{ik} a_{ik'} N_{n_k} N_{n_{k'}} \delta_{l_k l_{k'}} \delta_{m_k m_{k'}} \frac{n_{kk'}!}{r_j \epsilon_{kk'}^{n_{kk'}+1}} \left(1 - e^{-\epsilon_{kk'} r_j} \sum_{s=0}^{n_{kk'}-1} \frac{(n_{kk'}-s)}{s} \frac{1}{s!} (\epsilon_{kk'} r_j)^s\right) \qquad (A.17)$$

En utilisant la propriété d'orthonormalisation dans l'équation précédente (A.17) :

$$(A.17) = \frac{1}{r_j} - \sum_{k,k'} a_{ik} a_{ik'} N_{n_k} N_{n_{k'}} \delta_{l_k l_{k'}} \delta_{m_k m_{k'}}$$

$$\frac{n_{kk'}!}{r_j \epsilon_{kk'}^{n_{kk'}+1}} e^{-\epsilon_{kk'} r_j} \sum_{s=0}^{n_{kk'}-1} \frac{(n_{kk'}-s)}{n_{kk'}} \frac{1}{s!} (\epsilon_{kk'} r_j)^s \qquad (A.18)$$

On obtient donc le potentiel radial moyenné U_m :

$$U_m(r_j) = \frac{1}{4\pi} \int V_{stat}(\vec{r}_j) d\Omega_j = \frac{1}{4\pi} \int \left(-\frac{z}{r_j} + \sum_{i=1}^{N_0} N_i \int \frac{|\varphi_i(\vec{r})|^2}{|\vec{r} - \vec{r}_j|} d\vec{r} \right) d\Omega_j$$

$$= \frac{Z_0}{r_j} + \sum_i N_i \left(\frac{1}{r_j} - \sum_{k,k'} a_{ik} a_{ik'} N_{n_{ik}} N_{n_{ik'}} \delta_{l_{ik} l_{ik'}} \delta_{m_{ik} m_{ik'}} \frac{n_{kk'}!}{r_j \epsilon_{kk'}^{n_{kk'}+1}} e^{-\epsilon_{kk'} r_j} \sum_{s=0}^{n_{kk'}-1} \frac{(n_{kk'}-s)}{s} \frac{1}{s!} (\epsilon_{kk'} r_j)^s \right) \qquad (A.19)$$

$$= \frac{Z_0}{r_j} + \sum_i N_i \sum_{k,k'} a_{ik} a_{ik'} N_{n_{ik}} N_{n_{ik'}} \delta_{l_{ik} l_{ik'}} \delta_{m_{ik} m_{ik'}} \frac{n_{kk'}!}{r_j \epsilon_{kk'}^{n_{kk'}+1}} e^{-\epsilon_{kk'} r_j} \sum_{s=0}^{n_{kk'}-1} \frac{(n_{kk'}-s)}{s} \frac{1}{s!} (\epsilon_{kk'} r_j)^s$$

(A.20)

On peut écrire ce potentiel sous la forme :

$$U(r_j) = -\frac{Z(r_j)}{r_j} \qquad (A.21)$$

Où $Z(r_j)$ est la charge variable donnée par :

$$Z(r_j) = Z_0 +$$

$$\sum_i N_i \sum_{k,k'} a_{ik} a_{ik'} N_{n_{ik}} N_{n_{ik'}} \delta_{l_{ik} l_{ik'}} \delta_{m_{ik} m_{ik'}} \frac{n_{kk'}!}{\epsilon_{kk'}^{n_{kk'}+1}} e^{-\epsilon_{kk'} r_j} \sum_{s=0}^{n_{kk'}-1} \frac{(n_{ik,ik'}-s)}{s} \frac{1}{s!} (\epsilon_{kk'} r_j)^s \qquad (A.22)$$

Le potentiel U_i peut écrit aussi en remplaçant r_j par r_0 sous la forme :

$$U_i(r_0) = -\frac{2}{r_0} + V_{SR} \tag{A.23}$$

Avec :

$$V_{SR} = \sum_i N_i \sum_{k,k'} a_{ik} a_{ik'} N_{n_{ik}} N_{n_{ik'}} \delta_{l_{ik} l_{ik'}} \delta_{m_{ik} m_{ik'}} \frac{n_{kk'}!}{r_0 \epsilon_{kk'}^{n_{kk'}+1}} e^{-\epsilon_{jk,jk'} r_0} \sum_{s=0}^{n_{kk'}-1} \frac{(n_{kk'}-s)}{S} \frac{1}{s!} (\epsilon_{kk'} r_0)^s \tag{A.24}$$

Ce potentiel est donné:

Pour le Néon par : $V_{SR} = \sum_{m=1}^{8} e^{-\epsilon_{jk,jk'} r_0} \left[\frac{A_m}{r_0} + B_m + C_m r_0 + D_m {r_0}^2 + E_m {r_0}^3 \right]$

Pour l'argon par : $V_{SR} = \sum_{m=1}^{18} e^{-\epsilon_{jk,jk'} r_0} \left[\begin{array}{c} \frac{A_m}{r_0} + B_m + C_m r_0 + D_m {r_0}^2 \\ + E_m {r_0}^3 + F_m {r_0}^4 + G_m {r_0}^5 + H_m {r_0}^6 \end{array} \right]$