



République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

UNIVERSITE Dr. TAHAR MOULAY - SAIDA

MEMOIRE

Présenté à :
FACULTE DES SCIENCES
DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

Pour l'obtention du Diplôme de :

MASTER

Spécialité: Physique Numérique

Par:

M^{me} DEROU Naïma

Sur le thème

Ionisation de la molécule d'eau par impact électronique

Soutenue le **14/06/2016** devant la commission d'examen:

M ^r ABBES Oukacha	Professeur	Université de Saïda	Président
M ^r LASRI Boumediene	Professeur	Université de Saïda	Encadreur
M ^r KOUIDRI Smain	Maître de Conférences A	Université de Saïda	Examinateur
M ^r Meskine Mohammed	Maître de Conférences B	Université de Saïda	Examinateur

Année Universitaire 2015-2016

Dédicaces

*J*l ne me sera jamais possible d'exprimer suffisamment ma gratitude à mes parents et ma famille, ils ont été mon soutien principal durant mes années d'études.

Sans eux jamais je n'aurais pas pu avoir la chance de terminer mes études.

Merci à ma mère qui suivait de près mon avancement depuis les classes les plus petites.

Une pensée à mon père il a tellement rêvé de nous voir toujours avancer vers le mieux mais, il nous a quitté , j'aimerais pouvoir lui dire que sa présence me manquait plus que jamais.

Je dédie ce travail à mon oncle Halimi Bentabet qui a était toujours à nos côtés.

Je dédie ce travail aussi à mon trésor ma petite fille Alla Radja qui a été et restera toujours mon rayon de soleil et ma source d 'espoir.

à mes frères Kada Barazoug et Mohamed el Amine

à mes sœurs Chahrazed, Mokhtaria, Soumia

à ma collègue Zaoui Najat qui ma encouragé de continuer mes études

à tous ceux qui m'aiment.

REMERCIEMENTS

Les remerciements sont souvent l'ultime étape d'un mémoire .Pour certains, cela reste une étape difficile pour trouver les mots, de peur d'oublier quelqu'un. Pour d'autres, ils' agit de la seul page ou l'on peut vraiment écrire ce qu'on veut dire en toute liberté. Je ne sais pas dans quelle catégorie me placée, mais je m'y mets avec un réel plaisir.

Je tiens en premier lieu à saluer et remercier Monsieur **LASRI BOUMEDIENE**, mon directeur de mémoire , je le remercie infiniment de m'avoir proposé ce sujet de mémoire de m'avoir encadré ,orienté, aidé, et conseillé .

Je vous témoigne donc ici ma profonde gratitude, mes vifs remerciements sont adressés à lui ,je tiens à lui dire que j'ai tellement appris , son calme , sa bonté , son aide à tout le monde , sa juste appréciation des événements et tes conseils précieux ont ma sure dans les périodes de doutes.

Je remercie **M^r Oukacha Abbes**, Professeur à l'université Dr Tahar Moulay –Saida- , d'avoir accepté de présider le jury de ce mémoire.

Je remercie également **M^r Kouidri Smain**, maître de conférences B à l'université Dr Tahar Moulay –Saida- ainsi que **M^r Meskine Mouhamed**, maître de conférences B à l'université Dr Tahar Moulay d'avoir bien voulu examiner mon travail.

Je remercie **M^{me}. Labani Fatima** pour ses conseils et ses aides précieuses, et ses encouragements.

Je souhaiterais adresser mes remerciements les plus sincères à tous mes professeurs et enseignants sans eux j'en aurais pas pus réussir mes études.

J'adresse mes amitiés à mes collègues d'étude. En fin, j'exprime mes sincères remerciements à tous ceux qui ont participé de près ou de loin à la réalisation de ce travail.

Table des matières

Introduction générale.....	01
Chapitre I: Généralités sur la théorie des collisions atomique et moléculaire.....	05
I-1 Introduction.....	05
I-2 Elément théorique de la collision.....	07
I-2-1 : l'ionisation.....	07
I-2-2 : l'excitation.....	07
I-2-3 : la capture électronique.....	07
I-3 L'approximation de Born.....	08
I-3-1 commentaire sur la validité de l'approximation de Born.....	10
I-4 L'approximation iconale.....	10
I-5 Approximation de Born aux ondes distordues.....	11
I-6 Modèle convergent close coupling (CCC).....	12
I-7 Ionisation. terminologie et notion.....	12
I-7-1 le processus de simple ionisation (e,2e).....	13
I-8 Sections efficaces d'ionisation.....	14
I-8-1 Sections efficaces triplement différentielle (SETD).....	16
I-8-2 Section efficace doublement différentielle (SEDD).....	16
I-8-3 Section efficace simplement différentielle (SESD).....	17
I-9 Références.....	18
Chapitre II: Ionisation de la cible atomique et moléculaire par impact électronique...20	20
II-1 Introduction.....	20
II-2 Calcul de la section efficace différentielle.....	23
II-2-1 Cas d'une cible atomique	23
a-Cas un seul électron actif.....	24
b-Cas de deux électrons actif.....	24
II-2-2 Cas d'une cible moléculaire.....	26
II-3 Principe Variationnelle de Schwinger.....	27
II-4 Références.....	30

Chapitre III: Ionisation de la molécule d'eau par impact électronique.....	31
III-1 Introduction.....	31
III 2- description de la molécule d'eau.....	33
III 2-1- description physique de la molécule de l'eau.....	33
III 2-2- description des états liés de la cible H ₂ O.....	34
III-3 : Formalisme théorique.....	35
III-4 : Résultats et discussions.....	37
III-5 Références.....	50
Conclusion générale.....	51

Introduction Générale



'étude des processus d'ionisation simple de cible atomique ou moléculaire par impact de particules chargées, et plus particulièrement par impact électronique est l'un des domaines les plus importants dans la physique des collisions atomiques. Ce processus intervient dans différents domaines comme la physique des plasmas (transfert d'énergie au sein de plasmas chauds), l'astrophysique (la formation d'objets cosmologiques) et radiobiologie. L'analyse des informations qu'apportent ces études joue un rôle essentiel aussi bien pour à la compréhension de la structure de la matière que de la dynamique de la collision. Cependant, et durant plusieurs années, la majorité des travaux théoriques et expérimentaux antérieurs dédiés aux collisions électroniques ne concerne que des molécules diatomiques simples (H_2, O_2, \dots), les molécules polyatomiques plus complexes ayant été moins étudiées.

La réaction ($e, 2e$) dite d'ionisation simple réfère spécifiquement à une expérience dans laquelle un électron projectile provoque une ionisation simple en arrachant un électron à la cible. Les deux électrons sortants sont analysés en énergie et en direction et sont détectés en coïncidence pour garantir qu'ils proviennent du même événement ionisant. La grandeur physique ainsi mesurée est la section efficace triplement différentielle, qui contient l'information la plus complète et la plus détaillée sur le processus d'ionisation.

L'étude du processus d'ionisation par impact électronique s'est notamment développée avec l'évolution des techniques expérimentales. En effet, les expériences de simple ionisation ont débuté par les expériences de J.J Thomson en 1912 [1] puis par Langmuir et Jones en 1928 [2] qui ont étudié la collision d'électrons avec les molécules N_2 et H_2 et Rudberg (1930) [3] qui a mesuré l'énergie perdue lors de l'ionisation de la

molécule N₂ par impact d'électrons. Ces auteurs se sont intéressés plus particulièrement à l'analyse de la dépendance en énergie incidente des sections efficaces totales d'ionisation. Les premières expériences dites (e,2e) dans lesquelles on détecte en coïncidence les électrons diffusé et éjecté résultant de l'ionisation simple par impact électroniques sont réalisées simultanément en 1969, Ehrhardt *et al.* [4] et Amaldi *et al.* [5]. Elles visaient à étudier la distribution angulaire des électrons éjectés respectivement au cours de l'ionisation de l'atome d'hélium et d'un film mince de carbone dans le cadre d'une géométrie coplanaire et dans des conditions cinématiques asymétriques pour Ehrhardt et symétriques pour Amaldi

Parallèlement à ces développements expérimentaux, une série de travaux théoriques a développé le formalisme quantique de ces processus. Les premiers calculs quantiques de sections efficaces ont été effectués par Bethe (1930) [6] et par Massey et Mohr (1933) [7]. Ils ont réussi à établir la base de la description de l'ionisation en utilisant l'approximation de Born. Peterkop en 1960 [8], puis Rudge et Seaton (1964,1965) [9,10] ont développé une théorie générale de l'ionisation permettant d'obtenir une représentation intégrale de l'amplitude de diffusion à partir des solutions asymptotiques de l'équation de Schrödinger décrivant les deux électrons émergeants et l'ion résiduel en interactions mutuelles dans la voie finale.

L'objectif principal de ce travail théorique consiste à l'application du Formalisme Variationnel à l'Ionisation de la Molécule d'Eau H₂O par impact électronique. L'eau qui constitue la composante principale de la matière biologique, ce qui fait de cette molécule une cible très intéressante pour étudier les processus d'interaction des radiations avec les tissus vivants.

Plusieurs simulations numériques de ces processus ont besoins d'ensembles précis de sections efficaces d'ionisation de la molécule d'eau. Pour cette raison, plusieurs activités théoriques et expérimentales sont focalisées sur l'évaluation des sections efficaces de l'ionisation de la molécule d'eau par impact de particules chargées. Notre participation à ces activités est le développement d'un formalisme variationnel pour étudier l'ionisation simple de cette molécule. Le modèle utilisé dans ce travail est connu par le formalisme variationnel de Schwinger. Ce formalisme a été utilisé pour étudier les processus d'excitation où il a fait preuve de sa précision et sa puissance.

Le principe variationnel de *Schwinger* a été originalement proposé pour calculer le déphasage de diffusion mais il a été modifié pour calculer les éléments de la matrice de transition qui est liée aux sections efficaces de diffusion.

La puissance du principe variationnel de *Schwinger* réside dans le fait qu'avec un seul élément des deux premiers termes du développement de Born et avec une bonne approximation des états initial et final on peut obtenir une valeur de l'amplitude de transition proche de la valeur exacte.

Le formalisme variationnel de *Schwinger* a été appliqué pour la première fois par Lucchese et McKoy [11] à la diffusion d'électrons par l'atome d'hélium. Cette méthode a été appliquée par Brendlé et al. [12] à l'étude des processus avec des noyaux nus aux énergies intermédiaires.

Afin d'étudier l'excitation électronique d'ions d'hydrogénoides très chargés par impact d'ions aux énergies intermédiaires, Bouamoud et Gayet [13] et Lasri et al. [14,15,16] ont développé une nouvelle approche basée sur la forme fractionnaire du principe variationnel de *Schwinger* en utilisant l'approximation iconale (eikonale approximation). Ces procédures prédisent également et avec succès la saturation des sections efficaces totales lorsque la charge du projectile augmente. Ces diverses caractéristiques sont bien illustrées par un bon accord entre les résultats théoriques quand la fonction d'onde est assez bien représentée (5, 10 et 14 états de base) et les résultats expérimentaux comme ceux de l'excitation de l'atome d'hydrogène et des ions hydrogénoides Li^{2+} , Be^{3+} par impact de protons ainsi que ceux des ions Ar^{16+} , Fe^{24+} , Kr^{34+} , Xe^{52+} par impact de divers noyaux de charge Z_p .

L'étude de l'ionisation simple d'une cible moléculaire est plus compliquée que l'étude d'une cible atomique. En plus, il est indispensable de vérifier la précision d'un nouveau formalisme en considérant d'abord des cibles atomiques de structure atomique simple comme l'atome d'hydrogène ou l'hélium avant de l'utiliser dans l'étude de cibles atomiques ou moléculaires de structures électronique plus compliquées. C'est le cas du formalisme variationnel de *Schwinger* qui malgré sa puissance on ne trouve que les travaux de Das et al. [17,18] et de Chakrabarti [19] qui ont utilisé ce formalisme pour étudier l'ionisation simple de l'atome d'hydrogène par impact d'électron et de positron et ceux publiés récemment par Sahlaoui et al. pour l'ionisation de l'atome d'hydrogène et

d'helium ainsi que les molécule de structure chimiques XH_n par impact électronique [20-22].

Ce travail est organisé de la manière suivante :

Après une brève introduction, nous exposons dans **un premier chapitre** les principales approches théoriques et des divers travaux effectués jusqu'à présent sur les processus de collisions atomiques et principalement l'ionisation des molécules par impact électronique. Nous donnons une définition détaillée de la théorie de la réaction (e,2e) dans laquelle un électron incident avec une grande énergie entre en réaction avec une cible atomique, ou moléculaire, et sort rapidement tout en arrachant un électron de la cible et en l'emportant avec lui dans son mouvement de diffusion. On présente également les notions de sections triplement, doublement et simplement différentielles et la matrice de transition.

Dans **le deuxième chapitre**, on traite avec détail l'ionisation d'une cible atomique puis moléculaire de type XH_n par impact électronique dans le cadre de la première, la deuxième approximation de Born et dans le cadre du principe variationnel de Schwinger.

Le dernier chapitre (III), représentant le vif du sujet, a été consacrée à l'application de ces formalismes (Born-I, Born-II et Schwinger) afin de calculer les sections efficaces triplement différentes de l'ionisation par impact électronique de la molécule d'eau (H_2O).

Ce mémoire est clôturé par une conclusion générale et des perspectives pour de futurs travaux dans cette thématique.

Références

- [1]. J.J. Thomson, London, Edinburgh and Dublin Philos, Mag. J. Sci, 1912,24, 209-253.
- [2]. Langmir J J and Jones T 1928 Phys. Rev. 31 357.
- [3]. Rudberg E 1930 Proc. Roy. Soc. London A 129 628
- [4]. Ehrhardt H, Schulz M, Tekaat T and Willmann K 1969 Phys. Rev.Lett. 22 89.
- [5]. Amaldi Jr U, Egidi A, Marconero R and Pizella G 1969 Rev. Sci. Instrum. 40 1001.
- [6]. H. A. Bethe, Ann. Phys. Lpz 5, 325 (1930).
- [7]. H. S. W. Massey and C. B. O. Mohr, Proc. Roy. Soc. A 140, 613 (1933).
- [8]. R.K. Peterkop, Latvijas PSR Zenatnu akademijas vestis 9 , 79-84
- [9]. Rudge, M. R. H., Seaton, M.J. : Proc. Roy. Soc. 83, 680 (1964).
- [10]. R. R. Lucchese et V. McKoy, J. Phys. B 12 (1979) L421.
- [11]. B. Brendlé, R. Gayet et K. Woher, Phys. Rev. Lett. 54 (1985) 2007
- [12]. R. Gayet and M. Bouamoud, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 42 (1989) 515-522
- [13]. B. Lasri, M. Bouamoud and R. Gayet , Physical and Chemical News Journal. Volume 20, November 2004, p. 12 -17.
- [14]. B. Lasri , A. Bouserhane, M. Bouamoud and R. Gayet, Physical and Chemical News Journal, Volume 28, Mars 2006, p. 97-102.
- [15]. B. Lasri , M. Bouamoud and R. Gayet, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, Volume 251, issue 1, July 2006, p. 62-77.
- [16]. Das J N, Dey A and Chakrabarti K. Aust. J. Phys. 47, 751 (1994). 72, 73
- [17]. Das J N, Dey A and Chakrabarti K. Pramana. J. Phys. 45, 41 (1995). 72
- [18]. Chakrabarti K. Pramana. J. Phys. 58, 529–536 (2002). 72, 74.
- [19]. Sahlaoui M and Bouamoud M. Can. J. Phys. 88, 905–910 (2010). 32
- [20]. Sahlaoui these de Doctorat. Université de Tlemcen (2013).
- [21]. M. Sahlaoui, M. Bouamoud, B. Lasri, and M. Dogan, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 46 (2013) 115206 (6pp).
- [22]. M. Sahlaoui, B. Lasri and M. Bouamoud, Canadian Journal of Physics, 2014, 92(2): 136-140, 10.1139/cjp-2013-0342

Chapitre I

Généralités sur la théorie des collisions atomiques et moléculaires

I-1. Introduction

Dans plusieurs domaines de la physique, l'étude de la collision entre un atome cible et un projectile constitue une source d'information très importante et originale de la structure atomique et moléculaire. Cela présente de plus un grand intérêt aussi bien fondamental que pratique pour la compréhension de nombreux phénomènes naturels notamment pour la physique des plasmas et la fusion thermonucléaire.

En astrophysique par exemple, les mécanismes élémentaires d'interaction (capture, ionisation, excitation) interviennent lors de la formation d'objets cosmologiques tels que les disques d'accrétion autour des trous noirs [1][2].

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

La connaissance de ces mécanismes permet ainsi d'analyser les phénomènes galactiques. Dans le domaine de la fusion thermonucléaire, l'étude des phénomènes d'ionisation et d'excitation est fondamentale pour le développement de la physique des

plasmas de fusion, dans lesquels les collisions conduisent à la production d'ions excités dont la désexcitation se traduit par l'émission de rayons X [3][4]. Grâce à des méthodes performantes de spectroscopie, il est possible d'obtenir une estimation précise de la densité, de la température ainsi que la mise en évidence des processus de transfert d'énergie au sein de ces plasmas chauds [5], et par conséquent la notion de section efficace totale est fondamentale.

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

I-2. élément théorique de la collision :

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

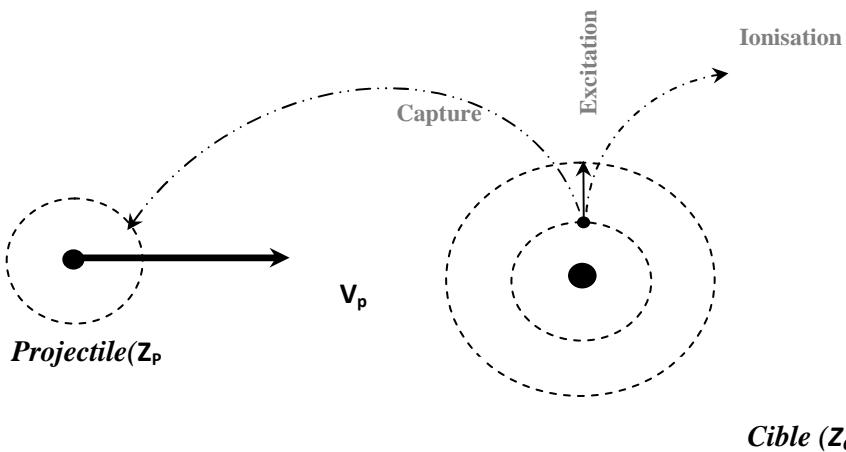


Figure I- 1 : Les processus atomiques mono électroniques élémentaires

- **l'ionisation :** si l'interaction est assez intense, le transfert d'énergie peut être suffisant pour arracher un électron de l'atome cible, c'est le phénomène d'ionisation.
- **l'excitation :** si l'interaction est insuffisante pour créer une ionisation, il y a seulement excitation, processus par lequel un atome passe d'un niveau d'énergie à un niveau plus élevé.
- **la capture électronique :** une troisième type de processus consiste en la capture d'un électron de l'atome cible par le projectile. Ce processus intervient surtout lors d'irradiation en ions lourds.

Notons, que durant très longtemps, l'étude expérimentale et théorique de la réaction ($e, 2e$) s'est largement limitée aux cas des atomes. L'atome qui a fait l'objet du plus grand nombre d'études est l'atome d'hélium. Celui-ci est l'atome multiélectronique le plus simple. Les méthodes les plus sophistiquées ont été utilisées pour essayer d'explorer la structure électronique des systèmes à deux électrons. Il s'est avéré que les prédictions théoriques sont très sensibles aux fonctions d'onde qui représentent les états liés de la cible ainsi qu'aux modèles collisionnels utilisés.

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

I-3. L'approximation de Born

L'approche développée par Born [6] pour le calcul des sections efficaces joue un rôle dominant dans l'étude des collisions atomiques et moléculaires. Au début, il faut noter que l'approximation de Born est essentiellement un développement perturbatif de la fonction d'onde ou de l'amplitude de diffusion, en puissance du potentiel d'interaction.

Dans cette approximation, on suppose que le potentiel diffuseur décrivant l'interaction coulombienne du projectile avec les différentes particules chargées de la cible est petit devant l'énergie totale de la cible et celle de l'électron incident (rapide) ou, en d'autres termes, l'électron incident d'une part, et la molécule cible d'autre part peuvent être considérés comme deux sous systèmes indépendant avant et après la collision. En fait,

cette séparation est justifiée à haute énergie où la vitesse de l'électron incident est supérieure par rapport à celles des électrons de la cible qui subissent le choc. La collision est alors considérée comme un problème stationnaire où chaque sous système passe de l'un de ses états propres à d'autres, et/ou la fonction d'onde du système projectile-cible se réduit au simple produit de deux fonctions d'onde du projectile et de la cible, que ce soit avant ou après la collision.

L'amplitude de diffusion est la quantité fondamentale que la série de Born va permettre de développer sous la forme

$$T = V + VG^0V + VG^0VG^0V + \dots \quad (I.1)$$

Ou sur une autre forme :

$$T = V + \left[\sum_{n=1} (VG^0)^n \right] V \quad (I.2)$$

V étant le potentiel d'interaction entre les deux sous systèmes qui pourra être considéré comme une perturbation à haute énergie. G représente l'opérateur ou le propagateur de Green pour l'électron libre. La première approximation de Born, utilisée dans cette thèse, consiste à retenir que le premier terme de ce développement, en négligeant les contributions des termes qui contiennent des puissances supérieure à celle de V donc :

$$T = V = - \sum_{a=1}^{N_e} \frac{Z_{N_a}}{|\vec{r} - \vec{r}_a|} + \sum_{j=1}^{N_e} \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}_j|} \quad (I.3)$$

où $|\vec{r} - \vec{r}_j|$ est la distance entre l'électron incident et l'électron j de la cible, $|\vec{r} - \vec{r}_a|$ la distance entre l'électron incident et les différents noyaux constituants la cible, Z_{N_a} est la charge du noyau (a) et N_e désigne le nombre des électrons de la cible. La validité et les limitations de l'approximation (I.3) peuvent être déterminées en interprétant les différents termes du développement (I.2). Le terme du premier ordre représente l'interaction simple de l'électron incident avec chacune des particules composant la cible. Les termes du n ième ordre, n ième interactions successives du projectile avec ces mêmes particules, avec entre chaque interaction une phase de propagation du projectile (opérateur G_0). Ainsi la première approximation de Born (FBA) n'est valable que dans la mesure où l'on se considère qu'une seule interaction du projectile avec la cible. C'est en général le cas pour les collisions ionisantes de cibles atomiques et moléculaires par des électrons quand les

vitesses de ces derniers sont très grandes par rapport à celles des électrons liés à la cible [7-9]. Dans le cas particulier des cibles moléculaires, la validité de la FBA a été vérifiée, dans un large domaine de variation du moment de transfert, dans le cas de l'ionisation de H₂ par impact d'électrons rapides ayant des énergies voisines de 4 keV [10].

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

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

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

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

I-4. L'approximation iconale:

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

L'approximation de Born au premier ordre (Born-I) est basée sur le fait que la collision s'effectue à faible interaction, par conséquent la fonction d'onde de diffusion $|\psi_{\alpha}^{+}\rangle$ diffère très peu de la fonction d'onde plane incidente. Si nous considérons une meilleure approximation de la fonction d'onde, celle-ci sera réalisée pour l'amplitude de transition. Une possible amélioration est alors l'approximation iconale, qui est valable aussi à haute énergie et aux petits angles de collision. Elle consiste à supposer que le

projectile se déplace en ligne droite et que le transfert d'impulsion de la cible est perpendiculaire à la trajectoire du projectile. L'idée de base dans cette méthode consiste en ce que la fonction d'onde incidente subisse un changement de phase sous l'influence du potentiel sur une trajectoire en ligne droite.

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

$$\psi(\vec{r}) = e^{ik'\cdot\vec{r}} \phi(\vec{r}) \quad (\text{I.4})$$

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

I-5. Approximation de Born aux ondes distordues

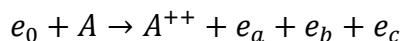
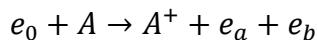
Comme l'interaction entre les électrons a une longue portée, alors la trace de l'effet des électrons de la cible sur les électrons incident (diffusé) et actif (éjecté) doit se trouver dans les fonctions d'ondes. L'approximation de Born aux ondes distordues (Distorted wave Born approximation DWBA) est basée sur cette idée. Dans ce cas l'électron incident est représenté par une onde distordue calculée par la résolution de l'équation de Schrödinger qui contient le potentiel de la cible, tandis que les électrons diffusé et éjecté sont représentés par des ondes distordues calculées par la résolution de l'équation de Schrödinger qui contient le potentiel de l'ion. Cependant, bien que cette approximation tienne compte de l'interaction des électrons libres avec les électrons de la cible elle reste une approximation de premier ordre puisque elle considère que le projectile n'interagit qu'une seule fois avec la cible. Quant l'énergie du projectile est basse, l'interaction avec les électrons de la cible n'est plus négligeable comme dans le cas de l'approximation de Born. La fonction d'onde du projectile subie alors l'effet d'un potentiel de distorsion avant et après la collision avec la cible. Ce potentiel est de courte portée et devient pratiquement nul au delà d'une certaine distance, et les électrons incident, diffusé et éjecté peuvent être représentés par des ondes distordues. Quant les énergies d'incidence et de diffusion sont très grandes, les effets de distorsion et d'échange deviennent faibles.

I-6. Modèle Convergent Close Coupling (CCC)

Le modèle CCC a été proposé par Massey et Mohr [11] qui ont donné un formalisme général pour traiter les processus d'excitation vers les états atomiques discrets. Successivement développé par différents auteurs [12–27]. Ce modèle est une approche complètement numérique qui consiste à développer la fonction d'onde totale sur des états de carré sommables. Cette méthode réussie [28] dans le traitement des transitions discrètes parce que les équations close-coupling mènent à une amplitude stationnaire pour une variation du développement de la fonction d'onde totale. Bray et Fursa [29] ont suggérés que l'extension de la méthode convergente close-coupling (CCC) donne également des amplitudes d'ionisation précises. Stelbovics [30], Bray et ses collaborateurs. [28,29, 31,32], Colgan et al. [33] et autres ont utilisés le formalisme close-coupling et ont réussi dans une certaine mesure à résoudre des problèmes à trois corps d'interaction de nature coulombienne, comme la collision d'un électron avec l'atome d'hydrogène et l'ionisation simple de l'atome d'hélium par impact d'électron. Leurs calculs étaient en bon accord dans la plupart des cas avec les valeurs expérimentales.

I-7. ionisation : terminologie et notion :

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



Où A représente la cible atomique ou moléculaire, A^+ et A^{++} les ions résiduels pour chaque processus. Les électrons incidents, diffusé et éjectés sont représentés respectivement par e_0, e_a, e_b et e_c et ont chacun une énergie E_j et une quantité de mouvement \vec{K}_j ($j=0, a, b, c$). Du point de vue quantique, les électrons émergeant après la collision sont indiscernables, les termes diffusé et éjecté sont donc équivalents.

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

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

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

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

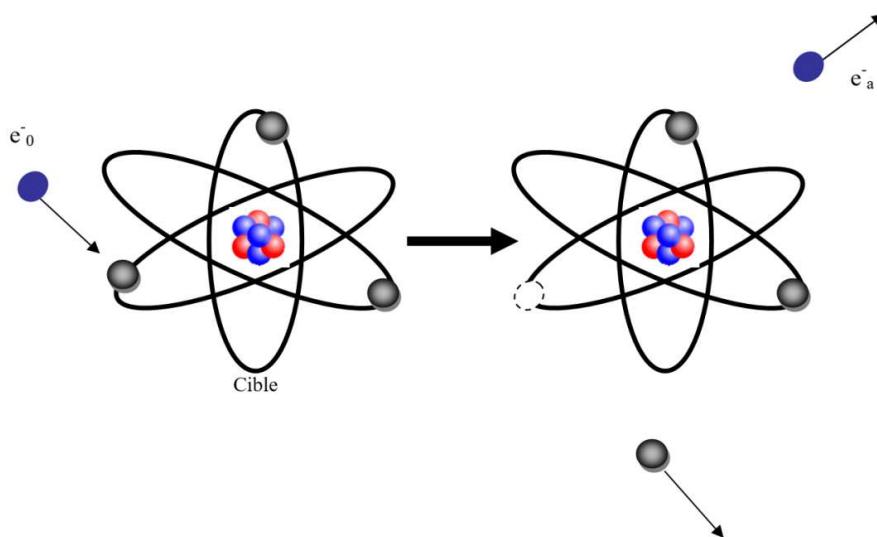
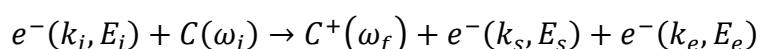


Figure I- 2 : Les processus de simple ionisation avec l'éjection d'un électron

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



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

Va s'éjecter avec un mouvement k_e et une énergie E_e dans une direction définie par les angles (θ_e, φ_e) .

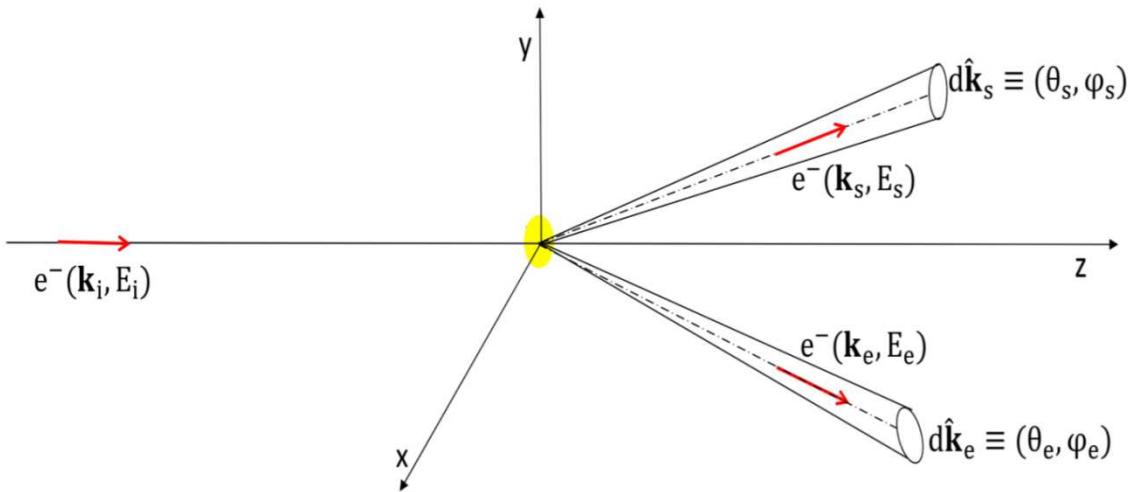


Figure I- 3 : Schéma de la réaction (e, 2e)

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

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

I-8 :sections efficaces d'ionisation :

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

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

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

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

Ainsi la condition de conservation d'énergie donne

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

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

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

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

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

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

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

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

Considérons le processus de diffusion dans lequel les électrons diffusés sont détectés. Le détecteur est localisé dans la direction $d\hat{k}_s = \sin\theta_s d\theta_s$ et détecte les électrons avec les énergies dans l'intervalle $[E_s, E_s + dE_s]$ la section efficace doublement différentielle de diffusion par une cible atomique

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

I-8-3 : Section efficace simplement différentielle :

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

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

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

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

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

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

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

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

si on s'intéresse à l'électron éjecté

Références

- [1]- C. P. Ballance, N. R. Badnell and K. A. Berrington, J. Phys. B. 34, 3287 (2001).
- [2]- A. D. Whiteford, N. R. Badnell, C. P. Ballance, S. D. Loch, M. G. O'Mullane and H. P. Summers, J. Phys. B 35, 3729 (2002).
- [3]- W. A. Schroeder, T. R. Nelson, A. B. Borisov, J. W. Longworth, K. Boyer and C. K. Rhodes, J. Phys. B 34, 297 (2001).
- [4]- J. Zeng, J. Yuan and Q. Lu, J. Phys. B 34, 2823 (2001).
- [5]- M. K. Inal and J. Dubau, J. Phys. B. 20, 4221 (1987).
- [6] Born M, Z. PhysK.38, 803 (1926).
- [7] Cavalli A and Avaldi L, Nuovo. Cimento. D. 16, 1-14, (1994).
- [8] Ehrhardt H, Jung K, Knoth G and Shlemmer P Z. Phys. D 13 (1986).
- [9] Lahmam-Bennani A, Wellenstein H F, Dal Cappello C and Duguet A J. Phys. B 17, 3159 (1984).
- [10] Houamer S. Thèse de doctorat (Algérie) 2004.
- [11] Massey H S W and Mohr C. Proc. Roy. Soc. A. 141, 434 (1933). 17, 20
- [12] Peterkop R K. Opt. Spectr. 13, 1220 (1961). 19
- [13] Peterkop R K. Theory of Ionization of Atoms by Electron Impact. Colorado Assoc. Univ.Press, Boulder, (1977). 19
- [14] Brauner M, Briggs J S and Klar H. J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. 22, 2265–2287 (1989). 19
- [15] Bray I, McCarthy I E, Mitroy J, and Ratnavelu K. Phys. Rev. A. 39, 4998 (1989). 20
- [16] Bray I, Madison D H and McCarthy I E. Phys. Rev. A. 41, 5916 (1990). 20
- [17] Bray I, Konovalov D A and McCarthy I E. Phys. Rev. A. 43, 1301 (1991). 20
- [18] Bray I, Konovalov D A and McCarthy I E. Phys. Rev. A. 43, 5878 (1991). 20
- [19] Bray I, Konovalov D A and McCarthy I E. Phys. Rev. A. 44, 5586 (1991). 20
- [20] Bray I, Konovalov D A and McCarthy I E. Phys. Rev. A. 44, 7179 (1991). 20
- [21] Bray I and McCarthy I E. Phys. Rev. A. 46, 5916 (1992). 20
- [22] Bray I and Stelbovics A T. Phys. Rev. Lett. 61, 53 (1992). 20

- [23] Bray I and Stelbovics A T. Phys. Rev. A. 46, 6995 (1992). 20
- [24] Bray I and Stelbovics A T. Phys. Rev. Lett. 70, 746 (1993). 20
- [25] Bray I, Fursa D V and McCarthy I E. Phys. Rev. A. 47, 1101 (1993). 20
- [26] Fursa D V and Bray I. Phys. Rev. A. 52, 1279 (1995). 20
- [27] Bray I Fursa D V. Phys. Rev. A. 54, 2991 (1996). 20
- [28] Bray I. Phys. Rev. Lett. 89, 273201 (2002). 20
- [29] Bray I, Fursa D V and Stelbovics A T. Phys. Rev. A. 63, 040702 (2001). 20
- [30] Stelbovics A T. Phys. Rev. Lett. 82, 1570 (1999). 20
- [31] Bray I., Bartschat K. Fursa D.V. and Stelbovics A.T. J. Phys. B. 36, 3425 (2003). 20
- [32] Bray I, Fursa D V and Stelbovics A T. Phys. Rev. A. 74, 034702 (2006). 20
- [33] Colgan J, Foster M, Pindzola M S, Bray I, Stelbovics A T and Fursa D V. J. Phys. B. 42, 145002 (2009). 21

Chapitre II

Ionisation de cible atomique et moléculaire par impact électronique

II-1. Introduction

Dans une collision électronique, un faisceau d'électrons entre en collision avec une cible atomique ou moléculaire. Notre but dans cette partie est d'établir un formalisme théorique dans le cadre de l'approximation de Born et l'approche variationnel de Schwinger avec lequel les sections efficaces peuvent être déterminées avec une bonne précision dans le domaine des énergies hautes et intermédiaires.

Byron et al.[1] et Pathak et Srivastava [2] sont les premiers à avoir appliqué la deuxième approximation de Born pour l'ionisation de l'atome d'hydrogène. Leurs résultats théoriques ont été comparés aux premières mesures expérimentales de Weigold et al. [3] sur la réaction ($e, 2e$). Pathak et Srivastava [2] ont également réalisé des calculs sur l'ionisation de l'atome d'hélium en employant l'approximation de fermeture et ont comparé leurs résultats théoriques avec les mesures expérimentales de Ehrhardt et al. [4]. Byron et al [5] eux aussi ont calculé la section efficace triplement différentielle (SETD) de l'ionisation de l'atome d'hélium en employant l'approximation de fermeture et leurs résultats ont été en désaccord avec ceux de Pathak et Srivastava [2]. Plus tard Byron et al. [6] ont appliqués la deuxième approximation de Born à l'ionisation de l'atome d'hydrogène en utilisant un petit nombre d'états discrets en tant qu'états intermédiaires et ont pris en compte l'approximation de fermeture pour considérer le reste des états

intermédiaires et ont ajoutés la contribution de la troisième approximation de Born calculée dans l'approximation de Glauber.

Comme première étape, et afin de déterminer les sections efficaces triplement différentielle (SETD) de l'ionisation d'une cible atomique nous allons présenter le formalisme théorique de l'approximation ainsi que celle de principe variationnel de *Schwinger*.

Dans le cas d'une cible atomique à plusieurs électrons, il est souvent difficile de traiter le problème de l'ionisation, c'est pour cette raisons des approximations sont utilisées. Pour rendre les calculs maniables nous allons travailler dans le cadre de l'approximation dite du cœur gelé (*frozen- core approximation*). Le fait que l'électron incident vient avec une grande vitesse, la réaction effectuée entre l'électron et la cible est considérée si rapide que l'état de la cible ne change que quant les deux électrons diffusé et éjecté sont très loin du centre de diffusion. En effet, la distribution des électrons du cœur peut être considérée comme pratiquement inchangée lors de la réaction. La dynamique de la réaction ($e, 2e$) ne dépend donc que du comportement des électrons libres. C'est sur cette propriété que se fonde l'approximation dite du cœur gelé qui consiste à considérer la réaction entre deux électrons dans le champ d'un ion de charge effective. L'avantage de cette approximation est que le nombre d'électrons apparaissant de manière explicite dans les calculs s'en trouve fortement réduit; seuls les électrons incident et actifs sont pris en compte. En effet, les électrons du cœur apparaissent toujours de manière implicite dans les fonctions d'ondes des états initiaux et finals. Récemment, l'application de la deuxième approximation de Born pour étudier l'ionisation simple et double d'une cible atomique a été étudiée en détails par *Dal Cappello et al.* [7]. Cette approximation a été appliquée aux systèmes atomiques simples notamment les atomes d'*hydrogène* et d'*hélium*, L'*atome d'hydrogène* a seulement un électron dans son orbitale et la fonction d'*onde* est exactement connue et l'*atome d'hélium* contient seulement deux électrons et la fonction d'*onde* peut être déterminée avec une grande précision en appliquant la méthode variationnelle.

Pour traiter l'interaction à longue portée entre l'électron éjecté et diffusé connue par l'interaction poste-collision (post-collision interaction (PCI)), nous avons introduit dans la SETD le facteur de *Gamow*. *Kheifets et al.* [8] ont prouvé que la SETD doit être corrigée par le facteur de *Gamow* pour traiter l'interaction poste-collision entre les électrons libres quand les énergies de ces particules sont comparables. Cette interaction a été achevée dans

le modèle dit de trois ondes de Coulomb (3C) présenté dans le chapitre précédent, connu aussi par le modèle BBK, présenté par Brauner et al. [9], où l'état final est décrit asymptotiquement par un produit de trois fonctions de Coulomb, deux fonctions d'ondes décrivent les deux électrons diffusé et éjecté et la troisième décrie l'interaction entre ces deux électrons. Cependant, décrire l'état final par la forme donnée par le modèle 3C complique considérablement les calculs analytiques et numériques. Le facteur de Gamow est le facteur de normalisation de la troisième fonction de Coulomb qui décrie l'interaction poste-collision entre les électrons. Kheifets et al. [8] ont prouvé que le plus grand effet de l'interaction poste-collision est contenu dans ce facteur. Le facteur de Gamow a une forme simple et souvent inclus dans les sections efficaces quand les particules sortent avec des énergies comparables. Ce facteur a été employé par Dal Cappello et al. [7, 10] pour décrire l'interaction poste-collision entre les électrons éjectés dans la double ionisation par impact d'électrons et de positrons de l'atome d'hélium et de la molécule d'eau, où une bonne correction aux sections efficaces a été observée et le grand décalage du pic binaire trouvé expérimentalement par Lahmam-Bennani et al. [11] a été bien reproduit montrant que la deuxième approximation de Born est nécessaire pour décrire le mécanisme two-step 2 (TS2). Cependant, l'interaction poste collision entre les électrons diffusé et éjectés n'a pas été considérée dans l'approximation de Born parce que ces deux particules sont considérées diffusent avec des énergies très différentes.

Dans ce qui va suivre nous allons donner une définition de la section efficace triplement différentielle de l'ionisation d'une cible atomique par impact électronique. L'amplitude de transition est définie en premier lieu dans la deuxième approximation de Born et corrigée par le facteur de Gamow.

II.2 Calculs de la section efficace triplement différentielle

➤ **Cas d'une Cible atomique :**

Lors du processus de l'ionisation d'une cible atomique par impact électronique la SETD est donnée par l'équation :

$$\frac{d^3\sigma}{dE_e d\hat{k}_e d\hat{k}_s} = \frac{1}{(2\pi)^2 k_i} |(T_{fi})|^2 \quad (\text{II-1})$$

Où $\hat{k}_s \equiv (\theta_s, \varphi_s)$ et $\hat{k}_e \equiv (\theta_e, \varphi_e)$ sont les angles solides qui donnent les directions de diffusion et d'éjection, respectivement, et E_e est l'énergie avec laquelle l'électron actif est éjecté. L'équation $\frac{d^3\sigma}{dE_e d\hat{k}_e d\hat{k}_s} = (2\pi)^4 \frac{k_e k_s}{k_i} |(T_{fi})|^2$ a été divisée par $((2\pi)^6)$

T_{fi} est un élément de la matrice qui d'écrit la transition du système projectile-cible de l'état initial $|\Psi_i\rangle$ à l'état final $|\Psi_f\rangle$ définie par :

$$T_{fi} = \langle \Psi_f | (V + V G_0^{(+)}) | \Psi_i \rangle \quad (\text{II-2})$$

Où $G_0^{(+)}$ est l'opérateur de Green et V l'énergie d'interaction entre la particule incidente et la cible atomique

$$V = -\frac{Z}{r_0} + \sum_{i=1}^N \frac{1}{|r_0 - r_i|} \quad (\text{II-3})$$

Où r_0 est le vecteur position de l'électron incident, r_i est le vecteur position do i^{ème} électron de la cible .Z le nombre atomique.

N est le nombre des électrons de la cible.

L'état initial qui correspond à une particule incidente de n électron liés est d'écrit comme le produit :

$$|\Psi_i\rangle = \varphi_{k_i}(r_0) \phi_i(r_1, r_2, \dots, r_N) \quad (\text{II-4})$$

k_i est le moment de la particule incidente .L'état finale est caractérisé par :

$$|\Psi_f\rangle = \varphi_{k_s}(r_0) \phi_f(r_1, r_2, \dots, r_N) \quad (\text{II-5})$$

Où k_f est le moment de la particule diffusée.

Dans l'approximation de Born les fonctions $|\varphi_k\rangle$ sont approximées par les ondes planes :

$$|\varphi_k\rangle = \exp(ik \cdot r) \quad (\text{II-6})$$

Nous avons besoin d'inclure dans la section efficace l'interaction poste-collision entre les particules diffusées et éjectée sans compliquer les calculs. Une solution a été donnée par Kheifats et al .[8] où ils démontrent que l'effet le plus large de l'interaction poste-collision est contenu dans le facteur de normalisation de la fonction de coulomb, dit le facteur de Gamow.

$$\left|D_{\varepsilon_{se}}^{(-)}\right|^2 = \frac{2\pi\varepsilon_{se}}{e^{2\pi\varepsilon_{se}} - 1} \quad (\text{II-7})$$

Où $\varepsilon_{se} = 1/q_{se}$ et $q_{se} = k_s - k_e$. Ainsi pour prendre en compte l'interaction poste-collision la SETD donnée dans l'équation (II.1) doit être multipliée par le facteur de Gamow :

$$\frac{d^3\sigma}{dE_e d\hat{k}_e d\hat{k}_s} = \frac{1}{(2\pi)} \frac{k_e k_s}{k_i} \frac{\varepsilon_{se}}{(e^{2\pi\varepsilon_{se}} - 1)} |T_{fi}|^2 \quad (\text{II-8})$$

Il est difficile de traiter le problème de N électrons, pour cette raison nous allons utiliser l'approximation dite du cœur gelé (frozen-core approximation) pour réduire le problème à un ou deux électrons actifs.

- **Cas d'un seul électron actif**

Dans le cas où l'orbitale qui va être ionisée est considérée contenir un seul électron actif. Les fonctions d'ondes données dans les équations (II.4) et (II.5) qui décrivent les états initiaux et finaux du système de collision sont réduites par l'approximation du cœur gelé aux formes simples suivantes :

$$\Psi_i(r_0, r_1) = \varphi k_i(r_0) \phi_{AO}(r_1) \quad (\text{II-9})$$

$$\Psi_f(r_0, r_1) = \varphi k_s(r_0) \Psi_{k_e}^{(-)}(r_1) \quad (\text{II-10})$$

Où $\phi_{AO}(r_1)$ est l'orbitale atomique (OA) qui va être ionisée et r_1 est le vecteur position de l'électron actif lequel est écrit après éjection par la fonction d'onde $\Psi_{k_e}^{(-)}(r_1)$ avec k_e son moment . V est aussi réduit à

$$v = -\frac{1}{r_0} + \frac{1}{|r_0 - r_1|} \quad (\text{II-11})$$

L'élément de la matrice T_{fi} est donc réduit à la somme des deux termes suivant :

$$T^{B1} = \langle \varphi k_s(r_0) \Psi_{k_e}^{(-)}(r_1) | V | \varphi k_i(r_0) \emptyset_{AO}(r_1) \rangle \quad (\text{II-12})$$

$$T^{B1} = \langle \varphi k_s(r_0) \Psi_{k_e}^{(-)}(r_1) | V G_0^+ V | \varphi k_i(r_0) \emptyset_{AO}(r_1) \rangle \quad (\text{II-13})$$

- **Cas de deux électrons actifs**

Dans le cas où l'orbitale qui va être ionisée est considérée occupée par deux électrons actifs, les fonctions d'ondes données dans les équations (II.4) (II.5) qui décrivent les états initial et final du système de collision sont réduites par l'approximation du cœur gelé aux formes simples

$$\Psi_i(r_0, r_1, r_2) = \varphi_{k_i}(r_0) \phi_i(r_1, r_2) \quad (\text{II-14})$$

$$\Psi_f(r_0, r_1, r_2) = \varphi_{k_s}(r_0) \phi_f(r_1, r_2) \quad (\text{II-15})$$

Où $\phi_i(r_1, r_2) = \emptyset_{AO}(r_1) \emptyset_{AO}(r_2)$ est l'orbitale atomique qui va être ionisée. r_1 et r_2 sont les vecteurs position des électrons actifs. Après la collision l'un de ces deux électrons s'éjecte avec un moment k_e et va être écrit par la fonction d'onde $\Psi_{k_e}^{(-)}(r)$. L'autre électron passe à un autre état $X_{OI}(r)$ dans l'orbitale ionisée (OI). Comme les deux électrons liés sont considérés indiscernable. L'échange entre eux doit être pris en compte et l'état final $\phi_f(r_1, r_2)$ prend la forme suivante :

$$\phi_f(r_1, r_2) = \frac{1}{\sqrt{2}} \left\{ \Psi_{k_e}^{(-)}(r_1) x_{OI}(r_2) + \Psi_{k_e}^{(-)}(r_2) x_{OI}(r_1) \right\} \quad (\text{II-16})$$

V est réduit par l'approximation du cœur gelé à

$$V = -\frac{2}{r_0} + \frac{1}{|r_0 - r_1|} + \frac{1}{|r_0 - r_2|} \quad (\text{II-17})$$

L'élément de la matrice T est donc réduit à la somme des deux termes suivants :

$$T^{B1} = \langle \varphi k_s(r_0) \phi_f(r_1, r_2) | V | \varphi k_i(r_0) \phi_i(r_1, r_2) \rangle \quad (\text{II-18})$$

$$T^{B2} = \langle \varphi k_s(r_0) \phi_f(r_1, r_2) | V G_0^+ V | \varphi k_i(r_0) \phi_i(r_1, r_2) \rangle \quad (\text{II-19})$$

➤ **Cas d'une cible moléculaire**

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

$$\frac{d^3\sigma}{dE_e d\hat{k}_e d\hat{k}_s} = \frac{1}{(2\pi)^2} \frac{k_e k_s}{k_i} \int \frac{d\omega}{8\pi} \left| D_{\varepsilon_{se}}^{(-)} T_{fi} \right|^2 \quad (\text{II-20})$$

Où l'orientation de la molécule dans le système de référence lié au laboratoire est définie par l'élément d'angle solide $d\omega = \sin\beta d\beta d\alpha d\gamma$ avec (α, β, γ) les angles d'Euler, $\hat{k}_s \equiv (\theta_s, \varphi_s)$ et $\hat{k}_e \equiv (\theta_e, \varphi_e)$ sont les angles solides qui donnent les directions de diffusion et d'éjection, respectivement, et E_e est l'énergie avec laquelle l'électron actif est éjecté, $\left| D_{\varepsilon_{se}}^{(-)} \right|^2$ est le facteur de Gamow et T_{fi} est un élément de matrice de transition du système projectile-cible de l'état initial $|\Psi_i\rangle$ à l'état $|\Psi_f\rangle$, définie par

$$T_{fi} = \langle \Psi_f | (V + V G_0^+ V) | \Psi_i \rangle \quad (\text{II-21})$$

Où G_0^+ est l'opérateur de Green, V est l'énergie d'interaction entre la particule incidente et la cible moléculaire

$$V = - \sum_{j=1}^M \frac{Z_j}{|r_0 - R_j|} + \sum_{i=1}^N \frac{1}{|r_0 - r_i|} \quad (\text{II-22})$$

Où r_0 est le vecteur position de l'électron incident, r_i est le vecteur du $i^{\text{ème}}$ électron de la cible, r_j est le vecteur position du $j^{\text{ème}}$ noyau de la cible, Z_j le nombre atomique du $j^{\text{ème}}$ noyau et N le nombre des électrons de la cible moléculaire. L'état initial qui correspond à une particule incidente et N électrons liés est décrit par le produit

$$|\Psi_i\rangle = \varphi_{k_i}(r_0) \phi_i(r_1, r_2, \dots, r_N) \quad (\text{II-23})$$

Où k_i est le moment de la particule incidente. L'état final est caractérisé par

$$|\Psi_f\rangle = \varphi_{k_s}(r_0) \phi_f(r_1, r_2, \dots, r_N) \quad (\text{II-24})$$

Où k_s est le moment de la particule diffusé. Dans l'approximation de Born, les fonctions $|\varphi_k\rangle$ sont des ondes planes $|\varphi_k\rangle = \exp(ik \cdot r)$, il est difficile de traiter le problème de collision d'un électron avec une cible moléculaire de N électrons et M noyaux. Pour cette

raison nous allons utiliser l'approximation dite du cœur gelé (frozen-core approximation) pour réduire le problème à deux électrons actifs. Les fonctions d'ondes données dans les équations (II.4) et (II.5) qui décrivent les états initial et final du système de collision sont réduits donc aux formes simples suivantes

$$\Psi_i(r_0, r_1) = \varphi k_i(r_0) \Phi_{OM}(r_1) \quad (\text{II-25})$$

$$\Psi_f(r_0, r_1) = \varphi k_s(r_0) \Psi_{k_e}^{(-)}(r_1) \quad (\text{II-26})$$

Où $\Phi_{OM}(r_1)$ est l'orbitale moléculaire (OM) qui va être ionisée et r_1 est le vecteur position de l'électron actif lequel est décrit après éjection par la fonction d'onde $\Psi_{k_e}^{(-)}$ avec k_e le moment d'éjection. V est aussi réduite à

$$V = -\frac{1}{r_0} + \frac{1}{|r_0 - r_1|} \quad (\text{II-27})$$

Ici nous avons considéré aussi que dans la molécule XH_n , l'atome X est si lourd devant les atomes H que l'origine de référence est très proche du noyau de l'atome X. L'élément de la matrice T va prendre donc la forme $T = T^{B1} + T^{B2}$, avec les éléments

$$T^{B1} = \langle \varphi k_s(r_0) \Psi_{k_e}^{(-)}(r_1) | V | \varphi k_i(r_0) \Phi_{OM}(r_1) \rangle \quad (\text{II-28})$$

$$T^{B2} = \langle \varphi k_s(r_0) \Psi_{k_e}^{(-)}(r_1) | VG_0^+ V | \varphi k_i(r_0) \Phi_{OM}(r_1) \rangle \quad (\text{II-29})$$

II.3 Principe variationnelle de Schwinger :

Le principe variationnel de Schwinger a été originellement proposé pour le calcul du déphasage de diffusion. Cependant, il peut être modifié pour calculer les éléments de la matrice de transition. Considérons une collision élastique ou inélastique du système s'écrit sous la forme

$$H = H_0 + V \quad (\text{II-30})$$

Où H_0 décrit les deux systèmes indépendants qui entrent en collision et V l'énergie d'interaction. L'élément de la matrice de transition est définie par

$$T_{fi} = \langle \Phi_f | V | \Psi_i^{(+)} \rangle = \langle \Psi_f^{(-)} | V | \Phi_i \rangle \quad (\text{II-31})$$

Où $|\Phi_i\rangle$ et $\langle\Phi_f|$ sont les ondes libres initiale et finale tandis que $|\Psi_i^{(+)}\rangle$ et $\langle\Psi_f^{(-)}|$ désignent les deux solutions des équations de Lippmann-Schwinger suivantes

$$|\Psi_i^{(+)}\rangle = |\Phi_i\rangle + G_0^{(+)}V|\Psi_i^{(+)}\rangle \quad (\text{II-32})$$

$$\langle\Psi_f^{(-)}| = \langle\Phi_f| + G_0^{(-)}V\langle\Psi_f^{(-)}| \quad (\text{II-33})$$

Avec

$$G_0^{(\pm)} = \lim_{\epsilon \rightarrow 0^{\pm}} \frac{1}{E - H_0 \pm i\epsilon} \quad (\text{II-34})$$

Les deux opérations de Green associées à l'hamiltonien H_0 . Les expressions intégrales données dans l'équation (II.31) pour l'amplitude de transition sont exactes pour les solutions exactes $|\Psi_i^{(+)}\rangle$ et $|\Psi_f^{(-)}\rangle$ de l'équation de Schrödinger, mais elles ne sont pas stationnaires pour des solutions approchées. Plusieurs expressions stationnaires ont été proposées pour calculer la matrice de transition, dont le principe variationnel de Schwinger définie par l'identité suivante

$$T_{fi} = \langle\Psi_f^{(-)A}|V|\Phi_i\rangle + \langle\Phi_f|V|\Psi_i^{(+)}\rangle - \langle\Psi_f^{(-)A}|V - VG_0^{(+)}V|\Psi_i^{(+)}\rangle + \langle\Psi_f^{(-)A}|V - VG_0^{(+)}V|\Psi_i^{(+)} - \Psi_i^{(+)}\rangle \quad (\text{II-35})$$

Où $|\Psi_i^{(+)}\rangle$ et $\langle\Psi_f^{(-)}|$ sont des approximations pour les solutions exactes $|\Psi_i^{(+)}\rangle$ et $\langle\Psi_f^{(-)}|$, respectivement. L'équation (II.35) est une identité indépendante de $|\Psi_i^{(+)}\rangle$ et $\langle\Psi_f^{(-)}|$. Cependant si $|\Psi_i^{(+)}\rangle$ et $\langle\Psi_f^{(-)}|$ sont des bonnes approximations pour les fonctions d'onde exactes $|\Psi_i^{(+)}\rangle$ et $\langle\Psi_f^{(-)}|$ le dernier terme dans l'équation (II.35) est de second ordre pour l'écart par rapport à la valeur exacte. Gardons seulement les termes de premier ordre de l'écart dans l'équation.

Varions maintenant A et B respectivement, $\frac{\partial}{\partial A}[T] = 0$ et $\frac{\partial}{\partial B}[T] = 0$ nous obtenons

$$A = \frac{\langle\Phi_f|V|\Psi_i^{(+)}\rangle}{\langle\Psi_f^{(-)}|V - VG_0^{(+)}V|\Psi_i^{(+)}\rangle} \quad (\text{II-36})$$

$$B = \frac{\langle \Psi_f^{(-)} | V | \Phi_i \rangle}{\langle \Psi_f^{(-)} | V - V G_0^{(+)} V | \Psi_i^{(+)} \rangle} \quad (\text{II-37})$$

En remplaçant ces quantités dans l'expression stationnaire (II.35), nous obtenons la forme fractionnaire du principe variationnel de Schwinger

$$[T_{fi}] = \frac{\langle \Psi_f^{(-)} | V | \Phi_i \rangle \langle \Phi_f | V | \Psi_i^{(+)} \rangle}{\langle \Psi_f^{(-)} | V - V G_0^{(+)} V | \Psi_i^{(+)} \rangle} \quad (\text{II-38})$$

Notons que ce principe variationnel, de même que la forme bilinéaire (II.12), n'exige pas des fonctions d'ondes de satisfaire les conditions aux limites, ainsi la forme fonctionnelle (II.38) est indépendante de la normalisation adoptée pour les fonctions d'ondes initiale et finale. Comme illustration de la forme fonctionnelle du principe variationnel de Schwinger donnée dans l'équation (II.38), remplaçons dans cette expression les fonctions d'ondes exactes inconnues $|\Psi_i^{(+)}\rangle$ et $\langle\Psi_f^{(-)}|$ par les fonctions d'ondes de l'approximation de Born correspondantes $|\Psi_i^{(+)}\rangle \approx |\Phi_i\rangle$ et $\langle\Psi_f^{(-)}| \approx \langle\Phi_f|$. Avec ce simple choix des fonctions d'essai, et en les injectant dans l'équation (IV.19) nous pouvons trouver le résultat

$$[T_{fi}] = T^{B1} \left(1 - \frac{T^{B2}}{T^{B1}} \right)^{-1} \quad (\text{II-39})$$

Avec $T^{B1} = \langle \Phi_f | V | \Phi_i \rangle$ et $T^{B2} = \langle \Phi_f | V G_0^{(+)} V | \Phi_i \rangle$ sont, respectivement, le premier et le deuxième terme de l'approximation de Born. Si la quantité $|T^{B2}/T^{B1}|$ est petite, nous pouvons développer l'expression (IV.20) et obtenir

$$[T_{fi}] = T^{B1} + T^{B2} + \dots \quad (\text{II-40})$$

Qui est en accord avec la série de Born d'ordre 2 si on néglige les termes d'ordres supérieurs. Cependant, nous pouvons remarquer que l'expression (IV.39), qui est basée sur le principe variationnel, avec seulement deux termes de l'approximation de Born donne un résultat plus précis que la deuxième approximation de Born.

Références

- [1]- Byron F W Jr, Joachain C J and Piraux B. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* 13, L673, (1980). 25
- [2]- Pathak A and Srivastava M K. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* 14, L773 (1980). 25.
- [3]- Weigold E, Noble C J, Hood S T and Fuss I. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* 12, 291(1979). 25, 35, 38
- [4]- Ehrhardt H, Fischer M and Jung K. *Z. Phys. A.* 304, 119 (1982). 25, 35, 41
- [5]- Byron F W Jr, Joachain C J and Piraux B. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* 15, L293(1982). 25
- [6]- Byron F W Jr, Joachain C J and Piraux B. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* 18, 3203(1985). 25, 26, 32
- [7]- Dal Cappello C, Haddadou A, Menas F and Roy A C. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* 44, 015204 (2011). 26, 27, 36, 38, 41
- [8]- Kheifets A S, Naja A, Staicu Casagrande E M and Lahmam-Bennani A. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* 41, 145201. (2008). 26, 27, 28, 35, 42, 43, 44
- [9]- Brauner M, Briggs J S and Klar H. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* 22, 2265–2287 (1989). 27, 37, 38, 39.
- [10]- Dal Cappello C, Kada I, Mansouri A and Champion C. *J. Phys : Conf. Ser.* 288, 012004 (2011). 27
- [11]- Lahmam-Bennani A, Staicu-Casagrande E M, Naja A, Dal Cappello C and Bolognesi P. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* 43, 105201 (2010). 27

Chapitre III

Ionisation de la molécule d'eau par impact électronique

III-1. Introduction

Pour étudier le processus d'ionisation d'une cible ou moléculaire par impact d'électron, plusieurs modèles théoriques et méthodes expérimentales ont été développés. La compréhension de ce processus est de grande importance pour plusieurs domaines. Tels que la physique des plasmas, l'astrophysique ou la radiologie. Il est difficile d'étudier des cibles atomiques ou moléculaires avec plus de deux électrons. Donc il est nécessaire d'utiliser des méthodes d'approximation qui permettent d'extraire des données précises sans compliquer les calculs. Ces approximations doivent être construites pour donner des résultats précis et une identification des mécanismes qui se produisent pendant la collision. La méthode d'approximation de Born est une de ces types d'approximations. Elle permet, par exemple, l'identification du processus de collisions multiples dans l'ionisation simple et les mécanismes Shake-Off.

L'approximation de Born est flexible dans les calculs analytiques et numériques et demeure encore un modèle préférable pour étudier les processus de collision. L'application de la deuxième approximation de Born a été pour étudier l'ionisation simple et double

d'une atomique. Cette approximation a été appliquée aux systèmes atomiques simples notamment l'hydrogène atomique et l'atome d'hélium, pour bien vérifier la précision de la théorie. Suivant le travail de Dal Cappello et al. [1] l'approximation de fermeture fonctionne bien pour des petites énergies d'éjection mais échoue à décrire l'expérience pour des énergies d'éjection élevées.

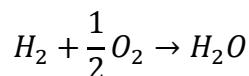
Dans ce chapitre nous employons la deuxième approximation de Born pour étudier l'ionisation simple de la molécule d'eau par impact d'électrons en utilisant l'approximation de fermeture pour prendre en considération tous les états intermédiaires discrets et continus. L'eau constitue une masse importante de la matière biologique, ce qui fait de la molécule d'eau une cible intéressante pour étudier les processus de structure de voie de particules. Plusieurs simulations numériques de ces processus ont besoin d'ensemble précis de sections efficaces d'ionisation de la molécule d'eau [2-6]. Pour cette raison, plusieurs activités théoriques et expérimentales sont focalisées sur l'évaluation des sections efficaces de l'ionisation de la moléculaire d'eau par impact de particules chargées.

Les sections efficaces triplement différentielles données dans la première et la deuxième approximation de Born sont corrigées par le facteur de Gamow pour traiter l'interaction post-collision entre les électrons diffusé et éjectés. Kheifets et al. [7] ont prouvé que la section efficace doit être corrigée par ce facteur pour traiter l'interaction post-collision entre les électrons sortants quand les énergies de ces particules sont comparables. L'interaction post-collision a été achevée dans le modèle trois Coulomb (3C) présenté par Brauner et al. [8], dans lequel l'état final est décrit asymptotiquement par le produit de trois fonctions de Coulomb. Cependant, l'utilisation de la fonction 3C complique considérablement les calculs analytique et numérique. Le facteur de Gamow est le facteur de normalisation de la troisième fonction de Coulomb qui décrit l'interaction post-collision entre les électrons diffusé et éjecté. Kheifets et al. [7] ont prouvé que le plus grand effet de cette interaction est contenu dans ce facteur. Ce facteur est simple et souvent inclus dans les sections efficaces quand les particules diffusent avec des énergies comparables. Cependant, l'interaction post-collision entre les électrons diffusés et éjectés est souvent négligée dans l'approximation de Born parce que ces deux particules sont considérées avec des énergies très différentes.

III 2- description de la molécule d'eau :

III 2-1- description physique de la molécule de l'eau :

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



À l'équilibre thermodynamique, l'expérience montre que la molécule d'eau est de géométrie coudée, d'angle de liaison $H - O - H = 104.7^\circ$ avec une longueur de liaison de 95.8 pm et de moment dipolaire égale à 1.85 debye.

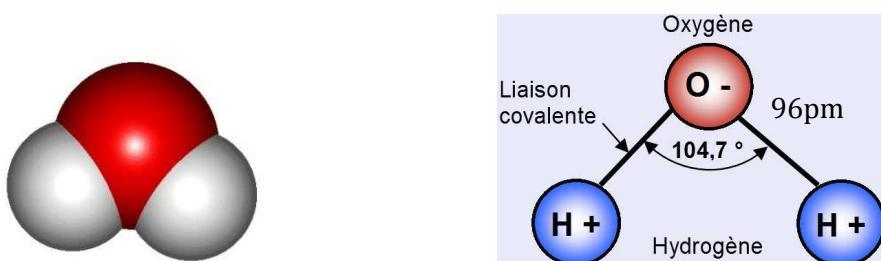


Figure III-1 : représentation géométrique de la molécule d'eau.

La configuration électronique de l'état fondamental est déterminée par la théorie des orbitales moléculaires *OM – CLOA*, basée sur la construction d'orbitales comme combinaison linéaire d'orbitales atomiques des atomes qui composent la molécule. D'après cette théorie la meilleure fonction d'onde décrivant la molécule d'eau est obtenue en créant une composition d'orbitaux hybrides par des combinaisons linéaires des orbitales atomiques 2s (de l'hydrogène) et les trois orbitales 2p (de l'oxygène). Ces orbitales sont nommés orbitale hybride $2sp^3$. En utilisant les propriétés de symétrie de H_2O dictées par la théorie des groupes les dix électrons de l'état fondamental sont distribués sur cinq orbitales moléculaire selon la configuration :

$$(1a_1)^2(2a_1)^2(1b_2)^2(3a_1)^2(1b_1)^2.$$

Les énergies nécessaires pour ioniser chacune de ces orbitales sont données par :

32.2eV/ 18.55eV/ 14.73eV/ 16.66 eV. Le processus de simple ionisation peut être réalisé en ejectant un électron provenant de la même couche.

III-2-2- description des états liés de la cible H_2O :

Paramétrés de H_2O	Valeurs théoriques	Valeurs expérimentales
$\mu(a.u)$	0.8205	0.728
$1^{er} PI (u.a)$	0.4954	0.463
$O - H (u.a)$	1.814	1.810
$H - H (u.a)$	2.907	2.873
$H - O - H (u.a)$	106°.53	105°.50

Tableau III-1 : comparaison des valeurs théorique e les valeurs expérimentales des paramètres de H_2O .

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

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

Pour décrire l'état fondamental de la molécule d'eau nous avons choisi la représentation de Moccia [9] dans laquelle chaque orbitale moléculaire est décrite par une fonction d'onde d'un seul centre développée sur une base de type Slater $R_{nv}^{\alpha\nu}(r)$

$$R_{nv}^{\alpha\nu}(r) = B_\nu r^{nv-1} e^{-\alpha vr} \quad (\text{III - 1})$$

Les calculs donnés dans la section 2 sont effectués pour une partie angulaire des éléments de base des états liés décrite par l'harmonique sphérique normalisée. Cependant dans la présentation de Moccia [9] la partie angulaire est une harmonique sphérique réelle.

$$S_{l_\nu m_\nu}(\hat{r}) = \sqrt{\frac{\operatorname{sgn}(m_\nu)}{2}} \{ \operatorname{sgn}(m_\nu) y_{l_\nu}(m_\nu)(\hat{r}) + (-1)^{m_\nu} y_{l_\nu} - (m_\nu)(\hat{r}) \} \quad (\text{III - 2})$$

Où $S_{l_\nu 0}(\hat{r}) = y_{l_\nu 0}(\hat{r})$, $\operatorname{sgn}(x) = \frac{x}{|x|}$ Est la fonction en signe avec $\operatorname{sgn}(0) = 0$

Cette présentation ne change pas de résultat dans l'équation :

$$\frac{d^3\delta}{dE_e d\hat{k}_e d\hat{k}_s} = \frac{(D_{Ese}^{(-)})^2}{(2\pi)^2} \frac{k_e k_s}{k_i} \sum_{\nu=1}^{NOM} \frac{w_\nu^2}{2l_\nu + 1} \sum_{\mu=-l_\nu}^{l_\nu} |T_\nu|^2 \quad (\text{III - 3})$$

Pour l'étude de l'ionisation de la molécule d'eau discutons d'abord la précision de la fonction d'onde proposée par Moccia [9] où chaque orbitale moléculaire est développée sur des fonctions de type Slater centrés sur l'oxygène. Les calculs de Moccia [9] ont été effectués pour la configuration d'équilibre dans la méthode de champ self-consistant (self-consistent field) (SCF).

Dans le tableau III – 1 nous pouvons voir que la représentation choisie donne un bon accord avec l'expérience quand on calcule le moment dipolaire électrique μ , le premier potentiel d'ionisation $1^{er} PI$, la longueur de la liaison $O - H$, la distance $H - H$ en équilibre et l'angle moléculaire $H - O - H$. Le tableau suivant (III – 2) donne la liste du différent coefficient et nombre quantique proposés par Moccia [9] pour développer chaque orbitale moléculaire.

III-3 : Formalise théorique :

n_v	l_v	m_v	∞	$1a_1$	$2a_1$	$3a_1$	$1b_2$	$1b_1$
1	0	0	12.600	0.05167	0.01889	-0.00848		
1	0	0	7.450	0.94656	-0.25592	0.08241		
2	0	0	2.200	-0.01708	0.77745	-0.30752		
2	0	0	3.240	0.02497	0.09939	-0.04132		
2	0	0	1.280	0.00489	0.16359	0.14954		
2	1	0	1.510	0.00107	0.18636	0.79979		
2	1	0	2.440	-0.00244	-0.00835	0.00483		
2	1	0	3.920	0.00275	0.02484	0.24413		
3	2	0	1.600	0.00000	0.00695	0.05935		
3	2	0	2.400	0.00000	0.00215	0.00396		
3	2	2	1.600	-0.00004	-0.06403	-0.09293		
3	2	2	2.400	0.00003	-0.00988	0.01706		
4	3	0	1.950	-0.00004	-0.02628	-0.01929		
4	3	2	1.950	-0.00008	-0.05640	-0.06593		
2	1	-1	1.510				0.88270	
2	1	-1	2440				-0.07083	
2	1	-1	3.920				0.23189	
3	2	-1	1.600				0.25445	
3	2	-1	2.400				-0.01985	
4	3	-1	1.950				0.04526	
4	3	-3	1.950				-0.06381	
2	1	1	1.510					0.72081
2	1	1	2.440					0.11532
2	1	1	3.920					0.24859
3	2	1	1.600					0.05473
3	2	1	2.400					0.00403
4	3	1	1.950					0.00935
4	3	3	1.950					-0.02691

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

$$\frac{d^3\delta}{dE_e d\hat{k}_e d\hat{k}_s} = \frac{1}{(2\pi)^2} \frac{k_e k_s}{k_i} \int \frac{d\omega}{8\pi} \left| D_{\varepsilon se}^{(-)} T_{fi} \right|^2 \quad (\text{III} - 4)$$

Où l'orientation de la molécule dans le système de référence lié au laboratoire est définie par l'élément d'angle solide de $d\omega = \sin\beta \cdot d\beta \cdot d\alpha \cdot dy$ avec (α, β, γ) les angles d'Euler. $\hat{k}_s \equiv (\theta_s, \varphi_s)$ et $\hat{k}_e \equiv (\theta_e, \varphi_e)$ sont les angles solides qui donnent les directions de diffusion et d'éjection respectivement, et E_e est l'énergie avec laquelle l'électron actif est éjecté. $\left| D_{\varepsilon se}^{(-)} \right|^2$ Est le facteur de Gamow et T_{fi} est un élément de matrice de transition du système projectile-cible de l'état initiale $|\Psi_i\rangle$ à l'état final $|\Psi_f\rangle$, définie par :

$$T_{fi} = \langle \Psi_f | (V + V G_0^+ V) | \Psi_i \rangle \quad (\text{III} - 5)$$

Où G^+ est l'opérateur de Green. V est l'énergie d'interaction entre les particules incidente et la cible moléculaire.

$$V = - \sum_{j=1}^M \frac{Z_j}{|r_0 - R_j|} + \sum_{i=1}^N \frac{1}{|r_0 - r_i|} \quad (\text{III} - 6)$$

Où r_0 est le vecteur position de l'électron incident, r_i est le vecteur position du $i^{\text{ème}}$ électron de la cible, R_j est le vecteur position du $j^{\text{ème}}$ noyau de la cible, Z_j le nombre atomique du $j^{\text{ème}}$ noyau et N le nombre des électrons de la cible moléculaire.

L'état initiale qui correspond à une particule incidente et N électrons liés est décrit par le produit.

$$|\Psi_i\rangle = \varphi_{k_i}(r_0) \Phi_i(r_1, r_2, \dots, r_N) \quad (\text{III} - 7)$$

Où k_i est le moment de la particule incidente. L'état final est caractérisé par :

$$|\Psi_f\rangle = \varphi_{k_s}(r_0) \Phi_f(r_1, r_2, \dots, r_N) \quad (\text{III} - 8)$$

Où k_s est le moment de la particule diffusée.

Dans l'approximation de Born, les fonctions $|\varphi_k\rangle$ sont des ondes planes $|\varphi_k\rangle = \exp(ik \cdot r)$. Il est difficile de traiter le problème de collision d'un électron avec une cible

moléculaire de N électron et M noyaux pour celle raison nous allons utiliser l'approximation dite du cœur gelé (frozen-core approximation).

III-4 : Résultats et discussion :

Dans cette partie du chapitre, nous allons présenter les résultats de l'ionisation de la molécule d'eau par impact d'électron en utilisant le formalisme décrit précédemment. Les résultats théoriques sont obtenus dans la première, la deuxième approximation de Born et dans l'approche variationnel de Schwinger. Ces derniers sont comparés avec les données expérimentales de Milne-Brownlie et al. [10, 11]. Les données expérimentales des quatre orbitales moléculaires externes de la molécule H₂O ont été mesurées dans la géométrie asymétrique coplanaire où les conditions des expériences sont fixées à une énergie d'incidence E_i=250eV, une énergie d'éjection E_e =10eV et un angle de diffusion θ_s =15°. Les énergies d'ionisation des quatre orbitales moléculaires externes sont 32. 2 eV pour l'orbitale atomique 2a₁ , 18.55 eV, 14.73 eV et 12.63 eV pour les orbitales moléculaires 3a₁, 1b₂ et 1b₁ , respectivement. Pour décrire l'état fondamental de la molécule d'eau nous avons choisi la représentation de Moccia [9] dans laquelle chaque orbitale moléculaire est décrite par une fonction d'onde d'un seul centre développée sur une base de type Slater.

La bonne qualité de la fonction d'onde a été aussi confirmée préalablement par Sahlaoui et al. [12,13] par la comparaison des résultats théoriques des sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation des orbitales 1b₁, 1b₂ ,3a₁ et avec les résultats expérimentaux de la spectroscopie de moment électronique (SME) (electron momentum spectroscopy, EMS) obtenue par Bawagan et al. [14]. En effet, la technique SME, connue aussi sous le nom de la spectroscopie (e,2e) binaire, constitue un outil puissant pour étudier les orbitales atomiques et moléculaires. La spectroscopie de moment électronique mesure la densité moment-énergie des électrons d'un atome, une molécule ou un solide au moyen d'une cinématique complète sur la réaction d'ionisation effectuée par un faisceau d'électrons.

Nos résultats théoriques et les mesures expérimentales de Milne-Brownlie et al. [10,11] sont donnés dans les figures qui suivent. L'expérience de Milne-Brownlie et al. [10,11] a été réalisée pour une géométrie non-coplanaire pour une énergie d'incidence d'environ 1200 eV et un angle de détection des deux électrons ensembles θ = 45° par rapport à la direction d'incidence qui correspond à un maximum du moment de transfert. Ces mesures expérimentales ont été normalisées avec nos résultats obtenus.

Résultats

1) Cas où le facteur de Gamow est introduit :

Orbitale 1b₁

θ (°)	Born 1	Born 2	Schwinger	θ (°)	Res. Exp
0	0,22003	0,44498	0,33722	49,5647	5,764
10	0,48649	0,92965	0,49457	59,9722	3,65
20	1,07865	1,70181	1,20845	69,0234	2,849
30	1,85746	2,55832	2,19197	79,6926	2,324
40	2,39576	3,0134	2,69859	90,0794	3,322
50	2,19055	2,54749	2,29469	99,3169	4,516
60	1,27622	1,28266	1,01541	109,916	4,372
70	0,54466	0,34456	0,17915	120,053	3,716
80	0,89293	0,90018	0,42322	129,828	2,009
90	2,05251	2,7615	1,9537	139,392	1,444
100	2,89893	4,43548	4,13792		
110	2,77114	4,71083	5,73962		
120	1,936	3,76573	5,32853		
130	1,02166	2,31243	3,50063		
140	0,44621	1,06969	0,35393		
150	0,29736	0,3671	0,21559		
160	0,4682	0,18979	0,21484		
170	0,80422	0,39628	0,46452		
180	1,18012	0,73167	0,76556		
190	1,48372	1,07054	1,06071		
200	1,68012	1,27055	1,252		
210	1,79293	1,33508	1,33299		
220	1,84448	1,28408	1,3215		
230	1,85186	1,18255	1,2652		
240	1,82407	1,03242	1,16623		
250	1,76739	0,89164	1,05786		
260	1,68573	0,77919	0,95745		
270	1,58252	0,70634	0,87183		
280	1,4614	0,64845	0,76961		
290	1,32625	0,63542	0,71397		
300	1,18045	0,61193	0,65573		
310	1,02549	0,55861	0,58314		
320	0,85948	0,46628	0,48843		
330	0,67703	0,33993	0,37053		
340	0,47543	0,20722	0,2446		
350	0,28014	0,2586	0,17374		
360	0,22003	0,44498	0,33722		

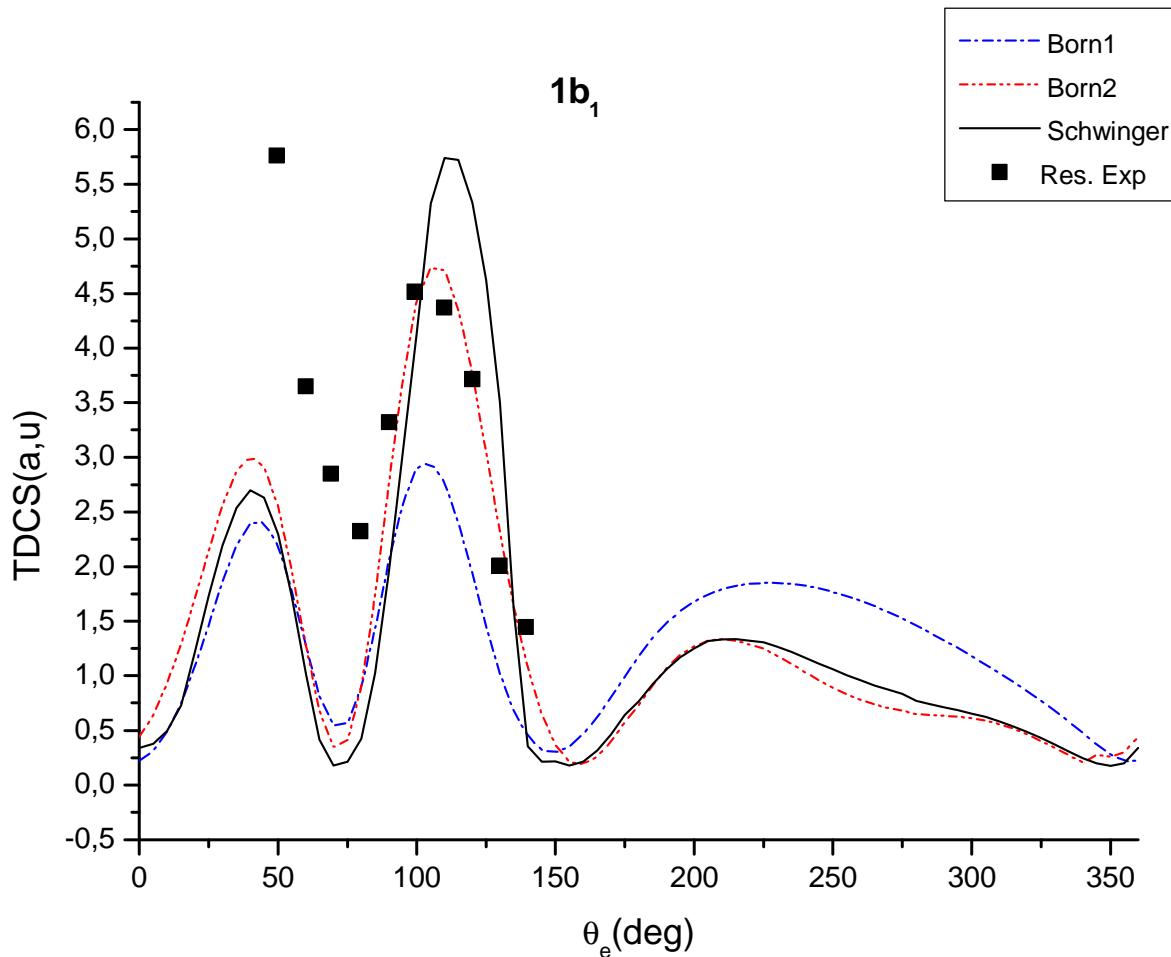


Figure III.2 –Sections efficaces triplement différentielles avec le facteur de Gamow pour l'ionisation par impact d'électron de l'orbitale **1b₁** de la molécule d'eau (H_2O) tracé en fonction de l'angle d'éjection θ_e relativement à la direction d'incidence. L'énergie d'incidence $E_i=250$ eV, l'énergie d'éjection $E_e = 10$ eV et l'angle de diffusion $\theta_s = 15^\circ$.

Orbitale 1b₂

θ (°)	Born 1	Born 2	Schwinger	θ (°)	Res. Exp
0	0,71099	1,08723	0,86921	50,0567	8,425
10	1,34193	1,96579	1,26964	59,6977	4,792
20	2,43505	3,21105	2,41764	69,5122	2,713
30	3,62854	4,36456	3,75721	79,7688	4,595
40	4,18441	4,70228	4,11035	89,8739	5,12
50	3,51661	3,65549	3,16871	99,714	8,271
60	2,08546	1,80318	1,39945	110,821	7,768
70	1,39231	0,9075	0,79068	120,045	5,405
80	2,37864	2,31021	1,5129	130,274	2,035
90	4,17508	5,20778	4,04617	139,581	0,416
100	5,13712	7,36756	6,97023	220,145	7,133
110	4,6147	7,47303	8,75393	230,762	7,243
120	3,20283	5,78641	7,88768	240,096	5,864
130	1,82239	3,63083	4,79776	250,111	5,58
140	1,01203	1,82325	1,32707	260,855	6,827
150	0,84254	0,84057	1,09088	270,478	8,031
160	1,12988	0,68659	0,71839	281,348	5,405
170	1,63851	0,96249	1,02834		
180	2,18389	1,59186	1,56517		
190	2,643	2,13578	2,03582		
200	2,92285	2,42013	2,32116		
210	3,06319	2,45737	2,39052		
220	3,10135	2,31117	2,31126		
230	3,06494	2,03944	2,13886		
240	2,9729	1,70964	1,90754		
250	2,83828	1,41014	1,68172		
260	2,67098	1,17539	1,4806		
270	2,4794	1,02907	1,31677		
280	2,27125	0,95811	1,1868		
290	2,05326	0,925	1,0629		
300	1,83012	0,90363	0,97987		
310	1,60259	0,85614	0,88376		
320	1,36576	0,7545	0,76871		
330	1,11048	0,60311	0,62684		
340	0,83716	0,45161	0,48725		
350	0,60899	0,45247	0,44949		
360	0,71099	1,08723	0,86921		

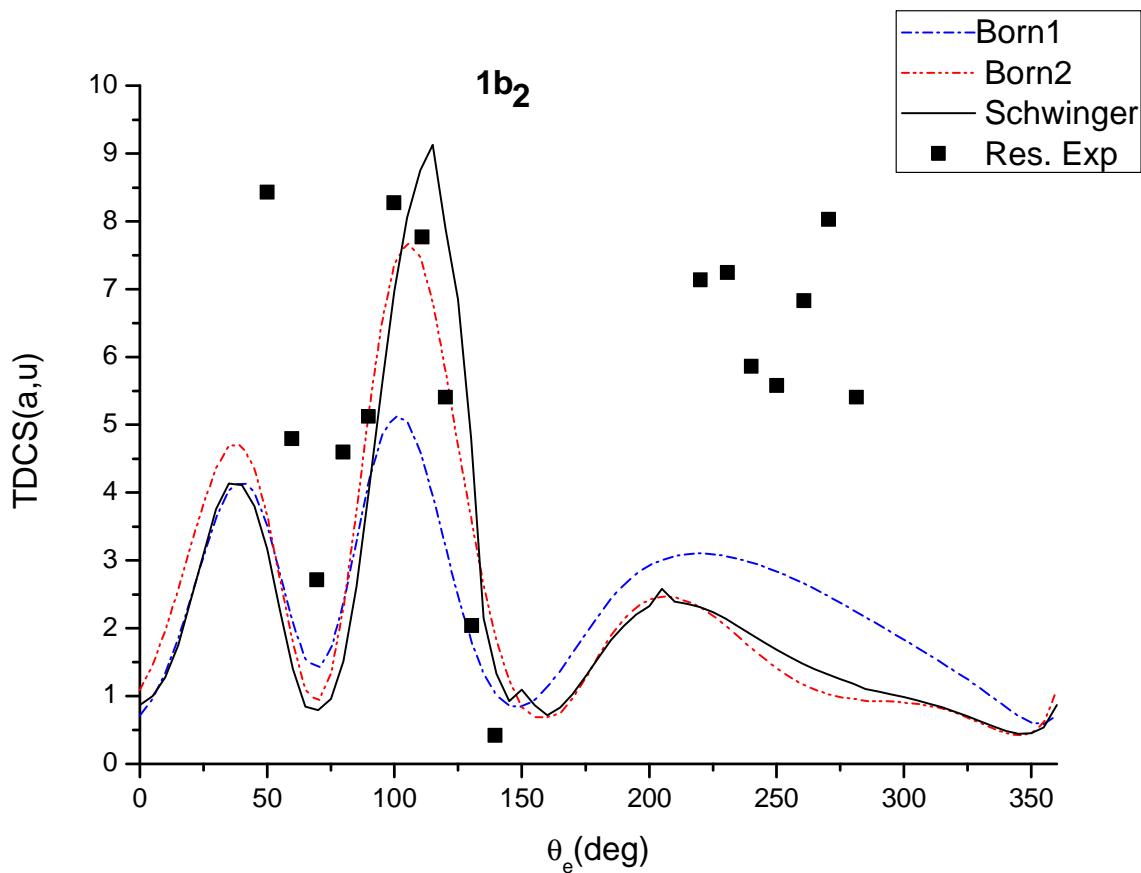


Figure III.3 – Sections efficaces triplement différentielles avec le facteur de Gamow pour l'ionisation par impact d'électron de l'orbitale **1b₂** de la molécule d'eau (H_2O) tracé en fonction de l'angle d'éjection θ_e relativement à la direction d'incidence. L'énergie d'incidence $E_i=250$ eV, l'énergie d'éjection $E_e = 10$ eV et l'angle de diffusion $\theta_s = 15^\circ$

Orbitale 1b₁-3a₁

θ (°)	Born 1	Born 2	Schwinger	θ (°)	Res. Exp
5	0,96601	1,74701	0,98995	60,2791	10,797
10	1,45267	2,50357	1,32359	70,3256	6,149
20	3,05812	4,5086	3,14059	80,3721	7,422
30	5,18522	6,77611	5,62742	90,4186	8,651
40	6,85797	8,21818	7,15726	100,465	13,433
50	6,93433	7,70104	6,76805	111,07	12,338
60	5,45592	5,50608	4,53864	120,558	9,971
70	4,27125	4,02005	3,29547	130,605	7,516
80	5,13602	5,5613	4,02078	140,651	2,298
90	7,33082	9,52291	7,21234	221,023	8,623
100	8,51441	12,60358	11,38539	231,628	6,607
110	7,5069	12,41545	14,08632	240,558	8,056
120	5,09368	9,58572	12,43657	249,488	9,197
130	2,71386	5,82308	7,85542	260,651	12,356
140	1,2597	2,71474	0,98427	270,698	9,814
150	0,87332	0,97362	0,64109	280,744	12,14
160	1,27272	0,52151	0,59344		
170	2,08177	1,03274	1,19198		
180	2,99841	1,7927	1,90356		
190	3,76092	2,58476	2,61455		
200	4,27821	3,07046	3,08976		
210	4,59519	3,23966	3,30372		
220	4,75784	3,15211	3,30716		
230	4,79998	2,90414	3,17429		
240	4,74347	2,54753	2,94171		
250	4,60238	2,20117	2,6782		
260	4,38717	1,91312	2,4232		
270	4,10781	1,711	2,19433		
280	3,77531	1,54354	1,92619		
290	3,40177	1,48174	1,76001		
300	2,99868	1,4002	1,58831		
310	2,57397	1,26246	1,38829		
320	2,12884	1,05026	1,14756		
330	1,65838	0,78129	0,86553		
340	1,16752	0,52865	0,57954		
350	0,73323	0,67235	0,43148		
360	0,68463	1,22488	0,85253		

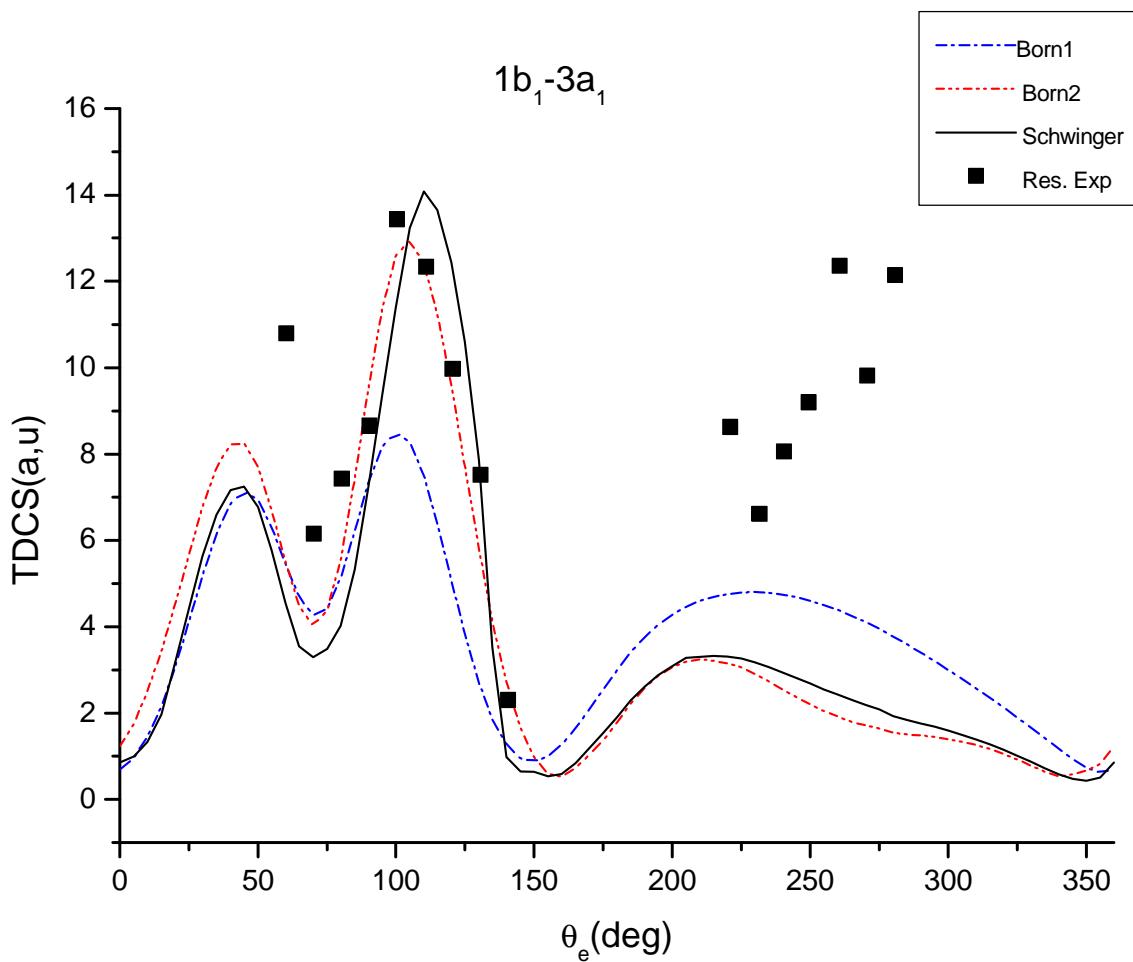


Figure III.4 – Sections efficaces triplement différentielles avec le facteur de Gamow pour l'ionisation par impact d'électron de la somme **$1b_1+3a_1$** de la molécule d'eau (H_2O) tracé en fonction de l'angle d'éjection θ_e relativement à la direction d'incidence. L'énergie d'incidence $E_i=250$ eV, l'énergie d'éjection $E_e=10$ eV et l'angle de diffusion $\theta_s=15^\circ$.

Orbitale 2a₁

θ (°)	Born 1	Born 2	Schwinger	θ (°)	Res. Exp
0	0,96553	1,81168	0,69653	49,8904	8,9352
10	1,76215	3,03428	1,89411	60,0304	12,26125
20	3,00745	4,67743	3,82757	69,5299	13,04665
30	4,64865	6,6822	6,16087	80,0263	10,2459
40	6,47795	8,86554	8,58786	89,473	9,4248
50	8,13509	10,80474	10,72573	99,3252	3,97035
60	9,20024	12,49437	12,50651	110,074	8,86635
70	9,36049	13,2175	13,27889	119,914	3,03875
80	8,56176	12,87867	12,8649	129,319	0,94775
90	7,03537	11,41803	11,09764	140,61	5,39495
100	5,18508	9,26618	8,37552	220,272	4,5067
110	3,42176	6,86937	5,35318	230,256	3,08805
120	2,03626	4,52643	2,65587	240,396	6,4141
130	1,15467	2,63635	1,08827	250,366	4,54665
140	0,76485	1,33509	0,34247	260,95	4,43615
150	0,77276	0,61602	0,29046	269,895	5,29635
160	1,05461	0,36921	0,39517	280,401	2,79395
170	1,4911	0,44828	0,64524		
180	1,98422	0,70799	0,97326		
190	2,46277	1,02328	1,31465		
200	2,87531	1,30711	1,61405		
210	3,19429	1,51109	1,83352		
220	3,40539	1,61525	1,95808		
230	3,5035	1,61601	1,98669		
240	3,48993	1,52551	1,92617		
250	3,37081	1,36207	1,792		
260	3,15622	1,14769	1,60098		
270	2,85985	0,90708	1,37197		
280	2,49913	0,66423	1,12149		
290	2,09531	0,44139	0,86896		
300	1,67357	0,25874	0,63183		
310	1,26319	0,13902	0,42645		
320	0,89838	0,10723	0,26817		
330	0,62072	0,19802	0,16705		
340	0,48417	0,46051	0,13454		
350	0,56337	0,96508	0,22677		
360	0,96553	1,81168	0,69653		

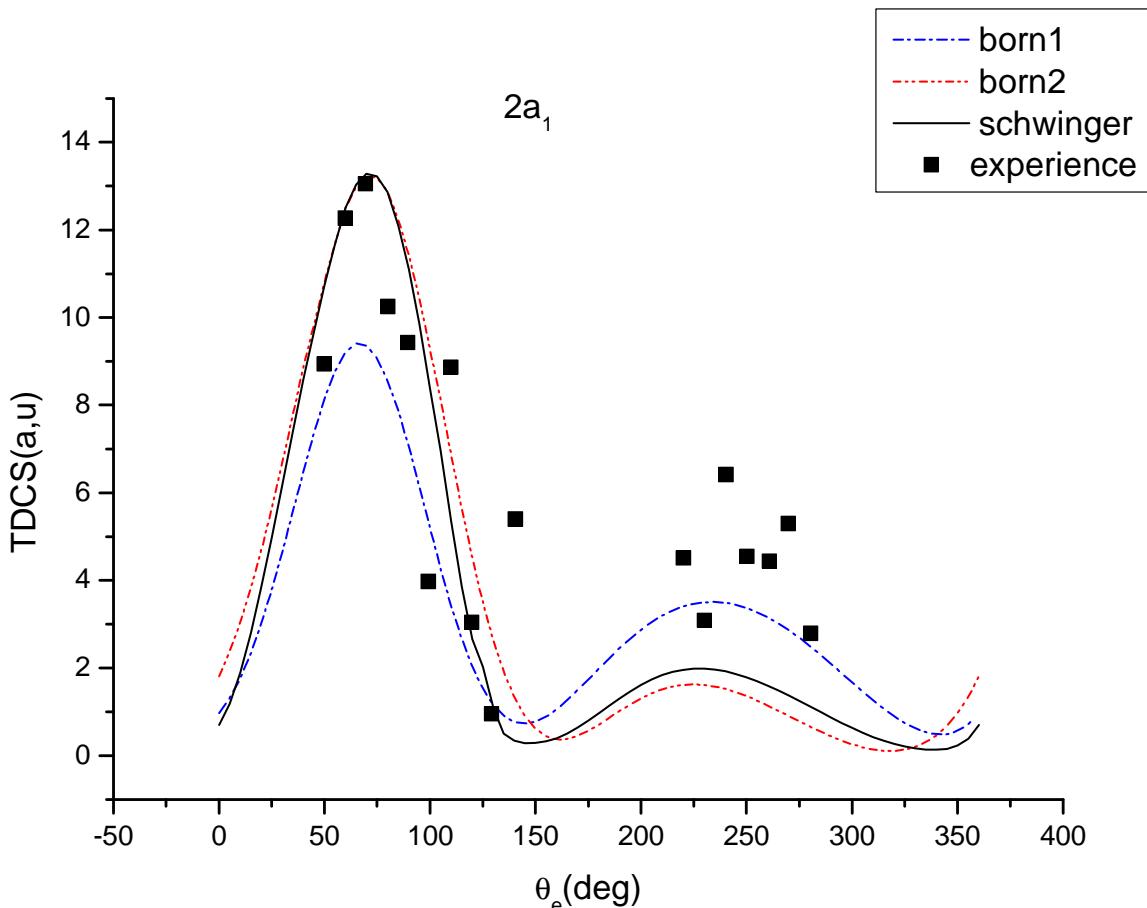


Figure III.5 – Sections efficaces triplement différentielles avec le facteur de Gamow pour l'ionisation par impact d'électron de l'orbitale $2a_1$ de la molécule d'eau (H_2O) tracé en fonction de l'angle d'éjection θ_e relativement à la direction d'incidence. L'énergie d'incidence $E_i=250$ eV, l'énergie d'éjection $E_e=10$ eV et l'angle de diffusion $\theta_s=15^\circ$

1) Cas où le facteur de Gamow est non introduit

Nous avons aussi tracés les sections efficaces triplement différencielles TDCS sans la correction du facteur de Gamow. Ceci a été représenté dans les figures III-6-8.

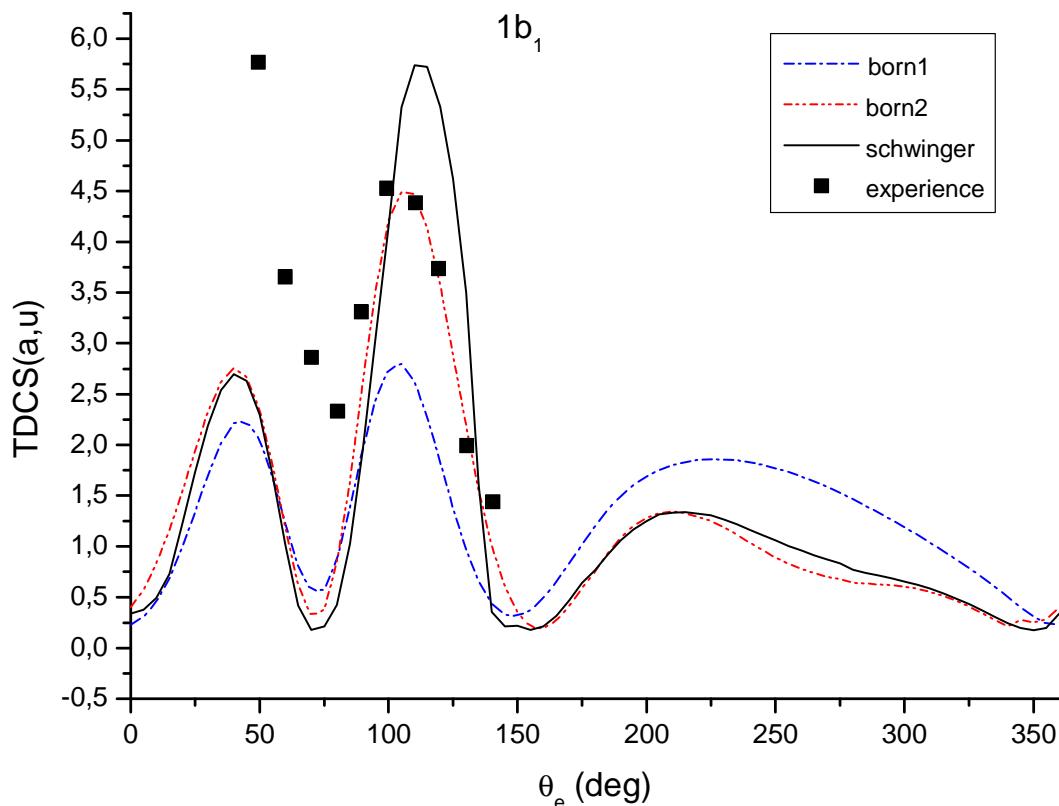


Figure III.6 – Sections efficaces triplement différencielles sans le facteur de Gamow pour l'ionisation par impact d'électron de l'orbitale **1b₁** de la molécule d'eau (H_2O) tracé en fonction de l'angle d'éjection θ_e relativement à la direction d'incidence. L'énergie d'incidence $E_i=250$ eV, l'énergie d'éjection $E_e=10$ eV et l'angle de diffusion $\theta_s = 15^\circ$

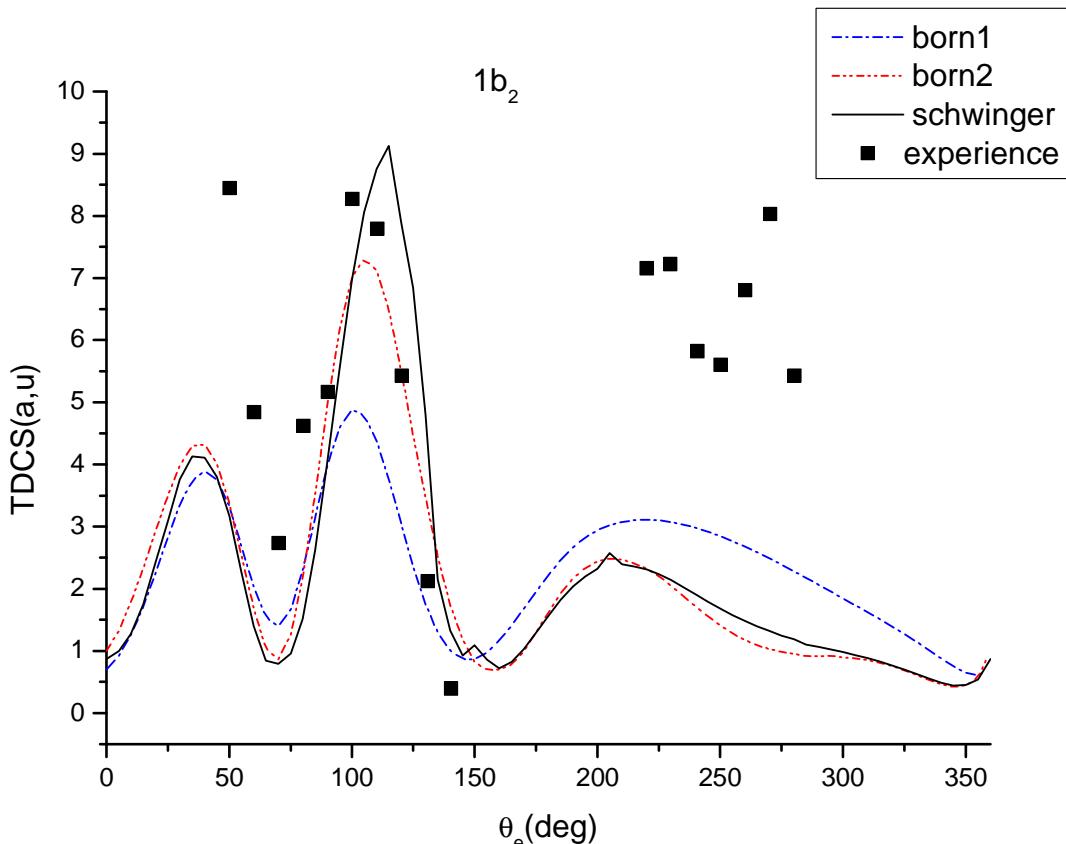


Figure III.7 – Sections efficaces triplement différentielles sans le facteur de Gamow pour l'ionisation par impact d'électron de l'orbitale **1b₂** de la molécule d'eau (H_2O) tracé en fonction de l'angle d'éjection θ_e relativement à la direction d'incidence. L'énergie d'incidence $E_i=250$ eV, l'énergie d'éjection $E_e = 10$ eV et l'angle de diffusion $\theta_s = 15^\circ$

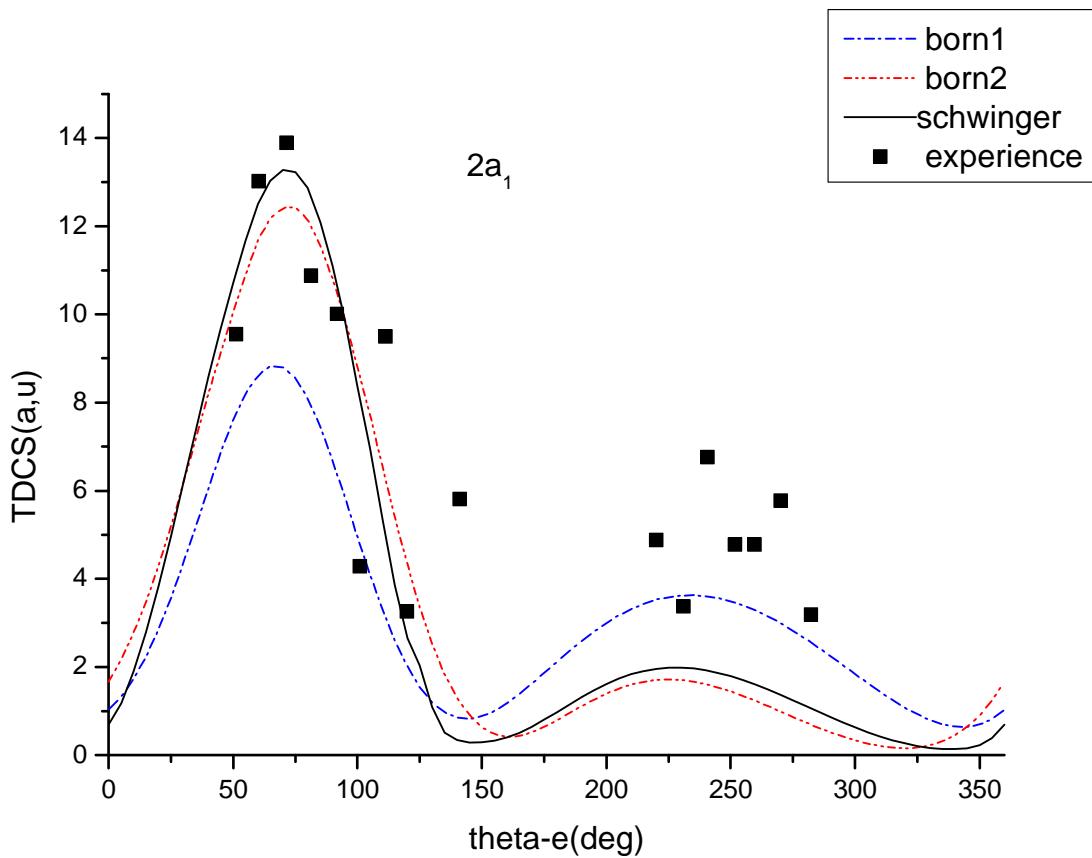


Figure III.8 – Sections efficaces triplement différentielles sans le facteur de Gamow pour l'ionisation par impact d'électron de l'orbitale 2a₁ de la molécule d'eau (H_2O) tracé en fonction de l'angle d'éjection θ_e relativement à la direction d'incidence. L'énergie d'incidence $E_i=250$ eV, l'énergie d'éjection $E_e=10$ eV et l'angle de diffusion $\theta_s=15^\circ$

Dans les figures III.2-5 nous avons tracé les sections efficaces triplement différentielles obtenues dans la première et la deuxième approximation de Born corrigée par le facteur de Gamow ainsi que l'approche variationnel de Schwinger. Nos résultats théoriques sont comparés aux mesures expérimentales de Milne-Brownlie et al. [18]. Il faut rappeler que ces mesures expérimentales ont été normalisé avec nos résultats obtenus. On observe à partir des résultats et des tracés des orbitales moléculaires $1b_2$, $1b_1$ et la somme $1b_1+3a_1$ que la seconde approximation de Born, l'expérience dans la région binaire ($\theta_e < 180^\circ$). Cependant, nos résultats sous-estiment l'expérience dans la région de recul ($\theta_e > 180^\circ$). Nous pouvons voir également, une amélioration significative donnée par le facteur de Gamow pour les deux approximations de Born première et deuxième ordre.

Nous observons qu'il n'y a pas une grande différence entre la seconde approximation de Born et le principe variationnel de Schwinger. Mais nous pouvons aussi voir que le principe variationnel de Schwinger donne une petite correction notamment sur le déphasage vers la droite. Nous pouvons observer aussi dans ces figures, selon les résultats des orbitales moléculaires $1b_2$, $1b_1$ et la somme $1b_1 + 3a_1$, que la seconde approximation de Born, le principe variationnel de Schwinger sont en bon accord avec le deuxième pic de l'expérience dans la région binaire ($\theta_e < 180^\circ$). Cependant, nos résultats sous-estiment l'expérience dans la région de recul ($\theta_e > 180^\circ$). Nous rappelons que la même remarque a été observée dans l'étude de l'ionisation de l'atome d'hélium ce qui nous ramène à penser que l'influence de l'ion moléculaire sur l'électron éjecté est importante et doit être considérée dans les calculs de la section efficace. Pour l'orbitale $2a_1$, notre formalisme décrit convenablement les résultats expérimentaux. Une nouvelle est observée dans nos résultats, c'est la prédition de deux pics dans la région de recul des orbitales moléculaires $1b_2$, $1b_1$ et la somme $1b_1 + 3a_1$, chose qui n'a pas été décrite précédemment d'une telle manière. De l'analyse de la région binaire nous pouvons observer que la première approximation de Born n'est pas suffisante pour décrire la dynamique de l'ionisation de la molécule d'eau dans les conditions cinématique $E_i = 250$ eV et $E_e = 10$ eV. Donc, des effets d'ordres supérieurs sont importants essentiellement dans l'ionisation des orbitales moléculaires $1b_2$, $1b_1$ et $3a_1$. Bien que nos calculs donnent une bonne description pour la région binaire ils restent en dessous de l'expérience dans la région de recul des orbitales moléculaires $1b_2$, $1b_1$ et $3a_1$, et pour les petits angles dans la région binaire.

Les figures III.6-8 sont similaires aux figures III.2-5 mais cette fois-ci les sections efficaces triplement différentielle sont tracées sans la contribution du facteur de Gamow. En général nous avons les mêmes commentaires donnés dans l'analyse précédent quand on compare les résultats théoriques avec les mesures expérimentales sauf que l'absence de l'influence du facteur de Gamow mène à une sous estimation des résultats expérimentaux autour des pic.

Quand l'énergie d'éjection est grande nous avons remarqué que le formalisme variationnel de Schwinger donne des résultats plus précis que les résultats donnés par la deuxième approximation de Born. L'analyse des différentes figures montre aussi que plus l'énergie d'incidence est petite plus le formalisme variationnel de Schwinger devient sensible à la variation du paramètre $\bar{\omega}$ qui représente la moyenne sur les énergies d'excitation des états intermédiaires

Références

- [1]- Dal Cappello C, Haddadou A, Menas F and Roy A C. J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. 44, 015204 (2011). 49.
- [2]- Bigildeev E A and Michalik V. Radiat. Phys. Chem. 47, 197–207 (1996). 50
- [3]- Champion C, L’Hoir A, Politis M F, Chetioui A, Fayard B and Touati A. Nucl. Instrum. Methods B. 146, 533–540 (1998). 50
- [4]- Champion C. Nucl. Instrum. Methods B. 205, 671–676. (2003). 50
- [5]- Munoz A, Blanco F, Garcia G, Thorn P A, Brunger M J, Sullivan J P and Buckman S; J. Int. J. Mass Spectrom. 277, 175–179 (2008). 50
- [6]- Lekadir H, Abbas I, Champion C and Hanssen J. Nucl. Instrum. Methods B. 267, 1011–1014 (2009). 50.
- [7]- Kheifets A S, Naja A, Staicu Casagrande E M and Lahmam-Bennani A. J. Phys. B : At.Mol. Opt. Phys. 41, 145201. (2008). 50.
- [8]- Brauner M, Briggs J S and Klar H. J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. 22, 2265–2287, (1989). 50, 55
- [9]- Moccia R. J. Chem. Phys. 40, 2186–2192 (1964). 53, 55, 56, 57, 58.
- [10]- Milne-Brownlie D S, Cavanagh S J, Lohmann B, Champion C, Hervieux P A and Hanssen, J. Phys. Rev. A . 69, 032701 (2004). 55, 59, 60
- [11]- Milne-Brownlie D S. Doctorat Thesis. Electron Coincidence Studies of Molécules. Griffith, University. School of Science. (2007). 55.
- [12]- Sahlaoui thèse de Doctorat. Université de Tlemcen (2013).
- [13]- M. Sahlaoui, M. Bouamoud, B. Lasri, and M. Dogan, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 46 (2013) 115206 (6pp).
- [14]- Bawagan A O, Brion C E, Davidson E R, and Feller D. J. Chem. Phys. 113, 19 (1987). 57, 58.

Conclusion Générale

Dans ce mémoire, nous avons présenté un nouveau formalisme pour calculer la section efficace triplement différentielle pour l'ionisation simple de la molécule d'eau (H_2O) par impact électronique. Dans ce formalisme les calculs de la section efficace sont effectués en utilisant le principe variationnel de Schwinger et aussi dans la première et la deuxième approximation de Born en introduisant le facteur de Gamow pour considérer l'interaction post-collision entre les deux électrons diffusé et éjecté. Dans le second terme de l'approximation de Born nous avons utilisé l'approximation de fermeture pour prendre en compte tous les états intermédiaires discrets et continus. Le premier terme de l'approximation de Born est calculé analytiquement et le deuxième terme est calculé semi-analytiquement.

Le bon accord de nos résultats avec les mesures expérimentales montre que le formalisme présenté est bien adapté à l'étude de l'ionisation simple des cibles moléculaires avec des structures chimiques de la forme XH_n . Le facteur de Gamow qui est souvent considéré quand les électrons sortants sont émis avec des énergies comparables donne aussi une amélioration importante quand les énergies de ces électrons sont très différentes. Il faut rappeler que plus l'énergie d'incidence est grande moins la correction donnée par le facteur de Gamow est importante.

Dans notre étude sur l'ionisation de la molécule d'eau par impact électronique nous avons trouvé que l'approximation de Born de premier ordre n'est pas suffisante pour décrire la dynamique d'ionisation des orbitales moléculaire $1b_2$, $1b_1$ et $3a_1$ dans les conditions cinématiques $E_i=250$ eV et $E_e=10$ eV. Nous présumons que le formalisme présenté ici va donner des résultats plus précis si nous décrivons la particule diffusée par une fonction d'onde qui contient l'effet de l'ion résiduel et si nous décrivons la particule éjectée par une fonction d'onde qui contient, d'une façon implicite, l'effet des électrons de l'ion résiduel. L'approche donnée peut être étendue par la suite pour décrire l'ionisation

simple des atomes et molécules par d'autres particules chargées comme le proton, le positron, et les ions nus.

Quand l'énergie d'éjection est grande nous avons remarqué que le formalisme variationnel de Schwinger donne des résultats plus précis que les résultats donnés par la deuxième approximation de Born. L'analyse des différentes figures montre aussi que plus l'énergie d'incidence est petite plus le formalisme variationnel de Schwinger devient sensible à la variation du paramètre $\bar{\omega}$ qui représente la moyenne sur les énergies d'excitation des états intermédiaires