

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

UNIVERSITE FERHAT ABBAS – SETIF

FACULTE DES SCIENCES
DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

THESE

Présentée pour l'obtention du diplôme de

DOCTORAT

Option : Sciences physiques

Par

Samra NEHAOUA

Thème

**IONISATION D'ATOMES ET DE MOLECULES
PAR IMPACT D'ELECTRONS :
CONTRIBUTION DE L'ORTHOGONALISATION ET DES
EFFETS DE DISTORSION**

Soutenue publiquement le 14 / 12 / 2016 devant la commission d'examen :

A.MANSOURI, *Professeur à l'UFA, Sétif1 (Algérie)*

S. HOUAMER, *Professeur à l'UFA, Sétif1 (Algérie)*

C. DAL CAPPELLO, *Professeur à l'Université de Lorraine (France)* Co-Directeur de
thèse

B. JOULAKIAN, *Professeur à l'Université de Lorraine (France)*

M.NEKKAB, *Professeur à l'université de M'sila (Algérie)*

K. BARKANE, *Maître de Conférences à l'UFA, Sétif1 (Algérie)*

Président

Directeur de thèse

Examineur

Examineur

Examineur

Dédicace

Je dédie ce travail :

À mes chers parents.

À mon mari.

À mes enfants : Khadra Lina, Yahia, Younes.

À ma sœur jumelle Lamia.

À mes sœurs et frères et leurs enfants.

À la mémoire de mon frère Salim.

Remerciements

*Je tiens en premier lieu à beaucoup remercier mon directeur de thèse Monsieur **Salim Houamer**, Professeur à l'Université de Setif 1 de m'avoir aidé à terminer ce travail.*

*J'adresse aussi mes remerciements à mon codirecteur de thèse Monsieur **Claude Dal Cappello**, Professeur à l'Université de Lorraine, d'avoir accepté de diriger ce travail.*

*Je tiens à remercier également Monsieur **Abdelaziz Mansouri**, Professeur à l'Université de Setif 1. Je le remercie pour avoir accepté de participer et de présider ce jury.*

*Je tiens à exprimer mon profond respect à Monsieur **Mohamed. Nekkab**, Professeur à l'Université de M'sila. Je le remercie pour avoir accepté de participer et de présider ce jury.*

*Je remercie aussi Monsieur **Jacques Langlois**, Professeur à l'Université de Brest et Monsieur **Boghos Joulakian**, Professeur à l'Université de Lorraine pour l'honneur qu'ils m'ont fait d'avoir acceptés de juger ce travail. Je remercie également Madame **Karima Barkane**, Maître de Conférences à l'Université de Sétif 1, d'avoir acceptée de faire partie de ce jury.*

Merci infiniment

Résumé

L'étude de l'ionisation simple par impact électronique de quelques cibles atomiques et moléculaires a été effectuée à l'aide de l'approximation de Born au premier ordre.

Dans ce cadre, l'électron incident (puis diffusé) est décrit par une onde plane alors que l'électron éjecté sera successivement décrit par une onde coulombienne, puis par une onde distordue. Dans une première partie le calcul des sections efficaces différentielles et totales a été réalisé en prenant un état final orthogonalisé à l'état initial de la cible. Un accord globalement satisfaisant a été trouvé avec les mesures expérimentales réalisées sur le néon, l'eau, le méthane et l'ammoniac pour les sections efficaces totales. Dans une deuxième partie la distorsion de la trajectoire de l'électron éjecté a été prise en compte dans le calcul des sections efficaces différentielles. Un meilleur accord est trouvé dans le cas de l'ionisation de couches internes de gaz rares (argon par exemple) pour la localisation du pic binaire mais des désaccords subsistent pour la description du pic de recul.

Mots clés :

Ionisation simple. Approximation de Born. Onde distordue. Section efficace triplement différentielle.

Abstract

A study of the single ionization of atoms and molecules has been performed by using the first Born approximation. In this frame, the incident (then scattered) electron is described by a plane wave and the ejected electron by a Coulomb wave and by a distorted wave. In a first part the differential and total cross sections have been calculated by taking a final state orthogonalized to the initial state of the target. A satisfactory agreement has been found with experiments performed on neon, water, methane and ammonia for the total cross sections. In a second part the differential cross sections have been calculated by using a distorted wave for describing the ejected electron. A better agreement is found in the case of the ionization of inner shell of noble gases (argon for instance) for the binary peak but some disagreements remain for the recoil lobe.

Key words

Simple ionization. Born approximation. Distorted wave. Triple differential cross section.

Table des Matières

Introduction générale	<u>10</u>
Chapitre I : Généralités sur la simple ionisation (e,2e)	<u>13</u>
Introduction	<u>14</u>
I.1.Description du processus de collision.....	<u>14</u>
I.1.1.Physique de la simple ionisation (e, 2e)	<u>14</u>
I.1.2.Section efficace d'ionisation.....	<u>16</u>
I.1.2.1.Section efficace simplement différentielle (SESD).....	<u>17</u>
I.1.2.2.Section efficace doublement différentielle (SEDD).....	<u>18</u>
I.1.2.3.Section efficace triplement différentielle(SETD).....	<u>18</u>
I.1.2.4.Section efficace totale	<u>18</u>
I.2.Amplitude de diffusion	<u>19</u>
I.3.Portée d'un potentiel en mécanique quantique	<u>20</u>
I.4.Conditions cinématiques et géométrique de la simple ionisation.....	<u>21</u>
I.5.Modèles théoriques	<u>22</u>
I.5.1.Approximation de Born	<u>23</u>
I.5.2.Approximation de Born avec des ondes distordues (DWBA).....	<u>25</u>
I.5.2.1.Diffusion par un potentiel de courte portée	<u>26</u>
I.5.2.2.Diffusion élastique par un potentiel coulombien.....	<u>27</u>
I.5.3.Modèle CCC	<u>29</u>
I.5.4.Modèle BBK	<u>29</u>

Conclusion.....	30
Chapitre II : Description quantique des atomes et des molécules	31
Introduction	32
II.1.Ionisation des cibles atomiques	33
II.1.1.Orbitales atomiques	33
II.1.2.Orbitales atomiques d'un atome multiélectronique.....	33
II.1.3.Section efficace triplement différentielle (SETD).....	34
II.1.4.Approximation du cœur gelé	35
II.1.5.Modèle du cœur gelé avec deux électrons actifs.....	36
II.1.6.Modèle du cœur gelé avec un électron actif.....	38
II.2.Ionisation des cibles moléculaires	38
II.2.1.Hamiltonien moléculaire	39
II.2.2.L'approximation de Born-Oppenheimer.....	40
II.2.3.Les orbitales moléculaires	41
II.2.4.Méthode de combinaison linéaire des orbitales atomiques CLOA.....	42
II.2.5.Les orbitales hybrides.....	43
II.3.Les bases des orbitales atomiques	44
II.3.1.Bases de Slater STO	44
II.3.2.Bases gaussiennes GTO.....	45
II.4.Les fonctions d'onde de Moccia.....	45
II.5.Système de laboratoire et système de la molécule - Angles d'Euler	46
II.6.Section efficace triplement différentielle (SETD).....	48
II.7.Représentation des électrons du continuum	49
II.7.1.Modèle de Born de l'onde plane PWBA.....	49
II.7.2. Modèle de Born de l'onde coulombienne CWBA	50
II.7.3. Modèle de Born de l'onde distordue DWBA.....	50
Conclusion.....	51

Chapitre III : Effet de l'orthogonalisation sur la section efficace

totale d'ionisation : Application aux petites molécules de type XH_n ..[52](#)

Introduction [53](#)

III.1.Le modèle OCW..... [54](#)

III.2.Section efficace triplement différentielle [55](#)

III.2.1.Cible atomique [55](#)

III.2.2Cible moléculaire [56](#)

III.3.Atome de néon..... [57](#)

III.4.Les molécules de types XH_n [57](#)

III.4.1.La molécule d'eau H_2O [57](#)

III.4.2.La molécule d'ammoniac NH_3 [59](#)

III.4.3.La molécule de méthane CH_4 [61](#)

III.5.Résultats et discussion..... [63](#)

III.5.1.Section efficace totale SET [63](#)

III.5.2.Section efficace triplement différentielle [68](#)

III.5.3.Sections efficaces simplement et doublement différentielles [71](#)

Conclusion..... [73](#)

Chapitre IV : Calcul de la section efficace d'ionisation triplement

différentielle avec le modèle 1DW [75](#)

Introduction [76](#)

IV.1.Modèle de Born avec une onde distordue 1DW [77](#)

IV.1.1.Potentiel moyen et Charge effective $Z(r)$ [79](#)

IV.2.Conditions cinématiques et géométriques de la collision $(e,2e)$ [82](#)

IV.3. Ionisation simple des cibles atomiques Ne et Ar.....	83
IV.4. Ionisation des cibles moléculaires	84
IV.5. Résultats et discussion	85
Conclusion générale	99
Annexe A : Calcul de l'amplitude de diffusion d'une molécule.....	101
Bibliographie	105

Introduction générale

L'étude statique ou dynamique de l'ionisation des atomes et des molécules est un outil d'investigation du monde subatomique. La confrontation des résultats obtenus par divers modèles aux données expérimentales permet de déduire des informations sur la structure des cibles atomiques ou moléculaires et sur le scénario de cette réaction. La connaissance des sections efficaces d'ionisation différentielles et totales des atomes et de molécules par impact d'électrons est nécessaire dans diverses applications telles que: la radioprotection, la radiobiologie, l'astrophysique, la médecine nucléaire et la physique du plasma. Il permet de nous renseigner autant sur la collision que sur la structure interne de la cible. La prise en considération de toutes les interactions durant la collision apparaît nécessaire pour ajuster les calculs à l'expérience, mais sa mise en œuvre s'avère difficile à cause des moyens de calculs qui restent limités.

Plusieurs modèles quantiques ont été élaborés pour le calcul de la section efficace triplement différentielle qui présente la grandeur la plus intéressante dans la théorie de la diffusion car elle permet d'analyser le processus d'ionisation et de comparer les résultats de calculs et de l'expérience. Selon les interactions prises en comptes ces approximations peuvent être du premier ordre ou du second ordre. Les études ont surtout concerné les cibles atomiques avec un seul électron, les cibles atomiques ou moléculaires multiélectroniques étant moins étudiées. Les calculs théoriques dépendent de la description correcte et complète de la cible atomique ou moléculaire. Cette description s'appuie souvent sur des fonctions d'onde monocentriques [1], lesquelles sont disponibles pour les cibles atomiques ou les petites molécules. Plusieurs paramètres jouent un rôle important pour la détermination de la section efficace triplement différentielle : l'énergie d'incidence et le moment de transfert. Selon leurs valeurs on peut distinguer trois régions : la région binaire pour une énergie d'incidence et un moment transfert simultanément élevés et qui est la condition préférée pour l'étude de la simple ionisation, la région dipolaire caractérisée par une énergie d'incidence élevée et un faible moment de transfert, et la région intermédiaire déterminée pour des valeurs intermédiaires d'énergies d'impact et de moment de transfert. Dans l'étude de la simple ionisation d'une cible il est important de prendre en compte les différentes interactions : polarisation, distorsions des ondes entrantes ou sortantes, corrélations électronique dans l'état initial ou post collisionnel du système cible – projectile.

De nombreuses études théoriques et expérimentales [2-5] ont contribué grandement à la compréhension des processus de simple ionisation des couches internes ou externes des cibles

atomiques les plus simples (l'hélium, l'hydrogène atomique) aux plus compliquées (gaz rares : Ar et Ne). En raison de leur caractère multicentrique, les cibles moléculaires ont été rarement étudiées en dehors du régime 'EMS'. L'étude a concerné l'ionisation des petites molécules diatomiques comme par exemple : H₂, O₂ et N₂ [6-11], des cibles moléculaires plus complexes : H₂O, CO₂, CH₄ et NH₃ [12-19], et des cibles moléculaires d'intérêt biologique telle que la thymine [20].

La présente étude contient deux axes principaux : le premier axe est destiné à l'étude de la contribution de l'orthogonalisation de l'onde coulombienne représentant l'électron éjecté avec les états liés de la cible sur le calcul des sections efficaces différentielles et totales. Et le second axe est consacré à l'étude de l'effet de la distorsion de l'onde de l'électron éjecté sur le calcul de la section efficace triplement différentielle.

Dans notre travail on utilise le modèle avec une onde coulombienne CW pour calculer la section efficace d'ionisation des molécules par impact électronique. Pour améliorer l'accord avec les résultats expérimentaux, on utilise un modèle avec une onde coulombienne orthogonale OCW dans lequel l'électron éjecté est représenté par une onde coulombienne orthogonale à tous les états initiaux de la molécule. La notion d'orthogonalité a été récemment discutée pour l'étude de la fragmentation de l'ion molécule HDO⁺ produite par l'ionisation de H₂O par des électrons [21]. La méthode a en fait été appliquée auparavant par Bartlett et Stelbovics pour des cibles atomiques [22]. Le but de notre travail est d'étendre la méthode à des petites molécules à savoir H₂O, NH₃ et CH₄. Le modèle OCW est vérifié tout d'abord avec l'atome du néon qui comporte le même nombre d'électrons que les petites molécules précédentes.

La seconde partie de ce travail est consacrée au calcul de la section efficace triplement différentielle en utilisant le modèle avec une onde distordue 1DW, lequel décrit l'électron éjecté par une onde distordue obtenue par la substitution de la charge effective (prise égale à l'unité) par une charge variante dépendante de la distance r qui sépare l'électron éjecté du noyau de la cible. On va calculer la section efficace triplement différentielle pour les gaz nobles : Ne et Ar, ainsi que pour les trois molécules : à savoir H₂O, NH₃ et CH₄. Les résultats de calculs avec les modèles 1DW et 1CW seront comparés aux données expérimentales.

Ce manuscrit se subdivise en quatre chapitres :

Le premier chapitre présente la théorie de la diffusion : on y expose les éléments fondamentaux de cette théorie, en commençant par l'équation qui décrit le phénomène de diffusion et sa solution approchée, ensuite on définit des grandeurs indispensables dans la

description de la simple ionisation telles que : l'amplitude de diffusion et les sections efficaces totales et différentielles. Ces dernières nous permettent de juger nos calculs en les comparant aux valeurs expérimentales, puis on présente les conditions cinématiques et géométriques possibles pour l'ionisation d'une cible atomiques ou moléculaire. Enfin des modèles utilisés en mécanique quantique pour la description du processus ($e,2e$) sont décrits : en premier lieu l'approximation de Born, la méthode dite CCC qui a connu pas mal de succès mais qui nécessite un temps de calcul conséquent, les modèles DWBA et BBK.

Le deuxième chapitre est consacré à la déduction de l'expression de la section efficace triplement d'ionisations des atomes et des molécules. Une description quantique adéquate pour les cibles atomiques et moléculaires est nécessaire pour calculer la section efficace triplement différentielle. Ces calculs se font dans le cadre de la première approximation de Born dans laquelle on utilise l'approximation du cœur gelé à un ou deux électrons actifs, cela est fait pour alléger le calcul de la section efficace triplement différentielle. La résolution analytique ou souvent numérique de l'équation de Schrödinger permet de déterminer les fonctions d'ondes atomiques et moléculaires des cibles. Les bases utilisées sont des bases de Slater STO pour les atomes et des bases gaussiennes GTO pour les molécules. L'orientation aléatoire des molécules dans les processus d'ionisation nous amène à effectuer une moyenne sur les orientations de la molécule dans l'espace qui revient à une intégration sur les angles d'Euler.

Dans le troisième chapitre on présente les résultats obtenus par la prise en compte de l'effet de l'orthogonalité sur les sections efficaces différentielles et totales. Le calcul nécessite la réécriture de l'expression de la section efficace triplement différentielle en prenant en compte une onde coulombienne orthogonale aux fonctions d'ondes de la cible. Ce calcul est consacré aux molécules H_2O , NH_3 et CH_4 , et au gaz noble Ne. Ces résultats sont confrontés aux mesures expérimentales.

Dans le quatrième chapitre on présente un calcul de la section efficace triplement différentielle et totale pour des gaz rares : Ne et Ar ; l'électron éjecté étant décrit par une onde distordue.

Enfin on termine par une conclusion générale sur l'importance de l'effet d'orthogonalisation sur le calcul de la section efficace triplement différentielle et totale et sur la prise en compte de la distorsion dans la description de l'électron éjecté.

Chapitre I :
Généralités sur la simple ionisation (e,2e)

Introduction

Dans ce chapitre, on définit le processus collisionnel et on présente les notions élémentaires de la théorie de la diffusion. Nous définirons l'amplitude de diffusion et les sections efficaces relatives à ces collisions ainsi que ses diverses cinématiques possibles. Enfin on présentera un aperçu des modèles utilisés en mécanique quantique pour la description de ce phénomène. On détaillera la simple ionisation qui sera le processus le plus probable par rapport aux ionisations multiples et le cas le plus approprié pour l'application de la première approximation de Born.

I.1. Description du processus de collision

Selon les conditions cinématiques : l'énergie, l'angle d'incidence et l'état de la cible, la collision entre un projectile et une cible atomique ou moléculaire peut être *élastique* ou *inélastique* ; l'énergie transférée rend alors la cible excitée ou ionisée. Le phénomène d'ionisation peut être : simple, double, triple ou multiple selon le nombre des électrons éjectés ; ce dernier dépend aussi du nombre de charge z de la cible. Dans ce travail on s'intéresse à l'ionisation simple induite par un électron.

I.1.1. Physique de la simple ionisation (e, 2e)

Soit un référentiel lié au laboratoire pour l'étude de la physique de la simple ionisation (e, 2e) entre un électron et une cible atomique ou moléculaire X au repos (figure I.1). L'électron incident arrive avec une énergie cinétique supérieure au moins à l'énergie d'ionisation de l'électron le moins lié à l'atome (un électron de valence) ; il diffuse en cédant une partie de son énergie cinétique pour libérer un électron de la cible qui sort avec une énergie cinétique plus faible que celle de l'électron incident. Une partie minime de l'énergie transférée à la cible permet au noyau de reculer de sa position initiale.

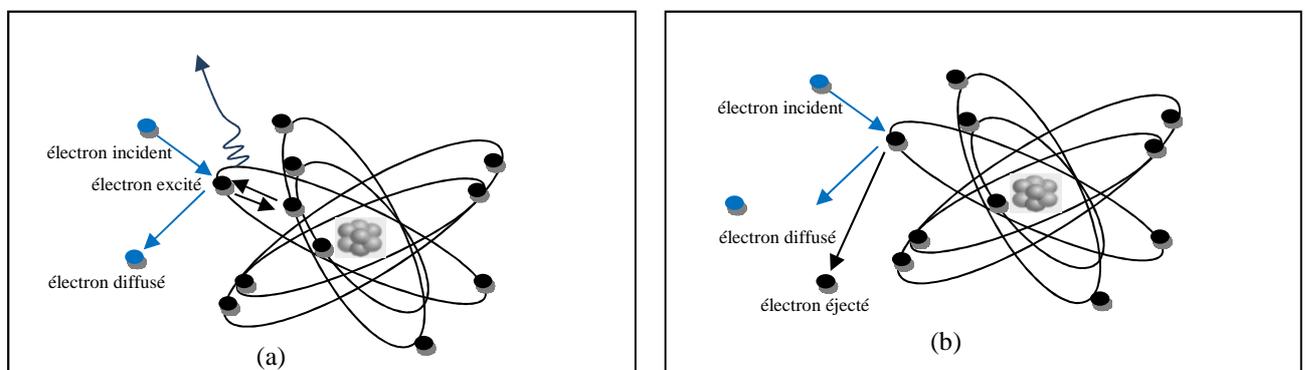


Figure I.1 : processus d'excitation(a) et de simple ionisation d'un atome(b).

Le processus d'ionisation simple peut être représenté comme suit :



Où : X est la cible atomique ou moléculaire, X⁺ l'ion résiduel.

e_i, e_s, e_e sont respectivement les électrons : incident, diffusé et éjecté.

La collision entre l'électron incident d'énergie E_i et une quantité de mouvement \vec{k}_i et la cible X finit par la diffusion de celui-là avec une énergie E_s et une quantité de mouvement \vec{k}_s et l'éjection d'un **seul** électron d'énergie E_e et une quantité de mouvement \vec{k}_e (Figure I.2). Ces trois électrons : incident, diffusé et éjecté sont repérés dans l'espace par les angles solides Ω_i , Ω_s et Ω_e respectivement. Expérimentalement dans les réactions (e, 2e) les électrons diffusé et éjecté sont indiscernables mais on considère l'électron éjecté comme étant l'électron lent.

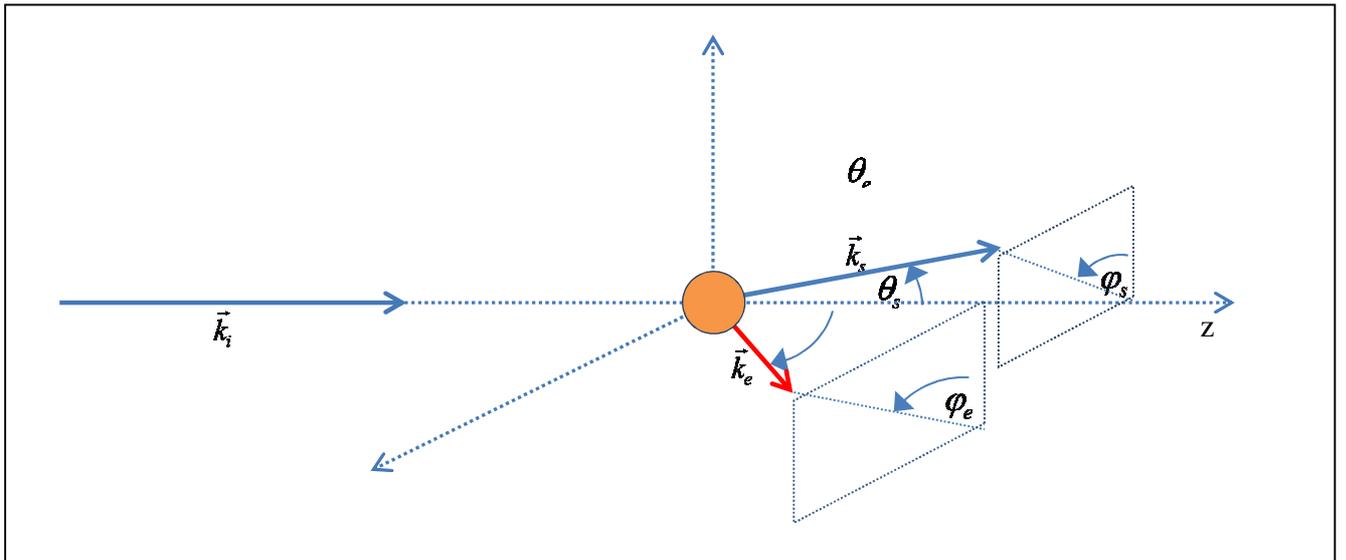


Figure I.2 : présentation des vecteurs d'ondes \vec{k}_e, \vec{k}_s et \vec{k}_i associés aux électrons incidents, diffusé et éjecté respectivement. Les angles $\theta_s, \varphi_s, \theta_e$ et φ_e déterminent les directions de diffusion et d'éjection respectivement.

L'énergie cinétique E de chaque électron en fonction de sa quantité k de mouvement s'écrit en unités atomiques:

$$E = \frac{1}{2} k^2 \quad (\text{I.2})$$

Etant donné que l'énergie et la quantité de mouvement sont conservées alors:

$$E_i = E_s + E_e + I + E_{rec}^{X^+} \quad (I.3)$$

$$\vec{K} = \vec{k}_i - \vec{k}_s = \vec{k}_e + \vec{q} \quad (I.4)$$

I est l'énergie d'ionisation d'une orbitale donnée de la cible.

$E_{rec}^{X^+}$ est l'énergie de recul de la cible qui est très faible à cause de la masse de l'électron projectile qui est très petite devant celle de la cible ($m_e \ll M_{Cible}$).

\vec{q} est le moment de recul de l'ion résiduel. \vec{K} est appelé le moment de transfert du projectile.

I.1.2. Section efficace d'ionisation

La section efficace est la grandeur physique la plus importante dans l'étude de diffusion, elle nous renseigne sur la réaction et sa probabilité d'être produite. Pour déduire son expression en fonction des différentes grandeurs de la réaction on considère un flux F de particules incidentes, de direction parallèle à l'axe (Oz) qui entre en collision avec N_i particules cibles (figure I.3). Si N est le nombre de particules diffusées par unité de temps, la section efficace de diffusion est définie comme le taux de particules qui ont subi une diffusion déterminée dans l'espace sur le nombre de particules incidentes ; elle s'exprime comme suit :

$$\sigma = \frac{N}{N_i F} \quad (I.5)$$

L'unité de la section efficace est le barn.

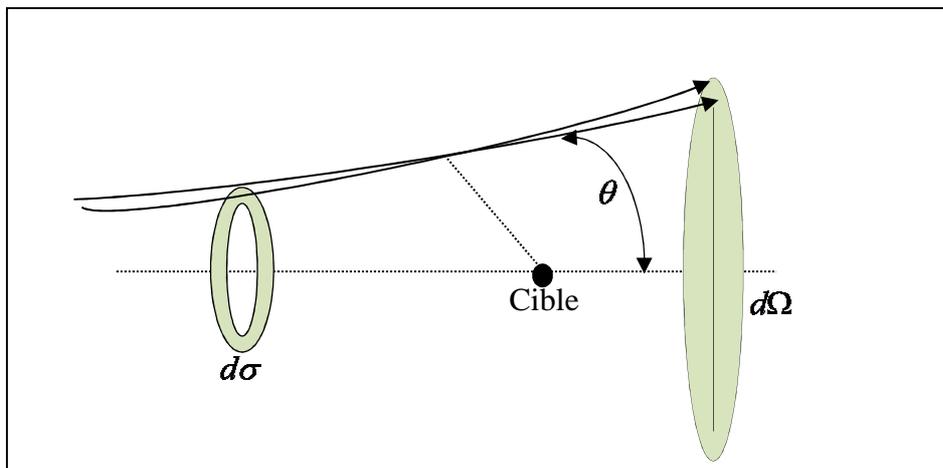


Figure I.3 : Schéma simplifié de la section efficace d'une collision.

La transition de l'état initial 1 d'énergie E_1 (avec le moment k_1) à l'état final 2 d'énergie E_2 (avec le moment k_2) est décrite par l'amplitude de transition T_{12} ; la section efficace est donnée en fonction de T_{12} comme suit [23]:

$$\sigma_{1 \rightarrow 2} = \frac{(2\pi)^4}{k_i} \delta(E_1 - E_2) \delta(k_1 - k_2) |T_{12}|^2 \quad (\text{I.6})$$

La section efficace de diffusion, d'absorption, de capture, de fission..., renseigne sur des modes de réactions bien déterminées (diffusion, absorption, capture, fission...). La dérivée de la section efficace par rapport aux angles solide d'éjection et de diffusion et l'énergie d'éjection (ou de diffusion) donne plus d'informations sur le phénomène et permet l'étude de l'ionisation dans des géométries et des conditions cinématiques déterminées, et de les comparer aux données expérimentales. Étant donné que l'expérience donne la section efficace dans des directions d'éjection et de diffusion et avec une énergie d'incidence initialement bien déterminée, l'expérience mesure donc la section efficace *triplement différentielle* ou *doublement différentielle*. La dérivée peut être au premier, second ou troisième ordre, par rapport aux énergies d'incidence, angles solides de diffusion et d'éjection, ce qui permet de définir d'autres sections efficaces différentielles : la section efficace simplement, doublement et triplement différentielle.

I.1.2.1. Section efficace simplement différentielle (SESD)

La section efficace simplement différentielle en angle est la section efficace de diffusion avec un angle solide Ω_s d'une particule incidente avec une énergie déterminée E_i , elle est donnée comme suit :

$$\sigma^{(1)} = \frac{d\sigma}{d\Omega_s} \quad (\text{I.7})$$

La section efficace simplement différentielle en énergie est donnée par :

$$\sigma^{(1)} = \frac{d\sigma}{dE} \quad (\text{I.8})$$

La SESD en énergie est la plus importante, elle fournit la distribution énergétique (intégrée sur tous les angles) des électrons sortants [24].

I.1.2.2. Section efficace doublement différentielle (*SEDD*)

La section efficace doublement différentielle est la section efficace de diffusion avec l'angle solide Ω_s et une énergie E_s d'un électron incident d'énergie E_i déterminée, elle s'écrit:

$$\sigma^{(2)} = \frac{d^2\sigma}{d\Omega_s dE_s} \quad (\text{I.9})$$

I.1.2.3. Section efficace triplement différentielle (*SETD*)

La section efficace triplement différentielle fournit la description la plus détaillée du processus d'ionisation simple. Elle est dite complètement différentielle puisqu'elle fait intervenir tous les paramètres cinématiques : E_s et E_e ainsi que les angles solides Ω_s et Ω_e . C'est la probabilité pour qu'un électron incident d'énergie E_i produit après la collision avec la cible deux électrons dans l'état final d'énergies E_s , E_e et d'angles solides Ω_s et Ω_e ; on la note :

$$\sigma^{(3)} = \frac{d^3\sigma}{d\Omega_s d\Omega_e dE_s} ; \quad (\text{I.10})$$

Elle décrit, pour une énergie donnée, la distribution angulaire et énergétique d'un électron e_i d'énergie E_i détecté dans la direction définie par l'angle solide Ω_i corrélé à la présence d'un second électron e_s d'énergie E_s dans la direction Ω_s [25].

I.1.2.4. Section efficace totale

La section efficace totale décrit la réaction globale ; elle est obtenue en intégrant la section efficace simplement différentielle sur l'énergie d'incidence. Elle est définie en fonction de tous les paramètres cinématiques qui caractérisent le phénomène d'ionisation (énergie d'incidence, de diffusion et d'éjection et les angles solides d'incidence, de diffusion et d'éjection) ; puisqu'on doit intégrer sur toutes les énergies des électrons sortants à travers un angle solide Ω puis intégrer sur tout l'espace ; on la note :

$$\sigma_T = \int_0^{E_{\max}} \frac{d\sigma^{(1)}}{dE_e} dE_e, \quad (\text{I.11})$$

Où $E_{\max} = (E_i - I)/2$ représente l'énergie maximale de l'électron éjecté.

La section efficace totale de diffusion, d'absorption, de capture ou de fission.., renseigne sur un type de réactions bien déterminé (diffusion, absorption, capture, fission..).

I.2. Amplitude de diffusion

Pour décrire en mécanique quantique le processus de diffusion d'une particule incidente donnée par le potentiel $V(r)$, il faut étudier le comportement au cours du temps du paquet d'ondes représentant l'état de la particule. Les caractéristiques de ce paquet d'ondes sont supposées connues pour les temps t grands et négatifs où la particule n'a pas encore été affectée par le potentiel $V(r)$. On sait que l'évolution ultérieure du paquet d'ondes s'obtient immédiatement si on l'exprime comme une superposition d'états stationnaires. C'est la raison pour laquelle nous étudions l'équation aux valeurs propres de l'hamiltonien du mouvement relatif ; le raisonnement est porté sur ces états stationnaires et non sur le paquet d'ondes.

Les états propres $\Psi(r, t)$ sont :

$$\Psi(r, t) = \phi_k(r) e^{\left(\frac{-iEt}{\hbar}\right)} \quad (\text{I.12})$$

Où $\phi_k(r)$ est solution de l'équation de Schrödinger indépendante du temps suivante :

$$\left[\Delta + k^2 - u(r)\right]\phi(r) = 0, \quad (\text{I.13})$$

$$\text{Avec : } k^2 = \frac{2\mu E}{\hbar^2} \text{ et } u(r) = \frac{2\mu V(r)}{\hbar^2}.$$

On cherche une solution asymptotique ; donc lorsque $|r|$ tend vers l'infini $V(r)$ tend vers zéro. Les états propres de diffusion ont la forme suivante :

$$\phi(\vec{k}, \vec{r}) \underset{r \rightarrow \infty}{\approx} A e^{ikz} + \frac{f_k(\theta, \varphi)}{r} e^{ikr} \quad (\text{I.14})$$

$f_k(\theta, \varphi)$ est l'amplitude de diffusion qui dépend des angles de diffusion.

A est une constante de normalisation.

Le paquet d'ondes décrivant notre système est composé du paquet d'ondes *transmises* $A e^{ikz}$ et du paquet d'ondes diffusées $\frac{f_k(\theta, \varphi)}{r} e^{ikr}$.

La fonction de Green qui satisfait l'équation de Schrödinger s'écrit :

$$G_{\pm}(\vec{r} - \vec{r}') = \frac{-1}{4\pi} \frac{e^{(ik|\vec{r} - \vec{r}'|)}}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \quad (\text{I.15})$$

Dans la région asymptotique : $r \rightarrow \infty$, on a :

$$|\vec{r} - \vec{r}'| \approx r - \vec{e}_r \cdot \vec{r}' \quad (\text{I.16})$$

La fonction de Green devient :

$$G_{\pm}(\vec{r} - \vec{r}') = \frac{-1}{4\pi} \frac{e^{ik(r - \vec{e}_r \cdot \vec{r}')}}{r} \quad (\text{I.17})$$

La forme intégrale de l'équation permet d'écrire les solutions comme suivant:

$$\phi(\vec{r}) = Ae^{ikz} + \int d\vec{r}' G(\vec{r} - \vec{r}') u(r') \phi(\vec{r}') \quad (\text{I.18})$$

En combinant (I.17) et (I.18), on trouve:

$$\phi_k(\vec{r}) = e^{ikz} - \frac{e^{ikr}}{4\pi r} \int d\vec{r}' e^{-i\vec{k}_s \cdot \vec{r}'} u(\vec{r}') \phi_i(\vec{r}') \quad (\text{I.19})$$

L'amplitude de diffusion $f_k(\theta, \varphi)$ est donnée par la formule :

$$f_k(\theta, \varphi) = \frac{-\mu}{\hbar^2 2\pi} \int d\vec{r}' \exp(-i\vec{k}_s \cdot \vec{r}') V(\vec{r}') \phi_i(\vec{r}') \quad (\text{I.20})$$

Dans la notation de Dirac, l'amplitude de diffusion s'écrit :

$$f = -\frac{1}{2\pi} \langle \phi_{kf} | V | \phi_{ki} \rangle \quad (\text{I.21})$$

ϕ_{kf} et ϕ_{ki} représentent respectivement les fonctions d'ondes finale et initiale du système.

L'équation peut être réécrite en termes de la matrice de transition-T comme suit:

$$f = -\frac{1}{2\pi} T_{if} = -\frac{1}{2\pi} \langle \phi_{kf} | T | \phi_{ki} \rangle \quad (\text{I.22})$$

I.3. Portée d'un potentiel en mécanique quantique

La notion de portée du potentiel diffusant joue un rôle essentiel ; si le diffuseur est centré en $r=0$, la portée a est définie comme la distance au centre au-delà de laquelle la particule n'est plus sensible de manière appréciable au champ de force créé par le diffuseur. Pour des sphères dures ou pour le potentiel de Yukawa, cette notion est claire. Pour les potentiels décroissant comme des lois de puissance à l'infini donnés comme suit :

$$V(r) \sim \frac{c_n}{r^n}; |r| \rightarrow \infty \quad (\text{I.23})$$

En mécanique classique le potentiel $V(r)$ a une portée infinie ; une particule préparée à n'importe quelle distance de l'origine avec une énergie cinétique $E_c \sim \frac{c_n}{r_n}$ sera accélérée de manière significative.

Considérons une particule quantique, préparée dans un paquet d'ondes centré en r , avec une extension Δr . L'hypothèse de localisation en r entraîne $\Delta r \ll r$; pour que la densité de probabilité soit négligeable en $r=0$, l'inégalité de Heisenberg entraîne que la dispersion Δp de la distribution en impulsion doit être telle que $\Delta r \Delta p \geq \frac{\hbar}{2}$; par conséquent l'énergie cinétique E_c de la particule est telle que :

$$E_c \geq \frac{\Delta p^2}{2m} \geq \frac{\hbar^2}{8m\Delta r^2} \gg E_c^{\min} = \frac{\hbar^2}{8m.r^2} \quad (\text{I.24})$$

Cela fournit une borne inférieure à l'énergie cinétique d'une particule localisée en r .

Supposons maintenant que l'exposant n donnant la variation du potentiel à l'infini dans (I.23) soit strictement plus grand que 2 ; dans ce cas, il y a une distance caractéristique au-delà de laquelle l'énergie cinétique de la particule est nécessairement beaucoup plus grande que son énergie potentielle. Cette distance caractéristique est telle que la borne inférieure sur l'énergie cinétique E_c^{\min} est égale à $|V(r)|$:

$$r \approx a = \left(\frac{m\hbar^2}{c_n} \right)^{1/(n-2)} \quad (\text{I.25})$$

Ainsi, en mécanique quantique, des potentiels décroissant à l'infini plus vite que r^{-2} ont une portée finie. Le potentiel coulombien possède au contraire une portée infinie, comme en physique classique.

I.4. Conditions cinématiques et géométrique de la simple ionisation

Plusieurs configurations cinématiques et géométriques peuvent être utilisées pour une ionisation simple ou multiple (Figure I.4). Si l'éjection et la diffusion sont dans le même plan d'incidence la géométrie est dite **coplanaire**, sinon elle est **non coplanaire**. Ainsi la sortie symétrique des deux électrons émergeant de l'ionisation détermine une géométrie **symétrique** ou une géométrie **asymétrique** si l'émergence se fait avec des angles de diffusion et d'éjection différents. En résumé pour l'ionisation simple d'une cible, la géométrie peut être :

- a. symétrique coplanaire
- b. symétrique non coplanaire
- c. asymétrique coplanaire
- d. asymétrique non coplanaire.

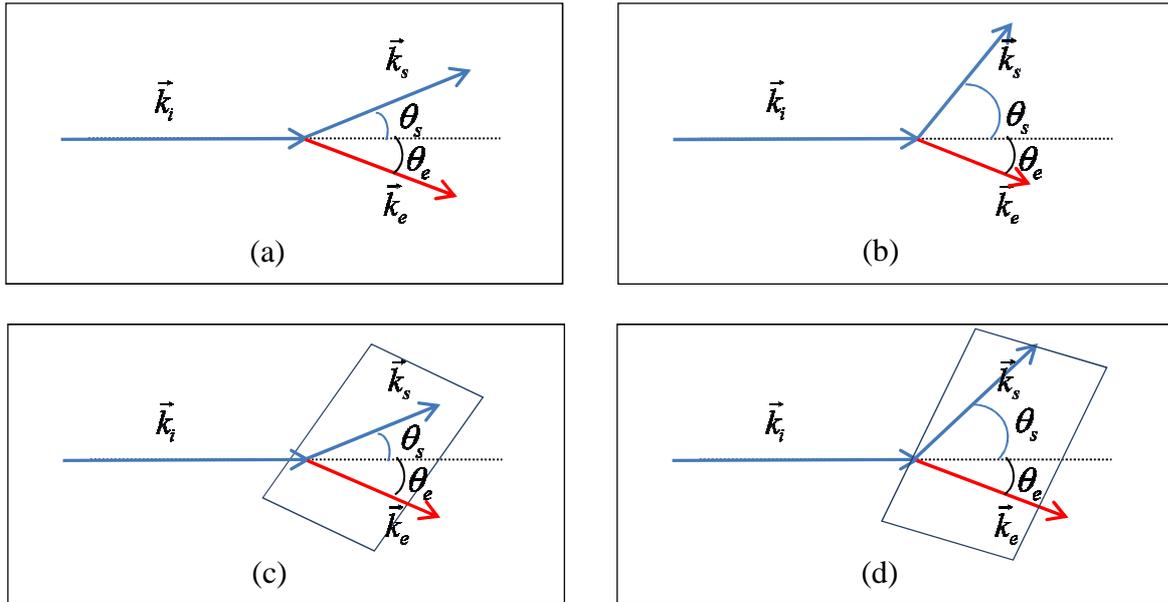


Figure I.4 : Schéma des géométries cinématiques de la réaction (e, 2e). (a) la géométrie symétrique coplanaire. (b) la géométrie asymétrique coplanaire. (c) la géométrie symétrique non coplanaire. (d) la géométrie asymétrique non coplanaire.

I.6. Modèles théoriques

La connaissance de l'amplitude de diffusion est nécessaire pour la détermination de la section efficace. Cette amplitude nécessite le calcul de l'élément de transition entre les états initial et final de la cible. Pour alléger son calcul on doit recourir à des approximations et à des modèles ; la plupart de ces modèles ont été développés pour l'ionisation de l'hydrogène qui présente le système quantique le plus simple. Parmi les modèles utilisés on peut citer par exemple l'approximation de Born, le modèle des ondes distordues DWBA, le modèle 3C et le modèle BBK.

I.6.1. Approximation de Born

Dans les années soixante, l'approximation de Born a été utilisée dans les premiers calculs de la section efficace. Les modèles ont été améliorés et ont réussi à bien à décrire l'ionisation simple par exemple le modèle BBK. A la fin du vingtième siècle les développements des méthodes numériques ainsi que l'utilisation des ordinateurs ont permis l'amélioration des modèles proposés permettant de pousser les calculs aux ordres supérieurs (second ordre de Born) pour reproduire les résultats expérimentaux.

L'approximation de Born est l'approximation la plus simple mais très utile en pratique. C'est un développement de type perturbatif qui a été proposé dès 1926 [26]. Cette approximation se base sur le fait de négliger l'interaction de l'électron incident avec les particules constituant la cible devant l'énergie de l'électron incident. Ainsi le potentiel diffuseur de la cible peut être traité comme une perturbation. L'opérateur de transition est défini dans ce cas à l'aide de la fonction de Green et du potentiel d'interaction V , donc l'opérateur de transition peut être développé en fonction du potentiel V et aux différents ordres comme suit [27]:

$$T = V + VG_0^+V + VG_0^+VG_0^+V + \dots \quad (\text{I.26})$$

Sous la forme d'un développement en termes de potentiel d'interaction V [28]:

$$T = V + V(E_i - K + i\eta)^{-1}V + V(E_i - K + i\eta)^{-1}V(E_i - K + i\eta)^{-1}V + \dots + V[(E_i - K + i\eta)^{-1}]^n \quad (\text{I.27})$$

La première approximation de Born consiste à ne retenir que *le premier terme* du développement donc l'électron incident n'a subi qu'une seule interaction avec la cible, il est valable pour des énergies d'incidence élevées par rapport aux énergies de liaison des électrons de la cible (de quelques eV à des dizaines d'eV). La limite de validité de l'approximation Born I a été bien établie dans le cas de la simple ionisation de l'hydrogène et de l'hélium, il faut une énergie d'incidence supérieure à 25 fois l'énergie d'ionisation (340 eV pour l'hydrogène et 600 eV pour l'hélium) [27].

De l'équation (I.27) l'amplitude de diffusion devient [28] :

$$f_{bn} = \sum_{j=1}^n \tilde{f}_{bi} \quad (\text{I.28})$$

Où :

$$\tilde{f}_{bi} = -2\pi^2 \langle \phi_f | VG_0^{(+)}V \dots \dots \dots G_0^{(+)}V | \phi_i \rangle \quad (\text{I.29})$$

f_{bn} représente la nième approximation de Born.

ϕ_f et ϕ_i sont respectivement l'état final et initial du système (projectile + cible), en représentant l'électron incident avant et après sa diffusion par une onde plane, ils sont donnés comme suit :

$$\phi_i = \varphi_i(\vec{k}_i)\psi_i(1,2,\dots,N) \quad (\text{I.30})$$

$$\phi_f = \varphi_f(\vec{k}_f)\psi_f(1,2,\dots,N) \quad (\text{I.31})$$

Où : $\psi_i(1,2,\dots,N)$ et $\psi_f(1,2,\dots,N)$ représentent les états initial et final de la cible

$\varphi_i(\vec{k}_i)$ et $\varphi_f(\vec{k}_f)$ représentent respectivement le projectile avant et après la diffusion, elles sont données par:

$$\varphi(\vec{k}_i, \vec{r}) = (2\pi)^{\frac{-3}{2}} e^{(i\vec{k}_i \cdot \vec{r})} \quad (\text{I.32})$$

$$\varphi(\vec{k}_s, \vec{r}) = (2\pi)^{\frac{-3}{2}} e^{(i\vec{k}_s \cdot \vec{r})} \quad (\text{I.33})$$

Pour les deux premiers termes de la série de Born, on aura :

$$\tilde{f}_{b1} = -\frac{1}{2\pi} \langle \phi_f | V | \phi_i \rangle \quad (\text{I.34})$$

$$\tilde{f}_{b2} = -\frac{1}{2\pi} \langle \phi_f | V G_0^{(+)} V | \phi_i \rangle \quad (\text{I.35})$$

Donc l'amplitude de diffusion dans la première et seconde approximation de Born s'écrit respectivement:

$$f_{b1} = \tilde{f}_{b1} \quad (\text{I.36})$$

$$f_{b2} = \tilde{f}_{b1} + \tilde{f}_{b2} \quad (\text{I.37})$$

Le calcul exact de la section efficace de diffusion nécessite la connaissance des états propres de l'hamiltonien, cette étape est un travail numérique difficile, sauf dans quelque cas spécifiques pour lesquels la forme analytique de ces états propres est connue.

I.6.2. Approximation de Born avec des ondes distordues (DWBA)

Dans ce modèle noté DWBA l'électron incident et les électrons émergents (diffusé et éjecté) sont décrits par une onde distordue. Quand l'énergie du projectile est faible, le potentiel d'interaction n'est plus négligeable et agit comme une distorsion dans les voies d'entrée et de sortie.

Dans le cas de l'ionisation d'un atome ou d'une molécule neutre par impact électronique il existe un potentiel de courte portée dans la voie initiale et un potentiel coulombien dans la voie finale. Ce potentiel représente une interaction de courte portée entre chaque électron entrant ou sortant de la cible dans son état initial et final et s'écrit comme suit [28] :

$$U_{cible}(\vec{r}_0) = \frac{-z}{r_0} + \langle \psi_{cible}(1,2,\dots,N) | \sum_{i=1}^N \frac{1}{r_{0i}} | \psi_{cible}(1,2,\dots,N) \rangle \quad (\text{I.38})$$

$$U_{ion}(\vec{r}_0) = \frac{-z}{r_0} + \langle \psi_{ion}(1,2,\dots,N) | \sum_{i=1}^N \frac{1}{r_{0i}} | \psi_{ion}(1,2,\dots,N) \rangle \quad (\text{I.39})$$

En diffusion par un potentiel de courte portée, la fonction est la superposition de deux ondes, l'une incidente et l'autre diffusée. Dans la méthode des ondes partielles, cette fonction d'onde est développée en *ondes partielles*, l'étude du comportement asymptotique de la fonction d'onde solution de l'équation de Schrödinger permet la détermination du déphasage due au potentiel de courte portée dans la voie de sortie où un potentiel coulombien agit sur la solution asymptotique. Le déphasage contient un **déphasage coulombien** et un **déphasage de courte portée**.

Les électrons incident, diffusé et éjecté sont donc représentés par des ondes distordues :

$$\chi(\vec{k}, \vec{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{\frac{3}{2}}} \sum_{l,m} i^l e^{i\delta_l} \frac{F_l(k, r)}{kr} Y_{l,m}^*(\hat{k}) Y_{l,m}(\hat{r}) \quad (\text{I.40})$$

Où $F_l(k, r)$ est la fonction radiale distordue. Cette fonction est solution de l'équation de Schrödinger suivante :

$$\left[\frac{d^2}{dr^2} - l(l+1) - u(r) + k^2 \right] F_l(k, r) = 0 \quad (\text{I.41})$$

Satisfaisant les conditions initiales :

$$F_l(k, 0) = 0 ; F_l(k, r) = \frac{1}{\sqrt{k}} \sin(kr - \frac{l\pi}{2} + \delta_l) \quad r \rightarrow \infty$$

Où δ_l est le déphasage de la lième onde partielle du développement. Au-delà d'une certaine distance, l'effet de ce potentiel devient pratiquement nul.

A une énergie incidente et diffusée très grandes, les ondes distordues des électrons incident et diffusé sont remplacées par des ondes planes, d'où le modèle PWBA « plane wave Born approximation » [29].

Pour calculer la section efficace, il est nécessaire de déterminer les solutions de l'équation de Schrödinger (1.13) pour un potentiel de courte portée et un autre de longue portée (potentiel coulombien).

I.6.2.1. Diffusion par un potentiel de courte portée

La fonction d'onde d'une particule diffusée dans un potentiel de courte portée prend la forme asymptotique donc la fonction d'onde est la superposition d'une onde plane incidente et d'une onde sphérique diffusée de suivante :

$$\psi_{k_i}^{(+)}(k, \vec{r}) \rightarrow A(e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}} + f_c(\theta, \phi) \frac{e^{ikr}}{r}), r \rightarrow \infty \quad (\text{I.42})$$

$f_c(\theta, \phi)$ est l'amplitude de diffusion

Pour une particule mise dans un potentiel central, l'équation de Schrödinger (1.13) s'écrit en coordonnées sphériques :

$$\left[\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial}{\partial r} \right) - \frac{L^2}{\hbar^2 r^2} + k^2 - V(r) \right] \psi_{k_i}^{(+)}(k, \vec{r}) = 0 \quad (\text{I.43})$$

Où L est l'opérateur moment angulaire de la particule.

On cherche les solutions qui satisfont cette équation et qui peuvent être développées en ondes partielles :

$$\psi_{k_i}^{(+)}(k, \vec{r}) = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l c_{lm}(k) R_l(k, r) Y_{lm}(\theta, \varphi) \quad (\text{I.44})$$

Si on injecte cette expression dans l'équation (1.43), on obtient deux équations correspondant aux parties angulaire et radiale $R_l(k, r)$ respectivement :

$$\left[\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial}{\partial r} \right) - \frac{l(l+1)}{r^2} + k^2 - V(r) \right] R_l(k, r) = 0 \quad (\text{I.45})$$

En utilisant la fonction radiale réduite $U_l(k, r) = rR_l(k, r)$, on obtient l'équation suivante :

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial r^2} - \frac{l(l+1)}{r^2} + k^2 - V(r) \right] U_l(k, r) = 0 \quad (\text{I.46})$$

Si r tend vers l'infini $v(r)=0$, l'équation est équivalente à celle d'une particule libre :

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial r^2} - \frac{l(l+1)}{r^2} + k^2 \right] U_l(k, r) = 0 \quad (\text{I.47})$$

Posons $\rho = kr$ et la fonction $f_l(\rho) = \frac{U_l(k, r)}{\rho}$ l'équation (1.47) devient :

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial \rho^2} - \frac{2}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} + \left(1 - \frac{l(l+1)}{\rho^2}\right) \right] f_l(\rho) = 0 \quad (\text{I.48})$$

Cette équation représente les fonctions de Bessel sphérique régulière à l'origine qui a pour comportement asymptotique :

$$j_l(\rho) = \frac{\sin(\rho - l\frac{\pi}{2})}{\rho}, \rho \rightarrow \infty \quad (\text{I.49})$$

L'équation radiale étant identique à celle dans la région asymptotique, sa solution est semblable à un déphasage du au potentiel $V(r)$ noté δ_l :

$$U_l(k, r) = \sin(kr - l\frac{\pi}{2} + \delta_l), \rho \rightarrow \infty \quad (\text{I.50})$$

I.6.2.2. Diffusion élastique par un potentiel coulombien

Le développement précédent n'est pas applicable pour des potentiels de longue portée tel le potentiel coulombien, donc la fonction d'onde a la forme suivante :

$$\psi_{k_i}^{(+)}(k, \vec{r}) \rightarrow A \left(e^{i \left[\vec{k}_i \cdot \vec{r} - \frac{1}{k} \log(kr + \vec{k} \cdot \vec{r}) \right]} + f_c(\theta) \frac{e^{i(kr + \frac{1}{k} \log 2kr)}}{r} \right), r \rightarrow \infty \quad (\text{I.51})$$

L'amplitude de diffusion coulombienne $f_c(\theta)$ s'écrit :

$$f_c(\theta) = \frac{i}{k} e^{2i\sigma_0} \frac{e^{\frac{i}{k} \log(\sin^2 \frac{1}{2}\theta)}}{2k \sin^2 \frac{1}{2}\theta} \quad (\text{I.52})$$

où :

$$\sigma_0 = \arg \Gamma(1 - \frac{i}{k}) \quad (\text{I.53})$$

Il existe une solution exacte de l'équation de Schrödinger (1.13) :

$$\psi(\vec{k}, \vec{r}) = (2\pi)^{-\frac{3}{2}} e^{\frac{\pi}{2k}} \Gamma\left(1 - \frac{i}{k}\right) e^{i\vec{k}\vec{r}} {}_1F_1\left(-\frac{i}{k}; 1; -i(kr + \vec{k}\vec{r})\right) \quad (\text{I.54})$$

L'équation de Schrödinger (1.13) pour un système comportant un électron et un noyau de charge Z est :

$$\left[\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial}{\partial r} \right) - \frac{L^2}{r^2} + k^2 + \frac{2z}{r} \right] \psi(\vec{k}, \vec{r}) = 0 \quad (\text{I.55})$$

Nous utilisons un développement en ondes partielles de la fonction d'onde $\psi(\vec{k}, \vec{r})$ qui permet d'incorporer des corrections au potentiel d'interaction

$$\psi(\vec{k}, \vec{r}) = \sum_{l=0}^{\infty} \frac{F_l(k, r)}{r} P_l(\cos\theta) \quad (\text{I.56})$$

Les P_l sont les polynômes de Legendre donnés par :

$$P_l(\cos\theta) = \frac{4\pi}{2l+1} \sum_{m=-l}^{+l} Y_{lm}^*(\hat{k}_i) Y_{lm}(\hat{r}) \quad (\text{I.57})$$

La partie radiale vérifie l'équation suivante :

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial r^2} - \frac{l(l+1)}{r^2} + k^2 + \frac{2z}{r} \right] F_l(k, r) = 0 \quad (\text{I.58})$$

Posons $\rho = kr$ et $\gamma = -\frac{z}{k}$ on aura l'équation :

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial \rho^2} - \frac{2\gamma}{\rho} + \left(1 - \frac{l(l+1)}{\rho^2}\right) \right] F_l(\rho) = 0 \quad (\text{I.59})$$

La solution de cette équation s'exprime en termes de la fonction hypergéométrique confluyente :

$$F_l(k, r) = e^{-\frac{\pi\gamma}{2}} \frac{|\Gamma(l+1+i\gamma)|}{(2l+1)!} (kr)^{l+1} e^{ikr} {}_1F_1(l+1-i\gamma; 2l+2; -2ikr) \quad (\text{I.60})$$

I.6.3. Modèle CCC

Le modèle CCC « Convergent Close Coupling » a été proposée par Massey et Mohr [26] et développé pour l'ionisation de l'hélium. Cette méthode est une approche complètement numérique basée sur le développement de la fonction d'onde totale du système en termes de somme de produits des états propres de l'Hamiltonien et de fonctions inconnues décrivant le mouvement du projectile. Les coefficients du développement de ses fonctions inconnues sont déterminés en résolvant un ensemble d'équations intégral-différentielles couplées. La section efficace triplement différentielle est donnée selon cette méthode par [30] :

$$\sigma^{(3)} = (2\pi)^4 \frac{k_s k_e}{k_i} \sum_s |f_s|^2. \quad (\text{I.61})$$

Où f_s l'amplitude de diffusion est donnée par :

$$f_s = \sum_{l,m} \langle q_s | \phi_n^{Nslm} \rangle \langle k \phi_n^{Nslm} | T^n | \phi_i^N k_i \rangle$$

$|k\rangle$ est une onde plane asymptotique correspondant au projectile tandis que $|q_s\rangle$ représente la fonction d'onde de la cible.

ϕ_n^N représente la base des fonctions du développement.

I.6.4. Modèle (BBK)

Le modèle BBK a été proposé par Brauner, Briggs et Klar pour l'étude de l'ionisation de l'atome d'hydrogène [31]. Il décrit de façon asymptotiquement ($r \rightarrow \infty$) exacte l'état final de la cible qui est donné comme le produit des trois ondes coulombiennes représentant l'interaction Coulombienne mutuelle entre les électrons diffusé, éjecté et l'ion résiduel. Deux fonctions décrivant les électrons diffusé et éjecté, et la troisième pour décrire l'interaction coulombienne entre ces deux électrons. Ce modèle nécessite des calculs numériques très lourds.

Ce modèle peut être simplifié en remplaçant la troisième coulombienne représentant l'interaction entre les électrons dans la voie finale par le facteur de Gamow. Ce facteur peut être ignoré pour des électrons sortants avec des énergies différentes.

Ce modèle a été repris par Dal Cappello et al pour décrire l'ionisation par impact électronique des gaz rares He à Kr [32] et la double ionisation de l'hélium [33-34]. En 1993, Dal Cappello

et al. [35] ont développé une fonction d'onde BBK approximative [24]. Ils décrivent les électrons incident et éjecté par une onde Coulombienne et l'électron par une onde plane. Cette fonction proposée donne un bon accord avec les expériences (e,2e) et (e,3e) sur les gaz rares [36-38].

Conclusion

Dans cette section on a présenté les éléments fondamentaux de la théorie de diffusion, et la section efficace triplement différentielle qui est la grandeur principale qui nous permet de comparer nos résultats aux données mesurées. L'ionisation des cibles atomiques et moléculaires peut être réalisée dans diverses conditions cinématiques et géométriques. On a présenté les modèles proposées pour le calcul de la SETD dont l'approximation de Born est le plus rapide et le plus simple pour reproduire les résultats expérimentaux.

Chapitre II :
Description quantique des atomes et des molécules

Introduction

Dans ce chapitre on se focalise sur la description quantique des atomes et des molécules qui est indispensable pour le calcul de l'amplitude de diffusion et de la section efficace triplement différentielle. Les calculs sont développés dans notre travail dans le cadre de la première approximation de Born FBA qui reste valable pour une énergie d'incidence 50 fois ou 100 fois plus grande que l'énergie d'ionisation d'une couche particulière d'une cible donnée. La résolution de l'équation de Schrödinger permet de déterminer les états liés des cibles atomiques, correspondant à des orbitales atomiques spécifiques. Les solutions exactes n'existent que pour l'atome d'hydrogène, celles-ci sont utilisées pour déduire des solutions approchées dans le cas d'atomes poly-électroniques. Les premiers calculs de la section efficace triplement différentielle ont été effectués pour l'ionisation simple des atomes d'hydrogène et d'hélium. Dans ces cas les fonctions d'ondes utilisées sont très précises. Des fonctions d'ondes décrivant les cibles dans leurs états intermédiaires sont également indispensables pour des calculs plus poussés comme ceux à l'ordre deux des séries de Born [39-42]. Le modèle du cœur gelé, l'approximation de Born-Oppenheimer et la méthode CLOA sont appliqués pour déterminer des orbitales moléculaires optimales. Les ions d'hélium et d'hydrogène ont été les premiers éléments de calcul et de test expérimental pour l'ionisation simple des molécules. L'étude de cibles moléculaires a concerné beaucoup plus les molécules diatomiques ou les molécules dont le centre de masse se trouve sur l'atome le plus lourd, comme c'est le cas de molécules de type XH_n pour lesquelles un traitement monocentrique est bien justifié [1]. Les molécules poly-atomiques plus complexes, décrites par une fonction d'onde à plusieurs centres ont été les moins étudiées.

Dans cette deuxième partie, on présente les différentes descriptions des états du continuum dans le cadre de la première approximation de Born, parmi lesquelles la plus simple valable pour des énergies d'incidence élevées. Dans ce dernier cas les électrons incident, éjecté ou diffusé sont décrits par des ondes planes, en négligeant les interactions à courte portée et à longue portée entre les électrons du continuum et la cible dans les voies d'entrée et de sortie. Une description plus réaliste existe, où on utilise une onde coulombienne pour représenter l'électron éjecté. La dernière description est celle des ondes distordues, dans ces conditions on tient compte des interactions entre les électrons du continuum et la cible.

II.1. Ionisation des cibles atomiques

II.1.1. Orbitales atomiques

La résolution analytique de l'équation de Schrödinger permet de déterminer les fonctions d'ondes de la cible atomique. Les solutions exactes ne sont possibles que pour l'atome d'hydrogène, où le problème à deux corps se ramène à la résolution du problème d'une particule de masse réduite ($\mu \approx m_e$) par rapport au centre de masse du système. Les orbitales atomiques de l'hydrogène sont gouvernées par l'équation de Schrödinger suivante :

$$\hat{H}\Psi = E\Psi \quad (\text{II.1})$$

\hat{H} étant l'opérateur Hamiltonien de l'hydrogène qui s'écrit en unités atomique comme suit :

$$\hat{H} = -\frac{1}{2}\nabla^2 - \frac{1}{r} \quad (\text{II.2})$$

Les solutions exactes $\Psi_{nlm}(r, \theta, \varphi)$ de l'équation sont bien connues, elles s'écrivent sous la forme d'un produit de deux fonctions : la fonction radiale $R_{n,l}^{\xi}(r)$ et la fonction angulaire $Y_{l,m}(\theta, \varphi)$:

$$\Psi_{nlm}(r, \theta, \varphi) = R_{n,l}^{\xi}(r)Y_{l,m}(\theta, \varphi) \quad (\text{II.3})$$

$R_{n,l}^{\xi}(r)$ sont les fonctions hydrogénoïdes radiales établies à partir des polynômes de Laguerre.

$Y_{l,m}(\theta, \varphi)$ sont les harmoniques sphériques normalisées qui dépendent des angles θ et φ .

n est le nombre quantique principal, l est le nombre quantique angulaire, et m est le nombre quantique magnétique.

Les énergies E_n des orbitales atomiques $\Psi_{nlm}(r, \theta, \varphi)$ sont données comme suit:

$$E_n = \frac{-E_1}{n^2} \quad (\text{II.4})$$

$E_1 = -13,6eV$ est l'énergie d'ionisation de la première orbitale de l'hydrogène ($n=1$).

II.1.2. Orbitales atomiques d'un atome multiélectronique

Pour les atomes hydrogénoïdes (constitué d'un noyau de charge $+Ze$ et d'un électron), leurs fonctions d'ondes sont identiques à celles de l'atome d'hydrogène, mais la charge du noyau apparaît explicitement dans l'expression. Pour les atomes avec plus d'un électron, plusieurs approximations ont été proposées pour trouver des solutions approchées en utilisant les

orbitales atomiques de l'hydrogène. On peut citer le modèle aux particules indépendantes qui néglige l'interaction électronique. Ce modèle, très peu réaliste, est incapable de déterminer les énergies des atomes poly-électroniques. Le modèle d'interaction de configuration est plus sophistiqué, c'est une méthode variationnelle qui prend en considération les corrélations électroniques et qui donne la fonction d'onde comme un développement en fonction des orbitales atomiques de l'hydrogène, il décrit beaucoup mieux les atomes poly-électroniques. Les orbitales atomiques sont donc une combinaison linéaire en fonction des orbitales atomiques (CLOA) :

$$\phi_{OA}(\vec{r}) = \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik} \varphi_k(\vec{r}) \quad (\text{II.5})$$

Avec : $k = (n, l, m)$ un nombre caractéristique de l'orbitale atomique avec les nombres quantiques : n, l et m ; N_i est le nombre d'orbitales atomiques introduites dans le développement. Les coefficients a_{ik} déterminent la contribution de chaque orbitale atomique. Ces coefficients sont déterminés par la méthode variationnelle, les orbitales atomiques $\varphi_k(\vec{r})$ sont développées sur une base des harmoniques sphériques $Y_{l,m}(\theta, \varphi)$.

On peut également citer la méthode self consistante de Hartree-Fock qui est très utilisée en physique atomique.

II.1.3. Section efficace triplement différentielle (SETD)

Dans l'ionisation simple d'une cible atomique avec N électrons, la section efficace triplement différentielle est définie par l'expression:

$$\sigma^{(3)} = (2\pi)^4 \frac{k_s k_e}{k_0} |T|^2 \quad (\text{II.6})$$

T : est l'élément de matrice de transition de la cible atomique de l'état initial $\psi_i(\vec{r}_0, \vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N)$ à l'état final $\psi_f(\vec{r}_0, \vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N)$ qui s'écrit dans la première approximation de Born :

$$T = \langle \psi_f(\vec{r}_0, \vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N) | V(r_0, r_1, r_2, \dots, r_N) | \psi_i(\vec{r}_0, \vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N) \rangle \quad (\text{II.7})$$

$V(r_0, r_1, r_2, \dots, r_N)$ désigne le potentiel d'interaction coulombienne entre l'électron incident et la cible qui s'écrit en unités atomiques :

$$V(r_0, r_1, r_2, \dots, r_N) = -\frac{Z}{r_0} + \sum_{i=1}^N \frac{1}{|\vec{r}_i - \vec{r}_0|} \quad (\text{II.8})$$

Où \vec{r}_0 est le vecteur position de l'électron incident par rapport au centre du noyau, Z est le nombre atomique.

$\psi_f(\vec{r}_0, \vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N)$ et $|\psi_i(\vec{r}_0, \vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N)\rangle$ représentent respectivement les fonctions d'ondes décrivant les états final et initial du système, elles sont données par :

$$\psi_i = \varphi_i(\vec{k}_i) \Phi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N) = (2\pi)^{-3} \exp(i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0) \Phi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N) \quad (\text{II.9})$$

$$\psi_f = \varphi_s(\vec{k}_s) \Phi_f(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N) = (2\pi)^{-3} \exp(i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0) \Phi_f(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N) \quad (\text{II.10})$$

Où : $\varphi_s(\vec{k}_s)$ et $\varphi_i(\vec{k}_i)$ sont les fonctions d'ondes des électrons diffusé et incident, respectivement représentées dans l'approximation de Born par des ondes planes. $\Phi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N)$ et $\Phi_f(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N)$ sont les fonctions d'ondes qui représentent les cibles avant et après l'ionisation respectivement.

Si on considère l'interaction entre les électrons sortants, qui est considérable lorsqu'ils sortent avec des énergies cinétiques comparables, on doit tenir compte des effets d'échanges dans l'état final qui posent un problème numérique réel de calcul. Une façon approximative est d'utiliser le facteur de Gamow. La SETD donnée par l'équation (II.6) doit ainsi être multipliée par le facteur défini comme suit :

$$|D_{\xi_{se}}|^2 = \frac{2\pi\xi_{se}}{e^{2\pi\xi_{se}} - 1} \quad (\text{II.11})$$

$$\text{Avec : } \xi_{se} = \frac{1}{k_s - k_e}$$

Dans l'approximation de Born, on considère que l'électron diffusé sort plus rapidement que l'électron éjecté, donc ils sortent avec des énergies différentes.

Il est difficile de traiter le problème à N électrons. Nous utiliserons l'approximation du cœur gelé, où on ne prend en considération que la couche ionisée et l'on considère le reste des électrons comme figés. Le problème est encore simplifié en utilisant le modèle à un seul électron actif.

II.1.4. Approximation du cœur gelé

Le modèle du cœur gelé est introduit pour simplifier les calculs en traitant uniquement les électrons de valence. Dans un premier temps, on peut conserver tous les électrons mais on maintient constantes les orbitales du cœur pendant la détermination de la fonction d'onde. Seuls les électrons de valence sont pris en compte pour le calcul de la corrélation

électronique. On fait l'étude de leur dynamique dans le champ du noyau pris avec une charge effective, et les autres électrons restent avec les constituants du noyau inactif. Par exemple pour le cas d'une cible avec 10 ou 20 électrons, un ou deux électrons vont participer directement au processus de la collision. C'est un modèle qui simplifie le calcul et réduit le temps de son traitement numérique. Ceci est approprié pour des énergies d'incidence élevée, et ce modèle a été justifié dans le cas de l'ionisation de l'atome d'Hélium dans plusieurs travaux.

II.1.5. Modèle du cœur gelé avec deux électrons actifs

Dans ce modèle, le problème de la cible avec N électrons est réduit à un problème avec seulement deux électrons. Dans l'expression (II.8) qui traduit l'interaction entre l'électron incident et la cible, la somme contient uniquement deux termes qui expriment l'interaction avec les deux électrons actifs:

$$V(r_0, r_1, r_2) = -\frac{2}{r_0} + \frac{1}{r_{10}} + \frac{1}{r_{20}} \quad (\text{II.12})$$

Les états initial et final de la cible $\Phi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N)$ et $\Phi_f(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N)$ sont donnés par :

$$\Phi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \phi_{OA}(\vec{r}_1)\phi_{OA}(\vec{r}_2) \quad (\text{II.13})$$

$$\Phi_f(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{k}_e) = \frac{1}{\sqrt{2}} [\phi_{ion}(\vec{r}_1)\varphi_C(\vec{r}_2) + \phi_{ion}(\vec{r}_2)\varphi_C(\vec{r}_1)] \quad (\text{II.14})$$

$\psi_{OA}(\vec{r})$ représente l'orbitale atomique ionisée de la cible.

\vec{r}_1, \vec{r}_2 désignent les vecteurs positions des électrons actifs de la cible. La fonction symétrique $\Phi_f(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{k}_e)$ donne l'état du système après l'ionisation défini par le produit de la fonction d'onde de l'ion résiduel $\phi_{ion}(\vec{r})$ et de la fonction d'onde coulombienne $\varphi_C(\vec{r})$ de l'électron éjecté donnée comme suit :

$$\varphi_C(\vec{k}_e, \vec{r}) = (2\pi)^{\frac{-3}{2}} e^{i\vec{k}_e \cdot \vec{r}} e^{\frac{Z\pi}{2k_e}} \Gamma\left(1 + \frac{Z}{k_e}\right) F_1\left(\frac{-iZ}{k_e}, 1, -i(k_e r + \vec{k}_e \cdot \vec{r})\right) \quad (\text{II.15})$$

Avec : $\Gamma\left(1 + \frac{Z}{k_e}\right)$ qui est la fonction gamma d'Euler complexe, et $F_1\left(\frac{-iZ}{k_e}, 1, -i(k_e r + \vec{k}_e \cdot \vec{r})\right)$ est

la fonction hypergéométrique confluyente, $\frac{Z}{k_e}$ représente le paramètre de Sommerfeld qui est

le rapport entre la charge du noyau et la charge vue par l'électron éjecté et son vecteur d'onde.

En utilisant la relation de Bethe:

$$\int \frac{e^{i\vec{k}\vec{r}_0}}{|\vec{r}-\vec{r}_0|} d\vec{r}_0 = \frac{4\pi}{K^2} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} \quad (\text{II.16})$$

On trouve que l'amplitude de diffusion T_{B1} est donnée par l'expression :

$$T_{2e} = -\frac{2}{(2\pi)^2 \sqrt{2} K^2} \left\{ \begin{aligned} &\langle \phi_{ion}(\vec{r}_1) | e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}_1} | \phi_{OA}(\vec{r}_1) \rangle \langle \varphi_C(\vec{r}_2) | \phi_{OA}(\vec{r}_2) \rangle \\ &+ \langle \phi_{ion}(\vec{r}_2) | e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}_2} | \phi_{OA}(\vec{r}_2) \rangle \langle \varphi_C(\vec{r}_1) | \phi_{OA}(\vec{r}_1) \rangle \\ &- 2 \langle \phi_{ion}(\vec{r}_1) | \phi_{OA}(\vec{r}_1) \rangle \langle \varphi_C(\vec{r}_2) | \phi_{OA}(\vec{r}_2) \rangle \end{aligned} \right\} \quad (\text{II.17})$$

L'indiscernabilité des électrons de l'orbitale ionisée nous permet d'écrire :

$$T_{2e} = \frac{4}{(2\pi)^2 \sqrt{2} K^2} \left\{ \begin{aligned} &\langle \phi_{ion}(\vec{r}_1) | e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}_1} | \phi_{OA}(\vec{r}_1) \rangle \langle \varphi_C(\vec{r}_2) | \phi_{OA}(\vec{r}_2) \rangle \\ &- \langle \phi_{ion}(\vec{r}_1) | \phi_{OA}(\vec{r}_1) \rangle \langle \varphi_C(\vec{r}_2) | \phi_{OA}(\vec{r}_2) \rangle \end{aligned} \right\} \quad (\text{II.18})$$

La fonction d'onde qui décrit l'orbitale atomique des électrons actifs $\phi_{OA}(\vec{r})$ et celle de l'ion résiduel $\phi_{ion}(\vec{r}_2)$ peuvent être développées sur la base de Slater :

$$\phi_{OA}(\vec{r}) = \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik} \varphi_{n_i l_i m_i}(\vec{r}) \quad (\text{II.19})$$

$$\phi_{ion}(\vec{r}) = \sum_{k'=1}^{N_{i'}} a_{i'k'} \varphi_{n_{i'} l_{i'} m_{i'}}(\vec{r}) \quad (\text{II.20})$$

Soient les éléments de matrices $P_{n_i l_i m_i}^{n_j l_j m_j}(\vec{k})$ et $X_{n_i l_i m_i}(\vec{k})$ définis comme :

$$P_{n_i l_i m_i}^{n_j l_j m_j}(\vec{k}) = \langle \varphi_{n_j l_j m_j}(\vec{r}) | e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} | \varphi_{n_i l_i m_i}(\vec{r}) \rangle \quad (\text{II.21})$$

$$X_{n_i l_i m_i}(\vec{k}) = \langle \varphi_C(\vec{r}) | e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} | \varphi_{n_i l_i m_i}(\vec{r}) \rangle \quad (\text{II.22})$$

Donc l'équation (II.18) devient :

$$T_{2e} = \frac{4}{(2\pi)^2 \sqrt{2} K^2} \sum_{i=1}^{N_i} \sum_{i'=1}^{N_{i'}} \sum_{j=1}^{N_j} a_i a_{i'} a_j \left\{ P_{n_i l_i m_i}^{n_j l_j m_j}(\vec{k}) X_{n_i l_i m_i}(\vec{k}) - P_{n_i l_i m_i}^{n_j l_j m_j}(0) X_{n_i l_i m_i}(0) \right\} \quad (\text{II.23})$$

Dans ce cas, la section efficace triplement différentielle pour une cible atomique est donnée par :

$$\sigma_{2e}^{(3)} = 8 \frac{k_s k_e}{K^4 k_i} \left| \sum_{i=1}^{N_i} \sum_{i'=1}^{N_{i'}} \sum_{j=1}^{N_j} a_i a_{i'} a_j \left\{ P_{n_i l_i m_i}^{n_j l_j m_j}(\vec{k}) X_{n_i l_i m_i}(\vec{k}) - P_{n_i l_i m_i}^{n_j l_j m_j}(0) X_{n_i l_i m_i}(0) \right\} \right|^2 \quad (\text{II.24})$$

II.1.6. Modèle du cœur gelé avec un électron actif

Dans le modèle à un électron actif un seul électron est pris en compte, cet électron sera éjecté lors du processus de collision. L'état final dans ce cas est décrit par le produit d'une fonction d'onde plane décrivant l'électron diffusé et d'une onde coulombienne représentant l'électron éjecté.

Dans l'expression (II.8) du potentiel d'interaction entre l'électron incident et la cible, la somme est réduite à deux termes qui expriment l'interaction avec l'électron actif comme suit :

$$V(r_0, r_1) = -\frac{1}{r_0} + \frac{1}{r_{10}} \quad (\text{II.25})$$

Les états initial et final de la cible $\Phi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N)$ et $\Phi_f(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N)$ sont donnés par :

$$\Phi_i(\vec{r}_1) = \phi_{OA}(\vec{r}_1) \quad (\text{II.26})$$

$$\Phi_f(\vec{r}_1, \vec{k}_e) = \varphi_C(\vec{r}_1) \quad (\text{II.27})$$

En substituant le potentiel $V(r_0, r_1)$ donné par l'équation (II.25) et en appliquant la relation de Bethe (l'équation (II.16)) l'expression de l'amplitude de diffusion s'écrit comme suit:

$$T_{1e} = \frac{2}{(2\pi)^2 K^2} \left\{ \langle \varphi_C(\vec{r}_1) | e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_1} | \phi_{OA}(\vec{r}_1) \rangle - \langle \varphi_C(\vec{r}_1) | \phi_{OA}(\vec{r}_1) \rangle \right\} \quad (\text{II.28})$$

On trouve que :

$$T_{1e} = \frac{2}{(2\pi)^2 K^2} \sum_{i=1}^{N_i} a_i \left\{ X_{n_i l_i m_i}(\vec{k}) - X_{n_i l_i m_i}(0) \right\} \quad (\text{II.29})$$

Dans ce cas, la section efficace triplement différentielle pour une cible atomique est donnée par :

$$\sigma^{(3)}_{1e} = 8 \frac{k_s k_e}{K^4 k_i} \left| \sum_{i=1}^{N_i} a_i \left\{ X_{n_i l_i m_i}(\vec{k}) - X_{n_i l_i m_i}(0) \right\} \right|^2 \quad (\text{II.30})$$

II.2. Ionisation des cibles moléculaires

L'étude de l'ionisation des molécules par impact d'électrons nécessite des calculs plus complexes qui dépendent fortement de la fonction d'onde moléculaires choisie, cette dernière est obtenue par la résolution de l'équation de Schrödinger. L'approximation de Born-Oppenheimer permet de séparer les mouvements nucléaire et électronique de la molécule mais reste insuffisante pour déduire des solutions exactes. L'utilisation de la méthode OM-CLOA permet de proposer des solutions approchées sous forme d'un développement linéaire

en fonction des orbitales atomiques. Pour élaborer l'expression de la section efficace triplement différentielle SETD dans le référentiel du laboratoire, on applique le modèle du cœur gelé à un électron actif ou à deux électrons actifs, puisque les orbitales moléculaires contiennent généralement au plus deux électrons (dans le cas de molécules à plusieurs atomes). En plus, on doit intégrer sur les angles d'Euler étant donné que les expériences sont réalisées pour des cibles dans l'état gazeux où l'orientation de la molécule est aléatoire.

II.2.1. Hamiltonien moléculaire

Soit un système constitué de M noyaux et N électrons, leurs positions sont repérées par les vecteurs \vec{R}_j et \vec{r}_i relativement à l'origine O (figure II.1).

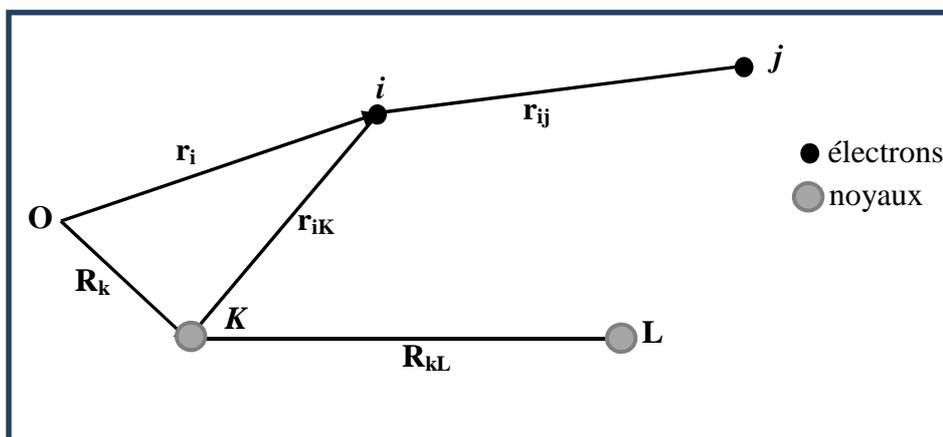


Figure II.1: Distances inter-particules dans un système de noyaux et d'électrons

L'Hamiltonien moléculaire \hat{H} est la somme des opérateurs associés aux divers termes de l'énergie cinétique et électrostatique. L'état de la molécule est décrit en mécanique quantique par une fonction d'onde $\Psi(\vec{R}_1, \vec{R}_2, \dots, \vec{R}_M, \vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N)$ satisfaisant l'équation de Schrödinger stationnaire suivante :

$$\hat{H}\Psi(\vec{R}_1, \vec{R}_2, \dots, \vec{R}_M, \vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N) = E\Psi(\vec{R}_1, \vec{R}_2, \dots, \vec{R}_M, \vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N) \quad (\text{II.31})$$

L'opérateur Hamiltonien \hat{H} s'écrit unités atomiques comme suit :

$$\begin{aligned} \hat{H} &= \hat{T}_{el} + \hat{T}_{noy} + V_{nn} + V_{en} + V_{ee} \\ &= -\frac{1}{2} \sum_{k=1}^M \frac{\nabla_k^2}{M_k} - \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \nabla_i^2 + \sum_{k=1}^M \sum_{l>k}^M \frac{Z_k Z_l}{R_{kl}} - \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^M \frac{Z_k}{r_{ik}} + \sum_{i=1}^N \sum_{i>j}^N \frac{1}{r_{ij}} \end{aligned} \quad (\text{II.32})$$

On distingue les termes suivants :

- Les termes \hat{T}_{noy} et \hat{T}_{el} sont respectivement les opérateurs d'énergie cinétique des noyaux « k » et des électrons « i ».
- les autres termes sont des termes dus à l'interaction Coulombienne pour chaque paire de particules chargées : terme de répulsion noyau-noyau V_{nn} , terme d'attraction électron-noyau V_{en} et terme de répulsion électron-électron V_{ee} .

L'équation (II.31) n'a pas de solution exacte même pour l'ion H_2 . On doit recourir à des approximations afin de faciliter la recherche des solutions approchées optimales pour des systèmes polyélectroniques.

II.2.2.L'approximation de Born-Oppenheimer

Dans l'approximation de Born-Oppenheimer ou adiabatique, la solution consiste à découpler le mouvement des électrons de celui des noyaux. A cause de la différence de masse, on estime que les noyaux sont immobiles dans l'étude de la dynamique des électrons. L'idée est en fait inspirée de l'étude de l'atome d'hydrogène où la recherche des fonctions d'ondes de l'électron est suffisante pour déterminer l'état de cet atome. En 1927 Born et Oppenheimer ont réussi à généraliser cette idée pour les molécules.

En utilisant cette approximation l'Hamiltonien moléculaire donné dans l'équation (II.32) devient :

$$\hat{H}' = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \nabla_i^2 + \sum_{k=1}^M \sum_{l>k}^M \frac{Z_k Z_l}{R_{kl}} - \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^M \frac{Z_k}{r_{ik}} + \sum_{i=1}^N \sum_{i>j}^N \frac{1}{r_{ij}} = \hat{H}_{el} + V_{noy-noy} \quad (II.33)$$

Donc les énergies cinétiques (vibration, translation ou rotation) des noyaux $\hat{T}_{noy} = -\frac{1}{2} \sum_{k=1}^M \frac{\nabla_k^2}{M_k}$

sont omises, et l'énergie électrostatique $V_{noy-noy} = \sum_{k=1}^M \sum_{l>k}^M \frac{Z_k Z_l}{r_{kl}}$ est constante et ne dépend que

du paramètre internucléaire R.

Donc il suffit de résoudre l'équation suivante :

$$\hat{H}_{el} \Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N) = E_{el} \Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N) \quad (II.34)$$

qui représente en réalité le mouvement électronique de la molécule.

Dans l'approximation de Born-Oppenheimer l'énergie totale E_{el} du système est la somme de l'énergie électrostatique totale et l'énergie cinétique des électrons. Les solutions $\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N)$ sont appelées les orbitales moléculaires, on utilise la méthode CLOA détaillée dans la section suivante pour les déterminer.

II.2.3. Les orbitales moléculaires

Dans une molécule, la liaison covalente est construite lorsque deux atomes mettent en commun un doublet d'électrons, donc une orbitale moléculaire OM est formée par la combinaison linéaire des orbitales atomiques des atomes. Par exemple : dans la molécule d'hydrogène H_2 , une orbitale moléculaire est obtenue par la combinaison des orbitales atomiques $1s$ des deux atomes H (figure II.2). La combinaison linéaire entre les orbitales atomiques conduit à deux fonctions d'ondes :

- Fonction d'onde symétrique $\psi_+(\vec{r})$ correspondant à l'orbitale liante.
- Fonction d'onde antisymétrique $\psi_-(\vec{r})$ correspondant à l'orbitale anti-liante.

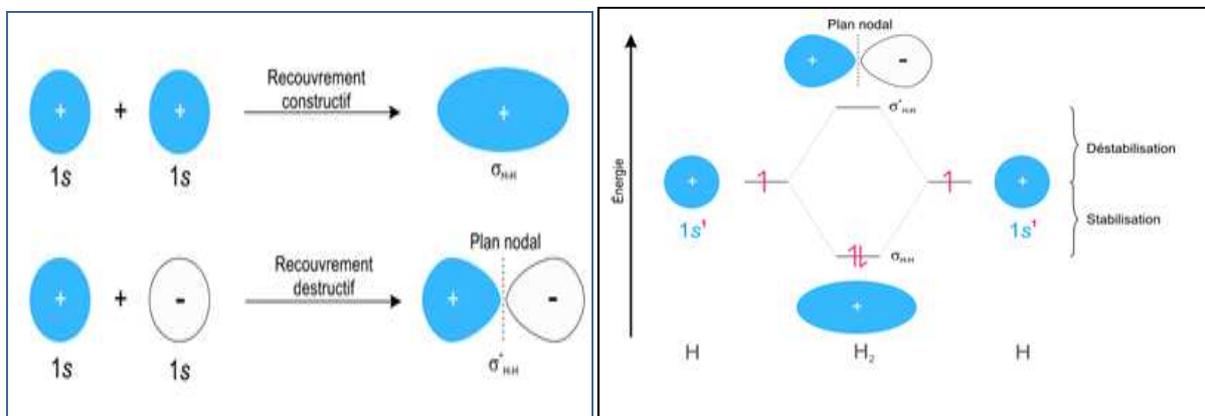


Figure II.2 : dans la molécule H_2 deux orbitales $1s$ se combinent pour former une orbitale liante σ et anti-liante σ^* , le diagramme d'orbitales moléculaires présente la stabilité de l'OM liante avec une énergie inférieure à celle de l'OM anti-liante.

Le nombre des orbitales moléculaires d'une molécule est égal au nombre des orbitales atomiques des atomes constituant la molécule. Les orbitales atomiques peuvent avoir des phases positive ou négative, leurs combinaisons donnent une liaison sigma (liante σ ou non liante σ^*), ou une liaison pi (liante π ou non liante π^*). Les orbitales moléculaires de type σ ont une symétrie cylindrique le long de l'axe de liaison que n'ont pas celles de types π en

raison de l'existence d'un plan nodal sur l'axe de liaison (figure II. 3). Le type de l'orbitale moléculaire formée dépend de l'énergie et de la symétrie des orbitales atomiques qui se combinent, on a la combinaison :

- des orbitales atomiques $s-s$: elles forment une OM liante σ et OM anti-liante σ^* .
- des orbitales atomiques p_z-p_z : elles forment une OM liante σ et OM anti-liante σ^* .
- des orbitales atomiques p_x-p_y : elles forment une OM liante de type π et une OM anti-liante π^* .

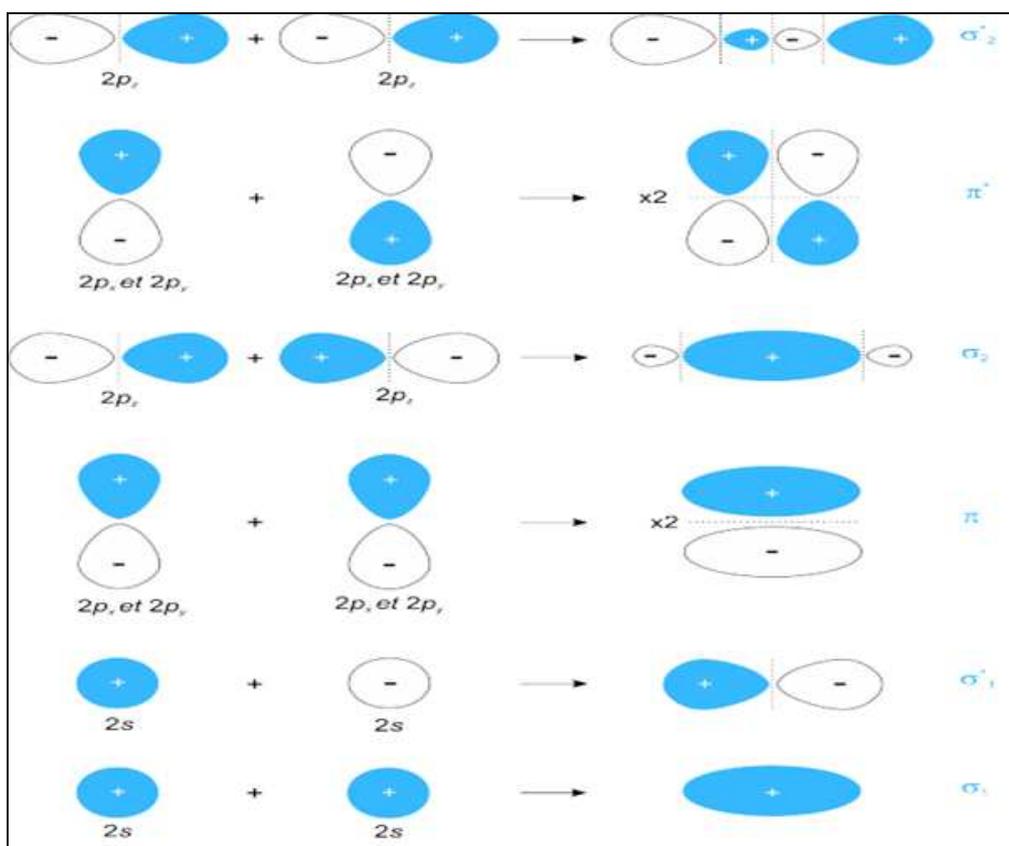


Figure II.3 : Deux orbitales se combinent pour former une OM liante ou anti-liante (σ ou π)

II.2.4. Méthode de combinaison linéaire des orbitales atomiques CLOA

La méthode de Combinaisons Linéaires d'Orbitales Atomiques (CLOA) est destinée à construire les orbitales moléculaires, c'est une méthode variationnelle qui consiste à développer les orbitales moléculaires en une combinaison d'un nombre limité d'orbitales

atomiques des électrons de la molécule. Cette combinaison traduit la structure interne de la molécule où les électrons de valence réunissent leurs orbitales atomiques pour construire une orbitale moléculaire. Le terme correspondant à chaque orbitale atomique est multiplié par des coefficients de pondération. Un nombre élevé de termes améliore et rapproche l'énergie de l'orbitale calculée à celle trouvée dans l'expérience [28].

La fonction d'onde moléculaire $\psi_i(\vec{r})$ s'écrit donc :

$$\psi_i(\vec{r}) = \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik} \varphi_k(\vec{r}) \quad (\text{II.35})$$

Avec $k = (n, l, m)$ et N_i est le nombre d'orbitales atomiques introduites dans le développement de chaque orbitale moléculaire, les coefficients a_{ik} et les nombres quantiques (n, l, m) sont caractéristiques des orbitales atomiques utilisées dans la combinaison linéaire de l'orbitale moléculaire « i ». Ces coefficients sont déterminés par la méthode variationnelle.

Les orbitales atomiques utilisées comme base dans le développement de la fonction d'onde $\psi_i(\vec{r})$ peuvent être les orbitales atomiques hydrogénoïdes, ou d'autres fonctions mathématiques, le choix de cette base est très important, il affecte directement la qualité de la fonction d'onde moléculaire.

II.2.5. Les orbitales hybrides

Dans quelques molécules, on peut trouver l'union de deux orbitales atomiques dans le même atome, ce qui conduit à la construction d'une orbitale hybride, qui à son tour se combine avec une autre orbitale atomique d'un autre atome pour former une orbitale moléculaire, cela dépend de la géométrie non linéaire de quelques molécules. Par exemple la molécule d'eau possède 4 orbitales hybrides de type sp^3 , deux sont des orbitales liantes et sont représentées par deux liaisons covalentes avec les deux atomes d'hydrogène, et deux sont des orbitales non-liantes et contiennent les deux doublets non-liants de l'oxygène (figure II.4).

Il existe trois types d'hybridation qui sont :

- Hybridation sp
- Hybridation sp^2
- Hybridation sp^3

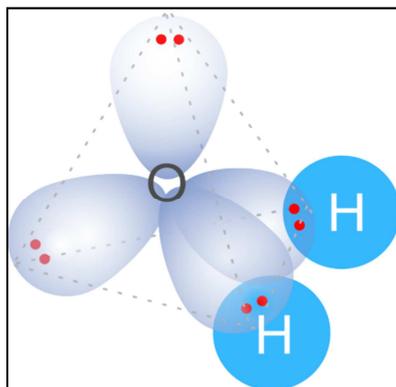


Figure II.4 : La molécule d'eau possède 4 orbitales hybrides de type sp^3

II.3. Les bases des orbitales atomiques

La méthode des combinaisons linéaires d'orbitales atomiques OM-CLOA est largement utilisée pour résoudre les problèmes aux valeurs propres de cibles moléculaires. En particulier l'approche mono-centrique dans laquelle la fonction d'onde est centrée sur un seul point (qui est le centre de masse) peut être utilisée. La fonction d'onde d'une molécule doit être développée sur une base qui peut être de type hydrogénoïde, Slater ou Gaussien. Le type de fonctions de base utilisé affecte la convergence des calculs.

II.3.1. Bases de Slater STO

Les fonctions de Slater STO (Slater Type Orbitals) ont les mêmes orbitales atomiques que les atomes hydrogénoïdes, mais la partie radiale ne dépend que du nombre atomique principal n , la charge Z du noyau est remplacée par une charge effective α ($\alpha < Z$). Elles sont de la forme:

$$\chi_{\alpha,n,l,m}^s(r, \theta, \varphi) = N r^{(n-1)} e^{-\alpha r} Y_{lm}(\theta, \varphi) \quad (\text{II.36})$$

Où : $N = \frac{(2\alpha)^{\frac{n+1}{2}}}{\sqrt{(2n)!}}$ est un facteur de normalisation, α est un paramètre variationnel.

n, l, m sont les nombres quantiques usuels connus en physique atomique et $Y_{lm}(\theta, \varphi)$ sont les harmoniques sphériques.

II.3.2. Bases gaussiennes GTO

Les bases de type Gaussian GTO (Gaussian Type Orbitals) sont généralement utilisées dans les codes de calculs de chimie quantique, elles s'écrivent comme suit :

$$\chi_p^G(r, \theta, \varphi) = N r^{(2n-2-l)} e^{-\alpha r^2} Y_{lm}(\theta, \varphi) \quad (\text{II.37})$$

Où : N est un facteur de normalisation, α est un paramètre variationnel, n, l, m sont les nombres quantiques et $Y_{lm}(\theta, \varphi)$ sont les harmoniques sphériques.

La structure électronique de la molécule dépend fortement de sa configuration énergétique et de sa géométrie, lesquelles dépendent de la base utilisée dans le développement de la fonction d'onde moléculaire. Les calculs de la densité électronique et de la section efficace triplement différentielle pour la molécule d'eau montrent un bon accord avec les données expérimentales, et ceci pour des fonctions d'ondes utilisées pour décrire la molécule d'eau développées sur une base de Slater ou sur une base Gaussienne. On remarque une convergence plus lente pour les bases GTO (par exemple il faut plus de 40 termes avec une base GTO pour essayer de construire la simple fonction d'onde initiale de l'atome d'hydrogène) mais les calculs numériques des intégrales à plusieurs centres sont beaucoup plus simples dans ces bases. Ceci explique leur utilisation prédominante aujourd'hui.

II.4. Les fonctions d'onde de Moccia

Moccia a appliqué la méthode CLOA avec succès pour des molécules de type XH_n [1], où la fonction d'onde monocentrique développée sur la base de Slater, est centrée sur le centre de gravité de l'atome le plus lourd X. Ces fonctions ont été utilisées pour décrire les expériences EMS (Electron Momentum Spectroscopy), dans laquelle la section efficace triplement différentielle est donnée en fonction du moment de recul de l'ion. Les calculs effectués avec les fonctions de Moccia ont montré un bon accord avec les résultats expérimentaux EMS [28-25]. Ce test a prouvé que les fonctions de Moccia représentent une bonne description des molécules de type XH_n telles que H_2O , CH_4 et NH_3 [1].

Le nombre assez élevé des orbitales atomiques pris en compte dans le développement de la fonction d'onde moléculaire améliore sa précision. Les fonctions d'ondes de Moccia utilisent des harmoniques sphériques réelles, les orbitales atomiques $\psi_i(\vec{r})$ sont développées comme suit :

$$\psi_i(\vec{r}) = \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik} R_{n_{ik}}^{\xi_{ik}}(r) S_{l_{ik}, m_{ik}}(\hat{r}) = \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik} \left[\frac{(2\xi_{ik})^{n_{ik} + \frac{1}{2}}}{\sqrt{(2n_{ik})!}} r^{n_{ik}-1} e^{-\xi_{ik}r} \right] S_{l_{ik}, m_{ik}}(\hat{r}) \quad (\text{II.38})$$

Les harmoniques sphériques réelles $S_{l_m}(\hat{r})$ sont définies à l'aide des harmoniques sphériques complexes $Y_l^m(\hat{r})$ comme suit [44] :

$$\begin{cases} S_{l_{ik} m_{ik}}(\hat{r}) = \left(\frac{m_{ik}}{2|m_{ik}|} \right)^{\frac{-1}{2}} \left\{ Y_{l_{ik} - |m_{ik}|}(\hat{r}) + (-1)^{m_{ik}} \left(\frac{m_{ik}}{|m_{ik}|} \right) Y_{l_{ik} |m_{ik}|}(\hat{r}) \right\}; m_{ik} \neq 0 \\ S_{l_{ik} 0}(\hat{r}) = Y_{l_{ik} 0}(\hat{r}); m_{ik} = 0 \end{cases} \quad (\text{II.39})$$

Les orbitales moléculaires proposées par Moccia sont données pour une orientation particulière de la molécule [1], pour le calcul de la section efficace, il faut moyenner sur les angles d'Euler.

II.5. Système de laboratoire et système de la molécule - Angles d'Euler

La fonction d'onde décrivant la cible moléculaire est donnée dans le référentiel (Oxyz) lié à la molécule. Pour obtenir la section efficace triplement différentielle SETD d'ionisation simple de cette molécule dans le système du laboratoire (OXYZ), on doit intégrer sur les angles d'Euler (α, β, γ). Le passage du référentiel (Oxyz) à celui du laboratoire (OXYZ) est assuré par les rotations successives (figure II.5) :

- Autour l'axe **Oz** avec l'angle α
- Autour l'axe **Oy** avec l'angle β
- Autour l'axe **OZ** avec l'angle γ

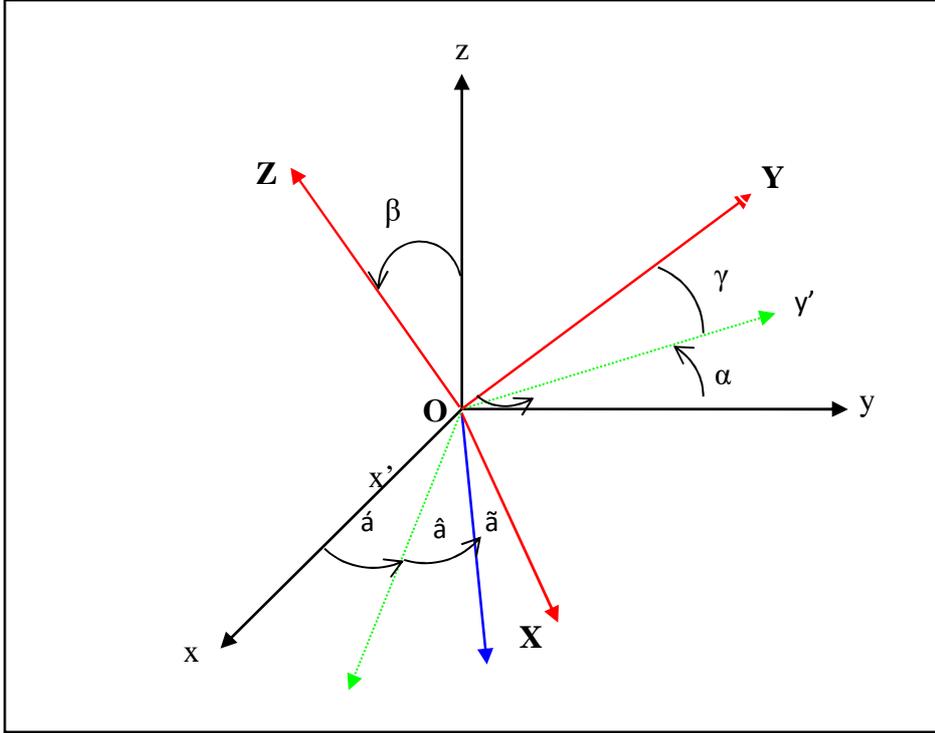


Figure II.5 : angles d'Euler (α , β , γ) qui permettent le passage du repère lié à la molécule (Oxyz) vers le repère du laboratoire (OXYZ).

L'expression de l'opérateur de rotation est donnée par :

$$\mathfrak{R}(\alpha, \beta, \gamma) = \mathfrak{R}_z(\gamma)\mathfrak{R}_y(\beta)\mathfrak{R}_z(\alpha) = e^{-i\gamma J_z} e^{-i\beta J_y} e^{-i\alpha J_z} \quad (\text{II.40})$$

Dans le repère du laboratoire (OXYZ), la fonction d'onde de la molécule s'écrit en fonction des angles d'Euler :

$$\psi_{i(lab)}(\vec{r}, \alpha, \beta, \gamma) = \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik} R_{n_{ik}}^{\xi_{ik}}(r) \sum_{\mu=-l_{ik}}^{l_{ik}} D_{\mu, m_{ik}}^{l_{ik}}(\alpha, \beta, \gamma) S_{l_{ik}, \mu_{ik}}(\hat{r}) \quad (\text{II.41})$$

L'élément de matrice de rotation $D_{\mu, m}^l(\alpha, \beta, \gamma)$ est défini comme suit [45]:

$$D_{\mu, m}^l(\alpha, \beta, \gamma) = e^{-i\alpha m} d_{\mu, m}^l(\beta) e^{-i\gamma \mu} \quad (\text{II.42})$$

Où les coefficients associés à d s'écrivent [78]:

$$d_{\mu, m}^l = \sum_{t=0}^{\infty} (-1)^t \frac{\sqrt{(l+m)!(l-m)!(l+\mu)!(l-\mu)!}}{(l+m-t)!(l-\mu-t)!t!(t-m+\mu)!} (\cos(\beta/2))^{2l+m-\mu-2t} (\sin(\beta/2))^{2t-m} \quad (\text{II.43})$$

Afin de pouvoir comparer avec l'expérience, on doit intégrer la section efficace triplement différentielle $\sigma(\alpha, \beta, \gamma)$ calculée dans le référentiel de la molécule (Oxyz) sur les angles d'Euler [28] :

$$\sigma_{lab}^{(3)} = \frac{1}{8\pi^2} \int_0^{2\pi} d\alpha \int_0^\pi d\beta \sin \beta \int_0^{2\pi} \sigma(\alpha, \beta, \gamma) d\gamma \quad (\text{II.44})$$

II.6. Section efficace triplement différentielle (SETD)

Dans cette section, on va donner les éléments pour calculer la section efficace triplement différentielle (SETD) d'ionisation simple d'une molécule de type XH_n . On utilise la fonction d'onde de Moccia pour décrire les électrons dans leurs orbitales moléculaires. Pour une orientation aléatoire de la molécule, l'amplitude de diffusion est donnée, en utilisant le modèle du cœur gelé avec un seul électron actif, comme suit:

$$T(\alpha, \beta, \gamma) = \left\langle \psi_f(\vec{r}_0, \vec{r}_1) \left| -\frac{1}{r_0} + \frac{1}{r_{10}} \right| \psi_i(\vec{r}_0, \vec{r}_1) \right\rangle \quad (\text{II.45})$$

\vec{r}_0 est le vecteur position de l'électron incident par rapport au noyau X, les états initial $\psi_i(\vec{r}_0, \vec{r}_1)$ est final $\psi_f(\vec{r}_0, \vec{r}_1)$ du système sont donnés par:

$$\psi_i = (2\pi)^{-\frac{3}{2}} e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \psi_{OM}(\vec{r}, \alpha, \beta, \gamma) \quad (\text{II.46})$$

$$\psi_f = (2\pi)^{-\frac{3}{2}} e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0} \varphi_C(\vec{r}_1) \quad (\text{II.47})$$

$\psi_{OM}(\vec{r}, \alpha, \beta, \gamma)$ représente l'orbitale moléculaire ionisée, la fonction d'onde coulombienne $\varphi_C(\vec{r})$ de l'électron éjecté est donnée par l'équation (II.15).

L'amplitude de diffusion devient donc :

$$T(\alpha, \beta, \gamma) = \frac{2}{(2\pi)^2 K^2} \left\{ \left\langle \varphi_C(\vec{r}_1) \left| e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_1} \right| \psi_{OM}(\vec{r}, \alpha, \beta, \gamma) \right\rangle - \left\langle \varphi_C(\vec{r}_1) \left| \psi_{OM}(\vec{r}, \alpha, \beta, \gamma) \right\rangle \right\} \quad (\text{II.48})$$

Chaque orbitale moléculaire de la cible peut être écrite sous la forme donnée dans l'équation (II.41), donc on trouve que :

$$T(\alpha, \beta, \gamma) = \frac{2}{(2\pi)^2 K^2} \left\{ \left\langle \varphi_C(\vec{r}_1) \left| e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_1} \left| \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik} R_{nik}^{\xi_{ik}}(r) \sum_{\mu=-l_{ik}}^{l_{ik}} D_{\mu, m_{ik}}^{l_{ik}}(\alpha, \beta, \gamma) S_{l_{ik}, \mu_{ik}}(\hat{r}) \right. \right\rangle \right. \\ \left. - \left\langle \varphi_C(\vec{r}_1) \left| \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik} R_{nik}^{\xi_{ik}}(r) \sum_{\mu=-l_{ik}}^{l_{ik}} D_{\mu, m_{ik}}^{l_{ik}}(\alpha, \beta, \gamma) S_{l_{ik}, \mu_{ik}}(\hat{r}) \right. \right\rangle \right\} \quad (\text{II.49})$$

Sachant que l'élément $D_{\mu,m}^l(\alpha, \beta, \gamma)$ vérifie la relation d'orthogonalité suivante :

$$\int \left(D_{\mu,m}^l(\alpha, \beta, \gamma) \right)^* D_{\mu',m'}^{l'}(\alpha, \beta, \gamma) d\Omega_{Euler} = \frac{8\pi^2}{2l+1} \delta_{l,l'} \delta_{m,m'} \delta_{\mu,\mu'} \quad (\text{II.50})$$

En posant:

$$\Delta_{n,l,m_i}(\vec{k}) = \langle \varphi_C(\vec{r}) | e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} | \varphi_{n,l,m_i}(\vec{r}) \rangle \quad (\text{II.51})$$

On trouve que la section efficace triplement différentielle pour une cible moléculaire est donnée par :

$$\sigma^{(3)}_{1e} = 8 \frac{k_s k_e}{K^4 k_i} \sum_{i=1}^{N_i} \frac{a_i^2}{2l_i + 1} \left| \sum_{\mu=-l}^l \left\{ \Delta_{n,l,m_i}(\vec{k}) - \Delta_{n,l,m_i}(0) \right\} \right|^2 \quad (\text{II.52})$$

II.7. Représentation des électrons du continuum

Le choix d'une bonne fonction d'onde décrivant les électrons du continuum (l'électron incident, l'électron diffusé et l'électron éjecté), joue un rôle important dans la description du processus d'ionisation des atomes et des molécules. Divers modèles ont été proposés dans le cadre des séries de Born pour décrire les électrons de la voie d'entrée et de sortie, on les représente par une onde plane, une onde coulombienne ou une onde distordue, tout dépend de l'énergie de ces électrons.

Dans la première approximation de Born, l'amplitude de diffusion s'écrit sous sa forme la plus simple comme suit :

$$f_{B1} = -\frac{1}{2\pi} \langle \phi_f | V | \phi_i \rangle \quad (\text{II.53})$$

Dans la deuxième approximation de Born, l'amplitude de diffusion est donnée par :

$$f_{B2} = -\frac{1}{2\pi} \left(\langle \phi_f | V | \phi_i \rangle + \langle \phi_f | V G_0^{(+)} V | \phi_i \rangle \right) \quad (\text{II.54})$$

II.7.1. Modèle de Born de l'onde plane PWBA

Dans ce modèle très simplifié, si l'électron éjecté sort avec une énergie grande, l'interaction entre l'électron éjecté avec l'ion résiduel et l'électron diffusé est négligeable. Dans ce cas l'électron éjecté est décrit par une onde plane de la forme :

$$\Phi(\vec{k}_e, \vec{r}) = (2\pi)^{-3/2} e^{i\vec{k}_e \cdot \vec{r}} \quad (\text{II.56})$$

Pour des énergies d'éjection faible, ce modèle est incapable de décrire le processus d'ionisation simple de la cible, dont il faut prendre en considération les interactions entre l'électron éjecté et la cible.

II.7.2. Modèle de Born de l'onde coulombienne CWBA

En tenant compte de l'interaction coulombienne entre l'électron éjecté et l'ion résiduel représenté par un noyau de charge Z , et en négligeant l'interaction avec l'électron diffusé, l'électron éjecté sortant avec une faible énergie est représenté par une onde coulombienne donnée par l'expression :

$$\varphi_c(\vec{k}, \vec{r}) = \frac{\exp(\frac{\pi}{2}\eta)}{(2\pi)^{\frac{3}{2}}} \Gamma(1+i\eta) \exp(i\vec{k}\vec{r}) {}_1F_1(-i\eta, 1, -i(kr + \vec{k}\vec{r})) \quad (\text{II.57})$$

Où : $\Gamma(1+i\eta)$ est la fonction gamma et ${}_1F_1(-i\eta, 1, -i(kr + \vec{k}\vec{r}))$ est la fonction hypergéométrique confluyente, $\eta = \frac{Z}{k_e}$ étant le paramètre de Sommerfeld.

On peut aussi représenter l'électron diffusé par une onde Coulombienne (2CW). Dans le modèle 3CW ou le modèle BBK les électrons diffusé et éjecté sont représentés par des ondes coulombiennes et l'interaction coulombienne entre les électrons sortants est prise en compte.

II.7.3. Modèle de Born de l'onde distordue DWBA

Pour des énergies d'incidence faible ou moyenne, les électrons du continuum subissent un potentiel de distorsion, dû à l'interaction de courte portée entre ces électrons et la cible [9]. Les fonctions d'ondes de l'électron incident, éjecté et diffusé présentent des distorsions, l'onde distordue est écrite comme suit [46]:

$$\chi(\vec{k}, \vec{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{\frac{3}{2}}} \sum_{l,m} i^l e^{i\delta_l} \frac{F_l(k, r)}{kr} Y_{l,m}^*(\hat{k}) Y_{l,m}(\hat{r}) \quad (\text{II.58})$$

Où :

$F_l(k, r)$ est la fonction radiale distordue. Cette fonction est solution de l'équation de Schrödinger (I.41). δ_l est le déphasage introduit par le potentiel de distorsion.

Le modèle DWBA est une représentation plus compliquée que le modèle CW. Le problème peut encore être amélioré en représentant tous les électrons par des ondes distordues (modèle 3DW), mais les calculs deviennent alors plus complexes. Dans le modèle DWBA, seul l'électron éjecté est présenté par une onde distordue.

Conclusion

Dans ce chapitre on a détaillé le formalisme de calcul de la section efficace d'ionisation simple d'une cible atomique. On a utilisé le modèle du cœur gelé qui a simplifié considérablement les calculs en prenant en compte un seul ou deux électrons de l'orbitale ionisée. On a vu que la connaissance de la fonction d'onde qui décrit la cible atomique est nécessaire. Les orbitales atomiques de l'hydrogène sont utilisées pour décrire les orbitales atomiques des cibles atomiques à plusieurs électrons. On a vu que pour les cibles moléculaires on doit appliquer davantage d'approximations pour décrire l'électron dans une molécule à l'aide de la fonction d'onde moléculaire. On a utilisé l'approximation de Born-Oppenheimer pour séparer le mouvement électronique du mouvement nucléaire. Le même raisonnement suivi dans le cas atomique est appliqué pour extraire les fonctions d'ondes des cibles moléculaires, qui sont des solutions approchées extraites des solutions de l'ion le plus simple H_2^+ . La méthode OM-CLOA est utilisée pour développer la fonction d'onde moléculaire en utilisant des bases de type Slater ou de type Gaussien. Etant donné que la molécule est orientée aléatoirement au cours du processus d'ionisation, on doit intégrer la section efficace triplement différentielle calculée dans le référentiel de la molécule sur les angles d'Euler, ce qui permet de calculer la SETD dans le système du laboratoire. Enfin on a présenté les différents modèles pour la description des électrons du continuum. Le modèle 3DW est le modèle qui décrit le mieux le processus d'ionisation mais exige des temps de calcul conséquents. On a donc du utiliser d'autres modèles plus simples qui restent valables pour des gammes d'énergie élevée ou moyenne, et qui échouent pour des énergies d'éjection faibles.

Chapitre III :
Effet de l'orthogonalisation sur la section efficace totale
d'ionisation :
Application aux petites molécules de types XH_n

Introduction

Les sections efficaces totales et différentielles d'ionisation des cibles atomiques et moléculaires par impact d'électrons présentent un grand intérêt dans diverses applications. Leurs calculs présentent en particulier un défi pour des cibles moléculaires à cause de leurs caractères multicentriques. Plusieurs modèles ont été établis pour la compréhension de l'ionisation simple par impact électronique des cibles atomiques, par contre pour les cibles moléculaires peu de modèles existent. On peut citer par exemple le modèle BEB qui constitue une approche semi-empirique. Ce modèle réussit à bien reproduire la section efficace totale et simplement différentielle mais reste incapable de calculer les autres sections efficaces différentielles, en particulier la section efficace triplement différentielle qui constitue la description la plus détaillée du processus.

Il existe actuellement des modèles purement quantiques qui sont appliqués pour calculer la section efficace totale et les différentes sections efficaces différentielles. La première approximation de Born CW qui utilise une onde coulombienne pour décrire l'électron éjecté arrive à reproduire les sections efficaces triplement différentielles expérimentales dans le cas des hautes énergies. Les modèles de premier ordre comme le CW surestiment généralement la section efficace totale aux basses énergies. Dans ce cas on doit recourir à la seconde approximation de Born ou au modèle BBK qui constituent une approche très efficace pour le calcul de SETD mais dont l'utilisation pour le calcul de la TCS reste pratiquement impossible surtout pour des cibles moléculaires à cause du temps de calcul extrêmement long.

Dans ce travail on présente le modèle OCW qui constitue une alternative pour calculer la section efficace totale d'ionisation simple de quelques cibles atomiques et moléculaires.

Le troisième chapitre est consacré à l'écriture du formalisme de la section efficace triplement différentielle, qui se fait toujours dans le cadre du modèle OCW dont l'état final du système est orthogonal à son état initial. Les électrons incident et diffusé sont représentés par des ondes planes, alors que pour l'électron éjecté on utilise une onde coulombienne. Dans le modèle à une particule l'onde coulombienne est orthogonale aux états liés de la cible. L'efficacité de ce modèle a été démontrée par McCarthy et Stelbovics [47]. Bartlett et Stelbovics [22] ont étendu l'utilisation du modèle à tous les états occupés par la cible sur l'allure de la section efficace totale. Leur travail a concerné les gaz nobles : Ne, Ar, Kr et Xe, les métaux de transition de la quatrième colonne : Fe, Cu et Ag, les éléments : Si, Ge et Sn de la cinquième colonne, les éléments : P, As et Sb de la sixième colonne ainsi que les éléments

(S, Se et Te), un bon accord est obtenu en comparant avec les données expérimentales. Nous nous proposons d'appliquer le modèle pour des cibles moléculaires. Trois petites molécules de type XH_n (H_2O , NH_3 et CH_4) seront étudiées. Les orbitales moléculaires de ces cibles sont représentées par les fonctions monocentriques de Moccia [1]. Ces molécules ont la particularité de présenter des géométries différentes et d'avoir le même nombre d'électrons (10 électrons). En plus, la présence d'un noyau lourd X avec des atomes légers (hydrogène) rend l'utilisation de fonctions d'ondes monocentriques tout à fait justifié.

III.1. Le modèle OCW

Dans le modèle CW les électrons incident et diffusé sont représentés par des ondes planes alors que l'électron éjecté est représenté par une onde coulombienne (non orthogonale aux états liés de la cible). Le modèle orthogonalisé OCW s'appuie sur l'approximation CW, mais l'onde coulombienne qui présente l'électron éjecté est orthogonale à tous les états liés de la cible.

L'onde coulombienne orthogonale à tous les états $\varphi_i(\vec{r})$ de la cible notée $\varphi_c^\perp(\vec{k}_e, r)$, est donnée par l'équation suivante [22] :

$$\varphi_c^\perp(\vec{k}_e, r) = \varphi_c(\vec{k}_e, r) - \sum_i \varphi_i(\vec{r}) \langle \varphi_i | \varphi_c \rangle \quad (\text{III.1})$$

Où :

$$\varphi_i(\vec{r}) = \sum_{\mu=1}^{N_i} a_{\mu} \varphi_{n_{\mu} l_{\mu} m_{\mu}}(\vec{r}) \quad \text{présente l'orbitale atomique ou moléculaire qui décrit la cible.}$$

$i = (n, l, m)$ est un nombre caractéristique de l'orbitale atomique ; la somme doit inclure toutes les orbitales auxquelles la fonction d'onde coulombienne est orthogonale, cette relation est seulement applicable si les fonctions d'onde forment un ensemble orthonormé, ce qui est le cas pour les fonctions de Moccia.

$\varphi_c(\vec{k}_e, r)$ est la fonction d'onde coulombienne non orthogonale de l'électron éjecté donnée comme suit :

$$\varphi_c(\vec{k}_e, \vec{r}) = (2\pi)^{\frac{-3}{2}} e^{i\vec{k}_e \cdot \vec{r}} e^{\frac{Z\pi}{2k_e}} \Gamma\left(1 + \frac{Z}{k_e}\right) {}_1F_1\left(\frac{-iZ}{k_e}, 1, -i(k_e r + \vec{k}_e \cdot \vec{r})\right) \quad (\text{III.2})$$

III.2. Section efficace triplement différentielle

III.2.1. Cible atomique

L'expression de l'amplitude de diffusion pour une cible atomique dans le modèle à un électron actif s'écrit comme suit :

$$T_{1e} = \frac{2}{K^2} \left\{ \langle \varphi_C(\vec{r}) | e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} | \varphi_i(\vec{r}) \rangle - \langle \varphi_C(\vec{r}) | \varphi_i(\vec{r}) \rangle \right\} \quad (\text{III.3})$$

En utilisant la fonction d'onde orthogonale $\varphi_{c\perp}(\vec{k}_e, r)$ donnée par l'équation (III.1), on trouve que :

$$T_{1e}^\perp = \frac{2}{K^2} \left\{ \langle \varphi_C(\vec{r}) | e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} | \varphi_i(\vec{r}) \rangle - \sum_j \langle \varphi_j(\vec{r}) | e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} | \varphi_i(\vec{r}) \rangle \langle \varphi_C(\vec{r}) | \varphi_j(\vec{r}) \rangle \right\} \quad (\text{III.4})$$

Les orbitales atomiques j sont données par :

$$\varphi_i(\vec{r}) = \sum_{\mu=1}^{N_i} a_\mu \varphi_{n_\mu l_\mu m_\mu}(\vec{r}) \quad (\text{III.5})$$

L'amplitude de diffusion s'écrit donc :

$$T_{1e}^\perp = \frac{2}{K^2} \left\{ \sum_{\mu=1}^{N_i} a_\mu X_{n_\mu l_\mu m_\mu}(\vec{k}) - \sum_j \sum_{\mu=1}^{N_i} \sum_{\nu=1}^{N_j} a_\mu |a_\nu|^2 W_{n_\mu l_\mu m_\mu}^{n_\nu l_\nu m_\nu}(\vec{k}) X_{n_\nu l_\nu m_\nu}(0) \right\} \quad (\text{III.6})$$

Les éléments de matrices $W_{n_\mu l_\mu m_\mu}^{n_\nu l_\nu m_\nu}(\vec{k})$ et $X_{n_\mu l_\mu m_\mu}(\vec{k})$ sont définis comme suit :

$$W_{n_\mu l_\mu m_\mu}^{n_\nu l_\nu m_\nu}(\vec{k}) = \langle \varphi_{n_\nu l_\nu m_\nu}(\vec{r}) | e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} | \varphi_{n_\mu l_\mu m_\mu}(\vec{r}) \rangle \quad (\text{III.7})$$

$$X_{n_\mu l_\mu m_\mu}(\vec{k}) = \langle \varphi_C(\vec{r}) | e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} | \varphi_{n_\mu l_\mu m_\mu}(\vec{r}) \rangle \quad (\text{III.8})$$

On écrit alors la section efficace triplement différentielle (SETD) pour une cible atomique avec orthogonalisation complète (onde coulombienne orthogonale à tous les états de la cible) comme suit :

$$\sigma_{1e}^{(3)} = 4 \frac{k_s k_e}{K^4 k_i} \left\{ \sum_{\mu=1}^{N_i} a_\mu X_{n_\mu l_\mu m_\mu}(\vec{k}) - \sum_j \sum_{\mu=1}^{N_i} \sum_{\nu=1}^{N_j} a_\mu |a_\nu|^2 W_{n_\mu l_\mu m_\mu}^{n_\nu l_\nu m_\nu}(\vec{k}) X_{n_\nu l_\nu m_\nu}(0) \right\}^2 \quad (\text{III.9})$$

Pour une orthogonalisation partielle à l'orbitale ionisée, la section efficace triplement différentielle pour une cible atomique est donnée par :

$$\sigma_{1e}^{(3)} = 4 \frac{k_s k_e}{K^4 k_i} \left\{ \sum_{\mu=1}^{N_i} a_\mu X_{n_\mu l_\mu m_\mu}(\vec{k}) - \sum_{\mu=1}^{N_i} a_\mu |a_\mu|^2 W_{n_\mu l_\mu m_\mu}^{n_\mu l_\mu m_\mu}(\vec{k}) X_{n_\mu l_\mu m_\mu}(0) \right\}^2 \quad (\text{III.10})$$

Les deux dernières expressions nous permettent de calculer analytiquement la SETD d'ionisation simple des atomes.

III.2.2. Cible moléculaire

L'amplitude de diffusion pour une cible moléculaire dans le modèle à un électron actif s'écrit dans le repère du laboratoire comme suit :

$$T(\alpha, \beta, \gamma) = \frac{2}{(2\pi)^2 K^2} \left\{ \begin{array}{l} \left\langle \varphi_C(\vec{r}_1) \left| e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}_1} \left| \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik} R_{n_{ik}}^{\xi_{ik}}(r) \sum_{\mu=-l_{ik}}^{l_{ik}} D_{\mu, m_{ik}}^{l_{ik}}(\alpha, \beta, \gamma) S_{l_{ik}, \mu_{ik}}(\hat{r}) \right. \right\rangle \\ - \left\langle \varphi_C(\vec{r}_1) \left| \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik} R_{n_{ik}}^{\xi_{ik}}(r) \sum_{\mu=-l_{ik}}^{l_{ik}} D_{\mu, m_{ik}}^{l_{ik}}(\alpha, \beta, \gamma) S_{l_{ik}, \mu_{ik}}(\hat{r}) \right. \right\rangle \end{array} \right\} \quad (\text{II.49})$$

En utilisant la fonction d'onde orthogonale donnée par l'équation (III.1), et en effectuant une moyenne sur les angles d'Euler on trouve que :

$$T(\alpha, \beta, \gamma) = \frac{2}{(2\pi)^2 K^2} \left\{ \begin{array}{l} \left\langle \varphi_C(\vec{r}_1) \left| e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}_1} \left| \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik} R_{n_{ik}}^{\xi_{ik}}(r) \sum_{\mu=-l_{ik}}^{l_{ik}} D_{\mu, m_{ik}}^{l_{ik}}(\alpha, \beta, \gamma) S_{l_{ik}, \mu_{ik}}(\hat{r}) \right. \right\rangle \\ \left\langle \varphi_C(\vec{r}_1) \left| e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}_1} \left| \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik} R_{n_{ik}}^{\xi_{ik}}(r) \sum_{\mu=-l_{ik}}^{l_{ik}} D_{\mu, m_{ik}}^{l_{ik}}(\alpha, \beta, \gamma) S_{l_{ik}, \mu_{ik}}(\hat{r}) \right. \right\rangle \\ - \sum \left\langle \varphi_C(\vec{r}_1) \left| \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik} R_{n_{ik}}^{\xi_{ik}}(r) \sum_{\mu=-l_{ik}}^{l_{ik}} D_{\mu, m_{ik}}^{l_{ik}}(\alpha, \beta, \gamma) S_{l_{ik}, \mu_{ik}}(\hat{r}) \right. \right\rangle \end{array} \right\} \quad (\text{II.50})$$

En posant :

$$\Delta_{n_i, l_i, m_i}(\vec{k}) = \langle \varphi_C(\vec{r}) \left| e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} \left| \varphi_{n_i, l_i, m_i}(\vec{r}) \right. \right\rangle \quad (\text{II.51})$$

On trouve que la section efficace triplement différentielle pour une cible moléculaire est donnée par :

$$\sigma^{(3)}_{1e} = 4 \frac{k_s k_e}{K^4 k_i} \sum_{i=1}^{N_i} \frac{a_i^2}{2l_i + 1} \left| \sum_{\mu=-l_i}^{l_i} \left\{ \Delta_{n_i, l_i, m_i}(\vec{k}) - \Delta_{n_i, l_i, m_i}(0) \right\} \right|^2 \quad (\text{II.52})$$

Dans cette section notre but est de calculer la TCS avec les modèles CW et OCW dans le cas de l'atome du néon et de quelques petites molécules et voir quel est le rôle de l'orthogonalisation (à travers le modèle OCW) sur l'allure de la TCS en particulier.

III.3. Atome de Néon

Le Néon est un gaz noble sans couleur. Il se présente sous la forme d'un gaz monoatomique inerte difficilement décelable. Sa configuration électronique est $1s^2 2s^2 2p^6$ (figure III.1). L'orbitale atomique 2s est moins liée (énergie d'ionisation de 21,56 eV) que l'orbitale 1s (environ 890 eV).

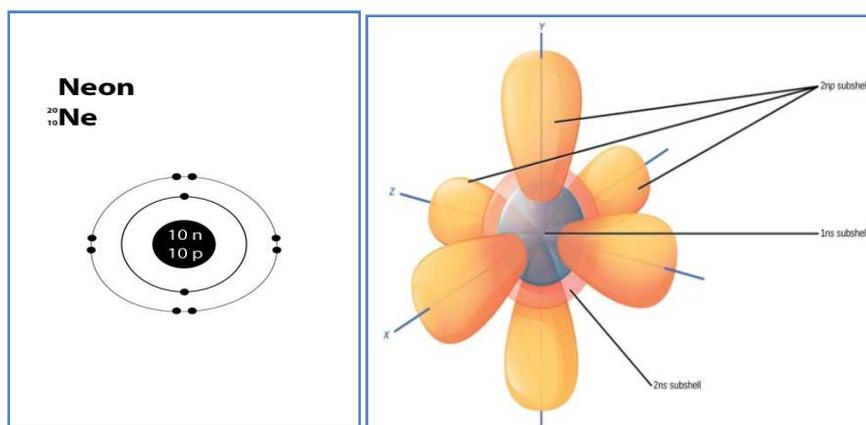


Figure III.1 : géométrie du néon et ses orbitales atomiques

III.4. Les molécules de types XH_n

Les petites molécules XH_n sont constituées d'un atome lourd X qui présente des liaisons covalentes avec les n atomes d'hydrogène. Les trois molécules H_2O , NH_3 et CH_4 sont choisies pour l'étude de leur simple ionisation par impact électronique. Dans la section suivante on présente les caractéristiques principales de ces molécules.

III.4.1. La molécule d'eau H_2O

L'eau constitue un élément important de recherche et d'étude d'ionisation des petites molécules à cause de son abondance dans la matière vivante (60 à 95%). La molécule d'eau possède une géométrie non linéaire et se présente comme un tétraèdre, dont l'atome d'oxygène occupe presque le centre (figure III.2).

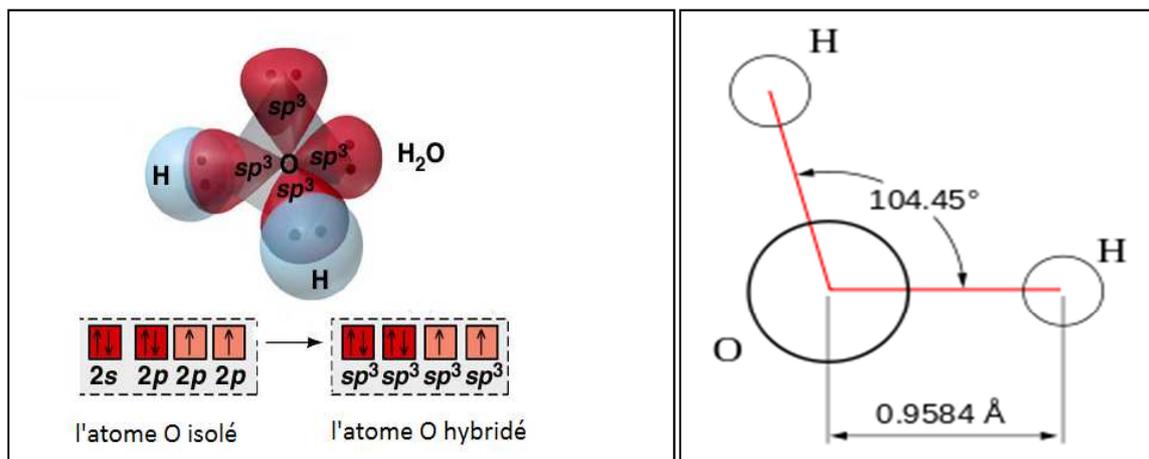


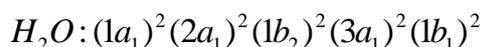
Figure III.2 : géométrie de la molécule H_2O et les orbitales hybrides SP^3

Les orbitales moléculaire de H_2O sont au nombre de cinq centrées sur le noyau d'oxygène, chaque orbitale contient deux électrons .Dans la molécule d'eau, les orbitales atomiques d'énergie voisine ($<12eV$) et de symétries compatibles (recouvrement non nul) peuvent se combiner en donnant l'orbitale moléculaire hybride :

- $2a_1$: formée par l'union de l'orbitale atomique $2s$ de l'oxygène et l'orbitale moléculaire σ de l'hydrogène.
- $1b_2$: formée par l'union de l'orbitale atomique $2p_y$ de l'oxygène et l'orbitale moléculaire σ^* de l'hydrogène.
- $3a_1$: formée par l'union de l'orbitale atomique $2p_z$ de l'oxygène et l'orbitale moléculaire σ de l'hydrogène.
- $1b_1$: représente l'orbitale non liante de l'orbitale atomique $2p_x$ de l'oxygène.

Les orbitales liantes sont principalement localisées sur l'atome le plus électronégatif (O) tandis que les orbitales antiliantes sont sur les atomes les moins électronégatifs (H).

Dans l'état fondamental, les 8 électrons de valence se placent dans les 4 orbitales moléculaires de plus basse énergie. Il y a donc 4 électrons liants correspondant aux deux liaisons O-H et 4 électrons non liants correspondant aux deux paires libres. La configuration électronique fondamentale de la molécule d'eau est représentée comme suit :



La figure III.3 représente le diagramme d'énergie des orbitales moléculaires de l'eau. L'état fondamental de l'eau est décrit en utilisant ces orbitales moléculaires par la fonction monocentrique de Moccia. Les énergies d'ionisation correspondantes à ces orbitales sont données dans le tableau III.1.

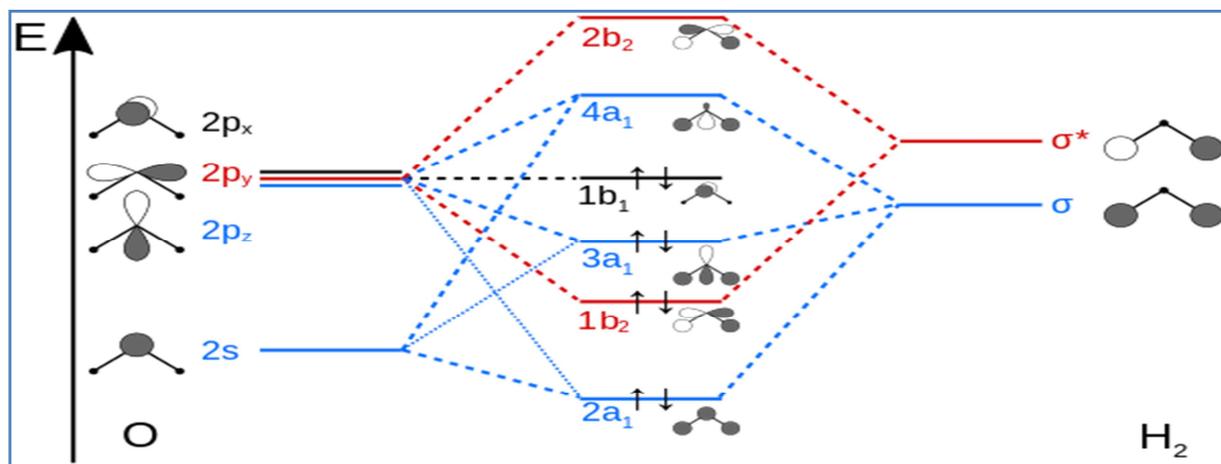


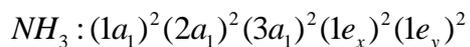
Figure III.3 : diagramme orbitalaire de la molécule H_2O .

Distance H-H (u.a)	2.907
Distance O-H (u.a)	1.814
Angle H-O-H (deg.)	106.53
Energie d'ionisation (u.a)	0.4954 (1b1) 0.5561 (3a1) 0.6814 (1b2) 1.3261 (2a1) 20.5249 (1a1)

Tableau III.1 : paramètres géométriques et énergies d'ionisation de la molécule H_2O .

III.4.2. La molécule d'ammoniac NH_3

La molécule d'ammoniac NH_3 possède 4 orbitales hybrides de type SP^3 avec une géométrie de type pyramide triangulaire. La configuration électronique de NH_3 est la suivante :



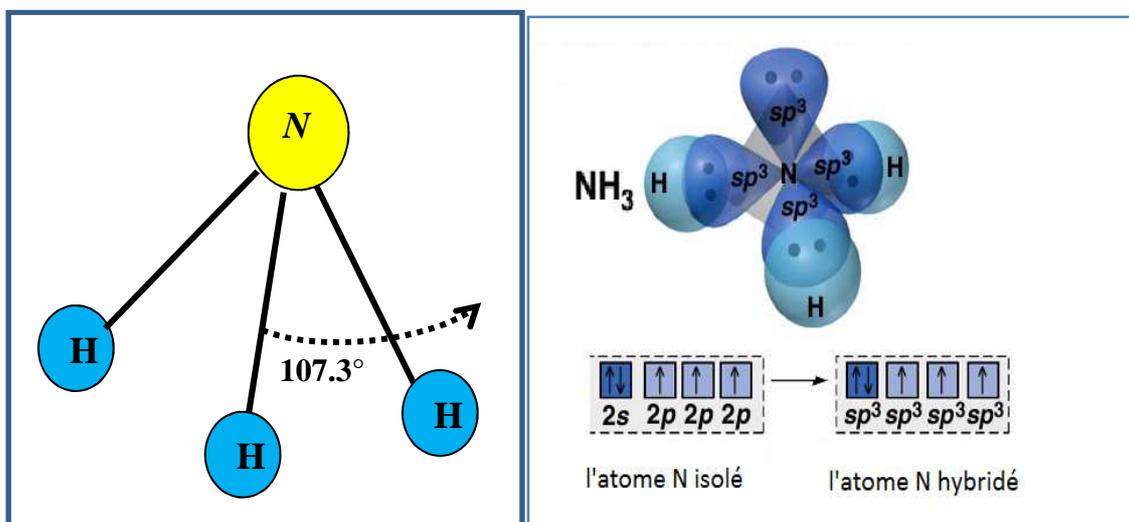


Figure III.4 : géométrie de la molécule NH_3 et les orbitales hybrides SP^3

La figure III.5 montre les orbitales moléculaire NH_3 qui sont les suivantes :

- $2a_1$: formée par l'union de l'orbitale atomique $2s$ de l'azote et l'orbitale moléculaire σ de l'hydrogène.
- $1e_y$: formée par l'union de l'orbitale atomique $2p_y$ de l'azote et l'orbitale moléculaire σ^* de l'hydrogène.
- $3a_1$: formée par l'union de l'orbitale atomique $2p_z$ de l'azote et l'orbitale moléculaire σ de l'hydrogène.
- $1e_x$: non liante de l'orbitale atomique $2p_x$ de l'oxygène.

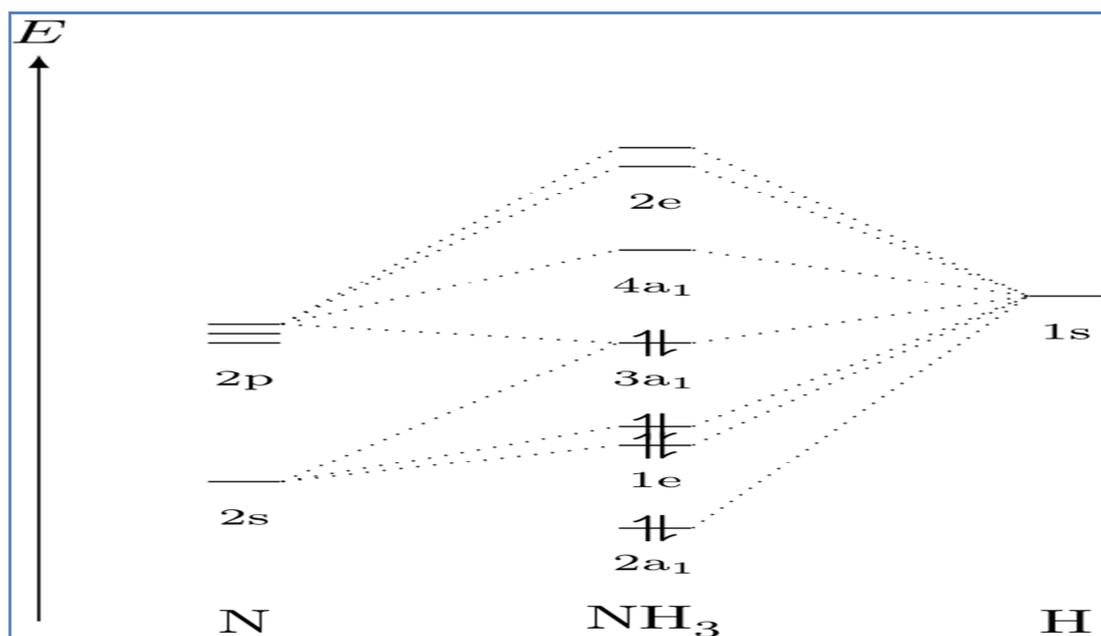


Figure III.5 : diagramme des orbitales moléculaires de la molécule NH_3

Distance H-H (Å^0)	0.959
Distance N-H (Å^0)	1.010
Angle H-N-H (deg.)	107.
Energie d'ionisation (eV)	10.85 (3a1)
	15.8 (1e)
	27.7 (2a1)

Tableau III.2 : paramètres géométriques et énergies d'ionisation de la molécule NH_3

III.4.3. La molécule de méthane CH_4

La molécule CH_4 est un tétraèdre régulier où l'atome de carbone occupe son centre, les quatre atomes d'hydrogène étant aux sommets, c'est une molécule symétrique. Chaque orbitale hybride de l'atome du carbone de type SP^3 se combine avec une orbitale atomique 1S de l'hydrogène, ce qui conduit à la formation des quatre orbitales moléculaires du méthane (figure III.6).

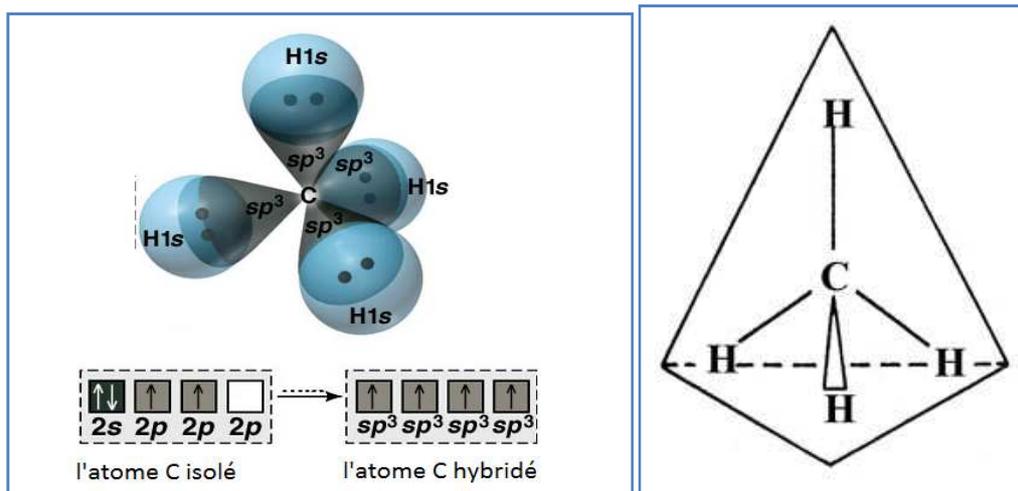


Figure III.6 : géométrie de la molécule CH_4

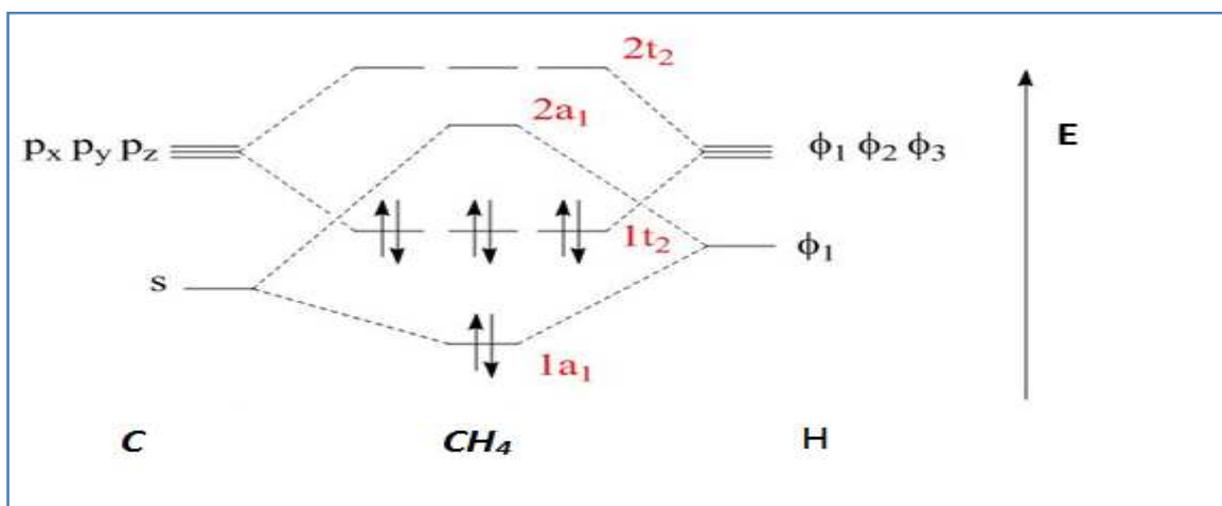


Figure III.7 : diagramme des orbitales moléculaires de la molécule CH_4

Distance H-H (Å^0)	0.959
Distance O-H (Å^0)	2.907
Angle H-C-H (deg.)	109.5
Energie d'ionisation (eV)	14.4 ($1t_2$)
	22.9 ($2a_1$)

Tableau III.3 : paramètres géométriques de la molécule CH_4

III.5. Résultats et discussion

On présente à présent les résultats de calcul des sections efficaces différentielles et totales pour les quatre cibles choisies (Ne, H₂O, NH₃ et CH₄) prises dans leur état fondamental dans le cadre des deux modèles OCW et CW. Pour les SETD les calculs sont réalisés pour une géométrie coplanaire non symétrique. Les sections efficaces simplement différentielle et doublement différentielles sont déduites en intégrant successivement la section efficace triplement différentielle respectivement sur l'angle solide de diffusion (d'éjection) et l'énergie d'éjection. Les fonctions monocentriques de Moccia ont été utilisées pour les orbitales moléculaires des trois molécules considérées. Un test EMS a été fait pour vérifier la très bonne qualité de ces fonctions [28].

III.5.1. Section efficace totale SET

La section efficace totale (SET) représente l'objet principal de notre travail, elle est obtenue après cinq intégrations successives sur les angles solides des électrons éjecté et diffusé ainsi que sur l'énergie d'éjection. Pour les cibles moléculaires il faut encore ajouter trois intégrations sur les angles d'Euler nécessitant ainsi des moyens conséquents. Les résultats présentés à travers ce travail concernent les cibles du Néon et des trois molécules : H₂O, NH₃ et CH₄ où les SET sont tracées en fonction de l'énergie du projectile entre le seuil d'éjection jusqu'à environ 5000 eV.

Nous tenons à rappeler que nous avons pu effectuer nos calculs pour les cibles moléculaires grâce aux moyens mis à notre disposition par le SUPER-COMPUTER de l'université de LOMONOSOV de Moscou.

La figure III.8 montre les résultats du calcul de la section efficace totale d'ionisation simple du Néon qui sont confrontés aux données expérimentales de Sorokin et al [48] et à celles de Wetzal et al [49]. On observe que le modèle orthogonalisé OCW reproduit de façon très satisfaisante les données expérimentales alors que le modèle non orthogonalisé CW surestime (comme on pouvait s'y attendre) la courbe aux basses énergies. Le modèle CW donne un pic de $3.7 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^{-2}$ alors que celui mesuré est de $0.7 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^{-2}$.

Pour des énergies d'incidence élevée et comme on pouvait s'y attendre, les calculs convergent et sont en bon accord avec les données expérimentales, ce qui montre que la première approximation de Born suffit à expliquer l'ionisation dans cette gamme d'énergie.

On conclut donc que la prise en considération de l'orthogonalité améliore de façon significative la section efficace totale d'ionisation calculée dans la première approximation de Born en particulier pour des énergies d'incidence faibles.

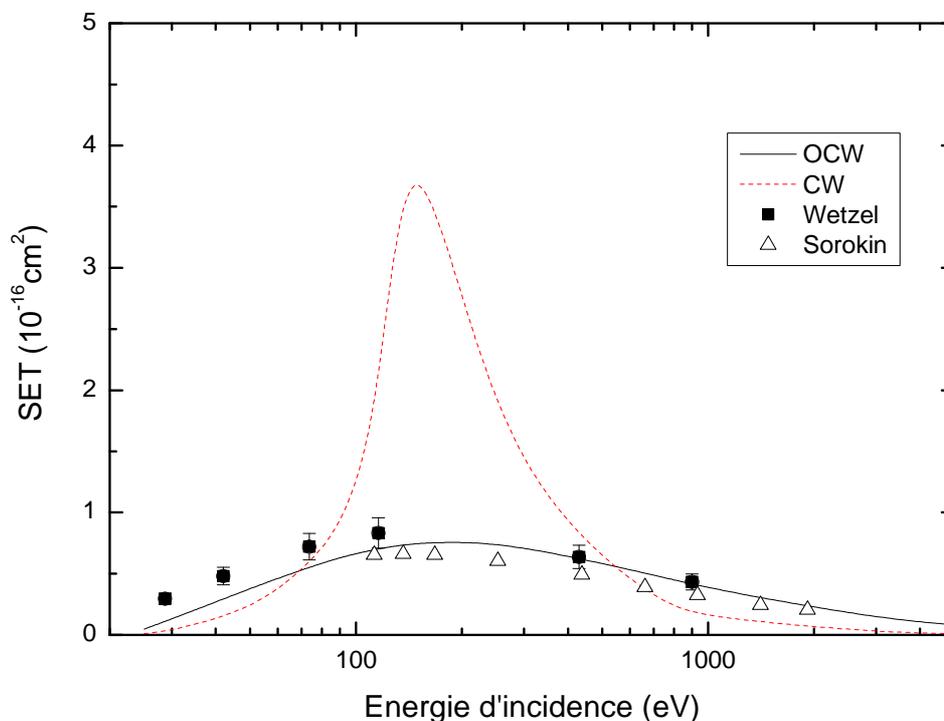


Figure III.8 : variation de la SET d'ionisation du Néon par impact électronique en fonction de l'énergie incidente, la ligne continue présente les résultats avec l'approximation OCW, la ligne discontinue pour l'approximation CW. Pour les données mesurées : Sorokin (triangle) et Wetzel (carré).

La figure III.9 représente la variation de la section efficace totale d'ionisation d'eau en fonction de l'énergie du projectile à partir du seuil d'éjection jusqu'à 5000 eV. Les résultats sont également présentés à l'aide des modèles CW et OCW et comparés avec les données expérimentales de Sorokin [48] et ceux de Wetzel [49]. On remarque que la SET obtenue avec le modèle OCW donne un meilleur accord avec l'expérience. Le pic est très bien localisé (vers 100 eV) et l'amplitude de la section efficace est bien reproduite. Le modèle CW montre toujours son incapacité de décrire le processus aux basses énergies. On constate que le modèle OCW améliore considérablement les résultats et semble capable de décrire le processus d'ionisation pour les faibles énergies. Pour des énergies élevées d'incidence les résultats

fournis par les deux modèles théoriques convergent vers les données expérimentales avec un rapprochement remarquable des résultats avec le modèle OCW.

On conclut que la prise en considération de l'orthogonalisation reproduit très bien la section efficace totale d'ionisation calculée pour des énergies faibles d'incidence dans le cas de la molécule H₂O.

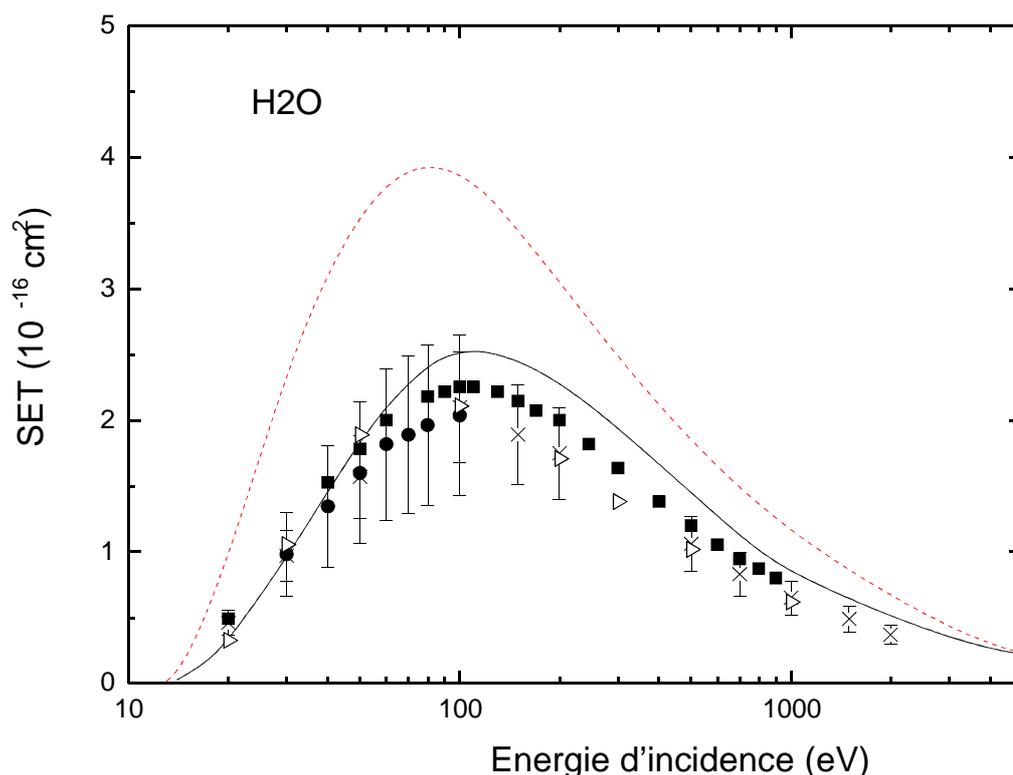


Figure III.9 : Variation de la SET de H₂O par impact électronique en fonction de l'énergie incidente. La ligne continue représente les résultats avec l'approximation OCW, la ligne discontinue pour l'approximation CW. Les résultats sont comparés avec les expériences de Sorokin (triangle) [48] et Wetzel (carré)[49].

La figure III.10 présente la variation de la SET d'ionisation par impact électronique de l'ammoniac (NH₃) en fonction de l'énergie d'incidence obtenue avec les approximations CW et OCW. Les données expérimentales sont de Rao et Srivastava [50], de Djuric et al. [51], et de Crowe et McConkey [52]. Dans le cas du modèle OCW on observe que pour des énergies d'incidence inférieures à 100 eV, l'amplitude est considérablement réduite et les résultats sont plus proches des données expérimentales. Le modèle CW présente encore une allure qui

surestime clairement l'expérience dans cette gamme d'énergie. Pour les hautes énergies les deux modèles CW et OCW convergent plus ou moins bien et fournissent des résultats pas trop éloignés de ceux donnés par l'expérience.

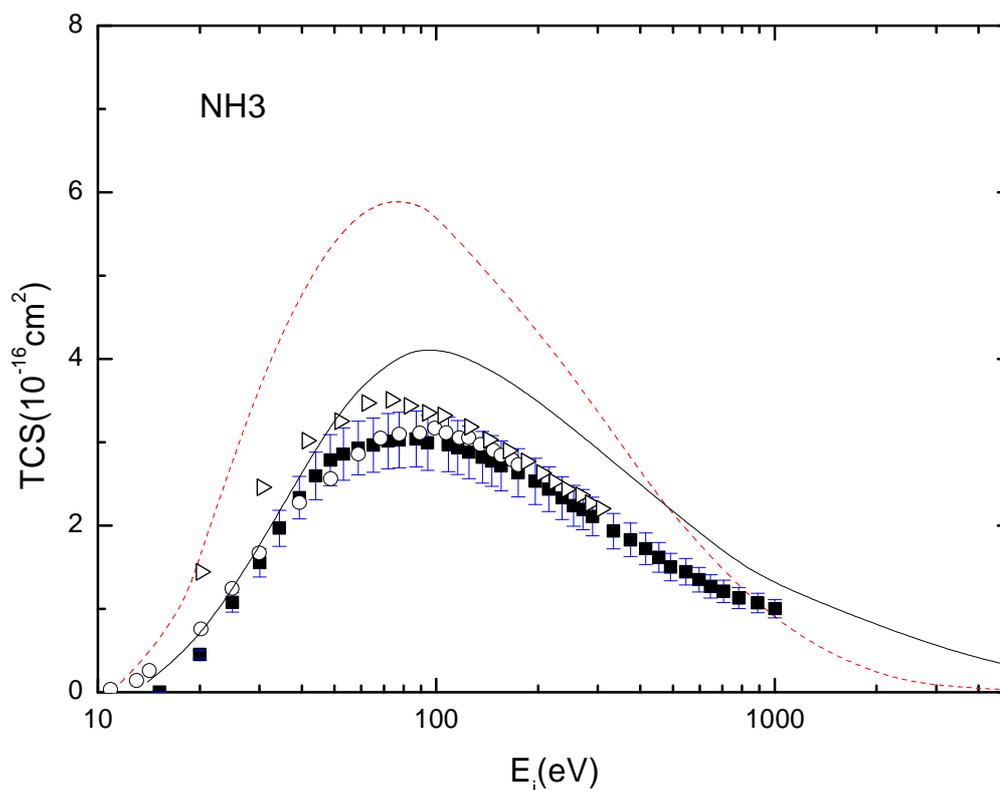


Figure III.10 : Variation de la SET d'ionisation de NH_3 par impact électronique en fonction de l'énergie incidente, la ligne continue représente les résultats avec l'approximation OCW, la ligne discontinue pour l'approximation CW. Pour les données mesurées : Rao et Srivastava (carrés pleins) [50], Djuric et al. (triangle) [51] et Crowe et McConkey (cercle) [52].

La figure III.11 représente la variation de la section efficace totale d'ionisation du méthane (CH_4) en fonction de l'énergie d'incidence. Les résultats de nos calculs obtenus avec les approximations CW et OCW sont comparés aux données expérimentales de Nishimura et Tawara [53] et d'Orient et Srivastava [54]. On remarque que dans le cas du modèle OCW le maximum est très bien localisé et on observe un assez bon accord avec les données mesurées à basse énergie, au contraire du modèle CW qui surestime clairement l'expérience. Le modèle OCW améliore considérablement l'accord avec les résultats expérimentaux et semble capable

de décrire le processus d'ionisation pour les faibles énergies. Pour des énergies élevées, les deux modèles théoriques convergent plus ou moins.

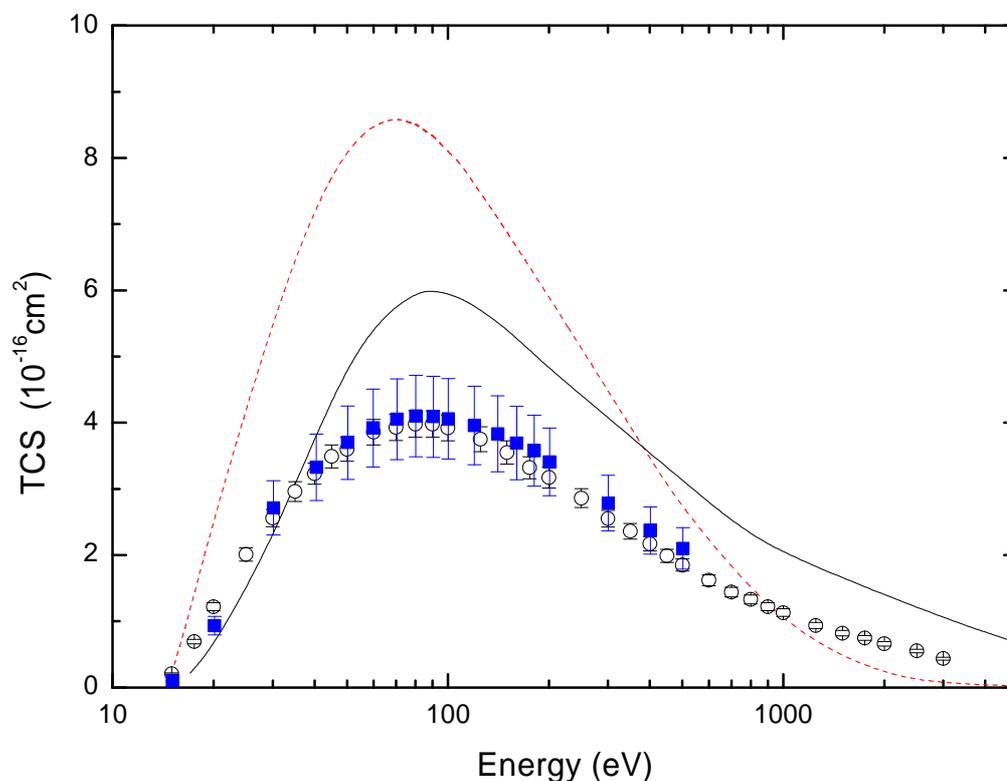


Figure III.11 : Section efficace totale d'ionisation du CH_4 par impact électronique en fonction de l'énergie incidente. La ligne continue représente les résultats avec l'approximation OCW, la ligne discontinue pour l'approximation CW. Les résultats sont comparés aux expériences de Nishimura et Tawara (carrés pleins), et d'Orient et Srivastava (cercles).

Enfin, on revient à la molécule d'eau pour présenter une propriété importante de l'orthogonalisation. La figure III.12 représente la section efficace totale SET d'ionisation par impact électronique des quatre orbitales moléculaires de l'eau avec les deux modèles CW et OCW. On trouve que la SET de l'orbitale interne $2a_1$ est considérablement affectée par l'orthogonalité : l'amplitude est pratiquement divisée par quatre et le pic est décalé vers les hautes énergies. On remarque également une convergence des deux modèles pour les hautes énergies. Pour les autres orbitales moléculaires $1b_2$, $3a_1$ et $1b_1$ l'effet de l'orthogonalisation est

moins important. Il semble donc que l'orthogonalisation affecte énormément la SET dans le cas des couches internes.

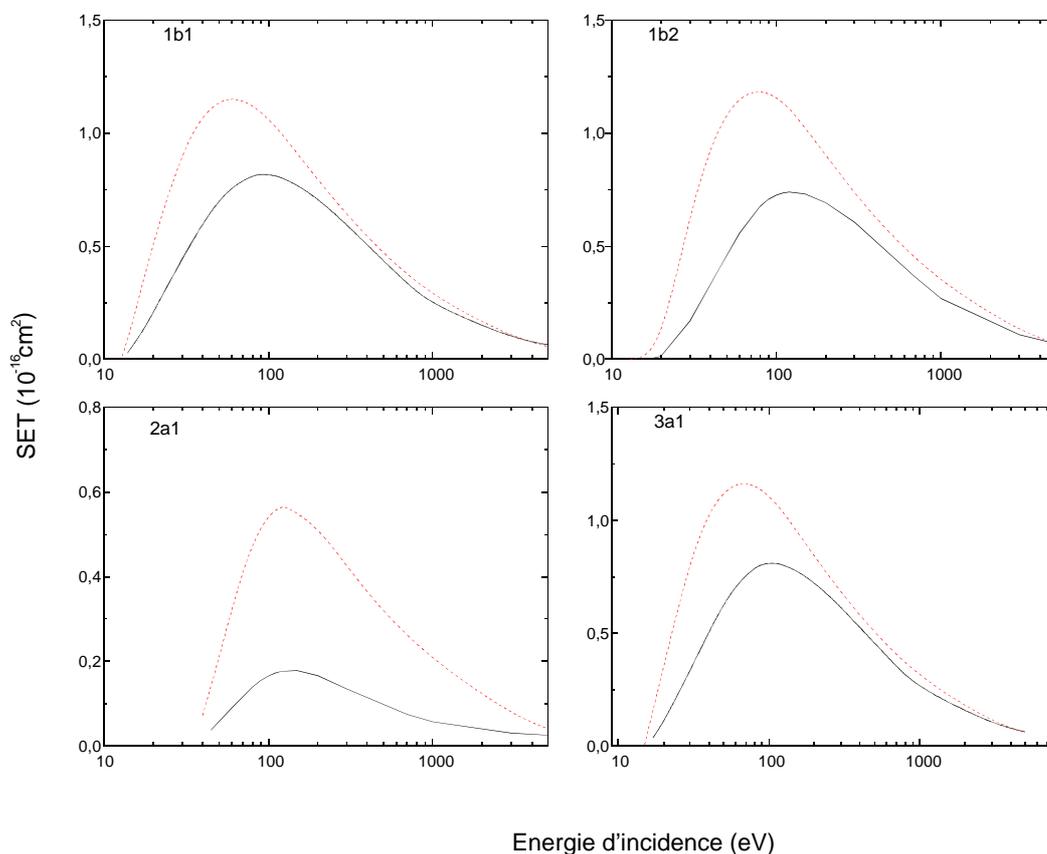


Figure III.12 : Comparaison des SET calculées à l'aide des modèles OCW (ligne continue) et CW (tirets) dans le cas de la molécule H_2O . La comparaison est présentée séparément pour les quatre orbitales moléculaire $1b_1$, $1b_2$, $2a_1$ et $3a_1$.

III.5.2. Section efficace triplement différentielle SETD

Dans cette partie on expose les résultats concernant le calcul des SETD en utilisant les modèles avec et sans orthogonalisation. De plus, dans le cas de l'orthogonalisation on présentera aussi le cas d'une simple orthogonalisation (equ.III.10) en plus de celui d'une orthogonalisation complète (equ.III.9).

On considère dans un premier temps l'ionisation de la molécule H_2O à basse énergie dans les conditions expérimentales de Milne-Brownlie et al. [55] où l'électron éjecté est détecté avec une énergie de 10 eV alors que l'électron rapide est diffusé avec un angle de 15° . Le modèle CW s'est déjà avéré capable de bien reproduire les pics binaires et de recul expérimentaux.

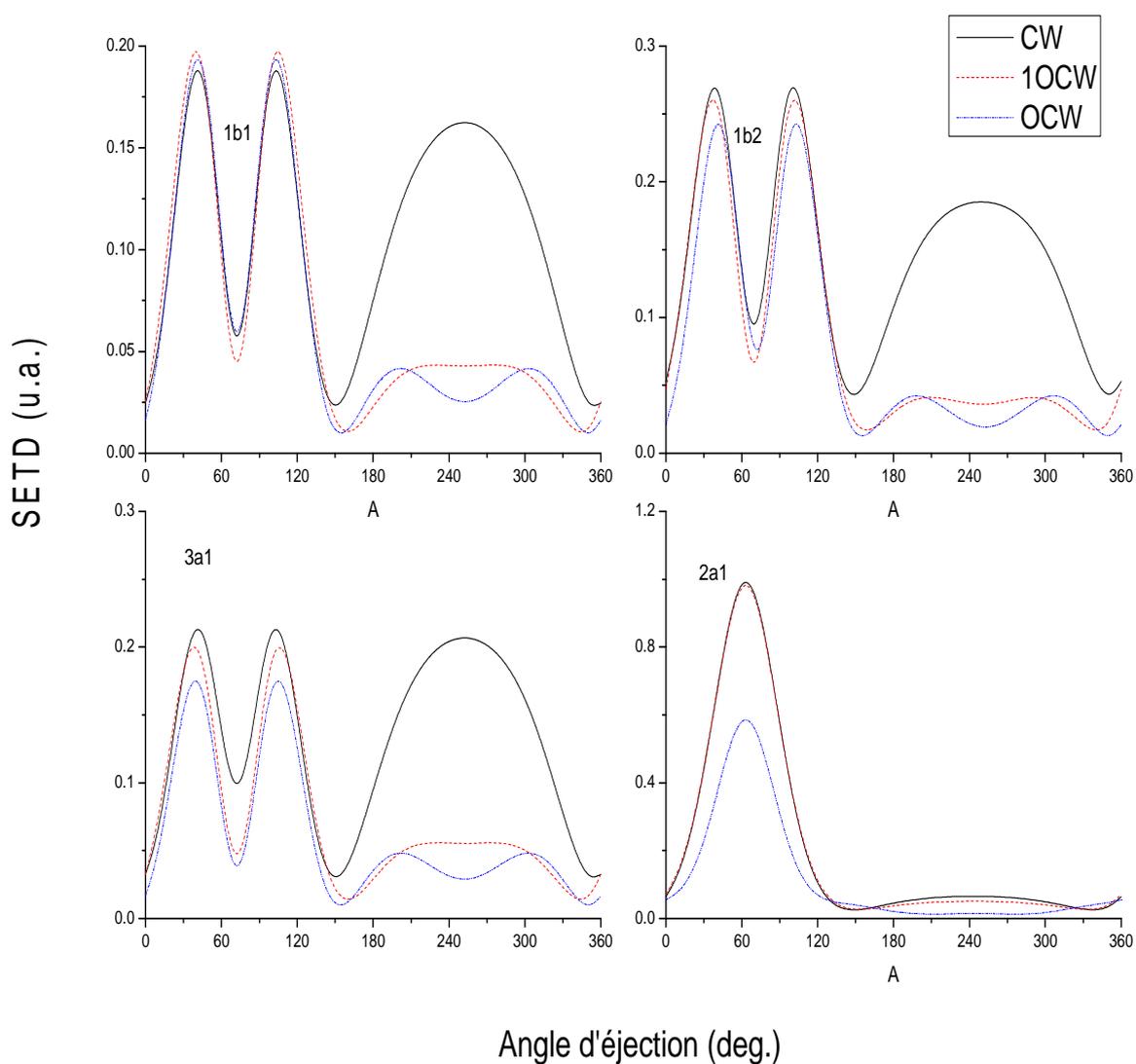


Figure III.13 : Variation de la SETD de l'ionisation de H_2O en fonction de l'angle d'éjection avec une énergie d'impact $E_i = 250$ eV et une énergie d'éjection $E_e = 10$ eV, l'angle de diffusion étant $\theta_s = 15^\circ$.

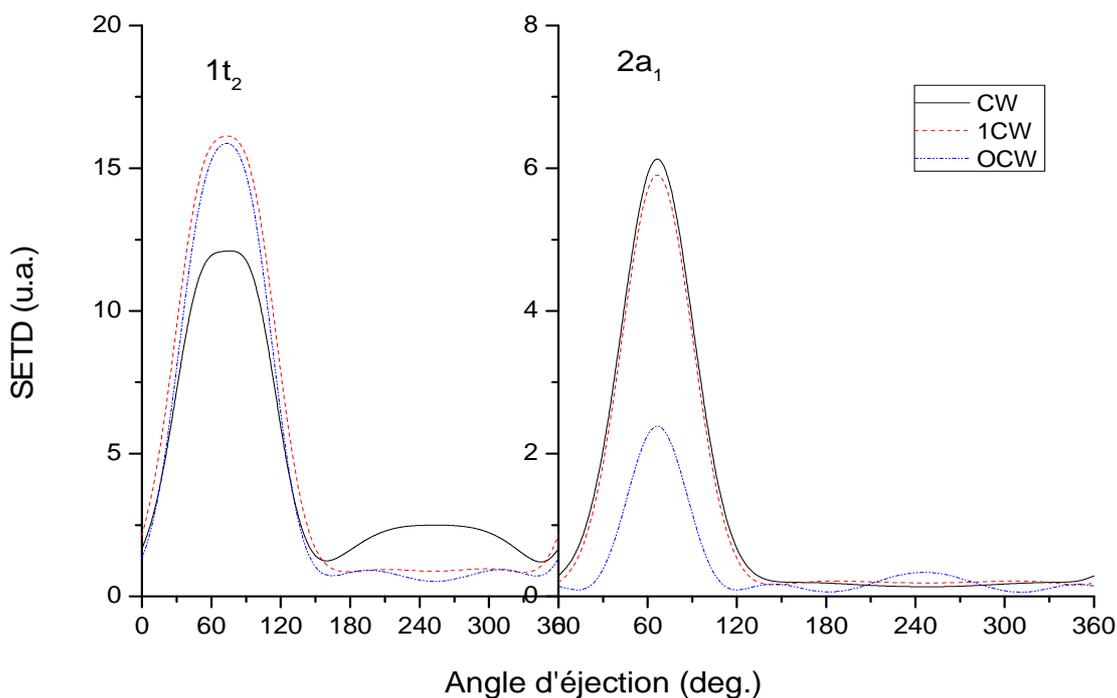


Figure III.14 : Variation de la SETD de l'ionisation de CH_4 en fonction de l'angle d'éjection dans les mêmes conditions que celles de la figure (III.13).

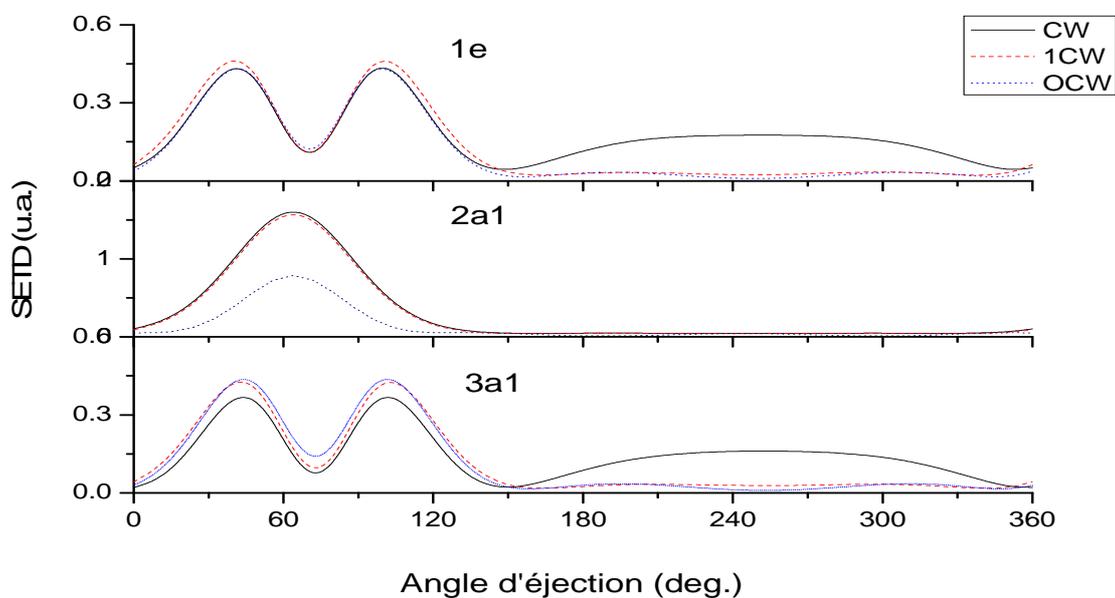


Figure III.15 : Variation de la SETD de l'ionisation de NH_3 en fonction de l'angle d'éjection dans les mêmes conditions que celles de la figure (III.13).

La figure III.13 présente la SETD calculée à l'aide du modèle non orthogonalisé CW ainsi que la SETD calculée avec le modèle orthogonalisé OCW (dans les cas d'une orthogonalisation simple ainsi qu'avec une orthogonalisation complète dans le cas de la molécule H₂O). On voit immédiatement que l'orthogonalisation détruit complètement le pic de recul dans le cas des trois orbitales les plus externes (1b₁, 1b₂ et 3a₁) alors que la région binaire n'est pratiquement pas affectée. Dans le cas de l'orbitale la plus interne 2a₁ l'orthogonalisation affecte cette fois la région binaire où on voit clairement que l'amplitude décroît considérablement. Il faut noter que pour cette orbitale la simple orthogonalisation n'apporte aucun changement à la SETD. En gros on voit que c'est surtout l'orthogonalisation complète qui affecte considérablement la SETD en diminuant son amplitude et en détruisant les pics de recul.

Les figures (III.14) et (III.15) représentent les calculs effectués dans les mêmes conditions que pour la molécule H₂O mais pour les molécules CH₄ et NH₃ respectivement. On remarque le même comportement que celui déjà observé pour H₂O. Le pic de recul est totalement détruit et l'amplitude de l'orbitale la plus interne décroît considérablement quand l'orthogonalisation est prise en compte. Evidemment l'effet de l'orthogonalisation semble être le plus important.

On conclut donc que l'orthogonalisation influe considérablement la forme de la SETD dans les deux régions. Elle détruit le pic de recul et induit une diminution importante de l'amplitude du pic binaire des orbitales internes. Cela implique automatiquement une diminution de l'amplitude de la section efficace totale après intégrations successives comme on l'a déjà vu au paragraphe précédent. Enfin, il faut rappeler que l'orthogonalisation complète montre un effet beaucoup plus important que celui d'une simple orthogonalisation.

III.5.3. Sections efficaces simplement et doublement différentielles

A présent, on présente les résultats de calcul des sections efficaces doublement et triplement différentielles notées respectivement SEDD et SESD et définies comme :

$$SEDD = \sigma^{(2)} = \int \sigma^{(3)} d\Omega_s$$

$$SESD = \sigma^{(1)} = \int \sigma^{(3)} d\Omega_s d\Omega_e$$

Les figures (III.16) et (III.17) représentent respectivement les SEDD et SESD des cibles moléculaires CH₄, NH₃ et H₂O calculées à l'aide des modèles CW et OCW. Il faut noter que la SEDD est tracée en fonction de l'énergie d'éjection par intégration sur l'angle solide de

l'électron diffusé pour des angles d'éjection $\theta_e = 120^\circ$ et $\varphi_e = 0$ alors que la SEDS est également tracée en fonction de l'énergie d'éjection après des intégrations successives sur les angles solides des électrons éjecté et diffusé. Les résultats expérimentaux sont ceux d'Opal et al. [56]. On remarque que les résultats avec et sans orthogonalisation sont assez proches et que par conséquent l'orthogonalisation ne produit pas d'effet important sur les SEDD et SEDS.

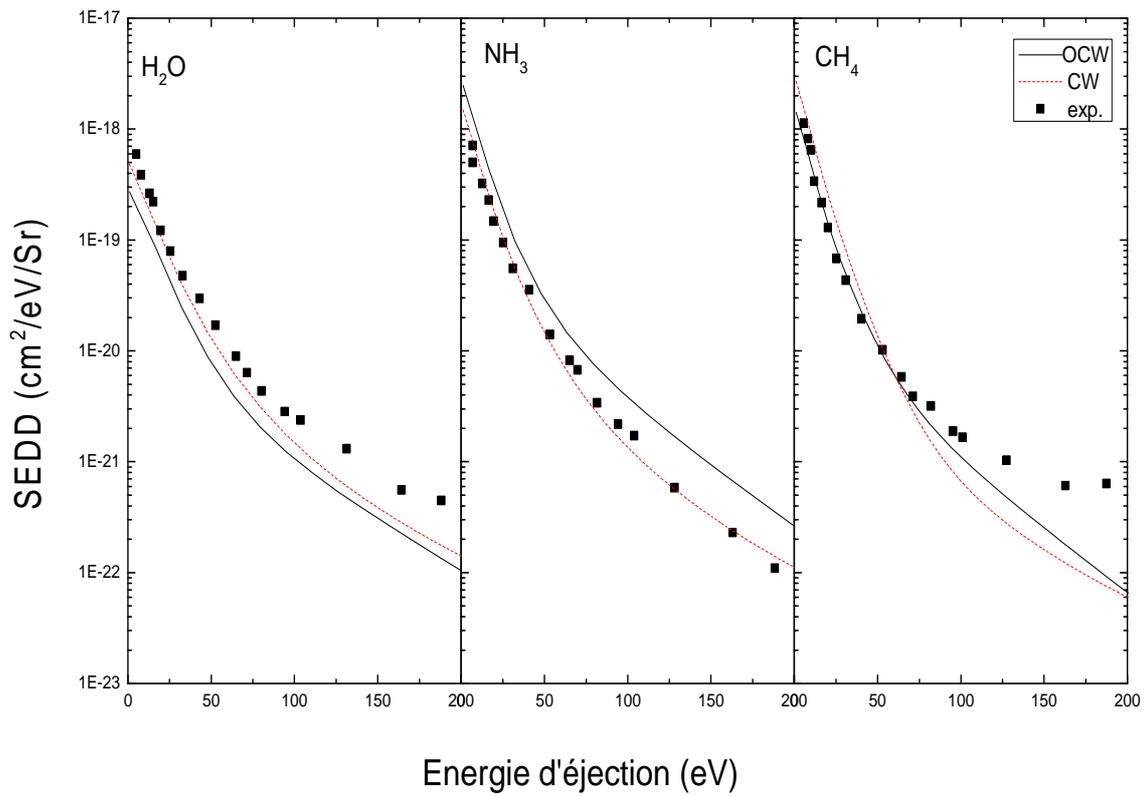


Figure III.16 : Section efficace doublement différentielle d'ionisation des molécules CH_4 , NH_3 et H_2O par impact électronique en fonction de l'énergie d'éjection pour une énergie d'incidence $E_i=500$ eV et un angle d'éjection $\theta_e = 120^\circ$ et $\varphi_e = 0$. Les résultats sont comparés aux expériences d'Opal et al. [56].

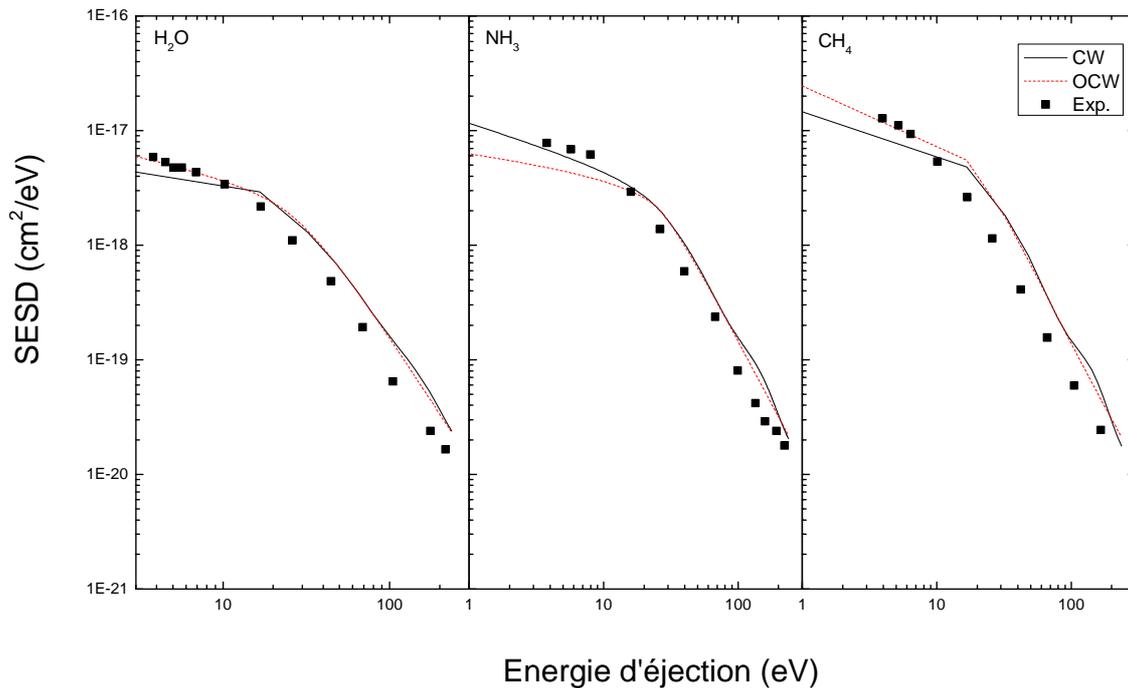


Figure III.16 : Section efficace simplement différentielle d'ionisation des molécules CH_4 , NH_3 et H_2O par impact électronique en fonction de l'énergie d'éjection pour une énergie d'incidence $E_i=500$ eV. Les résultats sont comparés aux expériences d'Opal et al. [56].

Conclusion :

Le modèle CW qui représente l'électron éjecté avec une onde coulombienne non orthogonale est incapable de décrire le phénomène d'ionisation des cibles atomiques et moléculaire en particulier dans la gamme d'énergie d'incidence faible. Dans ce chapitre on a essayé d'améliorer ce modèle tout en restant dans le cadre de la première approximation de Born. Cela a été fait à l'aide du modèle OCW en utilisant une onde coulombienne orthogonale aux états liés de la cible pour décrire l'électron éjecté. Le modèle OCW a permis de reproduire convenablement les données expérimentales pour des cibles atomiques et des petites molécules [79]. On a appliqué le modèle OCW sur une cible atomique (Néon) pour montrer l'utilité de la prise en compte de l'orthogonalisation de l'onde coulombienne avec tous les états liés de la cible. Ensuite on a choisi trois petites molécules de type XH_n dont les orbitales moléculaires sont représentées par les fonctions monocentriques de Moccia.

Le calcul de la section efficace triplement différentielle dans des conditions cinématiques et géométriques bien déterminées nous permet en premier lieu d'évaluer la

validité du modèle OCW. L'intégration successive sur les angles solides de diffusion et d'éjection, ainsi que sur l'énergie d'éjection nous permet de trouver les autres sections efficaces différentielles et totales. La comparaison entre les données théoriques avec les données expérimentales nous permet d'évaluer la validité de l'orthogonalisation dans les calculs de la section efficace totale. Pour des énergies élevées la première approximation de Born a toujours montré sa capacité de générer assez bien les sections efficace différentielles et totale. Pour des énergies faibles cette approximation a échoué ce qui nous oblige à recourir aux approximations d'ordres supérieurs comme le modèle BBK, pour lequel le temps de calcul est long en particulier pour des cibles moléculaires. L'approximation OCW s'est avérée capable de reproduire de façon satisfaisante l'allure des sections efficaces différentielles et totale pour un temps de traitement proche de celui qui est nécessaire au modèle CW [79].

Pour les sections efficaces différentielles (SETD, SEDD et SESD) le modèle OCW s'est avéré complètement inutile. Pour les SETD le modèle détruit complètement les pics de recul qui sont quand mêmes reproduits par le modèle CW et dont les résultats concordent assez bien avec l'expérience dans certains cas. Dans le cas des SEDD et SESD le modèle OCW ne produit pratiquement pas d'effets importants et les résultats restent pratiquement identiques à ceux du modèle CW.

Au terme de ce travail on peut donc conclure que la méthode d'orthogonalisation peut considérablement améliorer les résultats théoriques dans le cas de l'ionisation de cibles atomiques et moléculaires exclusivement dans le cas du calcul de la section efficace totale.

Chapitre IV :
Calcul de la section efficace d'ionisation triplement
différentielle avec le modèle 1DW

Introduction

La section efficace triplement différentielle est un très bon test pour les modèles théoriques. Cette grandeur est sensible à une description adéquate des états du continuum, en particulier de l'électron éjecté. Au voisinage de la cible, ce dernier est soumis simultanément au champ coulombien et à un potentiel de courte portée. Près de la cible, le potentiel de courte portée, qui est toujours négligé dans les calculs dans lequel l'électron éjecté est décrit par une simple onde coulombienne, s'affaiblit et s'annule rapidement au-delà d'une certaine distance. Par contre le champ coulombien affecte constamment le comportement de l'électron éjecté.

Un des problèmes de la description de l'état final réside dans la prise en compte de la répulsion coulombienne entre les électrons sortants (le diffusé et l'éjecté). Plusieurs théories ont été proposées pour résoudre le problème d'ionisation des cibles atomiques et moléculaires en particulier pour le cas des collisions réalisées à basse énergie. Le modèle BBK [31-38] propose une fonction d'onde extrêmement élaborée qui représente une solution exacte du problème à trois corps dans la région asymptotique. Cette fonction est le produit de trois fonctions hypergéométriques confluentes dont l'utilisation donne lieu à de longs calculs numériques.

Divers traitements simplifiés de l'interaction post-collisionnelle sont souvent utilisés pour éviter des temps de calculs longs. On peut citer à titre d'exemple le travail de Dal Cappello et Joulakian [35] qui ont utilisé le facteur de Gamow pour décrire l'interaction entre les deux électrons sortants. Cette méthode permet de réduire de façon considérable les temps de calcul mais détruit la normalisation contenue initialement dans la fonction BBK.

La plupart des méthodes élaborées utilisent l'approximation de Born. Madison a été l'un des premiers à utiliser la première approximation de Born avec des ondes distordues pour décrire l'électron incident (et le diffusé) afin de prendre en compte la distorsion induite par l'interaction entre le projectile et la cible. Dans les calculs d'ionisation simples de l'hydrogène atomique, l'électron éjecté est traité dans un champ induit par l'ion H^+ et l'électron diffusé dans le champ statique de la cible initiale. Le modèle hybride DWB1-R qui a été introduit par Bartschat et al [58] décrit l'interaction électron éjecté-ion résiduel par un formalisme de matrice-R au premier ordre. Le modèle DWB2-RM est une approximation au deuxième ordre proposée par Reid [59-60]. Une autre version du modèle DWBA a été décrite par Kheifets et al. [61]. Cette version, notée DWBA-G, est le modèle DWBA corrigé par l'introduction du facteur de Gamow pour tenir compte de la répulsion.

En 1992 Zhang et al. [62] ont montré que les sections efficaces obtenues par le modèle DWBA sont en bon accord avec les expériences (< 1 keV) de Bickert et al [63] et de Lohmann et al [64].

Les premiers travaux sur l'ionisation simple avec la détection en coïncidence des deux électrons sortants (le diffusé et l'éjecté) ont concerné les orbitales interne K et L d'un film de carbone réalisés par Camilloni et al. [65]. Les études se sont limitées ensuite aux orbitales externes et intermédiaires les moins liées d'atomes et de molécules comme l'orbitale 4d du Xénon [66] par exemple. L'étude de l'ionisation des orbitales internes est plus complexe à cause de divers mécanismes qui peuvent contribuer au processus et dont il faut tenir compte. On peut citer les expériences de Lahmam-Bennani et al. consacrées à l'étude de la couche 2p de l'argon [64] et [16].

Dans ce chapitre, nous nous proposons d'étudier la simple ionisation de quelques cibles atomiques (Ar et Ne), et moléculaires (H_2O , NH_3 et CH_4). On développera un modèle 1DW, dans lequel l'électron éjecté est décrit par une onde distordue alors que le projectile est représenté par une onde plane. Une onde distordue ou dite « déformée » est utilisée pour décrire l'électron éjecté issu de la cible ionisée. La section efficace triplement différentielle est calculée dans une géométrie asymétrique coplanaire et avec des conditions cinématiques précises. Ensuite elle est comparée aux calculs avec le modèle CW et les données mesurées.

IV.1. Modèle de Born avec une onde distordue 1DW

Dans l'approximation de Born 3DW, trois ondes distordues sont utilisées pour décrire les électrons : incident, diffusé et éjecté. L'onde distordue de l'électron incident est solution de l'équation de Schrödinger incluant un potentiel de la cible, tandis que celles des électrons diffusé et éjecté sont les solutions de l'équation de Schrödinger avec un potentiel de l'ion résiduel. Ce modèle nécessite des moyens de calculs très importants et ne prend en considération qu'une seule fois l'interaction du projectile avec la cible ce qui est insuffisant pour des énergies incidentes faibles (< 200 eV). L'effet du potentiel de distorsion est négligeable pour une énergie d'incidence très grande. Dal Cappello et al. [29] ont démontré que les ondes distordues des électrons incidents et diffusés peuvent souvent être remplacées par des ondes planes.

Il existe un potentiel de courte portée et un potentiel coulombien dans la voie initiale et finale. Ce potentiel représente une interaction de courte portée entre chaque électron entrant ou sortant de la cible dans son état initial et final et s'écrit comme suit [28] :

$$U_{cible}(\vec{r}_0) = \frac{-z}{r_0} + \langle \psi_{cible} | \sum_{i=1}^N \frac{1}{r_{0i}} | \psi_{cible} \rangle \quad (IV.1)$$

$$U_{ion}(\vec{r}_0) = \frac{-z}{r_0} + \langle \psi_{ion} | \sum_{i=1}^N \frac{1}{r_{0i}} | \psi_{ion} \rangle \quad (IV.2)$$

L'étude du comportement asymptotique de la fonction d'onde solution de l'équation de Schrödinger permet la détermination du déphasage due au potentiel de courte portée. Le déphasage est la somme du déphasage Coulombien et du déphasage de courte portée.

Dans ce travail, les cibles atomiques ou moléculaires sont dans leur état initial. Le projectile est décrit par une onde plane alors que l'électron éjecté est représenté par une onde distordue. Habituellement l'onde distordue est décrite par la formule suivante:

$$\varphi_d(\vec{k}_e, \vec{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{\frac{3}{2}}} \sum_{l,m} i^l e^{-i\sigma_l} \frac{F_l(k_e, r)}{k_e r} Y_{l,m}^*(\hat{k}_e) Y_{l,m}(\hat{r}) \quad (IV.3)$$

La distorsion due au potentiel coulombien est traduite par le déphasage σ_l . $F_l(k_e, r)$ est la fonction radiale distordue et se calcule numériquement en résolvant une équation différentielle du second ordre.

Nous proposons une autre méthode qui nous permet de tenir compte des distorsions de l'électron éjecté sans utiliser la forme habituelle (IV.3). Cette nouvelle méthode est en fait basée sur le modèle de l'onde coulombienne où l'électron est soumis à l'attraction coulombienne de l'ion résiduel et représente mathématiquement la solution d'un atome hydrogénoïde de charge Z dans le continuum. Cette solution s'écrit :

$$\varphi_C(\vec{k}_e, \vec{r}) = (2\pi)^{\frac{-3}{2}} e^{i\vec{k}_e \cdot \vec{r}} e^{\frac{Z\pi}{2k_e}} \Gamma\left(1 + \frac{Z}{k_e}\right) {}_1F_1\left(\frac{-iZ}{k_e}, 1, -i(k_e r + \vec{k}_e \cdot \vec{r})\right) \quad (IV.4)$$

Avec : \vec{k}_e qui est la quantité de mouvement de l'électron éjecté. $\Gamma\left(1+\frac{Z}{k_e}\right)$ est la fonction gamma d'Euler complexe, $F_1\left(\frac{-iZ}{k_e}, 1, -i(k_e r + \vec{k}_e \cdot \vec{r})\right)$ est la fonction hypergéométrique confluyente, $\frac{Z}{k_e}$ représente le paramètre de Sommerfeld qui est le rapport entre la charge effective ou nette de la cible vue par l'électron éjecté et son vecteur. Dans le cas de la simple ionisation la charge effective est usuellement $Z=1$.

IV.1.1. Potentiel moyen et Charge effective $Z(r)$

Dans notre modèle on prend une charge variable $Z(r)$ dans la forme (IV.4). La charge variable $Z(r)$ vue par l'électron éjecté dans le modèle 1DW est telle que $Z(r)=Z$ à $r_1=0$ et $Z(r)=1$ à $r \rightarrow \infty$. Z est la charge au centre de l'ion résiduel.

On utilise le potentiel moyenné de la cible $V_j(\vec{r}_1)$ vu par l'électron éjecté (appelé également potentiel de Hartree) pour calculer la charge $Z(r)$. Pour les cibles atomiques il s'écrit :

$$V_j(\vec{r}_1) = -\frac{Z}{r_1} + \sum_{i=1}^{N_0} N_{ij} \int \frac{|\varphi_i(\vec{r})|^2}{|\vec{r} - \vec{r}_1|} d\vec{r} = -\frac{Z(r_1)}{r_1} \quad (IV.5)$$

Où : N_0 est le nombre d'orbitales atomiques de cible, N_{ij} le nombre d'électrons dans la i ème orbitale, Z la charge du noyau et $\varphi_i(\vec{r})$ la fonction d'onde représentant l'électron lié et qui est représentée par une combinaison linéaire de fonctions de Slater comme :

$$\varphi_i(\vec{r}) = \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik} \varphi_{n_{ik} l_{ik} m_{ik}}^{\mathcal{E}_{ik}}(\vec{r}) \quad (IV.6)$$

Dans le cas de cibles moléculaires le potentiel moléculaire $V_j(\vec{r}_1, \vec{R}_j)$ est donné par:

$$V_j(\vec{r}_1, \vec{R}_j) = -\sum_{N=1}^M \frac{Z_N}{|\vec{r}_1 - \vec{R}_N|} + \sum_{i=1}^{N_0} N_{ij} \int \frac{|\varphi_i(\vec{r})|^2}{|\vec{r} - \vec{r}_1|} d\vec{r} \quad (IV.7)$$

Où M est le nombre de noyaux, Z_N leurs charges. La fonction d'onde $\varphi_i(\vec{r})$ décrit les orbitales moléculaires monocentriques.

En réalité le potentiel moléculaire $V_j(\vec{r}_1, \vec{R}_i)$ donné par (IV.7) est anisotrope et nécessite un traitement particulier. Dans ce travail on utilise un potentiel radial moyenné $U_j(r_1)$ en effectuant une moyenne angulaire sur $V_j(\vec{r}_1, \vec{R}_j)$ telle que:

$$U_j(r_1) = \frac{1}{4\pi} \int V_j(\vec{r}_1, \vec{R}_j) d\Omega = -\frac{Z(r_1)}{r_1} \quad (\text{IV.8})$$

L'avantage de la méthode utilisant la charge variable $Z(r)$ est d'utiliser des expressions analytiques dans le cadre du modèle 1CW de l'onde coulombienne, aussi bien dans le cas atomique que moléculaire, ce qui garantit une précieuse économie de temps de calcul. On note que si on prend une constante $Z = 1$ vue par l'électron éjecté notre modèle 1DW se réduit bien sûr au modèle connu 1CW de l'onde Coulombienne. La différence entre les deux modèles 1DW et 1CW se manifeste uniquement pour de faibles valeurs de r et donne lieu à un calcul partiellement numérique.

A titre d'exemple dans le cas de l'ionisation de la couche 2s du néon le potentiel moyenné s'écrit :

$$U_{2s}(r_1) = \frac{1}{4\pi} \int \left(-\frac{10}{r_1} + 2 \int \frac{|\varphi_{1s}|^2}{|\vec{r} - \vec{r}_1|} d\vec{r} + \int \frac{|\varphi_{2s}|^2}{|\vec{r} - \vec{r}_1|} d\vec{r} + 6 \int \frac{|\varphi_{2p}|^2}{|\vec{r} - \vec{r}_1|} d\vec{r} \right) d\Omega_1 = -\frac{Z_{2s}(r_1)}{r_1} \quad (\text{IV.9})$$

Le calcul analytique de cette expression est réalisé en utilisant le développement multipolaire:

$$\frac{1}{r_{12}} = \sum_{l,m} \frac{4\pi}{2l+1} \frac{r_1^l}{r_2^{l+1}} Y_{l,m}^*(\Omega_1) Y_{l,m}(\Omega_2) \quad (\text{IV.10})$$

L'atome d'hélium dans son état fondamental représente la plus simple illustration pour le calcul du potentiel $U(r_1)$ qui prend dans ce cas la forme:

$$U(r_1) = \frac{1}{4\Omega} \int \left(-\frac{2}{r_1} + \int \frac{|\varphi_{1s}|^2}{|\vec{r} - \vec{r}_1|} d\vec{r} \right) d\Omega_1 = -\frac{Z(r_1)}{r_1} \quad (\text{IV.11})$$

En utilisant la fonction de Hyllerras pour décrire l'état lié initial:

$$\varphi_{1s}(\vec{r}_1) = \varphi_{Hy}(\vec{r}_1) = \frac{\alpha^{3/2}}{\sqrt{\pi}} e^{-\alpha r_1} \quad (\text{IV.12})$$

avec $\alpha = \frac{27}{16}$

On obtient alors l'expression suivante de $Z(r)$: $Z(r) = 1 + (1 + \alpha r) e^{-2\alpha r}$

On peut voir sur les figures (IV.1) et (IV.2) la variation de $Z(r)$ dans le cas d'ionisation de l'argon (2p) et (3p) ainsi que du méthane (orbitales moléculaires $2a_1$ et $1t_{2z}$). Comme on pouvait le deviner on voit que la charge $Z(r)$ décroît de $Z=18$ vers la valeur asymptotique $Z=1$. Sur la figure 2, $Z(r)$ est tracée dans le cas des orbitales moléculaires $1t_{2z}$ et $2a_1$ de la molécule CH_4 . Il faut rappeler qu'on utilise une base monocentrique pour décrire les cibles moléculaires. L'électron éjecté voit donc la charge Z au centre du système (dans ce cas la charge du carbone $Z=6$). En plus on voit un certain point anguleux (un cusp) au voisinage de la longueur de liaison ($r = R = 1.98 \text{ u.a.}$), qui représente une propriété claire d'un potentiel moléculaire.

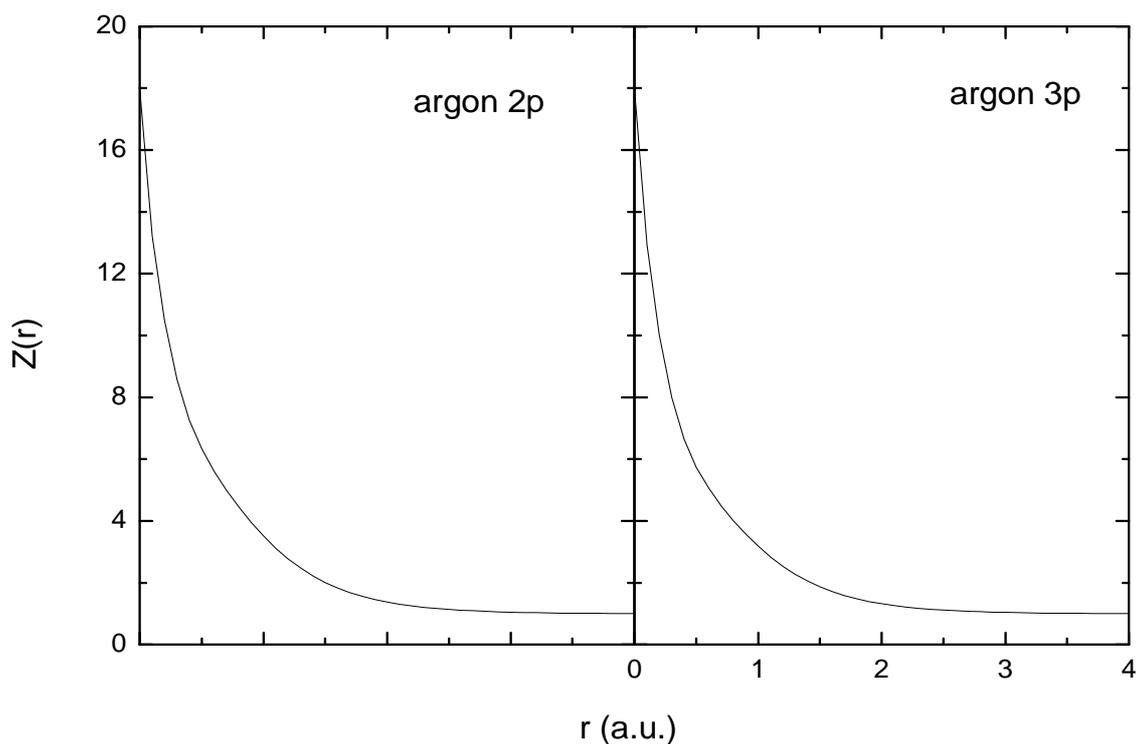


Figure IV.1 : variation de la charge effective $Z(r)$ en fonction de r dans le cas d'ionisation des orbitales atomiques 2p et 3p de l'argon.

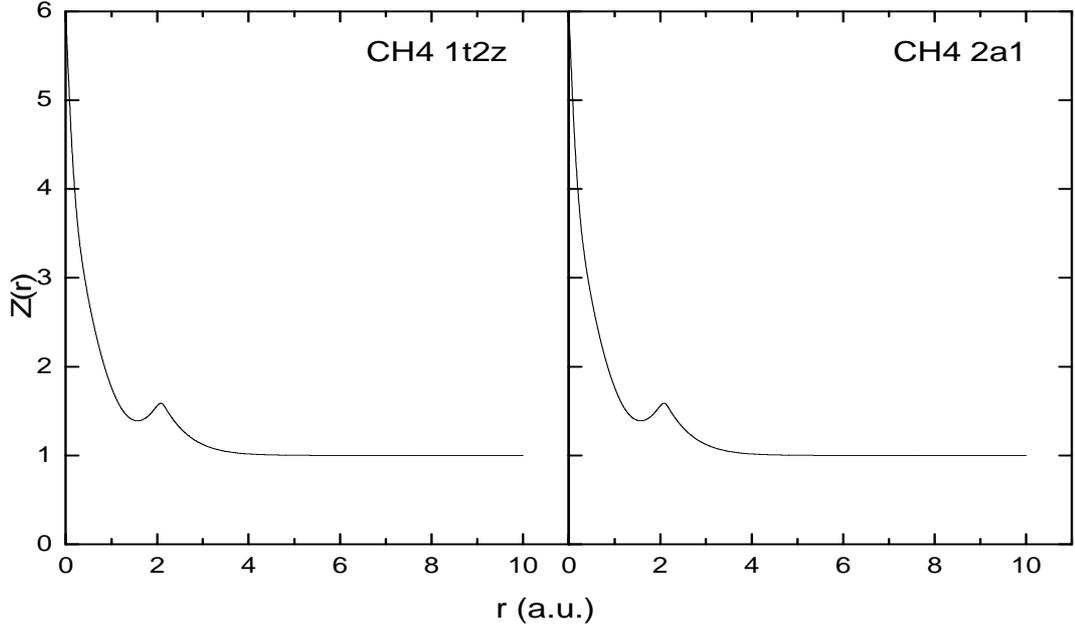


Figure IV.2 : variation de $Z(r)$ en fonction de r dans le cas d'ionisation des orbitales moléculaires $2a_1$ et $1t_{2z}$ du méthane.

IV.2. Conditions cinématiques et géométriques de la collision (e,2e)

Après la collision ionisante, deux électrons se trouvent dans le continuum. Nous nous limiterons au cas d'une géométrie asymétrique coplanaire : l'impulsion de l'électron incident et celles des deux électrons de l'état final sont dans le même plan. En plus l'électron diffusé est assez rapide par rapport à l'éjecté permettant de négliger les effets d'échange entre les deux électrons. L'électron diffusé est représenté par une onde plane, et l'électron éjecté (dont l'énergie est bien plus faible que celle de l'incident) est représenté par une onde distordue.

Dans cette approximation, l'expression de l'amplitude de diffusion dans le modèle du cœur gelé en considérant un seul électron actif (l'électron de la cible qui sera éjecté après la collision) s'écrit comme suit :

$$T_{if} = \frac{2}{(2\pi)^2 K^2} \left\{ \langle \varphi_{dw}(\vec{r}) | e^{i\vec{K}\cdot\vec{r}} | \varphi_i(\vec{r}) \rangle - \langle \varphi_{dw}(\vec{r}) | \varphi_i(\vec{r}) \rangle \right\} \quad (\text{IV.13})$$

Le calcul de l'amplitude de diffusion des cibles moléculaires nécessite des intégrations sur les angles d'Euler, qui peuvent être numériques ou analytiques.

IV.3. Ionisation simple des cibles atomiques Ne et Ar

Une attention particulière a été consacrée à l'étude du processus (e,2e) dans les cas de gaz rares tels que Ne et Ar (figure IV.3). En particulier l'atome d'argon semble poser le plus de problèmes aux théoriciens. Plusieurs travaux ont été réalisés pour l'étude de la simple ionisation en couche interne 2p d'une cible d'argon. En 1984 l'équipe d'Orsay [67] a réalisé des expériences avec une énergie incidente de 8 keV, et une énergie d'éjection de 150 eV et pour les angles de diffusion de 1° , 1.25° , 2° , 4° et 7° . Les calculs théoriques au premier ordre de Grum-Grzhimailo (DWBA) [68] et Brothers et al. (1CW) [69] ont montré un certain désaccord avec ces mesures expérimentales, ce qui nécessite une étude plus profonde de l'ionisation des couches internes des cibles.

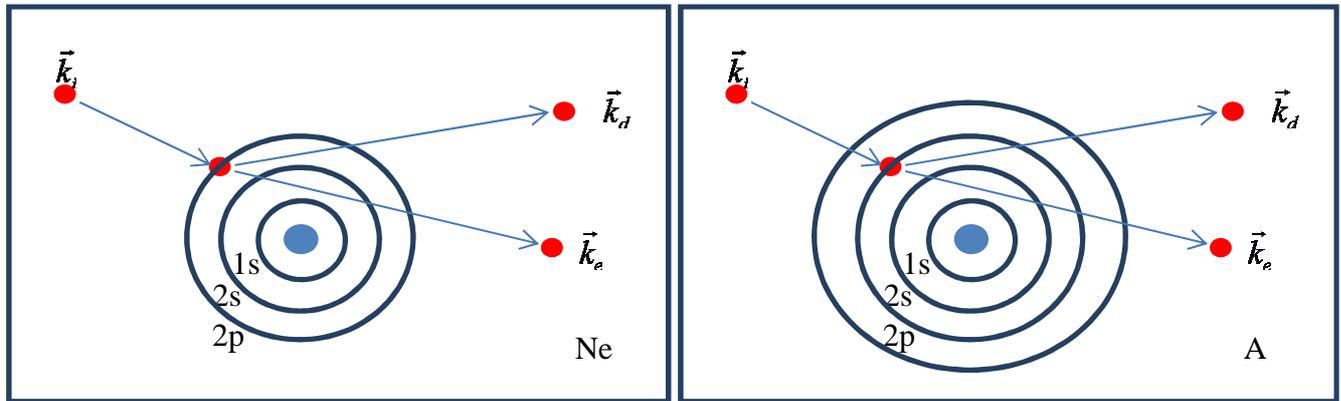


Figure IV.3 : ionisation simple de l'orbitale 2p du néon et de l'argon.

En 1986 de nouveaux résultats ont été obtenus par Stefani G et al. [70] pour la simple ionisation de la couche 2p d'Ar avec une énergie incidente de 8 keV, une énergie d'éjection plus faible (7 eV), et avec un faible transfert d'impulsion à la cible. Ils ont également montré un désaccord avec les calculs du modèle PWBA. En 1991, Bickert et al [63] ont mesuré la section efficace triplement différentielle d'ionisation de la couche interne 2p de l'Ar à des énergies incidentes plus faibles (2,5keV) et un plus grand transfert d'impulsion à la cible. Un désaccord est encore trouvé en comparant avec le modèle théorique CWBA1. En 1992, Zhang et al. [62] ont montré que les sections efficaces mesurées [67] peuvent être reproduites par le modèle DWBA. En 1997, de nouvelles mesures ont été faites en Australie par le groupe de Lohmann [71], à une énergie incidente de 1,2 keV et différentes énergies d'électron éjecté variant de 120 eV et 50 eV. En 1999 les résultats mesurés ont été confirmés par l'équipe d'Orsay [72] à une énergie incidente de 5,7 keV et une énergie d'éjection de 10 eV,

L'émission Auger a été mise en évidence dans l'ionisation de la couche interne 2p de l'Ar. Les modèles PWBA et DWBA ont échoué dans l'interprétation de ces derniers résultats.

Par contre, dans les conditions de l'expérience [72] réalisé avec un transfert de quantité de mouvement plus grand que celui de l'expérience [71], le modèle DWBA reproduit bien la forme des distributions angulaires expérimentales, et donne un rapport d'intensité recul sur le binaire correct. L'inconvénient du modèle DWBA est d'être une l'approximation au premier ordre ce qui implique la prise en compte d'une seule interaction de l'électron et la cible.

Le néon a également fait l'objet de diverses études théoriques et expérimentales où les couches de valence (2s et 2p) et de la couche interne (1s) ont été considérées.

IV.4. Ionisation des cibles moléculaires

Le modèle **M3DW-OAMO** (Molecular 3-body Distorted Wave approximation) est le modèle le plus élaboré appliqué sur des molécules [73-74] actuellement. Les trois électrons (incident, diffusé et éjecté) sont décrits par des ondes distordues. L'interaction post collisionnelle dans l'état final entre les deux électrons du continuum est aussi prise en compte soit avec la forme habituelle de BBK soit avec le facteur de Ward-Macek. Le problème qui se pose pour les molécules est la moyenne angulaire qu'il faut effectuer puisque les molécules sont dans un état gazeux dans les expériences. Dans notre modèle nous pouvons effectuer la moyenne angulaire sur les angles d'Euler de façon analytique en utilisant les propriétés des matrices de rotation de Wigner [ANNEXE A]. Comme applications nous présentons des calculs théoriques basés sur le modèle 1CW et 1DW dans le cas des trois molécules H₂O, NH₃ et CH₄ qui constituent des cibles privilégiées du développement monocentrique de la fonction d'onde [24].

IV.5. Résultats et discussion

Nous pouvons maintenant comparer nos résultats théoriques à l'aide des modèles 1CW et 1DW dans le cas de cibles atomiques et moléculaires dans des conditions expérimentales réalisées dans diverses situations énergétiques et angulaires. Toutes ces expériences ont été effectuées en géométrie asymétrique coplanaire et la SETD est tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e . Nos résultats sont représentés dans les figures (IV.2) à (IV.17). Nous considérons dans un premier cas celui de la couche interne du néon (1s). Cette couche est caractérisée par une très grande énergie d'ionisation d'environ 870 eV et nécessite donc une attention particulière. La figure (IV.4) représente les variations de la TDCS en fonction de l'angle d'éjection pour une énergie incidente $E_i=2700$ eV et une énergie d'éjection $E_e=330$ eV. Les données expérimentales non absolues [61] ont été normalisées au modèle 1DW. On remarque que les deux pics sont reproduits et le modèle 1CW semble mieux concorder avec l'expérience. Mais cela est trompeur car en réalité pour cette couche (1s) du cœur un modèle 3DW est le mieux approprié dans ce cas.

La figure (IV.5) correspond à l'ionisation de la couche Ne (2s) à une énergie d'impact d'environ 8 keV, une énergie d'éjection de 200 eV et un angle de diffusion $\theta_s = 9.44^\circ$, il faut indiquer que cette fois les mesures sont absolues.

On voit dans ce cas que les deux modèles donnent approximativement la même description du processus, en gros les résultats ne sont pas en très bon accord avec l'expérience, ce qui signifie que d'autres effets (comme l'interaction post-collisionnelle) doivent être pris en compte. Une autre situation expérimentale est considérée pour le Ne (2s) avec la courbe (IV.6) où l'expérience est réalisée à une plus basse énergie de diffusion de 500 eV, une énergie d'éjection de 74 eV et un angle de diffusion $\theta_s = 6^\circ$ [61]. Une comparaison entre les deux modèles montre également dans ce cas que la différence entre les deux modèles n'est pas importante.

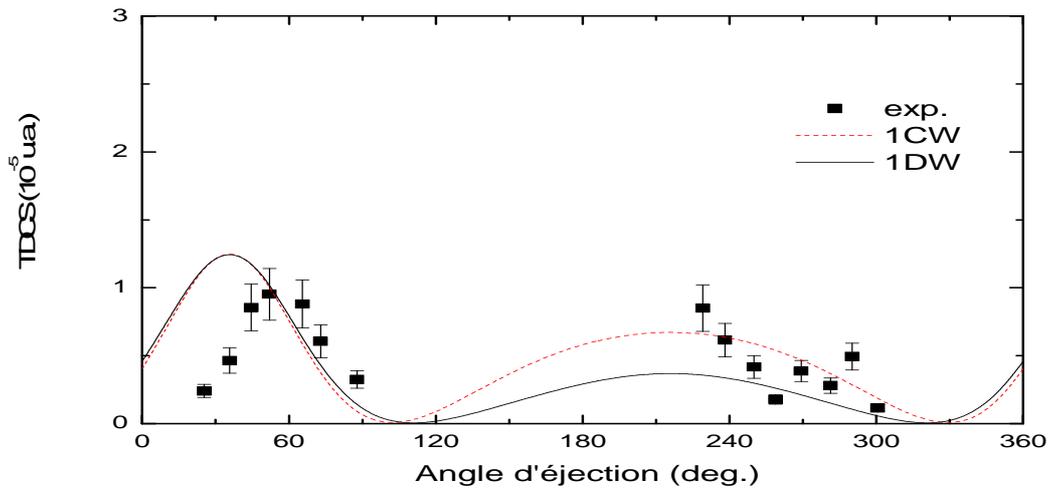


Figure IV.4 : Variation de la SETD de l'ionisation de l'orbitale $1s$ du Néon en fonction de l'angle d'éjection θ_e avec des énergies d'impact et d'éjection fixées à $E_i = 2700$ eV et $E_e = 330$ eV respectivement, l'angle de diffusion étant $\theta_s = 15.9^\circ$. Les courbes (—) et (--) représentent nos résultats dans le cas des modèles 1DW et 1CW respectivement et sont comparées aux résultats expérimentaux [61].

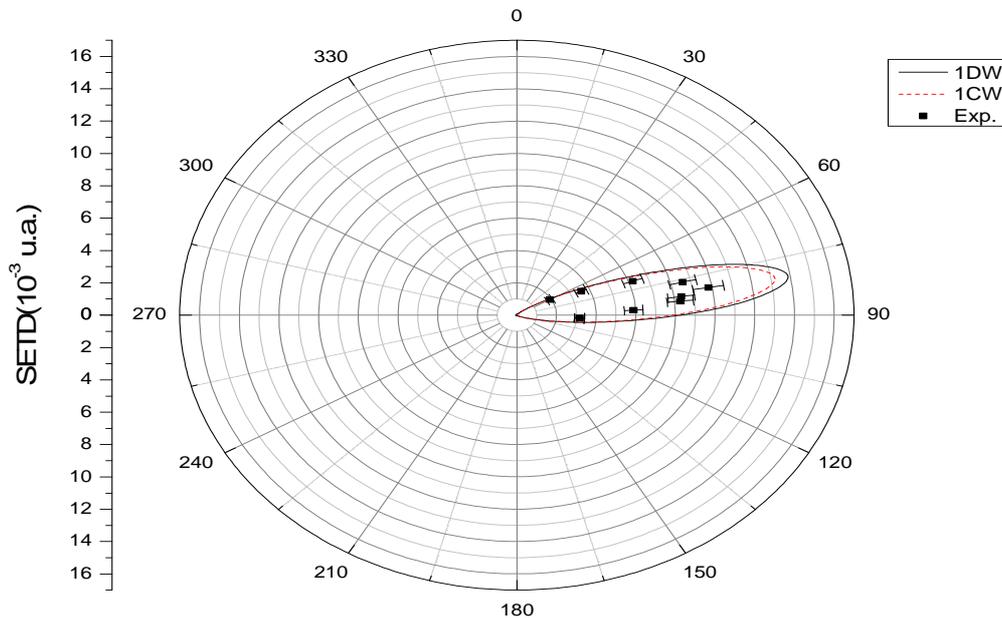


Figure IV.5 : distribution polaire de la SETD d'ionisation de l'orbitale $2s$ du Néon en fonction de l'angle d'éjection θ_e avec des énergies d'impact et d'éjection fixées à $E_i = 8224.5$ eV et $E_e = 200$ eV respectivement, l'angle de diffusion étant $\theta_s = 9.4^\circ$. Les courbes (—) et (--) représentent nos résultats dans le cas des modèles 1DW et 1CW respectivement et sont comparées aux résultats expérimentaux [67].

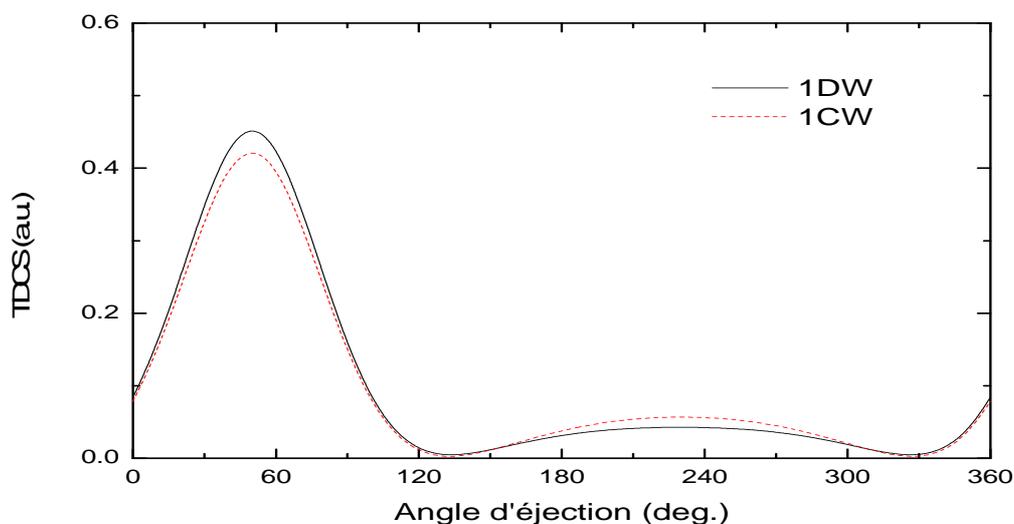


Figure IV.6 : Variation de la SETD de l'ionisation de Ne (2s) en fonction de l'angle d'éjection θ_e avec des énergies de diffusion et d'éjection fixées à $E_i = 500$ eV et $E_e = 37$ eV respectivement, l'angle de diffusion étant $\theta_s = 6^\circ$. Les courbes (—) et (--) représentent nos résultats dans le cas des modèles 1DW et 1CW.

Considérons maintenant le cas de la couche de valence externe Ne (2p) dans deux situations expérimentales différentes. La première est réalisée à une énergie de diffusion de 500 eV et deux énergies d'éjections 74 eV et 37 eV et les données expérimentales sont relatives [61]. La deuxième situation correspond à une énergie d'impact d'environ 8 keV et d'éjection 200 eV, mais cette fois les expériences sont absolues. Sur les courbes (IV.7), (IV.8) et (IV.9) on peut voir la SETD du processus dans les deux cas respectivement. Sur les courbes (IV.7) et (IV.8) correspondant au premier cas les résultats sont normalisés au modèle 1DW, il est clairement visible que les modèles 1DW et 1CW fournissent pratiquement la même description du problème mais donnent un assez mauvais accord avec l'expérience ce qui indique que dans cette situation d'autres effets doivent être également introduits.

La deuxième situation expérimentale réalisée est représentée sur la figure (IV.9) à très haute énergie (8 keV). La comparaison est plus intéressante dans ce cas puisque les expériences sont absolues. On voit que les courbes montrent l'existence de deux lobes : binaire et de recul bien visibles. Dans la région de recul les deux modèles décrivent de la même façon le processus tandis que dans la région binaire le modèle 1DW correspond beaucoup mieux à l'expérience, ce qui semble indiquer que les effets de distorsions pour la couche 2p à haute énergie sont importants.

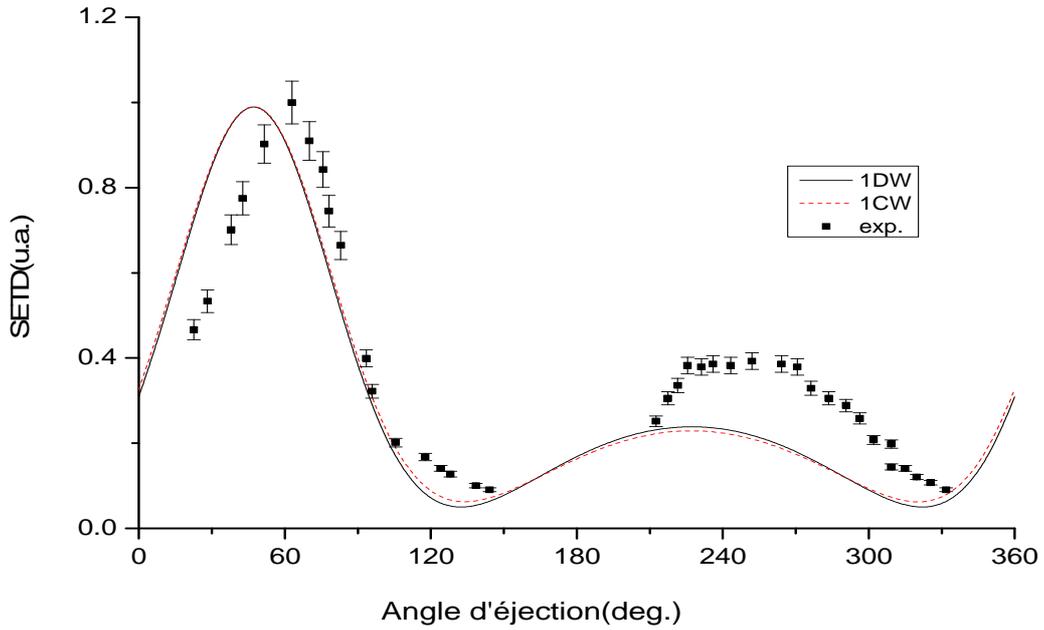


Figure IV.7 : Variation de la SETD d'ionisation de l'orbitale 2p du Néon en fonction de l'angle d'éjection θ_e , avec des énergies de diffusion et d'éjection fixées à $E_i = 500$ eV et $E_e = 74$ eV respectivement, l'angle de diffusion étant $\theta_s = 6^\circ$. Les courbes (—) et (--) représentent nos résultats dans le cas des modèles 1DW et 1CW respectivement et sont comparées aux résultats expérimentaux [61].

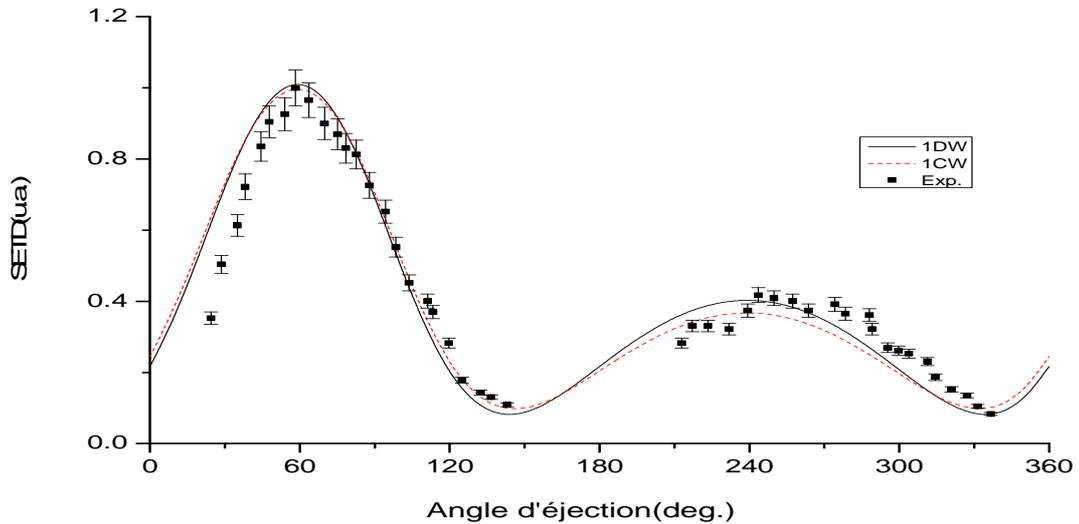


Figure IV.8 : Variation de la SETD d'ionisation de l'orbitale 2p du Néon en fonction de l'angle d'éjection θ_e , avec des énergies de diffusion et d'éjection fixées à $E_i = 500$ eV et $E_e = 37$ eV respectivement, l'angle de diffusion étant $\theta_s = 6^\circ$. Les courbes (—) et (--) représentent nos résultats dans le cas des modèles 1DW et 1CW respectivement et sont comparées aux résultats expérimentaux [61].

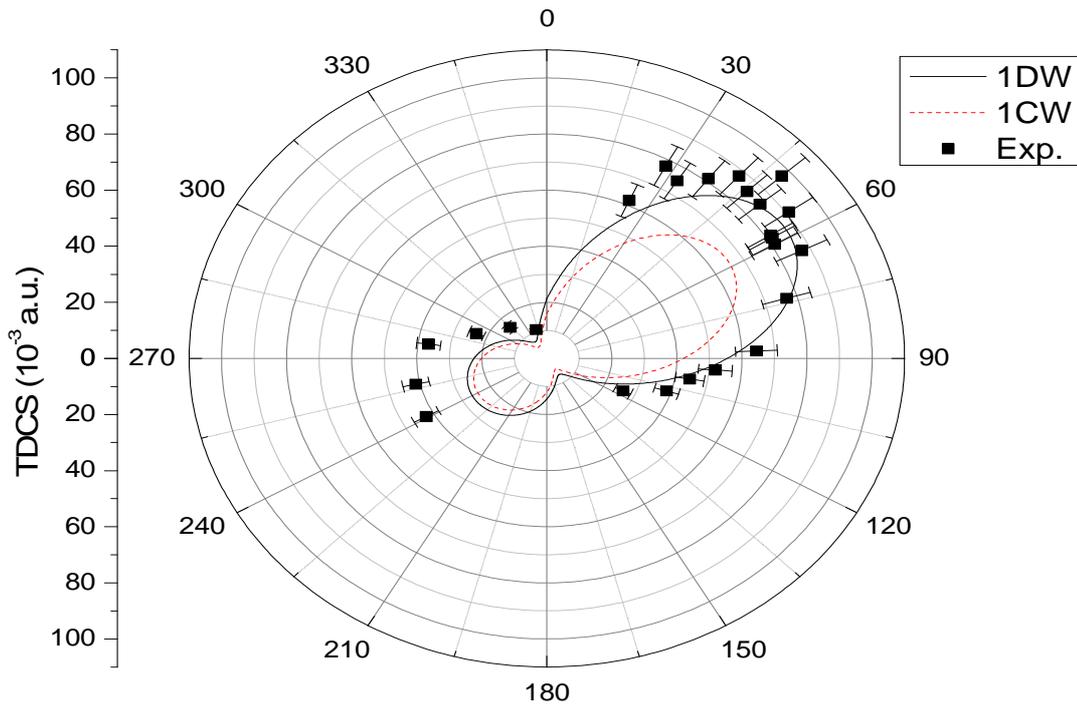


Figure IV.9 : Distribution polaire SETD de l'ionisation de Ne (2p) en fonction de l'angle d'éjection θ_e avec des énergies d'impact et d'éjection fixées à $E_i = 8221.6$ eV et $E_e = 200$ eV respectivement, l'angle de diffusion étant $\theta_s = 9.4^\circ$. Les courbes (—) et (--) représentent nos résultats dans le cas des modèles 1DW et 1CW respectivement et sont comparées aux résultats expérimentaux [61].

On passe maintenant à l'étude de l'atome d'argon qui constitue une cible plus compliquée pour les études théoriques. les résultats sont comparés à ceux mesurés par l'équipe australienne et l'équipe d'Orsay [67], l'ionisation simple de l'orbitale 2p de l'argon a été réalisée pour une énergie d'incidence de 8399 eV et énergie de diffusion de 8000 eV et d'énergie d'éjection de 150 eV, cela est fait pour 1° , 1.25° , 2° , 4° et 7° .

Dans un premier temps l'ionisation de la couche interne 2p à haute énergie est considérée. La figure (IV.10) représente le processus (e,2e) à une énergie d'impact de 8400 eV et une énergie d'éjection de 150 eV et une angle de diffusion de 1° , la collision étant caractérisée par un moment de transfert de 0.73 u.a.

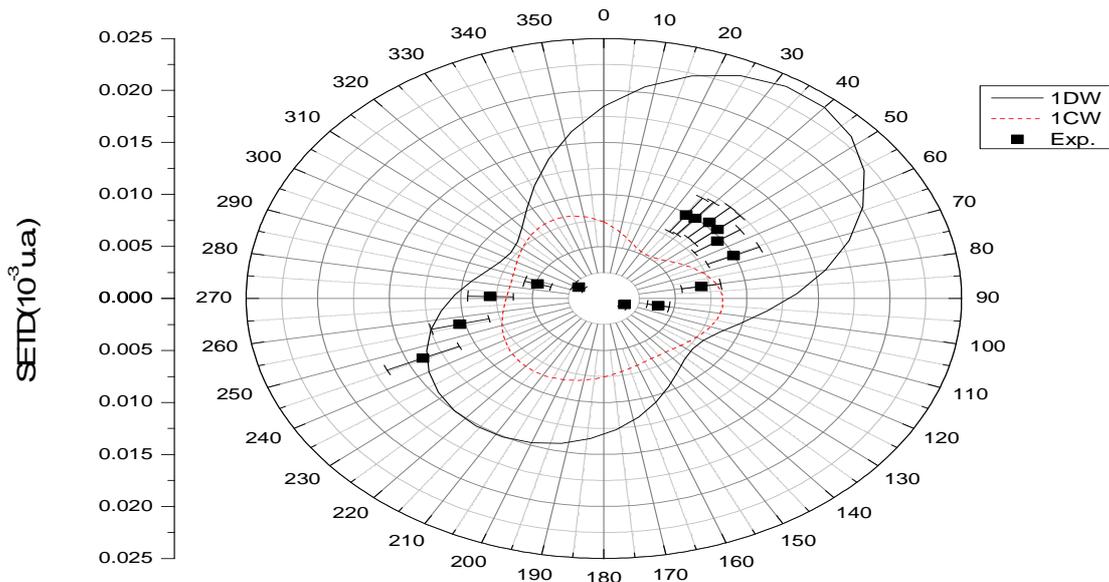


Figure IV.10 : Distribution polaire de la SETD de l'ionisation de Ar (2p) en fonction de l'angle d'éjection θ_e avec des énergies d'impact et d'éjection fixées à $E_i = 8400$ eV et $E_b = 150$ eV respectivement, l'angle de diffusion étant $\theta_s = 1^\circ$. Les courbes (—) et (--) représentent nos résultats dans le cas des modèles 1DW et 1CW respectivement et sont comparées aux résultats expérimentaux [67].

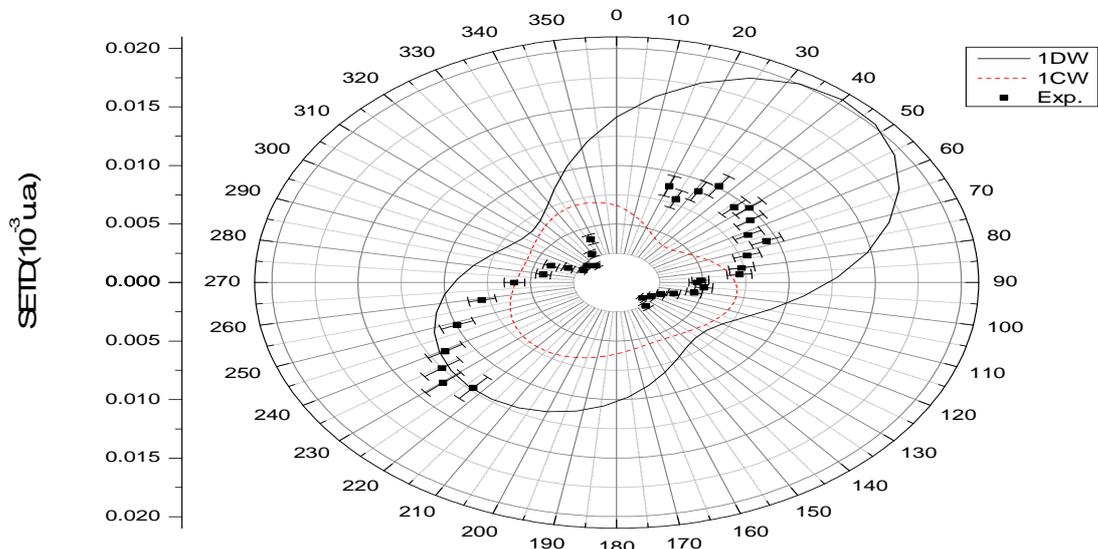


Figure IV.11: Distribution polaire de la SETD de l'ionisation de Ar (2p) en fonction de l'angle d'éjection θ_e avec des énergies d'impact et d'éjection fixées à $E_i = 8400$ eV et $E_b = 150$ eV respectivement, l'angle de diffusion étant $\theta_s = 1.25^\circ$. Les courbes (—) et (--) représentent nos résultats dans le cas des modèles 1DW et 1CW respectivement et sont comparées aux résultats expérimentaux [67]

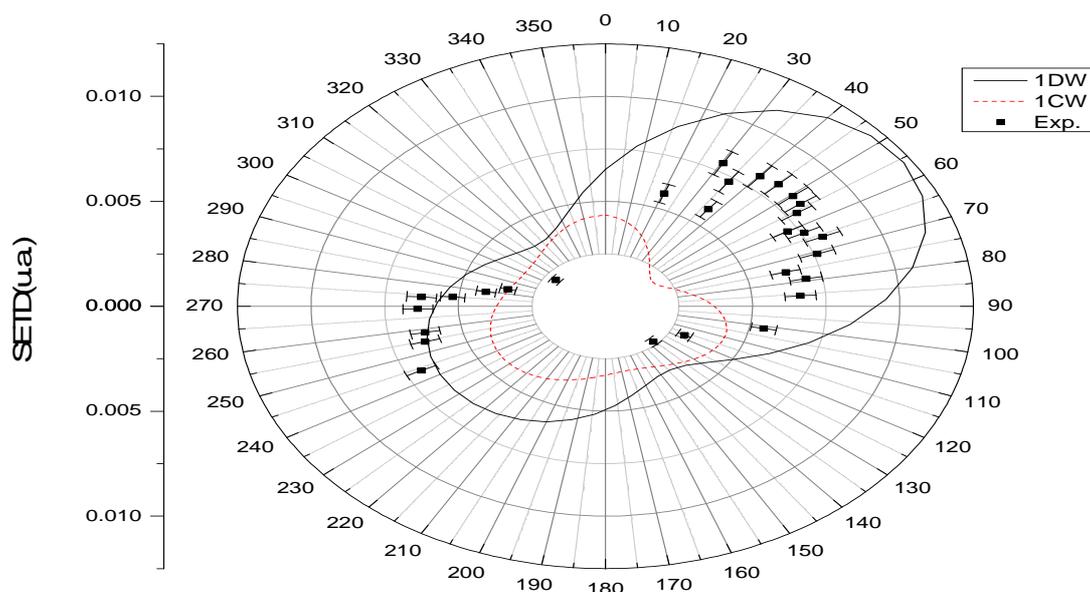


Figure IV.12 : Distribution polaire de la SETD de l'ionisation de Ar (2p) en fonction de l'angle d'éjection θ_e avec des énergies d'impact et d'éjection fixées à $E_i = 8400$ eV et $E_b = 150$ eV respectivement, l'angle de diffusion étant $\theta_s = 2^\circ$. Les courbes (—) et (--) représentent nos résultats dans le cas des modèles 1DW et 1CW respectivement et sont comparées aux résultats expérimentaux [67].

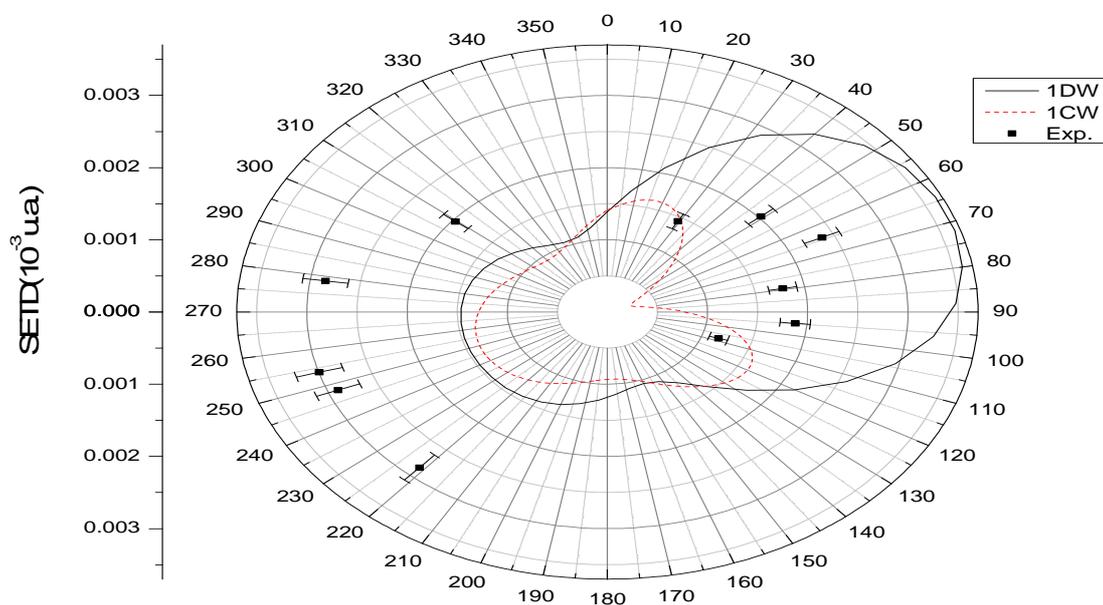


Figure IV.13 : Distribution polaire de la SETD de l'ionisation de Ar (2p) en fonction de l'angle d'éjection θ_e avec des énergies d'impact et d'éjection fixées à $E_i = 8400$ eV et $E_e = 150$ eV respectivement, l'angle de diffusion étant $\theta_s = 4^\circ$. Les courbes (—) et (--) représentent nos résultats dans le cas des modèles 1DW et 1CW respectivement et sont comparées aux résultats expérimentaux [67]

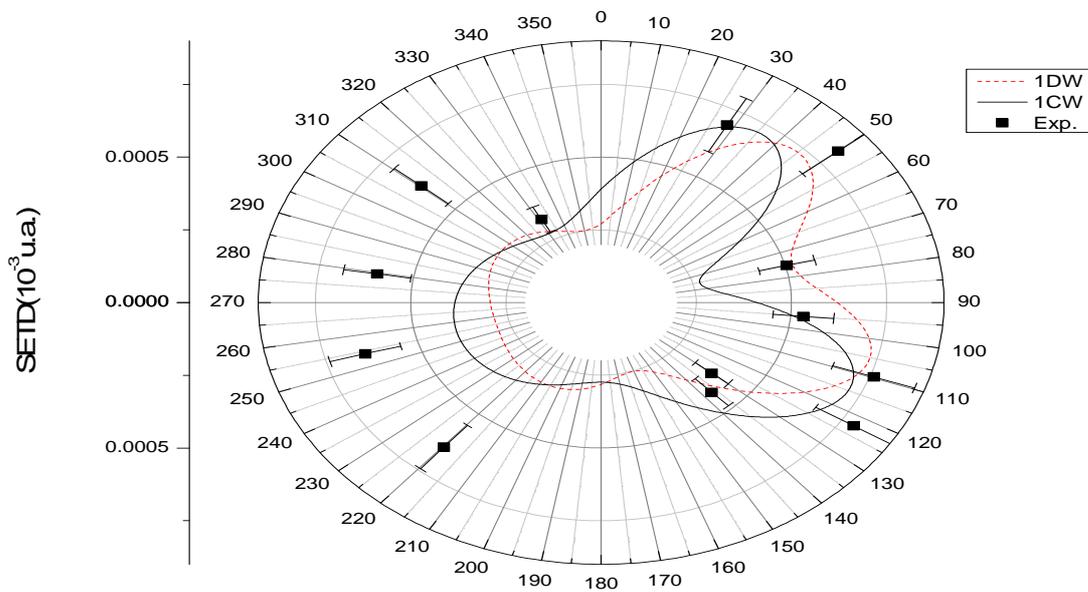


Figure IV.14 : Distribution polaire SETD de l'ionisation de Ar (2p) en fonction de l'angle d'éjection θ_e avec des énergies d'impact et d'éjection fixées à $E_i = 8400$ eV et $E_e = 150$ eV respectivement, l'angle de diffusion étant $\theta_s = 7^\circ$. Les courbes (—) et (--) représentent nos résultats dans le cas des modèles 1DW et 1CW respectivement et sont comparées aux résultats expérimentaux [67].

On voit clairement qu'il existe une différence nette entre les deux modèles. Dans la région de recul le modèle 1DW décrit bien l'expérience au contraire du modèle 1CW. Dans la région binaire les deux modèles ne sont pas en mesure de reproduire les points expérimentaux. Le modèle 1CW sous-estime l'expérience tandis que le modèle 1DW la surestime. On peut donc conclure que les distorsions jouent un rôle non négligeable dans le cas de la couche 2p de l'argon. Il faut noter que de très bons résultats concernant cette orbitale ont été obtenus récemment par Chinoune et al. [75] où les effets post-collisionnels ont été pris en considération en plus de la distorsion de l'électron éjecté.

On s'intéresse à présent à la couche externe Ar (3p). Les résultats théoriques sont représentés par les figures (IV.15) et (IV.16). On peut voir sur la figure (IV.15) la distribution polaire de la SETD en fonction de l'angle d'éjection correspondant aux conditions cinématiques $E_i = 8116$ eV, $E_i = 8400$ eV, $\theta_i = 1^\circ$ et $E_e = 100$ eV correspondant à un moment de transfert d'environ 0.46 u.a.

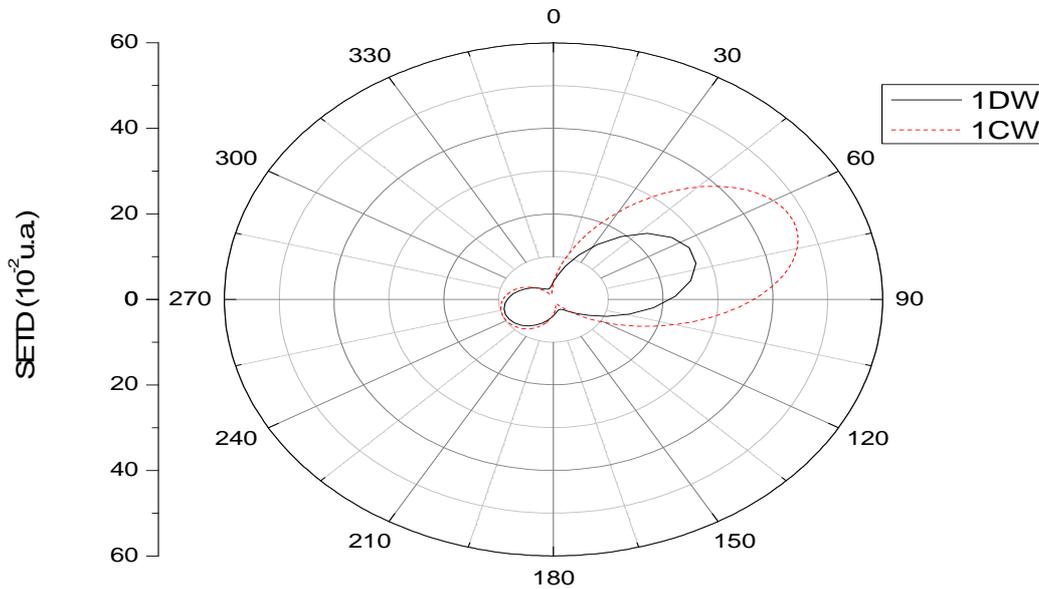


Figure IV.15: Distribution polaire SETD de l'ionisation de Ar (3p) en fonction de l'angle d'éjection θ_e avec des énergies d'impact et d'éjection $E_i = 8116$ eV et $E_e = 100$ eV respectivement, l'angle de diffusion étant $\theta_s = 1^\circ$. Les courbes (—) et (--) représentent nos résultats dans le cas des modèles 1DW et 1CW.

On voit clairement qu'il existe une différence nette entre les deux modèles. Dans la région de recul, les deux modèles donnent la même allure et aucune différence n'est visible. Par contre dans la région binaire la différence est énorme et l'on voit que le modèle 1DW a tendance à diminuer l'amplitude de la SETD par rapport au modèle 1CW.

On considère maintenant une autre situation où le projectile est diffusé avec une énergie $E_s = 500$ eV et un angle $\theta_s = 6^\circ$, l'électron éjecté est quant à lui détecté avec des énergies $E_e = 37$ et 74 eV correspondant à des moments de transferts de 0.72 u.a et 0.84 u.a.

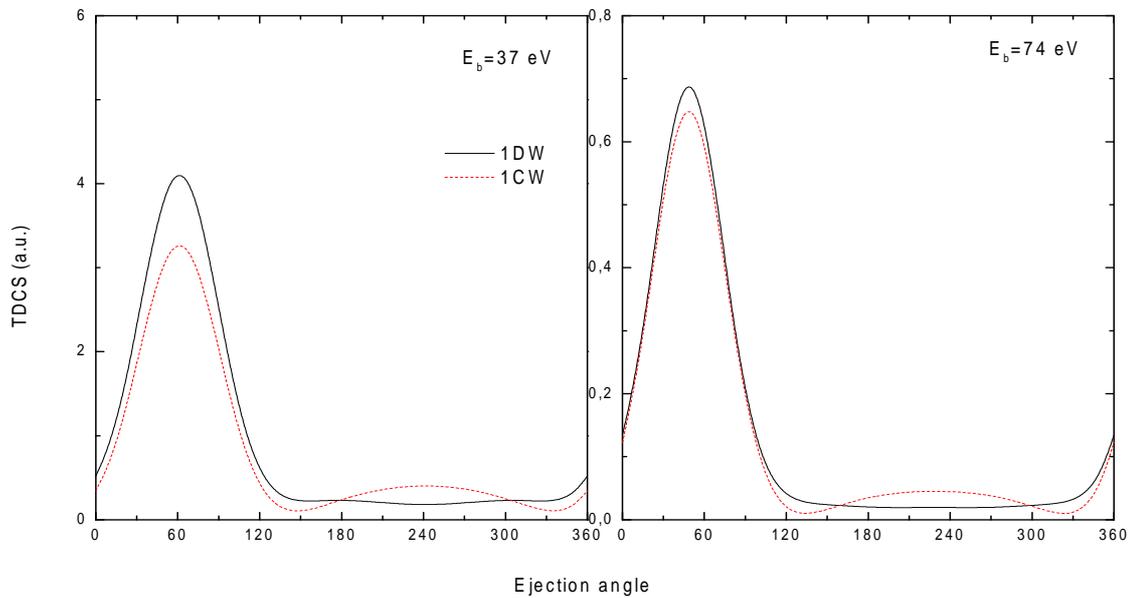


Figure IV.16 : Variation de la SETD de l'ionisation de Ar (3p) en fonction de l'angle d'éjection θ_e avec des énergies de diffusion et d'éjection $E_s = 500$ eV et ($E_e = 37$ et 74 eV) respectivement, l'angle de diffusion étant $\theta_s = 6^\circ$. Les courbes (—) et (- -) représentent nos résultats dans le cas des modèles 1DW.

On remarque que dans ce cas il n'y a pas de différence significative entre les deux modèles. Le modèle 1DW surestime légèrement le modèle 1CW dans la région binaire. Dans la région de recul le modèle ne reproduit pas le pic, le modèle 1CW montre dans les deux cas un pic de recul mais qui reste assez faible en comparant avec l'expérience. En comparant les résultats des figures (IV.15) et (IV.16), il semble que les distorsions de l'électron éjecté dépendent du moment de transfert de la collision et que ces effets sont d'autant plus importants que le moment de transfert est faible.

On passe maintenant à l'application de notre modèle à des cibles moléculaires où l'on considère particulièrement les molécules H_2O , CH_4 et NH_3 . Ces molécules sont de type XH_n pour lesquelles le développement monocentrique des orbitales moléculaires convient parfaitement. On s'intéressera particulièrement aux expériences d'Orsay (France) pour CH_4 et NH_3 réalisées à une énergie de diffusion 500 eV et à celles des Australiens avec des énergies d'impact de 250 eV. Dans tous les cas les mesures expérimentales relatives sont normalisées au modèle 1DW. La figure (IV.17) représente l'ionisation de la molécule H_2O à une énergie

d'impact de 250 eV, un angle de diffusion de 15° et une énergie d'éjection de 10 eV. Ces conditions sont caractérisées par un moment de transfert compris entre 1.11 u.a et 1.13 u.a.

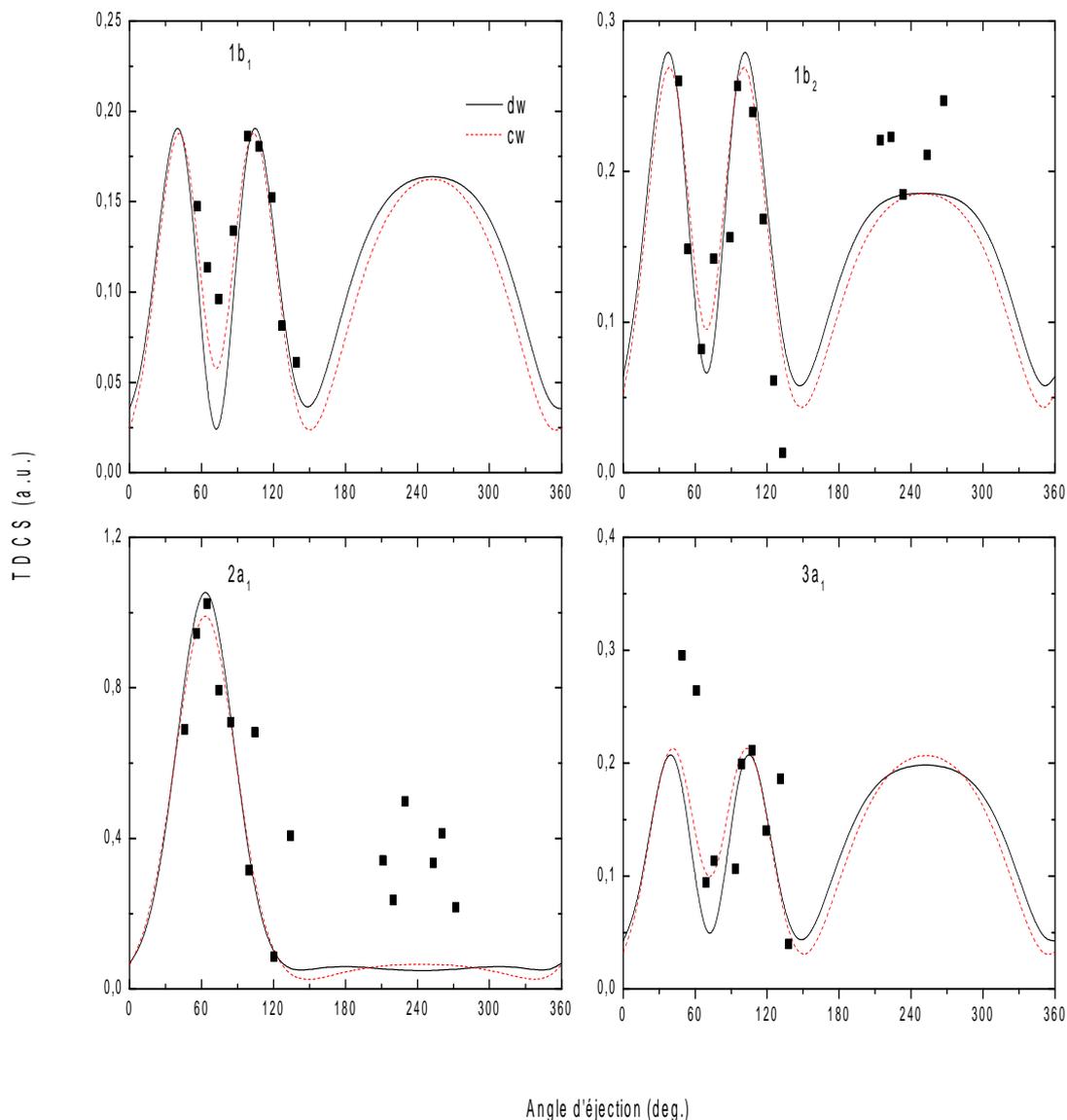


Figure IV.17 : Variation de la SETD de l'ionisation des orbitales moléculaires externes de la molécule H_2O en fonction de l'angle d'éjection θ_e avec des énergies d'impact et d'éjection $E_i = 250$ eV et $E_e = 10$ respectivement, l'angle de diffusion étant $\theta_s = 15^\circ$. Les courbes (—) et (-) représentent nos résultats dans le cas des modèles IDW et ICW respectivement et sont comparées aux résultats expérimentaux [55].

On remarque globalement que les deux modèles décrivent de façon similaire le processus d'ionisation dans le cas des quatre orbitales moléculaires. Les modèles décrivent de façon acceptable l'expérience sauf dans le cas de l'orbitale la plus interne où le pic de recul n'est pas reproduit. Il faut donc un traitement plus poussé pour cette orbitale. On rappelle que notre but est une comparaison entre les modèles 1CW et 1DW. On peut conclure que pour ces conditions cinématiques caractérisées par un transfert assez important la distorsion de l'éjecté ne semble pas avoir d'effets importants sur la SETD.

On considère à présent le cas de la molécule NH_3 où les expériences sont celles réalisées par le groupe d'Orsay [76] dans les conditions cinématiques $E_s = 500 \text{ eV}$, $E_e = 74 \text{ eV}$ $\theta_e = 6^\circ$ caractérisées par un moment de transfert proche de 0.9 u.a. Les résultats sont présentés sur la courbe (IV.18). Il est clair les deux modèles 1CW et 1DW présentent quelques différences en amplitude dans la région du pic binaire en particulier pour l'orbitale $2a_1$ mais les deux formes de la SETD dans cette région sont qualitativement similaires.

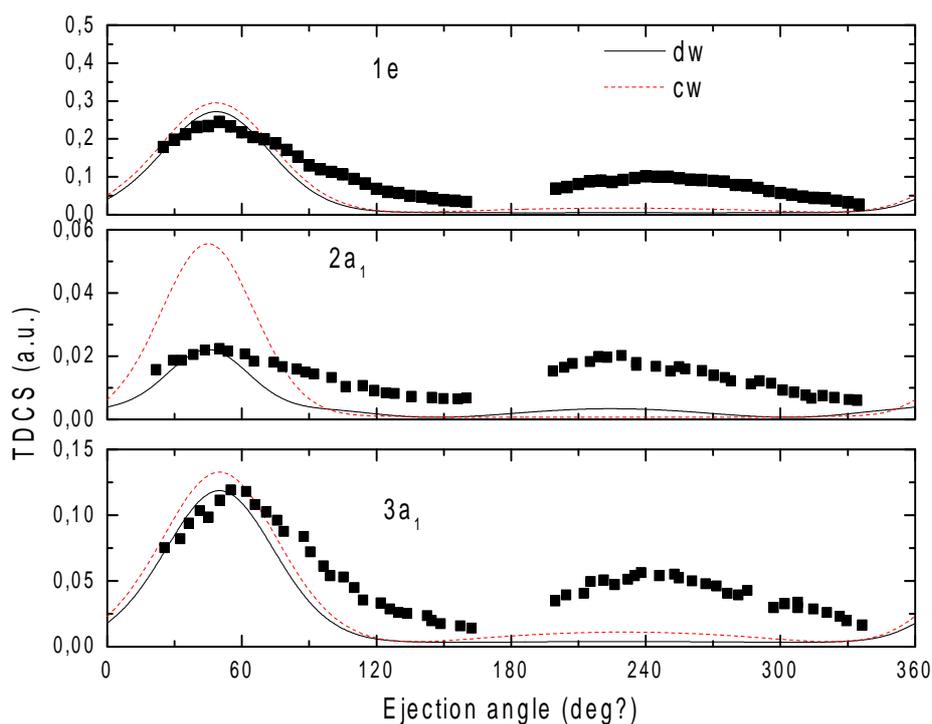


Figure IV.18 : Variation de la SETD de l'ionisation des orbitales moléculaires externes de la molécule NH_3 en fonction de l'angle d'éjection θ_e avec des énergies de diffusion et d'éjection $E_s = 500 \text{ eV}$, $E_e=74 \text{ eV}$, l'angle de diffusion étant $\theta_s = 6^\circ$. Les courbes (—) et (--) représentent nos résultats dans le cas des modèles 1DW et 1CW et sont comparées aux résultats expérimentaux [76].

Par contre les deux modèles ne sont pas du tout capables de reproduire le lobe de recul. Il faut noter que les lobes de recul ont été mieux reproduit [77] à l'aide d'un modèle Born1 en utilisant un potentiel moléculaire réaliste asymétrique au lieu du potentiel moyenné (IV.8) que nous avons utilisé. On note également que la largeur du lobe binaire n'est pas jusqu'à présent expliquée par la théorie.

On passe finalement à l'étude de la molécule CH_4 dans les conditions expérimentales similaires à celles de la molécule NH_3 , le moment de transfert est d'environ 0.8 u.a. Les résultats sur la figure (IV.19), montrent que les modèles 1CW et 1DW présentent qualitativement la même allure. Cependant il y a une différence en amplitude dans la région binaire où l'on constate que les effets de distorsions semblent plus importants dans le cas de l'orbitale $2a_1$. Malheureusement la région du pic binaire n'est pas du tout reproduite par les deux modèles ce qui nécessite un traitement plus complexe pour l'étude de ce processus comme ce fut le cas de la molécule NH_3 .

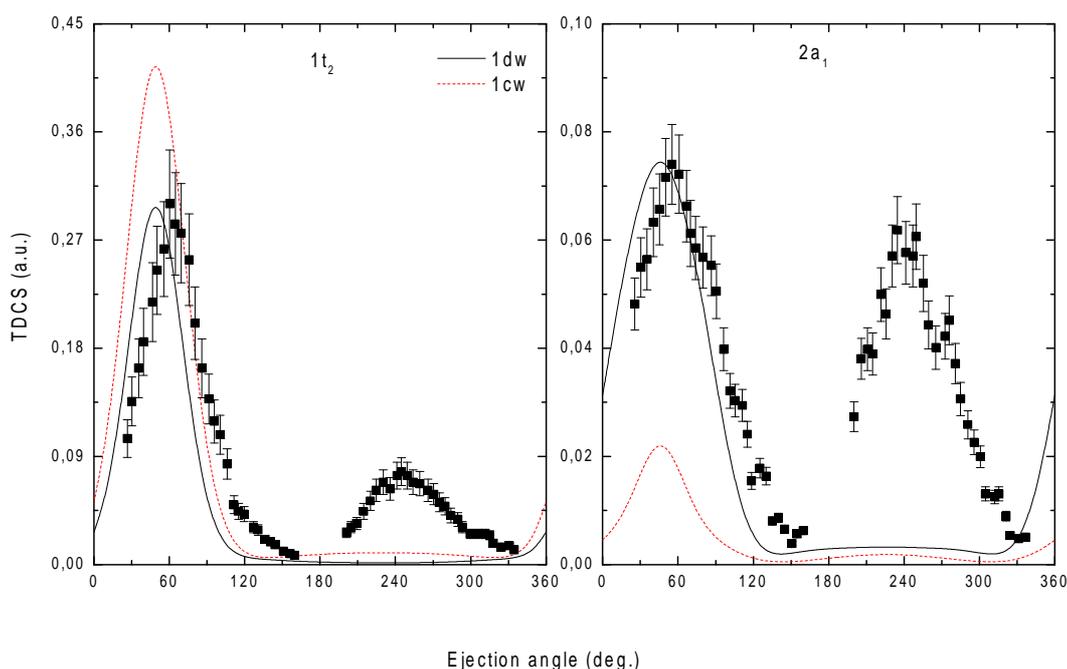


Figure IV.19 : Variation de la SETD de l'ionisation des orbitales moléculaires externes de la molécule CH_4 en fonction de l'angle d'éjection θ_e avec des énergies de diffusion et d'éjection $E_s = 500 \text{ eV}$, $E_e = 74 \text{ eV}$, l'angle de diffusion étant $\theta_s = 6^\circ$. Les courbes (—) et (--) représentent nos résultats dans le cas des modèles 1DW et 1CW respectivement et sont comparées aux résultats expérimentaux [16].

L'étude des cibles modèles moléculaires étudiées dans ce paragraphe montrent que les effets de distorsion peuvent être importants dans certaines situations. Cependant les deux modèles 1DW et 1CW ne sont pas capables de reproduire les pics binaires de CH₄ et NH₃, il faut également souligner que même le modèle plus élaboré BBK qui tient compte des effets post collisionnels n'est pas capable également de reproduire ce pic. Un nouveau modèle qui tient compte des effets post collisionnels ainsi que de la distorsion de l'éjecté a été introduit récemment mais s'est avéré incapable d'expliquer l'expérience dans la région de recul [75]. Un modèle BBK qui tient compte des distorsions du diffusé et de l'éjecté pourrait être en mesure d'interpréter l'expérience.

Conclusion générale

Nous avons étudié dans ce travail l'ionisation simple par impact électronique de quelques cibles moléculaires et atomiques prises initialement dans leur état fondamental, cela est réalisé pour évaluer la capacité des modèles au premier ordre (CWBA et DWBA) d'interpréter les sections efficaces différentielle ou totales mesurées et qui utilisent des ondes coulombienne ou distordues pour décrire les électrons du continuum. Cette tâche nécessite la prise en compte d'avantage interactions électron-cible pour des énergies basses d'incidence ou d'éjection.

La section efficace triplement différentielle est la grandeur initialement calculée pour une géométrie asymétrique et coplanaire et une cinématique bien déterminée. La section efficace doublement et simplement différentielle dépendante de l'énergie d'éjection ou l'angle d'éjection sont obtenues par l'intégration de la SETD. L'intégration numérique de la SES permet de déterminer l'allure de la section efficace totale d'ionisation en fonction de l'énergie d'incidence. La comparaison des sections efficaces différentielles et totale avec celles mesurées nous permet d'améliorer l'accord avec les modèles étudiés ici.

Trois molécules de dix électrons sont choisies (H_2O , NH_3 et CH_4) dans notre étude, ce choix est basé sur l'abondance et l'importance de ces molécules dans la matière. La matière, qui peut être exposée au rayonnement ionisant dans la vie courante, présente un comportement vis à vis de rayonnement qui nécessite de mieux comprendre l'ionisation de ses constituants. Ces cibles moléculaires ont comme avantage de pouvoir être décrites par l'utilisation de fonctions d'ondes monocentriques de Moccia. Ceci nous permet de réduire le temps de traitement du processus. Cette étude se subdivise en deux parties :

La première est consacrée à l'étude du modèle au premier ordre OCW qui s'appuie sur la première approximation de Born et qui prend en considération l'effet d'orthogonalisation de l'onde coulombienne de l'électron éjecté aux états liés de la cible. Cet effet joue un rôle important dans la description de l'ionisation simple des cibles pour des énergies d'éjection faibles. En comparant nos résultats aux données expérimentales, les calculs avec le modèle (OCW) sont en bon accord avec l'expérience. La SET calculée pour chaque molécule est en accord remarquable avec l'expérience, et le pic est très bien localisé en particulier pour la molécule d'eau. Pour les SEDD et SESD, nos résultats montrent un bon accord avec les expériences.

Nous concluons que les sections efficaces différentielles et totales sont reproduites de façon satisfaisante par la prise en compte de l'orthogonalisation. On constate que le modèle OCW améliore considérablement les résultats et semble capable de décrire le processus d'ionisation des petites molécules de type XH_n pour les basses énergies. Le modèle CW présente encore une allure qui surestime clairement l'expérience dans cette gamme d'énergie. Pour les hautes énergies les deux modèles CW et OCW convergent plus ou moins bien et fournissent des résultats pas trop éloignés de ceux donnés par l'expérience.

Dans la deuxième partie, nous avons utilisé le modèle ODW pour décrire l'électron éjecté issu de l'ionisation simple du néon et de l'argon, ainsi que de trois molécules. L'étude s'est concentrée sur l'ionisation des couches interne de l'argon et du néon, ainsi que sur les orbitales moléculaires des molécules. Cela est réalisé par la prise en compte de la variation radiale de la charge effective vue par l'électron éjecté. On a trouvé que l'utilisation d'une seule onde distordue pour l'électron éjecté d'une couche externe ou profonde n'a pas permis d'améliorer l'accord entre théorie et expérience.

Annexe A

Calcul de l'amplitude de diffusion d'une molécule

Pour une orientation aléatoire de la molécule XH_n , l'amplitude de diffusion est donnée, en utilisant le modèle du cœur gelé avec un seul électron actif, comme suit:

$$T(\alpha, \beta, \gamma) = \left\langle \psi_f(\vec{r}_0, \vec{r}_1) \left| -\frac{1}{r_0} + \frac{1}{r_1} \right| \psi_i(\vec{r}_0, \vec{r}_1) \right\rangle \quad (\text{A.1})$$

\vec{r}_0 et \vec{r}_1 sont respectivement le vecteur position de l'électron incident et de l'électron actif de la molécule par rapport au noyau X, les états initial $\psi_i(\vec{r}_0, \vec{r}_1)$ est final $\psi_f(\vec{r}_0, \vec{r}_1)$ du système sont donnés par:

$$\psi_i = (2\pi)^{\frac{-3}{2}} e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \psi_{OM}(\vec{r}, \alpha, \beta, \gamma) \quad (\text{A.2})$$

$$\psi_f = (2\pi)^{\frac{-3}{2}} e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0} \varphi_C(\vec{r}_1) \quad (\text{A.3})$$

$\psi_{OM}(\vec{r}, \alpha, \beta, \gamma)$ représente l'orbitale moléculaire ionisée, $\varphi_C(\vec{r})$ est la fonction d'onde coulombienne de l'électron éjecté.

En appliquant la relation de Bethe :

$$\int \frac{e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_0}}{|\vec{r} - \vec{r}_0|} d\vec{r}_0 = \frac{4\pi}{K^2} e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (\text{A.4})$$

L'amplitude de diffusion devient donc :

$$T(\alpha, \beta, \gamma) = \frac{2}{(2\pi)^2 K^2} \left\{ \left\langle \varphi_C(\vec{r}_1) \left| e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_1} \right| \psi_{OM}(\vec{r}, \alpha, \beta, \gamma) \right\rangle - \left\langle \varphi_C(\vec{r}_1) \left| \psi_{OM}(\vec{r}, \alpha, \beta, \gamma) \right\rangle \right\} \quad (\text{A.5})$$

Les fonctions d'ondes de Moccia sont données pour une orientation particulière de la molécule [1] et utilisent des harmoniques sphériques réelles:

$$\psi_i(\vec{r}) = \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik} R_{n_{ik}}^{\xi_{ik}}(r) S_{l_{ik}, m_{ik}}(\hat{r}) = \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik} \left[\frac{(2\xi_{ik})^{n_{ik} + \frac{1}{2}}}{\sqrt{(2n_{ik})!}} r^{n_{ik}-1} e^{-\xi_{ik} r} \right] S_{l_{ik}, m_{ik}}(\hat{r}) \quad (\text{A.6})$$

Les harmoniques sphériques réelles $S_{l_m}(\hat{r})$ sont définies à l'aide des harmoniques sphériques complexes $Y_l^m(\hat{r})$ [44] :

$$\begin{cases} S_{l_{ik} m_{ik}}(\hat{r}) = \left(\frac{m_{ik}}{2|m_{ik}|} \right)^{-1/2} \left\{ Y_{l_{ik} -|m_{ik}|}(\hat{r}) + (-1)^{m_{ik}} \left(\frac{m_{ik}}{|m_{ik}|} \right) Y_{l_{ik} |m_{ik}|}(\hat{r}) \right\}; m_{ik} \neq 0 \\ S_{l_{ik} 0}(\hat{r}) = Y_{l_{ik} 0}(\hat{r}); m_{ik} = 0 \end{cases} \quad (\text{A.7})$$

Pour obtenir la SETD d'ionisation simple de cette molécule dans le système du laboratoire (OXYZ), on doit intégrer sur les angles d'Euler (α, β, γ). Cette intégrale peut être effectuée numériquement ou analytiquement comme suit :

Le passage du référentiel (Oxyz) à celui du laboratoire (OXYZ) est assuré par l'opérateur de rotation suivant (figure A.1):

$$\mathfrak{R}(\alpha, \beta, \gamma) = \mathfrak{R}_z(\gamma) \mathfrak{R}_y(\beta) \mathfrak{R}_z(\alpha) = e^{-i\gamma J_z} e^{-i\beta J_y} e^{-i\alpha J_z} \quad (\text{A.8})$$

Qui s'écrit sous forme matricielle:

$$\mathfrak{R}(\alpha, \beta, \gamma) = \begin{pmatrix} \cos \gamma & -\sin \gamma & 0 \\ \sin \gamma & \cos \gamma & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \beta & 0 & \sin \beta \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin \beta & 0 & \cos \beta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \alpha & -\sin \alpha & 0 \\ \sin \alpha & \cos \alpha & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

Dans le repère du laboratoire (OXYZ), la fonction d'onde de la molécule s'écrit en fonction des angles d'Euler :

$$\psi_{i(lab)}(\vec{r}, \alpha, \beta, \gamma) = \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik} R_{n_{ik}}^{\xi_{ik}}(r) \sum_{\mu=-l_{ik}}^{l_{ik}} D_{\mu, m_{ik}}^{l_{ik}}(\alpha, \beta, \gamma) S_{l_{ik}, \mu_{ik}}(\hat{r}) \quad (\text{A.9})$$

L'élément de matrice de rotation $D_{\mu, m}^l(\alpha, \beta, \gamma)$ est défini comme suit [45]:

$$D_{\mu, m}^l(\alpha, \beta, \gamma) = e^{-i\alpha m} d_{\mu, m}^l(\beta) e^{-i\gamma \mu} \quad (\text{A.10})$$

Où les coefficients associés à d s'écrivent [78]:

$$d_{\mu, m}^l = \sum_{t=0}^{\infty} (-1)^t \frac{\sqrt{(l+m)!(l-m)!(l+\mu)!(l-\mu)!}}{(l+m-t)!(l-\mu-t)!t!(t-m+\mu)!} (\cos(\beta/2))^{2l+m-\mu-2t} (\sin(\beta/2))^{2t-m} \quad (\text{A.11})$$

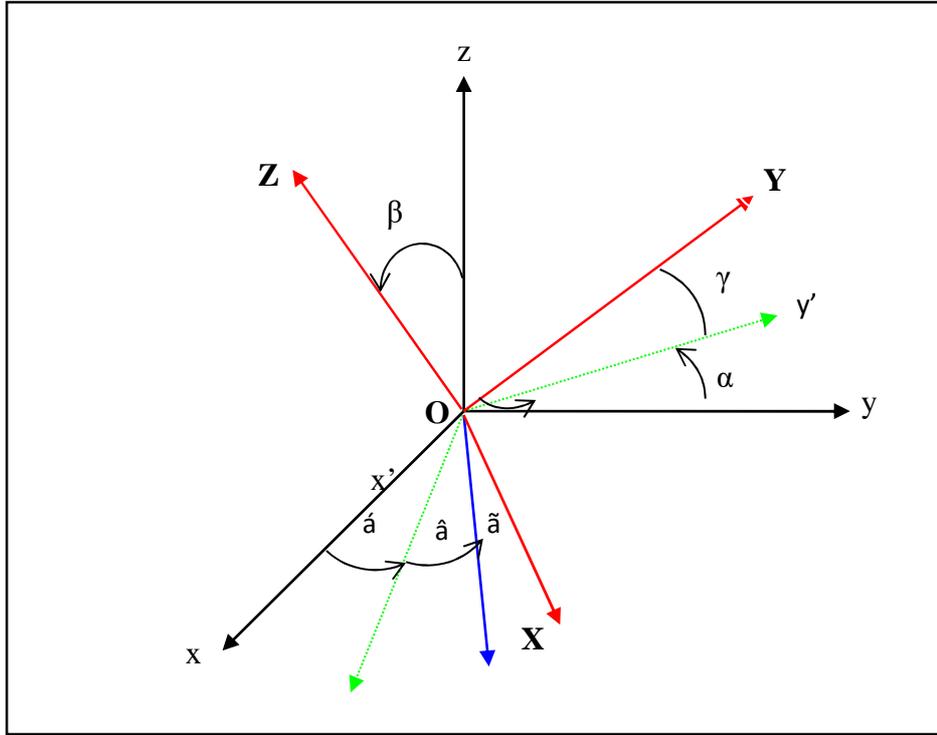


Figure A.1 : angles d'Euler (α, β, γ) qui permettent le passage du repère (Oxyz) vers le repère du laboratoire (OXYZ).

Chaque orbitale moléculaire de la cible peut être écrite sous la forme donnée dans l'équation (A.9), donc on trouve que :

$$T(\alpha, \beta, \gamma) = \frac{2}{(2\pi)^2 K^2} \left\{ \begin{array}{l} \left\langle \varphi_C(\vec{r}_1) \left| e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_1} \left| \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik} R_{n_{ik}}^{\xi_{ik}}(r) \sum_{\mu=-l_{ik}}^{l_{ik}} D_{\mu, m_{ik}}^{l_{ik}}(\alpha, \beta, \gamma) S_{l_{ik}, \mu_{ik}}(\hat{r}) \right. \right\rangle \\ - \left\langle \varphi_C(\vec{r}_1) \left| \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik} R_{n_{ik}}^{\xi_{ik}}(r) \sum_{\mu=-l_{ik}}^{l_{ik}} D_{\mu, m_{ik}}^{l_{ik}}(\alpha, \beta, \gamma) S_{l_{ik}, \mu_{ik}}(\hat{r}) \right. \right\rangle \end{array} \right\} \quad (\text{A.12})$$

Sachant que l'élément $D_{\mu, m}^l(\alpha, \beta, \gamma)$ vérifie la relation d'orthogonalité suivante :

$$\int \left(D_{\mu, m}^l(\alpha, \beta, \gamma) \right)^* D_{\mu', m'}^{l'}(\alpha, \beta, \gamma) d\Omega_{Euler} = \frac{8\pi^2}{2l+1} \delta_{l, l'} \delta_{m, m'} \delta_{\mu, \mu'} \quad (\text{A.13})$$

En posant:

$$\Delta_{n_l, m_l}(\vec{k}) = \left\langle \varphi_C(\vec{r}) \left| e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \left| \varphi_{n_l, m_l}(\vec{r}) \right. \right\rangle \quad (\text{A.14})$$

On trouve que la section efficace triplement différentielle pour une cible moléculaire est donnée par :

$$\sigma^{(3)}_{1e} = 8 \frac{k_s k_e}{K^4 k_i} \sum_{i=1}^{N_i} \frac{a_i^2}{2l_i + 1} \left| \sum_{\mu=-l}^l \{ \Delta_{n_i, l_i, m_i}(\vec{k}) - \Delta_{n_i, l_i, m_i}(0) \} \right|^2$$

Si on connaît l'orientation de la molécule, la moyenne sur les angles d'Euler ne doit pas être effectuée.

Bibliographie

- [1] Moccia R 1964 *J. Chem. Phys.* **40** 2164, 2176, 2186
- [2] Amaldi Jr U, Egidi A, Marconero R , Pizella G 1969 *Rev. Sci. Instrum.* **40** 1001
- [3] Langmir J J, Jones T 1928 *Phys. Rev.* **31** 357
- [4] Ehrhardt H 1983 *Comments At. Mol. Phys.* **13** 115
- [5] Rudberg E 1930 *Proc. Roy. Soc. London A* 129 628
- [6] Jung K, Schubert E, Paul P A L, Ehrhardt H 1975 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **8** 1330
- [7] Cherid M, Lahmam-Bennani A, Duguet A, Zuraes R W, Lucchese R R, Dal Cappello M C , Dal Cappello C 1989 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **22** 3483
- [8] Yang J , Doering J P 2001 *Phys. Rev. A* **63** 032717
- [9] Avaldi L, Camilloni R, Fainelli E , Stefani G 1992 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **25** 3551
- [10] Doering J P , Yang J 1996 *Phys. Rev. A* **54** 3977
- [11] Rioual S, Nguyen V and Pochat A 1996 *Phys. Rev. A* **54** 4968
- [12] Cavanagh S J and Lohmann B 1999 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **32** L261
- [13] Champion C, Dal Cappello C, Houamer S, Mansouri A 2006 *Phys. Rev. A* **73** 012717
- [14] Milne-Brownlie D S, Cavanagh S J, Lohmann B, Champion C, Hervieux P A, Hanssen J 2004 *Phys. Rev. A* **69** 032701
- [15] Hussey M J, Murray A J 2005 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **38** 2965
- [16] Lahmam-Bennani A, Naja A, Staicu Casagrande E M, Okumus N, Dal Cappello C, Charpentier I, Houamer S 2009 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **42** 165201
- [17] Tóth I, Nagy L 2010 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43** 135204
- [18] Tóth I, Campeanu R I , Nagy L 2015 *Eur. Phys. J. D.* **69** 2
- [19] Nixon K L, Murray A J, Al-Hagan O, Madison D H, Ning C 2010 *J. Phys. B* **43** 035201.
- [20] Bellm S M, Colyer C J, Lohmann B, Champion C 2012 *Phys. Rev. A* **85** 022710.
- [21] Defrance P, Jureta J, Lecointre J, Giglio E, Gervais B, Dal Cappello C, Ruiz-Lopez M, Charpentier I, Hervieux P A 2014 *Phys. Rev. A* **90** 042704
- [22] Bartlett P L, Stelbovics A T 2002 *Phys. Rev. A* **66** 012707

-
- [23] EL Boudali F 2001 Thèse de doctorat, Université de Metz
 - [24] Naja I 2008 Thèse de doctorat en sciences, Université PARIS-SUD 11
 - [25] Rezallah Z I 2011 Thèse de doctorat en sciences, Université de Sétif
 - [26] Massey H S W, Mohr C B O 1933 *Proc. Roy. Soc. A* **140** 613
 - [27] Dal Cappello C 1986 Thèse de Doctorat d'état, Université de Metz
 - [28] Houamer S 2004 Thèse de doctorat d'état, Université de Sétif
 - [29] Dal Cappello C, Tavard C, Lahmam-Bennani A, Dal Cappello M C 1984 *J. Phys. B* **17** 4557.
 - [30] Röder J, Ehrhardt H, Bray I and Fursa D V 1997 *J. Phys. B* 1307.
 - [31] Brauner M, Briggs J S and Klar H 1989 *J. Phys. B* **22** 2265.
 - [32] Dal Cappello C, Hda H and Roy A C 1995 *Phys. Rev. A*, **51** 3735
 - [33] Joulakian B, Dal Cappello C and Brauner M 1992 *J. Phys. B*, **25** 2863
 - [34] Lamy P, Dal Cappello C, Joulakian B, Le Sech C, 1994 *J. Phys. B* **27** 3559
 - [35] Dal Cappello C, Joulakian B, Langlois J 1993 *Journal de Physique IV*. **03** 125
 - [36] Lahmam-Bennani A, Dupré C and Duguet A 1989 *Phys. Rev. Lett*, **63** 1582
 - [37] Lahmam-Bennani A, Duguet A, Grisogono A M , Lecas M 1992 *J. Phys. B* **25** 2873
 - [38] Catoire F 2006, Thèse de Doctorat, Université Paris Sud XI
 - [39] Byron F W Jr, Joachain C J, Piraux B 1980 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **13** L673
 - [40] Pathak A and Srivastava M K 1980 *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **14** L773
 - [41] Byron F W Jr, Joachain C J and Piraux B 1982 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **15** L293
 - [42] Byron F W Jr, Joachain C J and Piraux B 1985 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **18** 3203
 - [43] Dal Cappello C, Haddadou A, Menas F and Roy A C 2011 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **44** 015204
 - [44] Trygve H, Jorgensen P and Olsen J 2000 *In Molecular Electronic-Structure Theory, John Wiley Sons, Inc*
 - [45] Davydov A S 1976 *Quantum Mechanics, Pergamon Press, New York*
 - [46] Mansouri A, Houamer S , Moulay M 2003 *Acta Phys. Pol A* **104** 25.

-
- [47] Carthy I E M C , A. Stelbovics 1983 *Phys. Rev. A* **28** 1322
 - [48] Sorokin A A, Shmaenok L A, Bobashev S V, Mobus B, Ulm G 1998 *Phys. Rev. A* **58** 2900.
 - [49] Wetzell R C, Baiocchi F A, Hayes T R, Freund R S 1987 *Phys. Rev. A* **35** 559
 - [50] Rao M V V S, Srivastava S K 1992 *J. Phys. B* **25** 2175
 - [51] Djuric N Lj, Belic D, Kurepa M V, Mack I U, Rothleiner J, Mark T D 1981 in *Proceedings of 12th International Conference on the Physics of Electronic and Atomic Collisions, Gatlinburg* (North-Holland, Amsterdam). p 384
 - [52] Crowe A, McConkey J W, Mass int J 1977 *Spectrom. Ion Processes* **24** 181
 - [53] Nishimura H, Tawara H 1994 *J. Phys. B* **27** 2063
 - [54] Orient O J, Srivastava S K 1987 *J. Phys. B* **20** 3923
 - [55] Milne-Brownlie D S, Cavanagh S J, Lohmann B, Champion C, Hervieux P A , Hanssen J 2004 *Phys. Rev. A* **69** 032701
 - [56] Opal C B, Beaty E C , Peterson W K 1972 *At. Data* **4** 209
 - [57] Madison Don H, Ola Al-Hagan 2010 *J. Atom Mol. Opt. Phys.* **24** 367180
 - [58] Bartschat K , Burke P G 1987 *J. Phys. B* **20** 3191
 - [59] Reid R H G, Bartschat K and Raeker A 1998 *J. Phys. B* **31** 563
 - [60] Reid R H G, Bartschat K and Raeker A, 2000 *J. Phys. B* **33** 5261
 - [61] Kheifets A S, Naja A, Staicu Casagrande E M and Lahmam-Bennani A 2008 *J. Phys. B* **41** 145201
 - [62] Zhang X, Whelan C T, Walters H R J, Allan R J, Bickert P, Hink W, Schönberger S 1992 *J. Phys. B* **25** 4325
 - [63] Bickert P, Hink W, Dal Cappello C and Lahmam-Bennani A, 1991 *J. Phys. B* **24** 4603
 - [64] Lohmann B, Cavanagh S, Haynes M A, Taouil I, Lahmam-Bennani A, Aust. 1998 *J. Phys.* **51** 679
 - [65] Camilloni R, Giardini-Guidoni A, McCarthy I E and Stefani G 1978 *Phys. Rev. A.* **17** 1634
 - [66] Avaldi L, Camilloni R, Multari R, Stefani G, Zhang X, Walters H R J , Whelan C T 1993 *Phys. Rev. A.* **48** 1195

-
- [67] Lahmam-Bennani A, Wellenstein H F, Duguet A and Daoud A, 1984 *Phys.Rev.A* **30** 1511
 - [68] Grum-Grzhimailo A N 1985 *J. Phys. B* **18** L695
 - [69] Brothers M J and Bonham R A 1986 *J. Phys. B* **19** 3801
 - [70] Stefani G, Avaldi L, Lahmam-Bennani A , Duguet A 1986 *J. Phys. B* **19** 3787
 - [71]Cavanagh S and Lohmann B 1997 *J. Phys. B* **30** L231
 - [72]Taouil I, Duguet A, Lahmam-Bennani A, Lohmann B, Rasch J, Whelan C T, Walters H R J 1999 *J. Phys. B.* **32** L5
 - [73] Gao J F, Madison D H, Peacher J L 2005 *Phys. Rev. A* **72** 020701
 - [74] Gao J F, Peacher J L and Madison D H 2005 *J. Chem. Phys.* **123** 204302
 - [75] Chinoune M, Houamer S, Dal Cappello C , Galstyan A 2016 *J.Phys. B* accepted
 - [76] El Mir R 2006 Thèse de Doctorat, Université du Liban
 - [77] Granados-Castro cm 2016 Thèse de doctorat, Université de Lorraine
 - [78] OUBAZIZ D 2011 Thèse de doctorat, Université de Tizi Ouzou
 - [79] Nehaoua S, Houamer S, Dal Cappello C, Chinoune M, Galstyan A and Roy A C 2014 *EPJD.* 60005.

Résumé

Dans ce cadre, l'électron incident (puis diffusé) est décrit par une onde plane alors que l'électron éjecté sera successivement décrit par une onde coulombienne, puis par une onde distordue. Dans une première partie le calcul des sections efficaces différentielles et totales a été réalisé en prenant un état final orthogonalisé à l'état initial de la cible. Un accord globalement satisfaisant a été trouvé avec les mesures expérimentales réalisées sur le néon, l'eau, le méthane et l'ammoniac pour les sections efficaces totales. Dans une deuxième partie la distorsion de la trajectoire de l'électron éjecté a été prise en compte dans le calcul des sections efficaces différentielles. Un meilleur accord est trouvé dans le cas de l'ionisation de couches internes de gaz rares (argon par exemple) pour la localisation du pic binaire mais des désaccords subsistent pour la description du pic de recul.

Abstract

A study of the single ionization of atoms and molecules has been performed by using the first Born approximation. In this frame, the incident (then scattered) electron is described by a plane wave and the ejected electron by a Coulomb wave and by a distorted wave. In a first part the differential and total cross sections have been calculated by taking a final state orthogonalized to the initial state of the target. A satisfactory agreement has been found with experiments performed on neon, water, methane and ammonia for the total cross sections. In a second part the differential cross sections have been calculated by using a distorted wave for describing the ejected electron. A better agreement is found in the case of the ionization of inner shell of noble gas (argon for instance) for the binary peak but some disagreement remain for the recoil lobe.

ملخص

في هذا العمل قمنا باستعمال تقريب Born1 لدراسة التأين الاحادي للذرات و الجزيئات الصغيرة بواسطة الالكترونات, استعملنا اولادالة Coulomb عمودية على كل الطاقات المقيدة للذرة او الجزيء لوصف الالكترون الصادر عن الذرة, ثم استعملنا النموذج 1DW (وذلك باخذ شحنة متغيرة في النموذج CW1) لدراسة تأين المدارات الداخلية لبعض الغازات المثالية و الجزيئات الصغيرة, لاحظنا توافق بين نتائجنا و نتائج التجربة خاصة في المنطقة الثنائية.