



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

UNIVERSITE ABOU-BEKR BELKAID – TLEMCCEN

THÈSE

Présentée à :

FACULTE DES SCIENCES – DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

Pour l'obtention du diplôme de :

DOCTORAT LMD

Spécialité: physique médicale

Par :

M^{me} BOUCHIKHI Asma

Sur le thème

**Application du principe variationnel de Schwinger au
calcul des sections efficaces d'ionisation des molécules
d'intérêt biologique.**

Soutenue publiquement le 22 / 03 / 2023 à Tlemcen devant le jury composé de :

Mr. BEKHECHI Smain	Professeur	Université de Tlemcen	Président
Mr. LASRI Boumediene	Professeur	Université de Saïda	Directeur de thèse
Mr. MERAD Abdelkrim	Professeur	Université de Tlemcen	Examineur
Mr. CHIKHAOUI Abdelhak	Professeur	Université de Tlemcen	Examineur
Mr. SAHLAOUI Mohammed	Professeur	Ecole Supérieure en Sciences Appliquées, ESSA-Tlemcen	Examineur
Mr. BOUDRAA Kamel Eddine	Professeur	Université de Saïda	Examineur

*Laboratoire de physique théorique (LPT), Faculté des sciences)
BP 119, 13000 Tlemcen - Algérie*

Abstract

In the present work, we study the single ionization of methane (CH_4) and ammonia (NH_3) molecules by electron-impact. Our analytical formalism developed in the framework of the first, second Born approximations, Schwinger variational approach is used to compute the triple differential cross section. Experimental and theoretical results for high and intermediate energies are presented in coplanar symmetric and asymmetric geometries and compared to other theoretical models and experimental data.

Good agreement is found between our results and available theoretical and experimental data.

Keywords: (e,2e) reaction, coplanar symmetric and asymmetric geometries, triple differential cross section

Résumé

Dans ce travail de thèse, nous étudions l'ionisation simple de molécule du méthane (CH_4) et de la molécule d'ammoniac (NH_3) par impact électronique.

Notre formalisme analytique développé dans le cadre de la première, la deuxième approximation de Born et l'approche variationnel de Schwinger est utilisé pour calculer la section efficace triplement différentielle. Les résultats expérimentaux et théoriques pour les hautes énergies et les énergies intermédiaires sont présentés dans les cas des géométries symétriques et asymétriques coplanaires et comparés avec d'autres modèles théoriques ainsi que les résultats expérimentaux disponibles.

Un bon accord est décelé entre nos résultats et les résultats théoriques et expérimentaux disponibles.

Mots Clés: réaction ($e,2e$), géométrie symétrique et asymétrique coplaire, section efficace triplement différentielle.

Dédicace

Avec l'expression de ma reconnaissance, je dédie ce modeste travail à ceux qui, quels que soient les termes embrassés, je n'arriverais jamais à leur exprimer mon amour sincère.

A la mémoire de mon père

Mohammed

Ce travail est dédié à mon père, décédé trop tôt, qui m'as toujours poussé et motivé dans mes études

J'espère que du monde qui sien maintenant, il apprécie cet humble geste comme preuve de reconnaissance de la part d'une fille qui a toujours prié pour son âme

A la femme qui a souffert sans me laisser souffrir, qui n'a jamais dit non âmes exigences et qui n'a épargné aucun effort pour me rendre heureuse: mon adorable mère RABIA.

À mon marie DJAMEL qui n'a pas cessée de me conseiller, encourager et soutenir tout au long de mes études.que dieu le protège et l'offre la chance et le bonheur

A mes petits anges ; MOHAMED RYAD, AYHEM et ABEDRRAHMANE

A mes sœurs : IBTISSEM, FATIMA ZAOHRA et AMINA

Remerciements

Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance à mon directeur de Thèse, le Professeur **LASRI Boumediene**. Je le remercie de m'avoir encadré, orienté, aidé et conseillé.

J'adresse également mes sincères remerciements au Professeur **SAHLAOUI Mohammed** pour ses aides précieuses pour l'élaboration de ce travail et dans les développements théoriques et mathématiques ainsi que ses encouragements.

Je remercie vivement monsieur le Professeur **BEKHECHI Smain**, pour avoir bien voulu accepter de présider le jury de cette thèse.

Mes sincères remerciements vont également aux Professeur **MERAD Abdelkrim** ainsi que le Professeur **CHIKHAOUI Abdelhak**, Professeurs à l'Université Abou-Bekr Belkaïd de Tlemcen, le Professeur **SAHLAOUI Mohammed** de l'Ecole Supérieure en Sciences Appliquées (ESSA) de Tlemcen ainsi que le Professeur **Boudraa Kamel-Eddine** de l'université de Saïda d'avoir accepté d'examiner le contenu de cette thèse.

Je tiens à remercier sincèrement tous les membres du laboratoire de physique théorique et tous ceux qui m'ont aidé de près ou de loin.

Ainsi tous les professeurs, intervenants et toutes les personnes qui par leurs paroles, leurs écrits, leurs conseils et leurs critiques ont guidé mes réflexions et ont accepté de me rencontrer et de répondre à mes questions durant mes recherches.

Table des Matières

I.	<u>Introduction générale</u>	
II.	<u>Chapitre –I: Théorie de collision Et notion de sections efficaces</u>	
	1. Ionisation : terminologies et notations.....	9
	2. La réaction (e, 2e)	10
	3. Les expériences (e, 2e)	11
	a) géométrie symétrique coplanaire	12
	b) géométrie symétrique non coplanaire.....	13
	c) géométrie asymétrique coplanaire	13
	d) géométrie asymétrique non coplanaire	14
	4. Sections efficaces d'ionisations	14
	5. section efficace triplement différentielle	16
	a. Relation de la SETD avec la SEDD.....	17
	b. sections efficaces simplement différentielles	17
	6. modèles théoriques de l'ionisation simple.....	18
	(a) approximation de Born aux ondes distordues (DWBA).....	18
	(b) convergent close coupling (CCC).....	18
	(c) : modèle Brauner, Briggs et Klar (BBK).....	19
	(d) approximation de Born	20
	(e) modèle M3DW.....	21
	7. références	22
III.	<u>Chapitre–II : Ionisation de cible atomique et moléculaire par impact électronique</u>	
	1. Introduction	24
	2. Calculs de la section efficace triplement différentielle.....	27
	• Cas d'une Cible atomique.....	27
	• Cas d'un seul électron actif	28
	• Cas de deux électrons actifs.....	29
	• Cas d'une cible moléculaire.....	30
	3. Principe variationnel de Schwinger	31

	4. Références.....	34
IV.	<u>Chapitre-III</u> : Calcul théorique de la section efficace triplement différentielle de l'ionisation des molécules biologiques de forme XHn	
	1. Introduction.....	35
	2. Théorie	37
	✓ Calcule de facteur de forme atomique.....	41
	• Méthode mathématique.....	41
	✓ Calcul de l'élément de matrice $F_{nlm}(q)$	43
	• Cas des états ns.....	43
	• Cas général.....	44
	✓ Calcul de l'élément de matrice P_{nlm}	46
	3. Références	48
v.	<u>Chapitre -IV</u>: Ionisation du méthane CH_4 et l'ammoniac NH_3 par impact d'électron : Résultats et Discussions	49
	1. Introduction.....	49
	2. Ionisation du méthane.....	50
	(a) Géométrie coplanaire asymétrique	50
	(b) Géométrie symétrique coplanaire.....	65
	3. Ionisation de l'ammoniac	74
	4. Références.....	85
VI.	<u>Conclusion générale</u>.....	86

Introduction



ans plusieurs domaines de la physique, l'étude de la collision entre des particules chargées avec des cibles atomiques ou moléculaires constitue une source d'information très importante et originale de la structure atomique et moléculaire. En effet, l'étude de l'ionisation simple des atomes ou des molécules par impact d'électron représente un intérêt fondamental et pratique dans la mesure où il nous permet de comprendre les processus physiques impliqués dans les gaz ionisés (atmosphère, plasmas), ainsi que dans l'irradiation d'échantillons biologiques (physique des radiations). La connaissance des sections efficaces différentielles peut nous renseigner sur la distribution énergétique et angulaire des électrons secondaires émis.

Ces informations peuvent éclairer nos connaissances, d'un point de vue fondamental, sur le peuplement des atomes, des ions multichargés et certaines molécules. D'un autre côté elles nous renseignent sur les processus d'interaction ayant lieu dans la matière (pouvoir d'arrêt, ...), et en particulier la matière biologique (dommage cellulaire, ...).

La notation (e , $2e$) désigne une ionisation simple de la cible dans laquelle un électron projectile arrache un électron à la cible. L'énergie et la direction des deux électrons sortants sont détectées pour s'assurer qu'ils sont dérivés du même processus ionisant.

Cependant, le problème de collision, même pour les cas les plus simples, ne peut pas être complètement résolu. C'est pour cette raison que la théorie des collisions atomiques par impact ionique, s'est concentrée sur le développement des techniques, des méthodes et des approximations dans lesquelles les divers processus de collisions peuvent être décrits convenablement.

Dans un problème de collision, le plus important est la détermination de la fonction d'onde qui représente l'onde de diffusion, car elle contient toutes les informations nécessaires sur l'état du système. Cependant pour résoudre ce problème, Plusieurs modèles ont été développés afin de calculer les sections efficaces triplement

différentielles qui présentent une des grandeurs les plus intéressantes dans la théorie de la diffusion car elle permet une analyse détaillée du processus d'ionisation et de comparer ainsi les résultats obtenus à partir des calculs avec ceux de l'expérience.

Selon les interactions prises en comptes, ces approximations peuvent être du premier ordre ou du second ordre. Les études se sont surtout concentrées sur des cibles atomiques procédant un seul électron par contre des cibles atomiques ou moléculaires multiélectroniques sont moins étudiées.

Au début des années trente, Langmuir et Jones [1] et Rudberg [2] sont les premiers à faire des expériences sur ce type de processus suivies par les travaux théoriques de Bethe [3] puis Massey et Mohr [4] qui ont réussi à bien décrire le processus (e , $2e$) en introduisant l'approximation de Born.

En 1932, Hughes et McMillen [5] se sont intéressés à l'analyse de la dépendance en énergie incidente en mesurant des sections efficaces simplement et doublement et plus particulièrement les sections totales d'ionisation.

Plus tard, en 1969, Ehrhardt *et al.* [6] ont réussi à détecter en coïncidence les deux électrons sortants suite à l'ionisation simple de l'hélium par impact électronique, puis Amaldi *et al.* [7] se sont intéressées à détecter l'ionisation d'un film mince de carbone.

Les recherches de ces auteurs ont visés d'étudier la distribution angulaire des électrons éjectés respectivement au cours de l'ionisation de l'atome d'hélium et d'un film mince de carbone dans le cadre d'une géométrie coplanaire et dans des conditions cinématiques asymétriques pour Ehrhardt *et al.* [6] et symétriques pour Amaldi *et al.* [7].

A partir de cette date, les expériences et les travaux théoriques sur les réactions (e , $2e$) se sont multipliés pour diverses conditions cinématiques [8-11]. La caractérisation de cette réaction conduit le chercheur à trouver la meilleure approche pour décrire l'interaction des particules chargées avec la cible.

Toutefois, l'étude de l'ionisation d'une cible moléculaire est un défi [12] et Plusieurs approximations sont donc nécessaires pour construire un formalisme relativement précis. Nous citons quelques formalismes ;approximation de Born aux ondes distordues (DWBA) [13,14,15], approximation dite : Time Dependent Close Coupling (TDCC) [16], approximation dite ; Molecular 3-body Distorted Wave (M3DW) [17] ,modèle ; convergent close coupling (CCC) [18], modèle de la Matrice R avec des pseudo-états

(R-matrix with pseudo-states) [19], modèle à une onde de Coulomb (1CW), modèle à deux ondes de Coulomb (2CW) et modèle à trois ondes de Coulomb (3CW ou BBK) [20].

Les molécules de méthane et d'ammoniac, comme les molécules d'eau, sont des cibles importantes à étudier, tant du point de vue expérimental que théorique [21-28].

Ces molécules prennent une part importante de la composition de certaines atmosphères planétaires et du milieu interstellaire [29]. C'est pour cette raison qu'il est important d'obtenir des données théoriques et expérimentales précises sur les sections efficaces d'ionisation. Les molécules de méthane et d'ammoniac sont relativement simples, ce qui peut nous aider à réduire la complexité du modèle (e, 2e).

Le thème de recherche abordé dans cette thèse est un travail de longue haleine entrepris depuis une longue période au Laboratoire de Physique Théorique de Tlemcen, notamment par le groupe des collisions atomiques. Pour ce faire, nous avons axé tous nos efforts tant du point de vue analytique que numérique sur le développement d'un nouveau formalisme théorique et mathématique établi dans le cadre de la première approximation de Born (FBA) et de la deuxième approximation de Born (SBA) utilisant le modèle à une onde de Coulomb (1CW) afin d'étudier l'ionisation simple des molécules CH_4 et NH_3 par impact électronique ce qui a permis de gagner en précision et en temps de calcul [21, 27, 30, 31]. Puisque ces molécules présentent des géométries mono-centriques, les fonctions d'onde moléculaires sont décrites par une expansion sur des fonctions de type Slater centrées sur les noyaux les plus lourds, c'est-à-dire les atomes de carbone et d'azote, selon la description proposée par Moccia [32, 33].

L'échange entre les deux particules sortantes indiscernables est considéré dans le premier terme de Born en utilisant l'approximation dite d'Ochkur [34]. À partir du moment où ce terme représente la partie dominante de l'amplitude de transition. Afin de considérer l'interaction post-collision entre les deux électrons sortants, l'état final est multiplié par le facteur de Gamow.

Pour une bonne compréhension de la réaction (e, 2e), nos résultats obtenus dans des géométries de symétrie et d'asymétries coplanaires sont comparés aux résultats expérimentaux et théoriques antérieurs [35, 36, 37].

Les résultats théoriques précédents sont obtenus à partir du modèle d'onde moléculaire distordue à trois corps (M3DW) utilisant une approximation d'orbitale moléculaire moyenne sphérique [17] du modèle à une onde de Coulomb (1CW).

A cet égard, il convient de noter également que le présent travail s'inscrit dans le cadre du développement d'une méthode variationnelle qui peut être utilisée pour calculer les différentes sections efficaces avec un haut degré de précision. Cette méthode variationnelle est basée sur la forme fractionnaire du principe variationnel de Schwinger [38-40] qui est un outil très puissant lorsqu'on s'intéresse aux intermédiaires et hautes énergies.

Dans le cadre du formalisme du paramètre d'impact, le principe variationnel a été introduit par Brendle *et al.* [41] et Gayet *et al.* [42], et développé récemment par Lasri *et al.* afin d'étudier l'excitation des atomes par impact d'ions. Il faut préciser que les approches variationnelles basées sur la forme fractionnaire du principe variationnel de Schwinger et développé par Lasri *et al.* [43-47] au sein Laboratoire de Physique Théorique (LPT) de l'Université de Tlemcen (Algérie) en collaboration avec le Laboratoire de Physique Moléculaire et Collision (LPMC) de l'Université de Metz (France) s'avèrent un outil d'investigation très puissant qui prend le relais du traitement perturbatif dans l'étude des processus d'excitation directe des atomes par impact d'ions aux énergies intermédiaires. De plus, ces procédures prédisent avec succès la saturation des sections efficaces totales lorsque la charge du projectile augmente. Ces diverses caractéristiques sont bien illustrées par un bon accord entre les résultats théoriques quand la fonction d'onde est assez bien représentée (5, 10 et 14 états de base) et les résultats expérimentaux comme ceux de l'excitation de l'atome d'hydrogène et des ions hydrogénoïdes Li^{2+} , Be^{3+} par impact de protons ainsi que ceux des ions Ar^{16+} , Fe^{24+} , Kr^{34+} , Xe^{52+} par impact de divers noyaux de charge Z_p .

Pour la première fois, en 1979 une application du principe variationnel de Schwinger à la diffusion $e\text{-He}$ a été présentée par Lucchese et Mc Koy [48] dont le but était de montrer que ce dernier fournit de bonnes solutions aux problèmes de diffusion sans nécessiter des développements sur des bases importantes. Par la suite, Lucchese, Watson et Mc Koy [49] ont développé cette approche dans le cas de la diffusion élastique d'électron par des molécules. En effet leur objectif était de montrer que l'amplitude de diffusion déduite à partir du principe variationnel de Schwinger converge rapidement par rapport à la base sur laquelle la fonction d'onde de diffusion est développée. Das *et al.* [50,51] et Chakrabarti [52] ont utilisé le formalisme variationnel de Schwinger pour l'étude de l'ionisation simple de l'atome d'hydrogène par impact d'électron et de positron.

Le présent travail est organisé comme suit :

Après une brève introduction, dans un premier chapitre on présente un état de l'art sur principales approches théoriques et les divers travaux effectués jusqu'à présent sur les processus d'ionisation simple ainsi que les notions de sections efficaces différentielles et totales.

Le second chapitre est dédié à une description détaillée du principe variationnel Schwinger appliqué en premier lieu à l'excitation atomique par impact ionique puis aux processus d'ionisation simple des cibles atomiques et moléculaire par impact électronique.

Dans le troisième chapitre de cette thèse on présente le formalisme théorique et mathématique établi dans le cadre de la première approximation de Born (FBA) et de la deuxième approximation de Born (SBA) utilisant le modèle à une onde de Coulomb (1CW) afin de calculer les sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation par impact électronique d'une cible moléculaire de structure chimique XH_n , avec X un atome très lourd devant l'atome d'hydrogène H.

Dans le dernier chapitre (4) qui constitue les fruits de cette étude on présente les divers résultats obtenus et qui concernent principalement l'étude et le calcul des sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation simple de la molécule du méthane (CH_4) et celles de l'ammoniac (NH_3) par impact électronique obtenus dans le cadre de la première et la deuxième approximation de Born ainsi qu'à partir du principe variationnel de Schwinger en les comparants avec ceux d'autres modèles théoriques comme le 1CW et M3DW ainsi que l'expérience.

Ce travail est clôturé par une conclusion générale.

Références

- [1] - Langmuir J J et T Jones, *Phys. Rev.* **31**, 357 (1928).
- [2] - Rudberg E, *Proc.Roy.Soc.A* **129**, 628(1930).
- [3] - H A Bethe, *Ann. Phys. Lpz* **5**, 325 (1930).
- [4] - H S W Massey et Mohr C B O, *Proc. Roy. Soc. A* **140**, 613(1933).
- [5] - Hughes A L et McMillen J H, *Phys. Rev* **39**, 585(1932).
- [6] - Ehrhardt H, Schulz M, Tekaas T and William K, *Phys. Rev. Lett.* **22**, 89(1969) .
- [7] - Amaldi U, Egidi A, Marconero R et Pizella G, *Rev. Sci. Instrum.* **40**, 1001(1969) .
- [8]- Ehrhardt H , Fischer M and Jung K, *Zeit. Phys A.* **304**, 119 (1982).
- [9]- Lahmam Bennani A, Wellenstein H F, Dal Cappello C, Rouault M and Duguet A, *J Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **16**, 2219(1983).
- [10] - Whelan C T, Allan R J, Rasch J, Walters H R J, Zhang X, Roder J, Jung K and Ehrhardt H, *Phys. Rev. A* **50**, 4393(1994).
- [11]- Brauner M, Briggs J S and Klar H, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **22**, 2265(1989) .
- [12] -Tennyson J. *Phys. Rep.* **491** 29(2010).
- [13] -Prideaux A et Madison D H. *Phys. Rev. A* **67** 052710(2003).
- [14] - Champion C, Hanssen J et Hervieux P A. *J. Chem. Phys.* . **117** 197 204(2002)
- [15] - Srivastava R, Zup T, McEachran R P Et Stauer A D. *J. Phys. B* **25** 1073(1992).
- [16]- Pindzola M. S, Robicheaux F, Loch S D, Berengut J C, Topcu T, Colgan J, Foste M r, Grin D C, Ballance C P, Schultz D R, T Minami, Badnell N R, Witthoeft M C, Plante D R, Mitnik D M, Ludlow J A and Kleiman U. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **40** R39(2007).
- [17] - Gao J, Madison D H et Peache J L r. *J. Chem. Phys.* **123** 204314(2005).
- [18]- Bray I et Stelbovics A T. *Phys. Rev. Lett.* **69** 53(1992).
- [19] - Zatsarinny O et Bartschat K. *Phys. Rev. A* **85** 062710(2012) .
- [20] - Champion C, Dal Cappello C, Houamer S et Mansouri A. *Phys. Rev. A* **73** 012717(2006).
- [21] - Sahlaoui M et Bouamoud M. *Can. J. Phys.* **89** 723 {727(2011)
- [22] - Yavuz M, Ozer Z N, Ulu M, Champion C, et Dogan M. *J. Chem. Phys.* . **144** 164305(2016)

-
- [23] - Toth I, Nagy L et Campeanu R I. *Eur. Phys. J. D* **70** 170(2016)
- [24] - Tachino C A, Monti J M, Fojon O A, Champion C et Rivarola R D. *J. Phys.: Conf. Ser.* **583** 012020(2015)
- [25] -Yavuz M, Okumus N, Ozer Z N, Ulu M, Dogan M, Sahlaoui M, Benmansour H, Bouamoud M, *J. Phys.: Conf. Ser.* **488** 052031(2014)
- [26]- Sahlaoui M. Bouamoud M. Lasri B et Dogan M *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **46** 115206(2013)
- [27]- Sahlaoui M et Bouamoud M. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **45** 085201(2012).
- [28] - Champion C, Boudrioua O et Dal Cappello C. *J. Phys.: Conf. Ser.* **101** 012010(2008)
- [29] - Luna H, Cavalcanti E G, Nickles J, Sigaud G M et E C Montenegro. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **36** 4717(2003)
- [30]- Sahlaoui M, Lasri B et Bouamoud M. *Can. J. Phys.* **92** 136{140(2014)
- [31]- Sahlaoui M et Bouamoud M. *Can. J. Phys.* **88** 905{910. (2010)
- [32]- Moccia R J. *Chem. Phys.* **40** 2164. (1964)
- [33] - Moccia R J. *Chem. Phys.* **40** 2176(1964).
- [34] - Ochkur V I *Sov. Phys.-JETP* **18**, 503(1965).
- [35]- Nixon K L, Murray A J, Chaluvadi H , Ning C et Madison D H. *J. Chem. Phys.* **134**, 174304(2011).
- [36] - Nixon K L, Murray A J, Chaluvadi H , Ning C, Colgan J and Madison D H. *J. Chem. Phys.* **138** 174304 (2013)
- [37] - Lahmam-Bennani A, Naja A, Staicu Casagrande E M, Okumus N, Dal Cappello C, Charpentier I et Houamer . *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **42** 165201(2009) .
- [38] - Brauner M, Briggs J S et Klar H *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **22** 2265(1989).
- [39] - Szmytkowski R. *Phys. Lett. A* 319 23{239(2003)
- [40]- Joachain C J. *Quantum Collision Theory*, North-Holland, Amsterdam, pp. 233238. (1975).
- [41]- Brendl_e B, Gayet R, Rozet J P. et Wohrer K, *Phys. Rev. Lett.* **54**, 2007(1985).
- [42]- Gayet R et Bouamoud M, *Nucl. Instrum. Methods B* **42**, 515-522 (1989).
- [43]- Lasri B, Bouamoud M et Gayet R, *Physical and Chemical News Journal* **20**, 12(2004).
- [44]- Lasri B, Bouamoud M, et Gayet R, *Nucl. Instrum. Methods B* **251**, 66(2006).
- [45]- Lasri B, Bouamoud M, et Hanssen J J. *Electron Devices* **5**, 127. (2007).
-

- [46]- Lasri B, Champion C, Sahlaoui M, Bouamoud M, et Dogan M, *Chinese Journal of Physics*, (2014)
- [47] - Lasri B, Thèse de Doctorat, Université de Tlemcen (2007).
- [48] - Luchese R R et McKoy V. *J. Phys. B.* **12**, L421(1979).
- [49] -Lucchese R R, Watson D R et McKoy V, *Phys. Rev. A* **22** 421(1980).
- [50] - Das J N, Dey A et Chakrabarti K. *Aust. J. Phys.* **47**, 751–5(1994).
- [51]- Das J N, Dey A et Chakrabarti K. *Aust. J. Phys.* **45**, 41–46 (1995).
- [52] - Chakrabarti K. *Pram. J. Phys.* **58**, 529–536 (2002).

Chapitre I

Théorie de collision
et notion de sections efficaces

1. Ionisation : terminologie et notations :

Le processus de l'ionisation simple par impact d'électron connue aussi par la réaction (e,2e) peut généralement être représenté par l'équation suivante :



Où

C :est une cible atomique ou moléculaire

C⁺:estun ion résultant de l'ionisation simple de la cible C.

e_i :est l'électron incident ou le projectile.

e_s :est l'électron diffusé, c.-à-d. l'électron incident après la collision.

e_e: est l'électron éjecté, c.-à-d. l'électron actif de la cible après la collision.

Chaque particule e_j est définie par une énergie E_j et une quantité de mouvement **k**_j (avec j = i, e ou s). On partage le processus de collision en deux temps, avant la collision et après la collision. Avant la collision nous avons l'électron incident dans un état de continuum libre et l'électron actif (celui qui va subir la perturbation crée par le champ du projectile) dans un état discret lié à la cible atomique ou moléculaire. Après la collision les deux électrons, incident et actif, sont diffusé et éjecté, respectivement. Pour un expérimentateur ces deux derniers sont des particules indiscernables puisqu'il ne peut pas savoir avec certitude lequel d'entre eux est le diffuser (ou éjecter). C'est pour cette raison que dans le cas de l'ionisation simple les termes diffusé et éjecté sont équivalents. Mais, il y a plus de chance que l'électron détecté avec l'énergie la plus grande est celui qui a été diffusé. Ainsi, pour distinguer les deux particules on considère souvent que l'électron le plus rapide comme étant le diffusé et le plus lent comme étant celui qui a été éjecté par la cible. Pour étudier une telle réaction nous avons besoins de savoir certaines contraintes, comme la conservation de l'énergie et la conservation de la quantité de mouvement :

$$E_i = E_s + E_e + E_r + PI \quad (I.2)$$

$$\mathbf{k}_i = \mathbf{k}_s + \mathbf{k}_e + \mathbf{Q} \quad (I.3)$$

L'équation (1.2) veut dire tous simplement que le projectile qui viens avec l'énergie E_i va transmettre une partie de son énergie a la cible et diffuse avec l'énergie E_s < E_i. L'énergie transmise crée un recul de l'ion avec une énergie E_r et une perturbation de l'état de l'électron actif. Celui-ci doit d'abord être libère du potentiel PI (potentiel d'ionisation) de

la cible, ensuite transmis vers le continuum, autrement dit éjecter par la cible avec une énergie E_e . Ainsi, dans l'équation (I.3) les vecteurs \mathbf{k}_i , \mathbf{k}_s et \mathbf{k}_e représentent les moments d'incidence du projectile, de diffusion de ce dernier et d'éjection de l'électron actif et le vecteur \mathbf{Q} représente le moment de recul de l'ion.

2. La réaction (e,2e) :

Comme nous l'avons mentionné précédemment, le processus de l'ionisation simple est connu par la réaction (e,2e). Cette réaction qui est une collision entre un électron projectile et une cible atomique ou moléculaire peut être exprimée dans la figure (I.1):

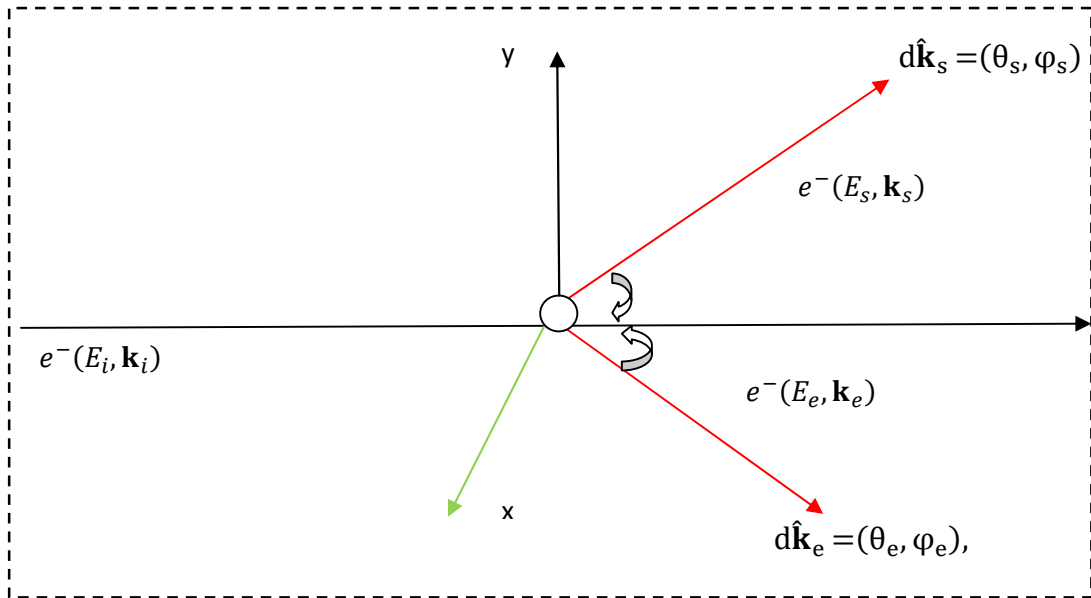


Figure (I.1) : processus de la simple ionisation

Cette figure montre un électron incident d'énergie et de quantité de mouvement (E_i, \mathbf{k}_i) qui entre en collision avec une cible. Cet électron diffuse, après la collision, dans la direction définie par les angles polaires (θ_s, φ_s) avec l'énergie et la quantité de mouvement (E_s, \mathbf{k}_s) . La perturbation de la cible créée par la collision de l'électron incident oblige cette dernière à éjecter un électron dans la direction (θ_e, φ_e) avec l'énergie et la quantité de mouvement (E_e, \mathbf{k}_e) . Nous pouvons donc définir les angles solides suivantes :

$$d\hat{\mathbf{k}}_s = \sin(\theta_s) d\theta_s d\varphi_s \quad (\text{I.4})$$

$$d\hat{\mathbf{k}}_e = \sin(\theta_e) d\theta_e d\varphi_e \quad (\text{I.5})$$

centrés sur les directions (θ_e, φ_e) et (θ_s, φ_s) . La réaction $(e, 2e)$ peut aussi être résumée dans l'équation suivante :

$$e^-(E_i, \mathbf{k}_i) + C(w_i) \rightarrow C^+(w_f) + e^-(E_s, \mathbf{k}_s) + e^-(E_e, \mathbf{k}_e) \quad (\text{I.6})$$

Tel que $C(w_i)$ représente la cible dans son état initial défini par l'énergie w_i et $C^+(w_f)$ représente l'ion résiduel dans son état défini par l'énergie w_f . Les énergies sont liées aux quantités de mouvement par les équations suivantes :

$$E_i = \frac{k_i^2}{2}, \quad E_s = \frac{k_s^2}{2} \quad \text{et} \quad E_e = \frac{k_e^2}{2} \quad (\text{I.7})$$

Il est important de signaler ici que toutes les équations sont écrites en unités atomiques. Nous pouvons donc réécrire l'équation (1.2) sous la forme :

$$E_i + w_i = E_s + E_e + w_f + E_r \quad (\text{I.8})$$

Tel que l'énergie de recul de l'ion peut être définie par $E_r = Q^2 / (2M_c)$, avec M_c est la masse de la cible. Il est bien évident que nous pouvons réécrire cette équation sous la forme :

$$k_i^2 = k_s^2 + k_e^2 - 2(w_i - w_f) + \frac{Q^2}{M_c} \quad (\text{I.9})$$

Comme la quantité Q^2 est très petite devant les quantités k_s^2 et k_e^2 et la masse de la cible M_c est très grande devant l'unité, le terme Q^2/M_c peut donc être négligé devant la somme $k_s^2 + k_e^2$ dans le bilan énergétique.

$$k_i^2 = k_s^2 + k_e^2 + 2 \text{IP} \quad (\text{I.10})$$

Avec $\text{IP} = -(w_i - w_f)$ représente le potentiel d'ionisation, ou tout simplement

$$E_i = E_s + E_e + \text{IP} \quad (\text{I.11})$$

3. Les expériences (e, 2e) :

Nous avons bien défini précédemment la réaction $(e, 2e)$. Le principe de l'étude de cette réaction est de collecter un maximum d'informations sur les états de la cible et les différents processus qui en résultent de la réaction de collision. Ceci est possible à partir de l'analyse des directions et des énergies des particules sortants. Les premières expériences sur l'ionisation simple par impact d'électrons sont réalisées par Armand *et al.* [1] et

Ehrhard *et al.* [2]. Ces expériences permettent d'obtenir des informations sur la densité d'impulsion de la cible. La plupart des expériences sur la réaction (e,2e) sont réalisées dans les conditions géométriques coplanaires. Ce qui signifie que durant l'expérience les trois électrons sont détectés dans le même plan. Cependant, il est souvent préférable de réaliser ce type d'expériences dans des conditions non coplanaires. Nous pouvons donc définir deux types de géométries dans lesquelles une expérience (e,2e) peut être réalisée, géométrie coplaire et non coplaire.

Dans les expériences Weigold et McCarty [3], nous pouvons trouver un autre type de processus dans lesquelles on s'intéresse seulement à détecter les électrons éjecté et diffusé en coïncidence avec des énergies égales ou symétriques

$$E_s = E_e = \frac{E_i - P_i}{2} \quad (\text{I.12})$$

Ce type d'expériences est connue par les expériences (e,2e) de géométrie symétrique. Dans le cas où l'expérience est arrangée de manière que les vecteurs quantités de mouvement des électrons incident, éjecté et diffusé sont considérés être dans le même plan, on parle donc de la géométrie coplaire symétrique et si l'expérience est arrangée de sorte que les trois vecteurs quantités de mouvement ne se trouvent pas dans le même plan on parle dans ce cas d'une géométrie non coplaire symétrique. Dans le cas où durant l'expérience les électrons éjecté et diffusé sont détectés en coïncidence avec des énergies non égales ou asymétriques, on parle donc d'expériences de géométrie coplaire asymétrique ou de géométrie non coplaire asymétrique.

a. Géométrie symétrique coplaire :

Dans ce type d'expériences les deux électrons éjecté et diffusé sont détectés dans le même plan de collision qui contient l'électron incident et les deux énergies E_s et E_e sont égales et très petites par rapport celle de l'électron incident $E_s = E_e \ll E_i$

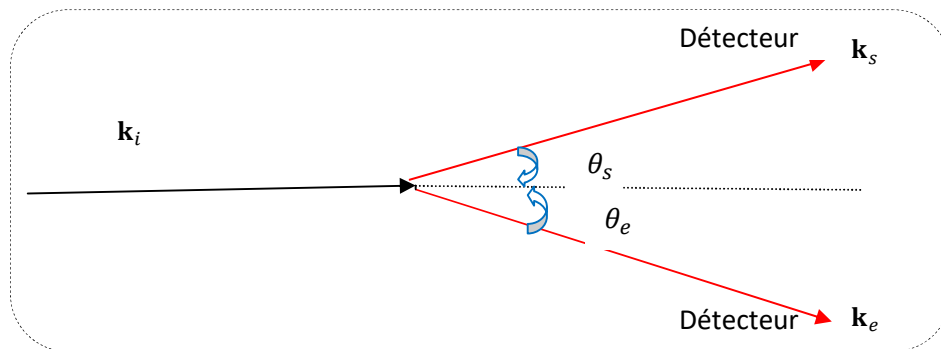


Figure I.2: géométrie symétrique coplaire

b. Géométrie symétrique non coplanaire :

Dans ce type d'expériences les deux électrons éjecté et diffusé ne sont pas détectés dans le même plan de collision et les deux énergies E_s et E_e sont égales

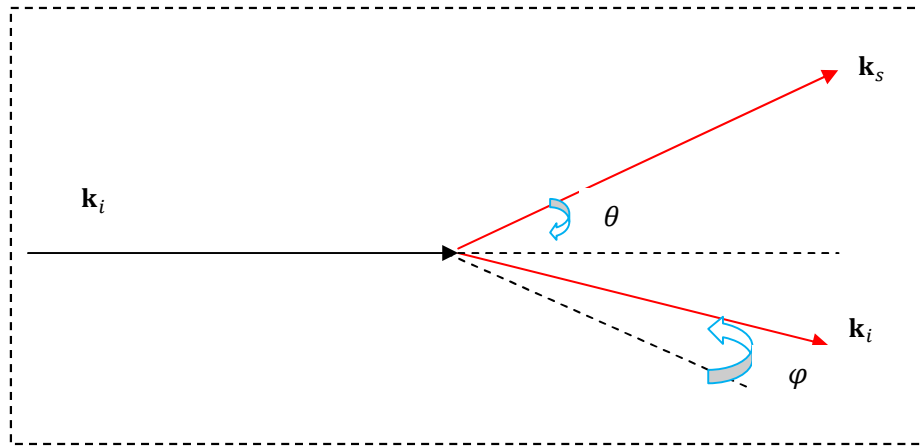


Figure I.3: géométrie symétrique non coplanaire

c. Géométrie asymétrique coplanaire :

Dans ce type d'expériences les deux électrons éjecté et diffusé sont détectés dans le même plan de collision avec des énergies E_s et E_e différentes

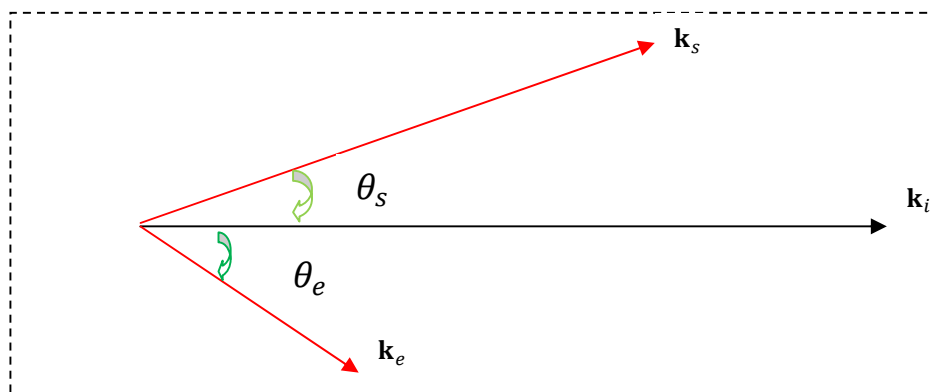


Figure I.4 : géométrie asymétrique coplanaire

d. Géométrie asymétrique non coplanaire :

Dans ce type d'expériences les deux électrons éjecté et diffusé sont détectés en dehors du plande collision avec des énergies E_s et E_e différentes

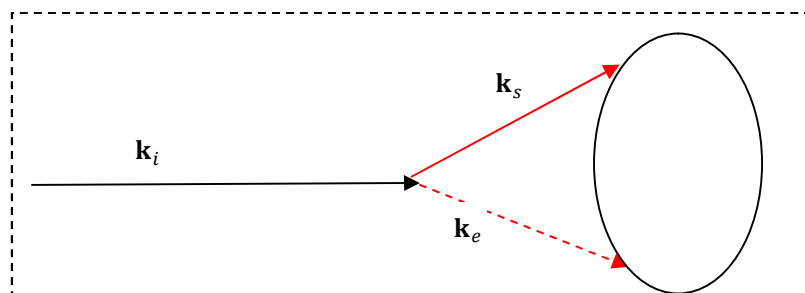


Figure I.5 : géométrie asymétrique non coplanaire

4. Sections efficaces d'ionisations :

Dans les expériences de collisions atomiques de particules par des cibles atomiques ou moléculaires on parle souvent d'une grandeur physique connue par la section efficace. Cette grandeur n'est autre qu'une mesure du taux de particules qui ont subies une diffusion par rapport au nombre de particules incidentes. On peut donc définir la section efficace comme étant une mesure de la probabilité pour qu'un type de réaction de collision est effectuée. Elle est indépendante du temps et dépendante des énergies et des angles. Pour donner une forme mathématique à la section efficace nous allons considérer dans un premier temps un faisceau constitué de N_i particules incidentes monochromatique par unité de temps et de surface, qui viens avec des énergies autour de E_i et des quantités de mouvements autour de \mathbf{k}_i . Supposons que ce faisceau vient de l'infinie le long de la direction de l'axe Oz et rentre en collision avec une nombre de N_t cibles atomiques localisées à l'origine du référentielle des coordonnées. Supposons maintenant que la densité des N_t cibles ainsi que celle du flux des particules incidentes sont très faibles afin d'éviter toute effet de collision multiples. Il est évident qu'après la réaction de collision une partie du faisceau de particules incidentes, supposons qu'un nombre de N_s particules par unité de temps et de surface, vont diffuser avec des énergies autour de E_s (entre E_s et $E_s + dE_s$). Si la diffusion de cet ensemble de particules est distribuée sur l'élément d'angle solide $d\hat{\mathbf{k}}_s$ définie par la direction du vecteur \mathbf{k}_s , nous pouvons dans ce cas écrire l'équation suivante :

$$N_s dE_s d\hat{\mathbf{k}}_s = d^2\sigma(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s) N_i N_t \quad (\text{I.13})$$

C'est-à-dire que le nombre N_s de particules qui diffusent dans la direction \mathbf{k}_s avec l'énergie E_s est proportionnel au nombre de particules incidentes N_i et au nombre N_t de cibles atomiques. La constante de proportionnalité $d^2\sigma(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s)$ qui dépende des vecteurs \mathbf{k}_i et \mathbf{k}_s (et des énergies E_i et E_s) est appelée section efficace. Nous pouvons donc définir la section efficace doublement différentielle par l'équation :

$$\frac{d^2\sigma(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s)}{dE_s d\hat{\mathbf{k}}_s} = \frac{N_s}{N_i N_t} \quad (\text{I.14})$$

Dans cette réaction de collision nous nous sommes intéressés à la détection du courant induit par la réception d'un faisceau de particules monochromatiques qui diffusent avec des énergies comprises entre E_s et $E_s + dE_s$. Le détecteur doit donc être placé en face de la direction \mathbf{k}_s de fenêtre, ou d'ouverture de réception, de section proportionnelle à l'angle solide $d\hat{\mathbf{k}}_s = \sin\theta_s d\theta_s d\varphi_s$. Le nombre N_s des particules qui seront détectées par unité de temps et de surface est donc proportionnel à la densité de courant.

$$J_{\mathbf{k}_s}(\mathbf{r}) = \frac{1}{2i} [\psi_{\mathbf{k}_s}^*(\mathbf{r}) \nabla \psi_{\mathbf{k}_s}(\mathbf{r}) - \psi_{\mathbf{k}_s}(\mathbf{r}) \nabla \psi_{\mathbf{k}_s}^*(\mathbf{r})] \quad (\text{I.15})$$

Où $\psi_{\mathbf{k}_s}(\mathbf{r})$ représente la fonction d'onde du flux de particules diffusées. Comme le détecteur est placé très loin par rapport à l'origine du référentiel qui présente le centre de la collision nous pouvons approximer cette fonction d'onde par la forme

$$\psi_{\mathbf{k}_s}(\mathbf{r}) = f(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s) \frac{\exp(i\mathbf{k}_s \cdot \mathbf{r})}{r}, \quad (r \rightarrow \infty) \quad (\text{I.16})$$

Dans cette équation la grandeur $f(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s)$ représente l'amplitude de l'onde sphérique diffusée $\psi_{\mathbf{k}_s}(\mathbf{r})$. La densité de courant radial de diffusion peut être déduit en utilisant l'équation (I.15) :

$$J_{\mathbf{k}_s}(\mathbf{r}) = k_s |f(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s)|^2, \quad (r \rightarrow \infty) \quad (\text{I.17})$$

Pour trouver cette équation nous avons négligé le terme d'ordre r^{-3} . Ainsi nous pouvons définir le nombre N_s des particules qui seront détectées par unité de temps et de surface comme :

$$N_s \propto k_s |f(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s)|^2 \quad (\text{I.18})$$

De la même façon, si on définit la fonction d'onde $\psi_{\mathbf{k}_i}(\mathbf{r})$ du faisceau de particules incidentes comme étant une fonction onde plane (qui n'a pas encore subi une diffusion)

$$\psi_{\mathbf{k}_i}(\mathbf{r}) = \exp(i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}), \quad (r \rightarrow \infty) \quad (\text{I.19})$$

Nous pouvons déduire que la densité de courant de ce faisceau de particules en utilisant l'équation (1.15) :

$$J_{k_i}(\mathbf{r}) = k_i \quad (\text{I.20})$$

Ainsi le nombre de particules incidentes N_i est

$$N_s \propto k_i \quad (\text{I.21})$$

En remplaçant les nombres N_i et N_s qui figurent dans l'équation (I.14) par les résultats présentés dans les équations (I.18) et (I.21) nous pouvons trouver la forme mathématique suivante pour la section efficace doublement différentielle (SEDD) :

$$\frac{d^2\sigma(k_i, k_s)}{dE_s d\hat{k}_s} = \frac{k_s}{k_i} |f(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s)|^2 \quad (\text{I.22})$$

5. Section efficace triplement différentielle :

Si dans une expérience de collision on s'intéresse à la diffusion d'un seul type de particules on doit donc étudier la section efficace doublement différentielle. En outre, si dans cette expérience on s'intéresse à la diffusion d'un autre type de particules en plus du premier on doit donc étudier ce qu'on appelle la section efficace triplement différentielle (SETD). Cette grandeur physique mesure la probabilité pour qu'une particule incidente avec une énergie E_i et une quantité de mouvement \mathbf{k}_i perturbe fortement une cible atomique jusqu'à ce qu'elle éjecte un électron vers un état de continuum d'énergie E_e . Cet électron va donc se propager dans une direction définie par le vecteur quantité de mouvement \mathbf{k}_e . La section efficace prend dans ce cas la forme suivante :

$$\frac{d^3\sigma}{d\mathbf{k}_s d\mathbf{k}_e dE_e} = \frac{k_s k_e}{k_i} |f(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s, \mathbf{k}_e)|^2 \delta(E_i - E_s - E_e + IP) \quad (\text{I.23})$$

Rappelons que l'équation

$$E_i - E_s - E_e + IP = 0 \quad (\text{I.24})$$

représente l'équation de conservation de l'énergie (IP est le potentiel d'ionisation).

Dans l'équation (1.23) nous pouvons bien voir que la section efficace triplement différentielle fait intervenir tous les éléments cinématiques et géométriques qui peuvent influencer le processus d'ionisation (ces éléments sont les énergies E_i , E_s et E_e ainsi que les angles de diffusion (θ_s, φ_s) et d'éjection (θ_e, φ_e)). C'est pour cette raison que la SETD est considérée comme étant la grandeur mesurable dans l'expérience de la réaction $(e, 2e)$ qui fournit une description détaillée de la dynamique du processus de la simple ionisation.

Cette grandeur physique nous permet aussi d'analyser un modèle théorique proposé pour étudier l'ionisation par impacte de particules.

a. Relation de la SETD avec la SEDD :

La relation de la section efficace doublement différentielle avec la section efficace triplement différentielle est simple :

$$\frac{d^2\sigma}{d\hat{\mathbf{k}}_s dE_s} = \int_0^{4\pi} d\hat{\mathbf{k}}_e \frac{d^3\sigma}{d\hat{\mathbf{k}}_s d\hat{\mathbf{k}}_e dE_s} \quad (I.25)$$

Elle est définie par une intégration de la SETD sur l'angle solide d'éjection $d\hat{\mathbf{k}}_e$ si dans une expérience de collision on s'intéresse seulement à la diffusion des particules incidentes. Mais si dans cette expérience on s'intéresse seulement à la répartition des électrons éjectés par les cibles atomiques on doit dans ce cas définir la SEDD par une intégration de la SETD sur l'angle solide de diffusion $d\hat{\mathbf{k}}_s$:

$$\frac{d^2\sigma}{d\hat{\mathbf{k}}_e dE_e} = \int_0^{4\pi} d\hat{\mathbf{k}}_s \frac{d^3\sigma}{d\hat{\mathbf{k}}_s d\hat{\mathbf{k}}_e dE_e} \quad (I.26)$$

Nous pouvons dire que durant ce type d'expérience un seul détecteur est utilisé pour mesurer l'énergie E_s (ou E_e) et la direction $d\hat{\mathbf{k}}_s$ (ou $d\hat{\mathbf{k}}_e$) de diffusion. Ce type d'études sont moins compliquées (pour un expérimentateur) que celles dans lesquelles c'est la SETD qui est considérée. Toutefois, ces études donnent moins d'informations sur le processus d'ionisation comparé à ceux donner par les études basées sur des mesures de la SETD.

b. Sections efficaces simplement différentielles :

La section efficace simplement différentielle peut être définie mathématiquement par une simple intégration de la section efficace doublement différentielle

$$\frac{d\sigma}{d\hat{\mathbf{k}}_s} = \int_{E_{\min}}^{E_{\max}} dE_s \frac{d^2\sigma}{d\hat{\mathbf{k}}_s dE_s} \quad (I.27)$$

dans le cas où on s'intéresse à une mesure de la probabilité que les particules incidentes diffusent dans la direction $d\hat{\mathbf{k}}_s$ avec des énergies comprises entre E_{\min} et E_{\max} . Dans le cas

où on s'intéresse à la mesure de la probabilité que les électrons sont éjectés dans la direction $d\hat{\mathbf{k}}_e$ avec des énergies comprises entre E_{\min} et E_{\max} nous avons :

$$\frac{d\sigma}{d\hat{\mathbf{k}}_e} = \int_{E_{\min}}^{E_{\max}} dE_e \frac{d^2\sigma}{d\hat{\mathbf{k}}_e dE_e} \quad (\text{I.28})$$

Dans le cas où ce sont les spectres énergétiques des particules diffusées ou des électrons éjectés qui nous intéressent la section efficace simplement différentielle prend la forme suivante :

$$\frac{d\sigma}{dE_s} = \int_0^{4\pi} d\hat{\mathbf{k}}_s \frac{d^2\sigma}{d\hat{\mathbf{k}}_s dE_s} \quad (\text{I.29})$$

ou :

$$\frac{d\sigma}{dE_e} = \int_0^{4\pi} d\hat{\mathbf{k}}_e \frac{d^2\sigma}{d\hat{\mathbf{k}}_e dE_e} \quad (\text{I.30})$$

6. Modèles théoriques de l'ionisation simple :

Dans la littérature nous pouvons rencontrer plusieurs modèles mathématiques théoriques qui peuvent nous permettre de bien comprendre les différents effets qu'une collision de particules avec des cibles atomique (ou moléculaires) peut causer. Dans le cas d'une réaction de collision qui induit une ionisation simple, la grandeur mesurable qui peut nous fournir une bonne compréhension de ce processus d'ionisation est la section efficace triplement différentielle, puisque c'est la grandeur qui contient des informations très détaillées sur ce processus. Dans cette section nous allons présenter les modèles et les approches les plus utilisés par les chercheurs dans leurs études sur l'ionisation simple de cibles atomiques ou moléculaires par impact de particules.

a. Approximation de Born des ondes distordues :

L'approximation de Born des ondes distordue (DWBA : Distorted Wave Born approximation) est basée sur la présence d'une perturbation de courte portée en plus de celle de longue portée créée par un potentiel coulombien. Cette perturbation a pour effet d'induire une distorsion dans les fonctions d'ondes des particules incidentes, diffusées et éjectées. Ces dernières sont décrites par des fonctions d'ondes distordues calculées en tenant en compte le potentiel d'échange de l'ion. Ceci est dans le cas général, mais souvent

l'effet du potentiel de courte portée sur les particules incidentes et diffusées est négligé à cause de l'effet d'écrantage des électrons de la cible si la vitesse des projectiles est suffisamment grande. Nous pouvons dire que cette approche est une approximation de premier ordre puisqu'elle ne tient en compte que la première approximation de Born. Si les énergies d'incidence et de diffusion sont assez grandes, les effets de distorsion sont faibles sur les fonctions d'ondes incidentes et diffusées, par conséquent nous pouvons remplacer les ondes distordues correspondantes par des fonctions d'ondes planes. Nous parlons dans ce cas du modèle de l'approximation de Born des ondes planes (PWBA : Plane Wave Born Approximation) [5].

b. Le modèle : Convergent Close Coupling (CCC) :

Le modèle de Convergent Close Coupling (CCC) est présente une approche 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. Cette approche proposée pour la première fois par Massey et Mohr [5] comme formalisme général pour traiter des réactions d'excitation des électrons atomiques vers des états atomiques discrets. Le modèle a successivement vu des améliorations par différents auteurs [6-21]. Le modèle a aussi été utilisé pour étudier l'ionisation de l'hélium par Bray et *al.*[22]. Cette approche théorique a fait preuves de précision dans la description de la corrélation entre électrons de la cible. Kheifets et Bray [23] ont abordé ce problème en utilisant deux fonctions d'ondes, une fonction est un développement de Hylleraas [24] de 20 termes et l'autre une fonction multi configuration de Hartree Fock [25] sur 18 paramètres.

c. Modèle Brauner, Briggs et Klar (BBK):

Le modèle de *Brauner, Briggs et Klar* appelé souvent le modèle BBK a été proposé pour la première fois par les trois auteurs (ci-dessus) pour le cas de l'ionisation simple de l'atome d'hydrogène. L'approche BBK est basée sur la description de l'état final de la réaction ($e, 2e$) par une forme asymptotique de la fonction d'onde de diffusion très loin de la cible ($r \rightarrow \infty$). Cette forme est un produit de trois fonctions de Coulomb qui peuvent

décraient les interactions mutuelles entre les électrons éjecté et diffusé et les électrons avec l'ion résiduel.

La fonction d'onde utilisé dans le modèle pour décrire l'état final de la réaction $(e,2e)$ est symétrique et décrit l'état des trois particules dans leurs états de continuum. Il est important aussi de dire que cette fonction d'onde représente une solution exacte de l'équation de Schrödinger de la simple ionisation de l'atome d'hydrogène par impact d'électrons. En 1993 Dal Cappello et *al.* [27] ont étendus le modèle BBK au cas de l'ionisation de cibles atomiques quelconques.

d. L'approximation de Born :

L'approximation de Born a été développée par Born [29] et représente l'un des approximations les plus utilisées pour calculer les fonctions d'ondes et les sections efficaces. Cette approche peut être utilisée si l'énergie d'incidence est suffisamment grande par rapport au potentiel d'interaction. L'approximation de Born prend un rôle très important dans les études des collisions atomiques. Dans les modèles base de cette approximation, les particules incidentes et diffusées sont décrites par des fonctions d'ondes planes. Cette description devienne relativement précise dans le cas où le potentiel d'interaction de l'électron incident avec la cible atomique joue le rôle d'une faible perturbation. L'approximation de Born est donc une approche perturbative que grâce à elle nous pouvons développer l'amplitude de diffusion sur une série en puissance du potentiel d'interaction, tel que chaque terme de cette série contient le nombre d'interactions du projectile avec les électrons de la cible (une interaction pour la première approximation de Born, deux interactions pour la deuxième approximation de Born et ainsi de suite). Puisque la première approximation de Born donne la forme la plus simple de l'amplitude de transition elle est souvent utilisée pour calculer les sections efficaces des collisions atomiques. Nous pouvons trouver dans les travaux de Sahlaoui et *al.* [30] un formalisme détaillée basé sur l'approximation de Born complètement analytique sur le calcul de la section efficace triplement différentielle de l'ionisation simple de cibles atomiques quelconques de fonctions d'ondes décrites par un développement sur une base de fonctions de type Slater.

e. modèle M3DW :

Le modèle M3DW (Molecular 3-body Distorted Wave approximation) peut être considéré comme une extension du modèle BBK dans le cas de l'ionisation de cibles moléculaires. Il s'agit d'une approche à deux centres, dans laquelle les électrons de la réaction ($e,2e$)(incident, diffusé et éjecté) sont décrits par des ondes distordues tout en prenant en compte l'interaction post collisionnelle entre les électrons sortants. Dans ce modèle la fonction d'onde de l'état initial est moyennée sur toutes les orientations Moléculaire (Orientation Averaged Molecular Orbital (OAMO) approximation). Puisque l'expérience ne peut pas distinguer entre les orientations de la molécule il est judicieux de calculer d'abord calculer les SETD pour chaque orientation en suite on fait la moyenne sur les SETDs de toutes les orientations possibles, Mais, les auteurs du modèle M3DW, GAO et *al.* [31], ont montré qu'il est bien possible de faire l'inverse dans le cadre de l'approximation OAMO (c.-à-d. d'abord moyenné la fonction d'onde de la cible moléculaire sur toutes les orientations possibles de la molécule dans sont état initial, ensuite utilisé le résultat obtenue pour calculer la section efficace triplement différentielle). Les auteurs ont également montré que l'approximation OAMO est valable tant que le moment \mathbf{q} absorbé par l'ion reste faible, typiquement inférieur à l'unité atomique Gao et *al.* [32].

Références:


- [1] - Amaldi V, Egidi A, Marconero R et Pizzella G, *Rev.Sci.Inst* 40,1001(1969).
- [2] – Ehrhardt H , Schutz M , Tekaetet T, Willmann K .*phys.Rev.Lett.*22,89(1969).
- [3] - Weigoldet E McCarthy I ,*J,physB*14,127(1978).
- [4] - Dal Cappello C, Tavard C, Lahmam-Bennani A, Dal Cappello M *J.phys.B* 17 4557(1984).
- [5]- Massey H S W, Mohr C B O. *Proc, Ray Soc.*A140 613(1933).
- [6]- Bray I, Konovalov D A et McCarthy I E. *Phys. Rev. A.* **43**, 5878 (1991).
- [7]- Bray I, Konovalov D A et McCarthy I E. *Phys. Rev. A.* **44**, 5586. (1991).
- [8] – Bray I, Konovalov D A et McCarthy I E. *Phys. Rev. A.* **44**, 7179(1991).
- [9]- Bray I et McCarthy I E. *Phys. Rev. A.* **46**, 5916 (1992).
- [10] – Bray I et Stelbovics A T. *Phys. Rev. Lett.* **61**, 53 (1992).
- [11] – Bray I et Stelbovics A T. *Phys. Rev. A.* **46**, 6995 (1992).
- [12]- Bray I et Stelbovics A T. *Phys. Rev. Lett.* **70**,746 (1993).
- [13] - Bray I, Fursa D V et McCarthy I E. *Phys. Rev. A.* **47**, 1101. (1993).
- [14]- Fursa D V *Phys. Rev. A.* **52**, 1279(1995).
- [15]- Bray I , et Fursa D V. *Phys. Rev. A.* **54**, 2991 (1996).
- [16] - Bray I. *Phys. Rev. Lett.* **89**, 273201(2002).
- [17] - Stelbovics A T. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1570 (1999).
- [18] - Bray I, Fursa D V et Stelbovics A T. *Phys. Rev. A.* **63**, 040702 (2001).
- [19]- Bray I, Bartschat K. Fursa D.V. et Stelbovics A.T. *J. Phys. B.* **36**, 3425 (2003).
- [20] - Bray I, Fursa D V et Stelbovic A T s. *Phys. Rev. A.* **74**, 034702 (2006).
- [21] - Colgan J, Foster M, Pindzola M S, Bray I, Stelbovics A T et Fursa D V. *J. Phys. B.***42**, 145002(2009).
- [22] – Bray I, Beck J, Plottoke C J.*phys.B*32 4309(1999).
- [23] – Kheifets A, Bray I, Lahmam Bennani A, Duguet A and Taouil J, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **32**, 5047 (1999).
- [24] - Bray I, McCarthy I E, Mitroy J, and Ratnavelu K. *Phys. Rev. A.* **39**, 4998(1989).
- [25] – Bray I, Madison D H et McCarthy I E. *Phys. Rev. A.* **41**, 5916(1990).

- [26]-. Brauner M, Briggs J S. and Klar H, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **22**, 2265 (1989).
- [27] - Dal Cappello C, Joulakian B, Langlois J *Journal de Physique IV.* **03125**(1993).
- [28] - Born M *Z Phys.* **37** 863 (1926)
- [29] - Sahlaoui M thèse Application du Formalisme Variationnel à l'ionisation de la Molécule d'Eau(2012).
- [30] - Gao J F, Madison D H et Peacher J L, *Phys. Rev. A*, **72**, 020701(2005)
- [31] – Gao J F, Peacher J L et Madison D H, *J. Chem. Phys.*, **123**, 204302(2005)

Chapitre II

Ionisation de cibles atomiques et moléculaires par impact électronique

II-1. Introduction

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

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

ont pris en compte l'approximation de fermeture pour considéré le reste des états intermédiaires et ont ajoutés la contribution de la troisième approximation de Born calculée dans l'approximation de Glauber.

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

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

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

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

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

II.2 Calculs de la section efficace triplement différentielle :

➤ Cas d'une Cible atomique :

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

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

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

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

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

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

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

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

N est le nombre des électrons de la cible.

L'état initial qui correspond à une particule incidente de n électrons liés est décrit comme le produit :

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

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

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

Où k_f est le moment de la particule diffusée.

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

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

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

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

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

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

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

- **Cas d' un seul électron actif**

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

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

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

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

V est aussi réduit à

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

L'élément de la matrice T_{fi}^{B1} est donc réduit à la somme des deux termes suivant :

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

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

- **Cas de deux électrons actifs**

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

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

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

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

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

V est réduit par l'approximation du cœur gelé à

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

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

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

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

➤ **Cas d'une cible moléculaire**

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

$$T^{B2} = \langle \varphi k_s(r_0) \Psi_{k_e}^{(-)}(r_1) | V G_0^+ V | \varphi k_i(r_0) \Phi_{OM}(r_1) \rangle \quad (\text{II-29})$$

II.3 Principe variationnel de Schwinger :

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

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

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

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

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

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

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

Avec

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

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

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

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

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

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

$$B = \frac{\langle \psi_f^{(-)} | V | \phi_i \rangle}{\langle \psi_f^{(-)} | V - V G_0^{(+)} V | \psi_i^{(+)} \rangle} \quad (\text{II-37})$$

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

$$[T_{fi}] = \frac{\langle \psi_f^{(-)} | V | \phi_i \rangle \langle \phi_f | V | \psi_i^{(+)} \rangle}{\langle \psi_f^{(-)} | V - V G_0^{(+)} V | \psi_i^{(+)} \rangle} \quad (\text{II-38})$$

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

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

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

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

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

Références

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

Chapitre III

Calcul théorique des sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation des molécules biologiques de forme XH_n

1. Introduction

Les méthodes d'approximation qui permettent d'extraire des données précises sans compliquer les calculs sont indispensables dans l'étude des cibles atomiques et moléculaire avec plus de deux électrons.

On prend comme exemple l'approximation de Born dans le cas de l'ionisation simple qui permet l'identification du processus de collision et d'autres mécanismes comme Shake-off two step 1 et Two-step 2 [1-4] pour l'ionisation double.

On considère l'approximation de Born comme la meilleure méthode dans l'étude du processus de collision vu sa flexibilité dans les calculs analytiques et numériques qui est très

bien détaillé par Dal Cappello *et al.* [4] qui l'ont appliqué dans les systèmes atomiques simples comme l'hydrogène et l'atome d'hélium.

Concernant nos travaux, nous nous sommes fixés l'objectif d'étudier l'ionisation des deux molécules d'intérêt biologiques; la molécule du Méthane (CH_4) et la molécule d'ammoniac (NH_3).

Nous avons appliqué la deuxième approximation de Born pour étudier l'ionisation simple de ces molécules par impact électronique en introduisant plusieurs d'autres mécanismes comme exemple l'approximation de fermeture lorsqu'on prend en considération tous les états intermédiaire discrets et continus.

Puisque le méthane et l'ammoniac sont des molécules d'intérêt biologique, il est nécessaire de faire plusieurs tests de convergence et de simulations numériques de ces processus afin d'obtenir des résultats précis de sections efficaces d'ionisation. Cependant, plusieurs travaux théoriques et expérimentaux se sont focalisés sur l'étude des sections efficaces de l'ionisation de la molécule d'eau par impact électronique.

Dans ce chapitre, nous allons présenter le formalisme utilisé pour le calcul de la section efficace triplement différentielle de l'ionisation par impact électronique de ces deux molécules de forme chimique XH_n .

Ces sections efficaces ont été corrigées par le facteur de Gamow pour un traitement de l'interaction de post-collision entre les électrons diffusé et éjecté, cette méthode est déjà prouvée et conseillé par Kheifets *et al.* [5] et Sahlaoui *et al.* [6] quand les énergies des particules sont comparables. Cette dernière a été calculée dans le modèle trois coulomb (3C) présenté par Brauner *et al.* [7] ce formalisme est bien détaillé dans le premier chapitre.

Le facteur de Gamow exprime la normalisation de la troisième fonction de coulomb qui décrit l'interaction post-collision entre les électrons sortants.

La majorité des scientifiques qui ont travaillé sur cette interaction ont pu démontrer que ce facteur est indispensable dans les calculs des sections efficaces lorsqu'on a des énergies comparables des électrons sortants et ils ont prouvé que cette interaction est importante même quand ces énergies ne sont pas comparables et même si l'énergie d'incidence est petite par rapport l'énergie d'éjection.

2. Théorie :

Le calcul des sections efficaces triplement différentielles (TDCS) est la méthode précise pour étudier la simple ionisation par impact électronique et elle est donnée comme suit :

$$\frac{d^3\sigma}{dE_e \hat{\mathbf{k}}_e d\hat{\mathbf{k}}_s} = \frac{1}{2\pi^2} \frac{k_e k_s}{k_i} |T|^2 \quad (\text{III. 1})$$

Tel que k_e, k_s et k_i sont respectivement les moments des électrons éjecté, diffusé et incident, $E_e = \frac{k_e^2}{2}$ est l'énergie d'éjection. On note aussi que l'équation (III.1) obéit à la loi de la conservation de l'énergie définie par l'équation $E_i - E_e - E_s + U_{IP} = 0$ tel que $E_i = \frac{k_i^2}{2}$ est l'énergie incidente et U_{IP} est l'énergie d'ionisation.

$$T = \langle \Psi_f | (V + VG_0^+ V) | \Psi_i \rangle \quad (\text{III. 2})$$

est l'élément matrice du système cible-projectile de l'état initial $|\Psi_i\rangle$ à l'état final $\langle \Psi_f |$ causé par l'interaction :

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

Tel que r_0 et r_i sont des vecteurs de position de l'électron projectile et le $i^{\text{ème}}$ électron respectivement,

Z : est la charge

N est le nombre d'électrons de la cible ,

G_0^+ dans l'équation (III.2) représente l'opérateur de Green.

Loin du centre d'interaction, on considère les électrons projectile et diffusé comme des électrons libres et l'état initial et l'état final peuvent être écrits comme suit :

$$|\Psi_i\rangle = \Theta_{\mathbf{k}_i}(\mathbf{r}_0) \Phi_a(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_N) \quad (\text{III.4})$$

$$\langle \Psi_f | = \Theta_{\mathbf{k}_s}(\mathbf{r}_0) \Phi_b(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_N) \quad (\text{III.5})$$

Les fonctions d'ondes $|\Theta_{\mathbf{k}_i}\rangle$ et $|\Theta_{\mathbf{k}_s}\rangle$ des électrons incident et diffusé sont choisit comme des fonctions d'onde plane $\Theta_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})=\exp(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$.

En général, un problème de collision a de bonnes chances d'être décelé, puis résolu, si l'on parvient à identifier les états initial et final.

Dans la théorie non relativiste, la propriété la plus essentielle émerge du fait que dans le passé (avant la collision $t \rightarrow -\infty$) et dans le futur (après la collision $t \rightarrow +\infty$), les particules dans le continuum sont libres. Cela signifie, en particulier, que dans les limites ($t \rightarrow \pm\infty$), il n'y a pas d'interaction entre les particules libres et les électrons liés (pour plus de détails, se référer à la référence [8])

Pour simplifier le problème de $N+1$ électrons et puisque la réaction de collision est considérée très rapide, on peut utiliser l'approximation dite du cœur gelée qui permet de réduire le problème à un ou deux électrons actifs et ainsi la réaction est vue comme une réaction entre le projectile et l'électron actif de l'atome. Dans ce cas, la fonction d'onde donnée dans les équations (III.4) et (III.5) ainsi que l'énergie d'interaction peut être réduites comme suit :

$$|\Psi_i\rangle = \Theta_{\mathbf{k}_i}(\mathbf{r}_0) \Phi_a(\mathbf{r}_1) \quad (\text{III.6})$$

$$|\Psi_f\rangle = \Theta_{\mathbf{k}_s}(\mathbf{r}_0) \psi_{ke}^{(-)}(\mathbf{r}_1) \quad (\text{III.7})$$

$$V = -\frac{Z_{eff}}{r_0} + \frac{1}{|r_0 - r_1|} \quad (\text{III.8})$$

Ou Z_{eff} est la charge effective de l'ion résiduel prise égale à 1.

Pour un processus d'ionisation d'une cible moléculaire par impact électronique, le problème réside dans le fait qu'une cible atomique a une distribution de charge symétrique alors que la cible moléculaire n'a pas. En d'autres termes l'orientation d'une cible moléculaire doit être prise en compte lors de la réaction de collision et puisque toutes les orientations dans l'espace sont équiprobable une moyenne sphérique du TDCS est nécessaire, il s'ensuit que la TDCS prend la forme suivante :

$$\frac{d^3\sigma}{dE_e \hat{\mathbf{k}}_e d\hat{\mathbf{k}}_s} = \frac{1}{2\pi^2} \frac{k_e k_s}{k_i} \int \frac{d\Omega}{8\pi} |T|^2 \quad (\text{III.9})$$

L'intégration sur $d\Omega$ signifie une moyenne spherique de toutes les orientations moléculaires. Dans ce formalisme, l'orientation moléculaire dans un système de laboratoire est représentée par des angles d'Euler (α, β, γ) . En conséquence $d\Omega = \sin(\beta) d\beta d\alpha d\gamma$

D'autres parts, les particules sortantes sont indiscernables, il s'ensuit que l'échange entre l'électron diffusé et éjecté doit être considéré dans l'état final :

$$|\Psi_f\rangle = W_{\xi_{se}}^{(-)} \left\{ \Theta_{k_s}(\mathbf{r}_0) \psi_{k_e}^{(-)}(\mathbf{r}_1) \pm \Theta_{k_s}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_e}^{(-)}(\mathbf{r}_0) \right\} \quad (\text{III. 10})$$

Dans cette équation (III.10), le facteur dit de Gamow $W_{\xi_{se}}^{(-)} = e^{-\frac{\pi\xi_{se}}{2}} \Gamma(1 - i\xi_{se})$ est inclut pour considérer l'interaction post-collision entre les deux électrons lent et rapide tel que $\xi_{se} = \frac{1}{q_{se}}$, $q_{se} = q_s - q_e$

Dans ce travail, nous nous sommes intéressés à la molécule du méthane (CH_4) et la molécule d'ammoniac (NH_3). Ce qui caractérise spécifiquement ces cibles moléculaires est que chacune d'elles contient un atome lourd par rapport aux atomes d'hydrogène H. Le centre de masse est très proche du noyau lourd, dans ce cas chaque orbital moléculaire (MO) peut être étendue sur un ensemble de bases $\left\{ \phi_{n_v, l_v, m_v}^{\alpha_v} \right\}$ centrées sur l'atome lourd [9,10].

$$\Phi_{\text{MO}}(\mathbf{r}_0) = \sum_{v=1}^M \omega_v \phi_{n_v, l_v, m_v}^{\alpha_v}(\mathbf{r}_0) \quad (\text{III. 11})$$

Ou ω_v est la contribution de l'amplitude d'un élément de base $\phi_{n_v, l_v, m_v}^{\alpha_v}$ donné dans le système moléculaire, prendre la forme suivante :

$$\phi_{n_v, l_v, m_v}^{\alpha_v}(\mathbf{r}_0) = R_{n_v}^{\alpha_v}(\mathbf{r}_0) Y_{l_v, m_v}(\hat{\mathbf{r}}_0) \quad (\text{III. 12})$$

$R_{n_v}^{\alpha_v}(\mathbf{r}_0)$ désigne la partie radiale choisie comme une fonction de type Slater et $Y_{l_v, m_v}(\hat{\mathbf{r}}_0)$ est l'harmonique sphérique réelle.

L'un des avantages d'utiliser une fonction d'onde moléculaire centrée sur le noyau lourd est la possibilité d'effectuer et d'améliorer les calculs analytiques par une moyenne sur toutes les orientations moléculaires ce qui est traduit par une intégration analytique sur $d\Omega$ qui apparait dans l'équation (III.9), mais avant cela nous devons utiliser une transformation de la fonction d'onde moléculaire du système moléculaire au système de laboratoire donnée par :

$$Y_{l_v, m_v}(\hat{\mathbf{r}}_0) = \sum_{\mu=-l_v}^{+l_v} D_{m_v \mu}^{(l_v)}(\alpha, \beta, \gamma) Y_{l_v \mu}(\hat{\mathbf{r}}_0) \quad (\text{III. 13})$$

Ou $D_{m_v \mu}^{(l_v)}$ est l'élément de matrice de rotation. Grâce à la propriété d'ortho-normalisation de cet opérateur de rotation:

$$\int d\Omega D_{m_v \mu}^{(l_1)}(\Omega) \int d\Omega D_{m_v \mu}^{(l_2)}(\Omega) = \frac{8\pi^2}{2l_1 + 1} \delta_{l_1 l_2} \delta_{m_1 m_2} \delta_{\mu_1 \mu_2} \quad (\text{III. 14})$$

Nous pouvons résoudre analytiquement la moyenne sphérique dans l'équation (III.9), ce qui donne :

$$\frac{d^3 \sigma}{dE_e d\mathbf{k}_e d\mathbf{k}_s} = \frac{1}{2\pi^2} \frac{k_e k_s}{k_i} \sum_{v=1}^M \frac{m_v}{2l_1 + 1} \sum_{\mu=-l_v}^{+l_v} |W_{\xi s e}^{(-)} T_v|^2 \quad (\text{III. 15})$$

où:

$$|T_v|^2 = |T_v^d|^2 + |T_v^e|^2 - \Re(T_v^d T_v^{e*}) \quad (\text{III. 16})$$

T_v^d et T_v^e sont les amplitudes directes et d'échanges respectivement. La résolution spectrale de l'opérateur de Green et l'approximation de fermeture donne:

$$T_v^d = \frac{4\pi}{\mathbf{q}^2} \{ [1 - I(\mathbf{q}_i, \mathbf{q}_s, \mathbf{q})] F_v(\mathbf{q}) - [1 + I(\mathbf{q}_i, \mathbf{q}_s, \mathbf{q})] p_v \} \\ + \frac{4}{\pi} \int d\mathbf{k} \frac{F_v(\mathbf{q}_s) - F_v(\mathbf{q}_i)}{\mathbf{q}_s^2 \mathbf{q}_i^2 (k^2 - \bar{k} - i\eta)} \quad (\text{III. 17})$$

où : $\mathbf{q} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_s$, $\mathbf{q}_s = \mathbf{k} - \mathbf{k}_s$ et $\mathbf{q}_i = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}$. L'intégrale singulière :

$$I(\mathbf{q}_i, \mathbf{q}_s, \mathbf{q}) = \frac{\mathbf{q}^2}{\pi^2} \int \frac{d\mathbf{k}}{\mathbf{q}_s^2 \mathbf{q}_i^2 (k^2 - \bar{k} - i\eta)} \quad (\text{III. 18})$$

Ce qui peut être réalisé analytiquement selon Byron et *al.* [11]. On définit aussi :

$$F_v(\mathbf{q}) = \langle \psi_{ke}^{(-)} | \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_1) | \phi_{n_v, l_v, m_v}^{\alpha_v} \rangle \quad (\text{III. 19})$$

$$p_v = \langle \psi_{ke}^{(-)} | \phi_{n_v, l_v, m_v}^{\alpha_v} \rangle \quad (\text{III. 20})$$

$$\tilde{p}_v = \frac{|\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_e|^2}{4\pi} \langle \Theta_{\mathbf{k}_s} | \phi_{n_v, l_v, m_v}^{\alpha_v} \rangle \langle \psi_{ke}^{(-)} | \frac{1}{r_0} | \Theta_{\mathbf{k}_i} \rangle \quad (\text{III. 21})$$

Dans le cas où l'énergie d'incidence est suffisamment grande, l'amplitude d'échange T_v^e peut être approximé par sa partie dominante i.e le premier terme de Born. Maintenant, en utilisant l'approximation dite d'Ochkur [12], on peut facilement trouver:

$$T_v^e = \frac{4\pi}{|\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_e|^2} \{F_v(\mathbf{q}) - \tilde{p}_v\} \quad (\text{III. 22})$$

Dans ce travail, l'état continu de la particule la plus lente est décrit par la fonction d'onde de coulomb :

$$\langle \psi_{ke}^{(-)} \rangle = \frac{e^{i\mathbf{k}_e \cdot \mathbf{r}_1}}{(2\pi)^2} W_{\xi_e}^{(-)} \mathbf{F}_1[i\xi_e; 1; -i(\mathbf{k}_e \cdot \mathbf{r}_1 + \mathbf{k}_e \cdot \mathbf{r}_1)] \quad (\text{III. 23})$$

Cette fonction d'onde de l'état du continuum est une solution analytique de l'équation de Schrödinger des particules chargées dans un potentiel de Coulomb. La définition analytique de cette fonction permet de d'améliorer le calcul mathématique de l'élément de matrice (III.19),(III.20) et (III.21).

L'intégral

$$\frac{4}{\pi} \int d\mathbf{k} \frac{F_v(\mathbf{q}_s) - F_v(\mathbf{q}_i)}{q_s^2 q_i^2 (k^2 - \bar{k} - i\eta)} \quad (\text{III. 24a})$$

qui figure dans l'équation (III.17) peut être calculer numériquement. Il est important de noter que la précision de cette intégrale singulière (III.24a) est très demandée pour avoir un résultat précis de la seconde approximation de Born. Cependant les deux singularités tridimensionnelles \mathbf{q}_i^{-2} et \mathbf{q}_s^{-2} et l'unidimensionnel $(k^2 - \bar{k} - i\eta)$ rend cette intégrale très difficile à réaliser .C'est pour raisons qu'une méthode a été développée dans nos précédant travaux [15] pour détourner analytiquement toute la singularité.

Et le deuxième terme de Born est donné comme suit

$$T_v^{B2} = -\frac{4}{\pi} \int d\mathbf{k} \frac{F_v(\mathbf{q}) + p_v - H_v(\mathbf{q}_s - \mathbf{q}_i)}{q_s^2 q_i^2 (k^2 - \bar{k}^2 - i\eta)} \quad (\text{III. 24b})$$

3. Calcul du facteur de forme atomique :

Dans cette partie, on va calculer le facteur de forme atomique qui est très important dans les calculs des sections efficaces. On considère que les électrons incidents et diffusés sont décrits par des fonctions d'ondes planes. Les états liés sont présentés par une fonction type-Slater et les états libres des électrons actifs sont décrits par une fonction d'onde coulombienne. Le résultat obtenu est écrit comme une somme finie de produits de polynômes hypersphériques (polynôme de Gegenbauer) [16] et des fonctions de structures analytiques simples.

Méthode mathématique

Le facteur de forme atomique est une intégrale définie par la transformation de Fourier suivante :

$$F_{nlm}(q) = \langle \psi_{ke}^{(-)} | e^{iq \cdot r} | \phi_{nlm} \rangle \quad (\text{III. 25})$$

Où $|\phi_{nlm}\rangle$ et $|\psi_{ke}^{(-)}\rangle$ sont les états initial et final, respectivement, de l'électron actif.

$q = k_f - k_i$ est le moment de transfert.

On définit les orbitales de type-Slater comme :

$$|\Phi_{nlm}\rangle = R_n^a(r) Y_l^m(r) \quad (\text{III. 26})$$

$Y_l^m(r)$: L'harmonique sphérique normalisée

$$R_n^a(r) = B r^{n-1} e^{-ar} \quad B = \frac{(2a)^{n+1/2}}{\sqrt{(2n)!}} \quad (\text{III. 26a})$$

où

$n > l$: un nombre entier positif

a : Un paramètre variationnel

Pour les états liés décrits par des orbitales hydrogénoïdes, la partie radiale de la fonction d'onde est de la forme

$$R_{nl}(r) = 2\omega^{3/2} \left[\frac{\Gamma(n-1)}{n\Gamma(n+1)} \right]^{1/2} (2\omega r)^l e^{-\omega r} L_{n-l-1}^{2l+1}(2\omega r) \quad (\text{III. 27})$$

Où $\omega = \frac{z_{eff}}{n}$ avec z_{eff} la charge ionique effective et $L_k^\lambda(x)$ sont les polynômes de Laguerre [17].

Nous pouvons utiliser le développement suivant :

$$L_k^\lambda(x) = (\lambda + k)! \sum_{n=0}^k \frac{(-1)^n x^n}{(k-n)! (\lambda+k)! n!} \quad (\text{III. 28})$$

afin d'écrire la partie radiale de la fonction d'onde comme une somme de fonctions de type-Slater :

$$R_{nl}(r) = 2\omega^{3/2} \left[\frac{\Gamma(n-1)\Gamma(n+l+1)}{n} \right]^{1/2} \sum_{n=0}^{n-l-1} \frac{(-1)^n (2\omega)^{l+n} r^{l+n} e^{-\omega r}}{\Gamma(n+1)\Gamma(n-l-1)\Gamma(2l+n+2)} \quad (\text{III. 29})$$

Dans le cas de l'ionisation, l'état du continuum de l'électron éjecté peut être approximé par une fonction d'onde coulombienne :

$$\psi_{k_e}^{(-)}(r) = D^{(-)} e^{ik_e \cdot r} {}_1F_1[-i\xi; 1; -i(k_e \cdot r + \mathbf{k}_e \cdot \mathbf{r})] \quad (\text{III. 30})$$

$$D^{(-)} = e^{\frac{\pi\xi}{2}} \Gamma(1+i\xi),$$

$\xi = \frac{z_{eff}}{k_e}$: le paramètre de Sommerfeld et ${}_1F_1$ est la fonction hypergéométrique [18] confluyente

✚ Calcul de l'élément de matrice $F_{nlm}(\mathbf{q})$

On écrit l'intégrale $F(\mathbf{q})$ sous la forme :

$$F_{nlm}(\mathbf{q}) = BD^{*(-)} \left[\frac{\vartheta^{n-l}}{\vartheta \varepsilon^{n-l}} J(\varepsilon) \right] \quad (\text{III. 40})$$

$$J(\varepsilon) = \int \frac{e^{-\tilde{\alpha}r}}{r} r^l Y_l^m(\hat{\mathbf{r}}) e^{ip \cdot r} {}_1F_1[i\xi; 1; i(k_e r + \mathbf{k}_e \cdot \mathbf{r})] dr \quad (\text{III. 41})$$

Ou $\mathbf{p} = \mathbf{q} - \mathbf{k}_e$ et $\tilde{\alpha} = \alpha - \varepsilon$

Lorsqu'on utilise la forme suivante de la fonction hypergéométrique, au aura :

$${}_1F_1[\alpha; b; c] = \frac{i}{2\pi} \frac{\Gamma(1-\alpha)\Gamma(b)}{\Gamma(b-\alpha)} \oint_c \frac{(-t)^{1-\alpha} e^{ite}}{(1-t)^{1+\alpha-b}} dt \quad (\text{III. 42})$$

Le contour d'intégration C est un contour fermé qui concerne au point t=1 et encercle l'origine une fois dans le sens opposé des aiguilles d'une horloge.

Alors on peut écrire,

$$J(\varepsilon) = \frac{i}{2\pi} \phi_c dt \frac{(1-t)^{-i\xi}}{(-t)^{1-i\xi}} \int \frac{r^l Y_l^m(\hat{r})}{e^{(a-itk_e)r}} e^{ig \cdot r} \frac{dr}{r} \quad (\text{III.43})$$

avec $g = p + tk_e$

a) Cas des états ns

On a la méthode du contour complexe de Nordsieck [19]

$$J(\varepsilon) = \sqrt{4\pi} [q^2 - (k_e + i\bar{\alpha})^2]^{-i\xi} [p^2 + \bar{\alpha}^2]^{i\xi-1} \quad (\text{III.44})$$

Dans ce cas, l'harmonique sphérique est réduite à $1\sqrt{4\pi}$ et $J(\varepsilon)$ devient une intégrale simple qui peut être résolue par cette méthode

Si on introduit la fonction génératrice des polynômes de Gegenbauer [16]

$$[1 - 2xw + w^2]^{-\lambda} = \sum_{\mu=0}^{\infty} C_{\mu}^{\lambda}(x) \omega^{\mu} \quad |\omega| < 1, \lambda \neq 0 \quad (\text{III.45})$$

Avec

$C_{\mu}^{\lambda}(x)$ les polynômes de Gegenbauer,

$$J(\varepsilon) = \frac{\sqrt{4\pi}}{T} \left[\frac{T}{S} \right]^{i\xi} \sum_{\mu=0}^{\infty} \sum_{\nu=0}^{\infty} C_{\mu}^{1-i\xi}(x) C_{\nu}^{i\xi}(y) \omega^{\mu} v^{\nu} \quad (\text{III.46})$$

Avec

$$x = \frac{\alpha}{\sqrt{T}} \quad y = \frac{(\alpha - ik_e)}{\sqrt{S}} \quad , \quad v = \frac{\varepsilon}{\sqrt{S}} \quad (\text{III.47})$$

$$\omega = \frac{\varepsilon}{\sqrt{T}} \quad , \quad T = \alpha^2 + P^2 \quad , \quad S = q^2 + (\alpha - ik_e)^2 \quad (\text{III.48})$$

On aura :

$$F_{nlm}(q) = BD^{*(-)} \frac{\sqrt{4\pi}}{T} \left[\frac{T}{S} \right]^{i\xi} \sum_{\mu=0}^{\infty} \sum_{\nu=0}^{\infty} C_{\mu}^{1-i\xi}(x) C_{\nu}^{i\xi}(y) \left[\frac{\vartheta^n (\omega^{\mu} v^{\nu})}{\vartheta \varepsilon^n} \right]_{\varepsilon=0^+} \quad (\text{III.49})$$

Si on utilise la règle de dérivation de Leibniz

$$\frac{\vartheta^n}{\vartheta z^n} U(z) V(z) = \sum_{x=0}^n \binom{n}{x} \frac{\vartheta^{(n-x)}}{\vartheta z^{(n-x)}} U(z) \frac{\vartheta^x}{\vartheta z^x} V(z) \quad (\text{III.50})$$

On aura

$$F_{nlm}(q) = BD^{*(-)} \frac{\sqrt{4\pi}}{T} \left[\frac{T}{S} \right]^{i\xi} \sum_{x=0}^n \binom{n}{x} \frac{C_{n-x}^{1-i\xi}(x) C_x^{i\xi}(y)}{\sqrt{T^{(n-x)} S^x}} \quad (\text{III.51})$$

On note que les termes non nuls dans l'équation (III.47) sont seulement ceux avec $\mu + \nu = n$

b) Cas général

Dans le cas général, on considère que l'harmonique sphérique n'est plus une constante. Pour résoudre l'équation (III.43) on aura besoin d'une autre méthode qui s'appelle le développement de Rayleigh.

Pour résoudre la partie angulaire nous utilisons une fonction d'onde plane en termes de fonctions de Bessel sphériques $J_\lambda \left(gr = \sqrt{\frac{\pi}{2gr}} \right) J_{\lambda+1/2}(gr)$ et d'harmoniques sphériques

$$e^{ig.r} = 4\pi \sum_{\lambda=0}^{\infty} \sum_{\mu=-\lambda}^{+\lambda} i^\lambda j_\lambda(gr) Y_\lambda^\mu(\hat{\mathbf{g}}) |Y_\lambda^\mu(\hat{\mathbf{r}})|^* \quad (\text{III.52})$$

On trouve ;

$$J(\varepsilon) = 2i^{l+1} \phi dt \frac{(1-t)^{-i\xi}}{(-t)^{1-i\xi}} Y_l^m(\hat{\mathbf{g}}) \int_0^\infty r^{l+1} e^{-(\tilde{\alpha}-itk_e)r} jt(gr) dr \quad (\text{III.53})$$

L'intégrale devient comme suit :

$$\int_0^\infty r^{l+1} e^{-Br} jt(gr) dr = \frac{(2g)^l \Gamma(l+1)}{[g^2 + B^2]^{l+1}} \Re(B) > 0 \quad (\text{III.54})$$

Il en résulte :

$$J(\varepsilon) = \Gamma(l+1) (2i)^{l+1} \phi_c dt \frac{(1-t)^{-i\xi} y_l^m(g)}{(-t)^{1-i\xi} [g^2 + (\tilde{\alpha} - itk_e)^2]^{l+1}} \quad (\text{III.55})$$

Avec $Y_l^m(g) = |g|^l Y_l^m(\hat{\mathbf{g}})$ est l'harmonique sphérique solide régulier [19].

Mettons $[g^2 + (\tilde{\alpha} - itk_e)^2]$ dans la forme $\alpha(1-t) + ct$ avec $\alpha = |q - \mathbf{k}_e|^2 + \tilde{\alpha}^2$ et $c = q^2 + (\tilde{\alpha} - i\mathbf{k}_e)^2$ et selon le théorème d'addition d'harmonique solides réguliers :

$$\begin{aligned} & Y_l^m(g) \\ & = 4\pi(2l \\ & + 1)!! \sum_{l_1=0}^l \sum_{m_1=-l_1}^{+l_1} \frac{\langle lm|l_1 m_1|l-l_1 m-m_1 \rangle Y_{l_1}^{m_1}(\mathbf{q}) Y_{l-l_1}^{m-m_1}(-\mathbf{k}_e)}{(2l+1)!! [2(l-l_1)+1]!! (1-t)^{l_1-l}} \end{aligned} \quad (\text{III.56})$$

où

$(2l+1)!! = 1.3 \dots (2l+1)$ et $\langle lm|l_1 m_1|l-l_1 m-m_1 \rangle$ sont les coefficients de Gaunt lesquels peuvent être exprimés en termes de symboles $3jm$ de Wigner comme :

$$\begin{aligned} & \langle lm|l_1 m_1|l-l_1 m-m_1 \rangle \\ & = (-1)^m \left[\frac{(2l+1)(2l_1+1)[2(l-l_1)+1]}{4\pi} \right]^{1/2} \begin{pmatrix} l-l_1 & l_1 & l \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l-l_1 & l_1 & l \\ m-m_1 & m_1 & -m \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (\text{III.57})$$

On écrit :

$$J(\varepsilon) = 16\pi^2 \Gamma(l+1) (2i)^l (2l+1)!! \sum_{l_1=0}^l \sum_{m_1=-l_1}^{+l_1} \frac{\langle lm | l_1 m_1 | l - l_1 m - m_1 \rangle}{(2l+1)!! [2(l-l_1)+1]!!} Y_{l_1}^{m_1}(\mathbf{q}) Y_{l-l_1}^{m-m_1}(-\mathbf{k}_e) \frac{i}{2\pi} \phi_c dt \frac{(-t)^{i\xi-1} (1-t)^{l-l_1-i\xi}}{[\alpha(1-t)+ct]^{l+1}} \quad (\text{III. 58})$$

En utilisant le résultat de l'équation du calcul du contour de l'intégral,

$$I = \sum_{j=0}^{l_1} \frac{(1-i\xi)_l (-l_1)_j}{\Gamma(l+1) \Gamma(j+1) (i\xi-1)_j} \frac{\alpha^{-(l+1)+i\xi+j}}{c^{j+i\xi}} \quad (\text{III. 59})$$

On peut déduire :

$$J(\varepsilon) = 16\pi^2 (2i)^l (2l+1)!! \sum_{l_1=0}^l \sum_{m_1=-l_1}^{+l_1} \frac{\langle lm | l_1 m_1 | l - l_1 m - m_1 \rangle}{(2l+1)!! [2(l-l_1)+1]!!} Y_{l_1}^{m_1}(\mathbf{q}) Y_{l-l_1}^{m-m_1}(-\mathbf{k}_e) \sum_{j=0}^{l_1} \frac{((1-i\xi)_{l-j} (i\xi)_j) \alpha^{-(l+1)+i\xi+j}}{(l+1)_{-j} \Gamma(j+1) c^{j+i\xi}} \quad (\text{III. 60})$$

Avec

$(\alpha)_n = \Gamma(\alpha+n)/\Gamma(\alpha)$ est le symbole de pauchehamer [19], il est facile de voir que :

$$\alpha^{i\xi+j-l-1} c^{-j-i\xi} = \frac{1}{T^{l+1}} \left[\frac{T}{S} \right]^{j+i\xi} \sum_{\mu=0}^{\infty} \sum_{\nu=0}^{\infty} C_{\mu}^{l+1-j-i\xi}(x) C_{\nu}^{j+i\xi}(y) w^{\mu} v^{\nu} \quad (\text{III. 61})$$

Où x, y, v, w, S et T sont définies dans les équations (III.47) et (III.48).

La règle de dérivation de Leibnitz est utilisée dans l'équation (III.50).

Alors :

$$F_{nlm}(\mathbf{q}) = BD^{*(-)} (2i)^l (2l+1)!!$$

$$1)!! \frac{16\pi^2}{T^{l+1}} \sum_{l_1=0}^l \sum_{m_1=-l_1}^{+l_1} \frac{\langle lm | l_1 m_1 | l - l_1 m - m_1 \rangle}{(2l+1)!! [2(l-l_1)+1]!!} Y_{l_1}^{m_1}(\mathbf{q}) Y_{l-l_1}^{m-m_1}(-\mathbf{k}_e) \sum_{j=0}^{l_1} \frac{((1-i\xi)_{l-j} (i\xi)_j)}{(l+1)_{-j} \Gamma(j+1)} \left[\frac{T}{S} \right]^{j+i\xi} \sum_{s=0}^{n-l} \binom{n-l}{s} \frac{C_{n-l-s}^{l-j+1-i\xi}(x) C_s^{j+i\xi}(y)}{\sqrt{T^{(n-l-s)} S^s}} \quad (\text{III. 62})$$

Notons que si on pose $l = m = 0$ dans ce résultat, on trouve une autre fois le résultat dans l'équation (III-43) pour les cas ns .

1. Calcul de l'élément de matrice P_{nlm}

L'intégrale $\langle \psi_{ke}^{(-)} | \phi_{nlm} \rangle$ peut être calculée suivant la méthode précédente comme elle peut être déduite de l'équation (III.29) en posant $l_1 = m_1 = 0$ et $q = 0$

$$\langle \psi_{ke}^{(-)} | \phi_{nlm} \rangle = 4\pi B D^{*(-)} (2i)^l \frac{(1-i\xi)^l}{t^{l+1}} \left[\frac{t}{s} \right]^{i\xi} y_l^m(-\mathbf{k}_e) \sum_{n=0}^{n-l} \binom{n-l}{n} C_n^{i\xi} (1) \frac{C_{n-l-n}^{\lambda+1-i\xi}(z)}{\sqrt{t^{n-n} s^n}} \quad (\text{III. 63})$$

$$\text{Ou } Z = \alpha / \sqrt{t} \quad t = \alpha^2 + k_e^2 \quad \text{et } s = (\alpha - ik_e)^2$$

En calculons la matrice $\langle \phi_{nlm} | e^{iq \cdot r} | \phi_{nlm} \rangle$ en utilisant le développement définie dans l'équation (III.51) on obtiens la forme suivante :

$$\begin{aligned} \langle \phi_{nlm} | e^{iq \cdot r} | \phi_{nlm} \rangle &= B^2 4\pi \sqrt{\frac{\pi}{2q}} \sum_{\lambda=0}^{2l} i^\lambda \langle lm|l \\ &- m|\lambda 0 \rangle Y_{\lambda 0}(\hat{\mathbf{q}}) \int_0^\infty dr r^{2n-1/2} e^{-2\alpha r} J_{\lambda+1/2}(qr) \end{aligned} \quad (\text{III. 64})$$

Avec $\int d\hat{r} Y_{lm}(\hat{r}) Y_{\lambda\mu}^*(\hat{r}) = \langle lm|l - m|\lambda 0 \rangle$ on déduit l'intégrale

$$\int dr r^{\mu-1} e^{-Br} J_\nu(qr) = \Gamma(\nu + \mu) \left(\frac{1}{\sqrt{\beta^2 + q^2}} \right)^\mu p_{\mu-1}^{-\nu} \left(\frac{\beta}{\sqrt{\beta^2 + q^2}} \right) \quad (\text{III. 65})$$

Avec $\beta > 0$, $q > 0$, $\Re(\nu + \mu) > 0$ et $P_{\mu-1}^{-\nu}$ est la fonction de Legendre associée.

Références

- [1] - Lahmam-Bennani A, Staicu-Casagrande E M, Naja A, Dal Cappello C et Bolognesi P. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **43**, 105201(2010) .
- [2]- Staicu-Casagrande E M, Lahmam-Bennani A, Dal Cappello C, Schultz M et Ciappina M. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **44**, 055201(2011).
- [3]- Li c, Lahmam-Bennani A, Staicu-Casagrande E M et C Dal Cappello C. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **44**, 115201 (2011).
- [4] - Dal Cappello C, Haddadou A, Menas F and Roy A C. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **44**, 015204(2011).
- [5]- Kheifets A S, Naja A, Staicu Casagrande E M and Lahmam-Bennani A. *J. Phys. B : At Mol. Opt. Phys.* **41**, 145201(2008).
- [6] - Sahlaoui M. Lasri B et Bouamoud M. *Can. J. Phys.* 92 136{140(2014).
- [7] - Brauner M, Briggs J S and Klar H. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **22**, 2265–2287(1989).
- [8] - Belki C D , Théorie quantique des collisions ion-atome de haute énergie(2008).
- [9] - Moccia R. *J Chem. Phys.* 40 2164 (1964).
- [10] - Moccia R. *J. Chem. Phys.* 40 2176(1964).
- [11]- Byron F W Jr. Joachain C J et Piraux B. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 18 3203(1985).
- [12]- Ochkur V I *Sov. Phys.-JETP* 18, 503 (1965).
- [13] -Sahlaoui M. Bouamoud M. Lasri B et Dogan M. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 46 115206(2013).
- [14]- Sahlaoui M., Lasri B et Bouamoud M. *Can. J. Phys.* 92 136{140(2014).
- [15]- Sahlaoui M et Bouamoud M. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 45 085201(2012).
- [16] - Landau L et Lifchitz E. *Mécanique Quantique vol III.* Editions Mir(1967).
- [17]- Gradshteyn I S and Ryzhik I M. *Table of Integrals, Series, and Products.* New York : Academic(1980).
- [18]- McDowell M R C and Coleman J P ,*Introduction to the Theory of Ion-Atom Collisions,* North-Hollan Publishing Company, Amsterdam (1970).
- [19] - Weniger E J. *Collect. Czech. Chem. Commun.* **70**, 1225(2005) .

Chapitre IV

Ionisation de la molécule du méthane CH_4 et de l'ammoniac NH_3 par impact d'électron : Résultats et Discussions

1. Introduction

Dans ce chapitre nous allons présenter les différents résultats des sections efficaces triplement différentielles de la simple ionisation de la molécule du méthane CH_4 ainsi que celle de l'ammoniac NH_3 par impact d'électron en se basant sur l'approche variationnel de Schwinger ainsi que dans le cadre de la première et la deuxième approximation de Born. On s'intéresse aux orbitales moléculaires ($1t_2$) et ($2a_1$) du méthane et au ($1e_1$) et ($3a_1$) de l'ammoniac.

Afin de décrire la fonction d'onde moléculaire, nous rappelons qu'une expansion à un centre sur une base de type Slater est utilisée pour décrire l'orbital cible.

Dans le présent travail, la description proposée par Moccia [1,2] a été adoptée et la précision de ce dernier a été prouvée dans des travaux antérieurs [3-5].

La précision de cette fonction d'onde proposée pour décrire la molécule du CH_4 a été vérifiée en comparant les résultats des sections efficaces triplement différentielles (TDCS) qui provient des expériences de spectroscopie de moment électronique avec les calculs théoriques d'approximation d'impulsion d'onde plane réalisés dans la géométrie symétrique non coplanaire des orbitales ($1t_2$) et ($2a_1$) [3].

Comme il a été mentionné dans des travaux antérieurs par Lahmam-Bennani *et al.* [3], un excellent accord entre la théorie et l'expérience indique que la description proposée par Moccia est de bonne qualité et constitue une description efficace de la structure de la cible.

Pour l'ammoniac (NH_3), l'efficacité de la description du centre de la fonction d'onde moléculaire est inspirée des travaux de Tachino *et al.* [4], Montanari et Miraglia [5], Nixon *et al.* [6].

Dans une première partie, les figures représentant les sections efficaces d'ionisation des orbitales ($1t_2$) et ($2a_1$) de la molécule du méthane (CH_4) sont tracé dans la géométrie coplanaire asymétrique pour un angle d'éjection θ_e , angle de diffusion fixe à $\theta_s = -6^\circ$, les courbes sont présentées avec les paramètres suivants :

- énergie d'éjection $E_e = 12,37 \text{ eV}$ et 74 eV , énergie de diffusion fixée à $E_s = 500 \text{ eV}$, par conséquence, l'énergie d'incidence est ajusté pour satisfaire la loi de conservation d'énergie $E_i = E_e + E_s - U_{ip}$

Les sections efficaces triplement différentielles (TDCS) obtenus sont comparées avec les résultats théoriques et expérimentaux de Lahmam-Bennani *et al.* [3].

La description complète de la méthode expérimentale utilisée est donnée dans la référence [3,7,8]. On note que la structure satellitaire est associée avec l'orbital ($2a_1$) [9]. Puisque cette structure est considérée comme un résultat d'une corrélation électronique compliquée et les effets de réorganisation orbitale [9], une description théorique rigoureuse de cette dernière est réalisée par des méthodes théoriques plus avancés. Cependant, comme il a été conclu par Clark *et al.* [9] à partir des résultats de la distribution des moments, la structure satellitaire est faible pour l'orbital ($2a_1$) du méthane. Par conséquent, nous supposons que cette structure ne devrait pas affecter nos résultats.

D'autre part, les sections efficaces d'ionisation des orbitales ($1t_2$) et ($2a_1$) de la molécule du méthane (CH_4) sont tracé dans la géométrie coplanaire symétrique pour les paramètres cinétiques suivants : $E_e = E_s = 20 \text{ eV}$ et 15 eV dans cette géométrie symétrique $\theta_e = \theta_s = \theta$.

Dans une autre partie, les sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation des deux orbitales ($3a_1$) et ($1e_1$) de la molécule d'ammoniac (NH_3) par impact électronique sont présentées dans la géométrie coplanaire symétrique pour les mêmes conditions que les figures de la partie précédente et les résultats sont comparés avec les résultats théoriques et expérimentales de Nixon *et al.* [6, 10].

2. Ionisation du méthane

i) Géométrie coplanaire asymétrique :

Dans les figures qui suivent; nos prédictions des sections efficaces triplement différentielles (TDCS) utilisant la première approximation de Born (FBA), la deuxième approximation de Born (SBA) ainsi que celle qui résultent de l'approche variationnel de Schwinger sont données dans la géométrie coplanaire asymétrique pour les orbitaux ($1t_2$) et ($2a_1$) du méthane.

Les résultats sont comparés avec les données théoriques et expérimentales de Lahmam-Bennani *et al.* [3]. A partir de ces figures, on peut distinguer deux parties de diffusion spatial binaires (θ_e varie entre 0 et 180°) et région de recul (θ_e varie entre 180 et 360°).

Les données théoriques de Lahmam-Bennani *et al.* [3] sont extrait du modèle 1CW (qui utilise la FBA sans l'effet de l'échange) et le modèle 3CW [11].

Dans le modèle 1CW l'électron éjecté est décrit par la fonction d'onde de coulomb qui prend en compte l'interaction avec l'ion moléculaire résiduel loin du centre de collision. Le modèle 3CW les électrons sortants, diffusés et éjectés sont décrits par les fonctions d'onde de coulomb aussi que l'interaction post-collision entre ces particules.

A partir de la figure 1, on observe que les résultats théoriques sont en bon accord avec les données expérimentales dans la région binaires. Il semble que les courbes de la théorie prédit un pic dans cette région à l'exception les courbes pour $E_e = 12 eV$ où tous les calculs théoriques prévoit deux pics pour l'orbital ($1t_2$) ce qui indique un bon accord avec l'expérience. Cependant, nos résultats dans la seconde approximation de Born (SBA) sont les seuls qui prédisent deux pics dans la région de recul à l'exception pour l'orbital ($2a_1$) pour l'énergie $E_e = 74 eV$, où le modèle 3CW prédit aussi deux pics. C'est évident puisque notre modèle ne décrit pas avec précision l'interaction entre les particules diffusés et l'ion résiduel, avant même de faire des calculs numériques il est déjà prévu que nos courbes ne seront pas bien conformes à l'expérience dans la région de recul malgré que nos résultats sont nettement meilleurs que ceux de Lahmam *et al.* [3].

Dans les tableaux ci-dessous ainsi que et les graphes correspondants, nous allons présenter nos résultats de l'ionisation de la molécule du méthane CH_4 dans la géométrie asymétrique comparés avec ceux des modèles 1CW et 3CW (BBK) ainsi que les résultats expérimentaux disponible [3] :

θ_e	BBK	1CW	Expérience	Born1	Born2	Schwinger
0	1.14	1.55		24.1	24.7	24.6
20	3.66	4.03	2.35	61.2	62.7	59.3
40	7.66	8.58	5.51	149.08	149.20	142.52
60	9.95	10.40	9.78	221.20	222.65	213.22
80	10.32	10.39	9.74	235.9	246.59	235.35
100	9.73	9.21	9.11	236.7	251.42	243.38
120	5.58	5.13	5.84	171.37	177.35	174.16
140	2.17	2.09	3.00	74.50	70.89	71.01
160	1.16	1.05	1.64	29.64	25.74	25.78
200	2.42	1.86	0.678	69.99	66.53	65.25
220	2.68	2.05	0.750	97.90	90.53	90.28
240	2.64	2.12	1.63	113.03	99.79	100.41
260	2.34	2.15	2.10	117.27	98.83	99.40
280	2.19	2.15	2.03	112.10	96.88	96.52
300	1.82	1.93	2.21	98.08	91.13	90.30
320	1.41	1.41	1.32	75.00	73.44	73.08
340	0.96	1.11		44.06	43.86	43.60
360				24.16	24.77	24.62

Tableau IV-1 : sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation de la molécule du méthane par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($1t_2$) dans des conditions géométriques asymétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection est $E_e = 12$ eV, énergie de diffusion $E_s = 500$ eV et l'angle de diffusion est $\theta_s = 6^\circ$, les données de l'expérience, les données du modèle 1CW et 3CW (BBK).

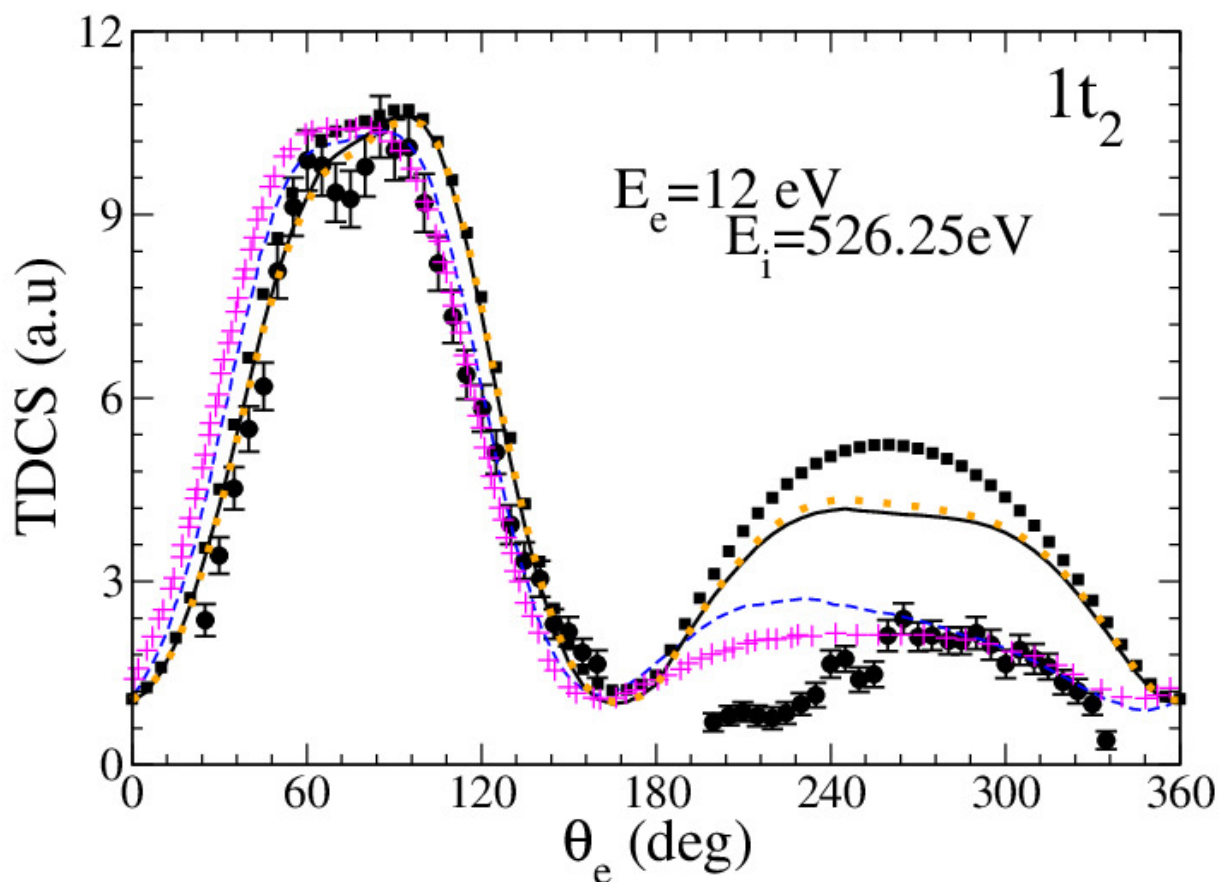


Figure IV-1 : Sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation de la molécule du Méthane par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbitale ($1t_2$) dans des conditions géométriques asymétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection est $E_e = 12$ eV, énergie de diffusion $E_s = 500$ eV et l'angle de diffusion est $\theta_s = 6^\circ$, **cercles pleins** (\bullet) : les données de l'expérience, **carrés pleins** (\blacksquare), **ligne continue** (—) et **petits carrés orange** (\blacksquare) : nos résultats dans la première et la deuxième approximation de Born et Schwinger respectivement. **Ligne discontinue** (---) : les résultats du modèle 3CW, **les plus** ($+$) : représentent les résultats du modèle 1CW.

θ_e	BBK	1CW	Expérience	Born1	Born2	Schwinger
0	0.16	0.25		12.08	12.38	12.31
20	0.50	0.87	2.20	30.61	31.36	29.65
40	2.02	2.31	3.31	74.54	74.60	71.26
60	4.12	4.43	4.56	110.6	111.32	106.61
80	4.40	4.10	4.86	117.97	123.29	117.68
100	2.36	1.93	3.63	118.35	125.71	121.69
120	0.71	0.59	2.87	72.83	88.67	87.02
140	0.20	0.22	1.11	37.25	35.45	35.51
160	0.23	0.15	1.21	14.82	12.87	12.89
180	0.25	0.12		16.40	15.73	14.98
200	0.25	0.07	0.859	34.99	33.26	32.62
220	0.23	0.11	1.77	48.95	45.26	45.11
240	0.16	0.08	1.49	56.51	49.89	50.20
260	0.12		1.99	58.41	49.41	49.70
280	0.11	0.10	2.25	56.04	48.44	48.25
300	0.12	0.16	1.25	49.04	45.56	45.15
320	0.16		1.58	37.5	33.39	36.54
340		0.13		22.03	21.93	21.80
360				12.08	12.38	12.31

Tableau IV-02 : Sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation de la molécule du Méthane par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($1t_2$) dans des conditions géométriques asymétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection est $E_e = 37$ eV, énergie de diffusion $E_s = 500$ eV et l'angle de diffusion est $\theta_s = 6^\circ$, les données de l'expérience, les données du modèle BBK et 1CW.

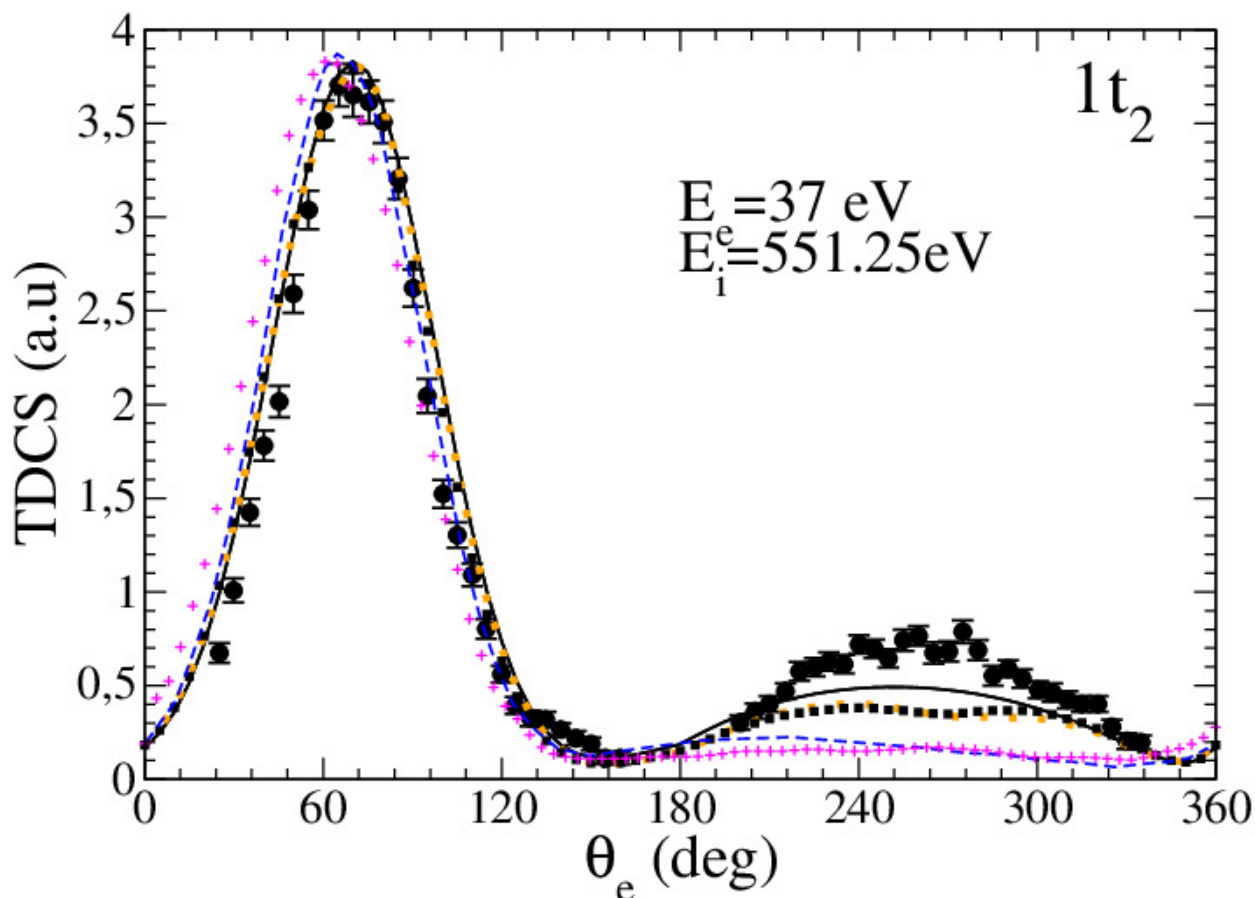


Figure IV-2 : Sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation de la molécule du méthane par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbitale ($1t_2$) dans des conditions géométriques asymétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection est $E_e = 37$ eV, énergie de diffusion $E_s = 500$ eV et l'angle de diffusion est $\theta_s = 6^\circ$, **cercles pleins** (\bullet) : les données de l'expérience, **carrés pleins** (\blacksquare), **ligne continue** (—) et **petits carrés orange** (\blacksquare) : nos résultats dans la première et la deuxième approximation de Born et Schwinger respectivement. **Ligne discontinue** (---) : les résultats du modèle 3CW, **les plus** ($+$) : représentent les résultats du modèle 1CW.

θ_e	BBK	1CW	Expérience	Born1	Born2	Schwinger
0	0.18	0.28		4.35	5.10	4.94
20	0.9	0.98	0.701	18.43	21.44	20.34
40	2.32	2.64	1.85	50.07	60.15	57.5
60	3.58	3.68	3.67	91.04	98.43	94.93
80	3.24	3	3.67	91.82	97.81	96.51
100	1.75	1.37	1.57	54.16	54.76	54.74
120	0.48	0.28	5.88	18.81	17.65	17.68
140	0.15	0.12	2.37	4.65	3.99	4.04
160	0.15	0.09	0.125	3.03	2.52	2.49
180	0.18	0.12		4.77	4.25	4.08
200	0.19	0.13	0.318	8.70	7.72	7.57
220	0.20	0.13	0.594	11.20	9.92	9.94
240	0.19	0.13	0.75	12.39	10.64	10.64
260	0.16	0.12	0.787	12.50	10.02	9.53
280	0.14	0.12	0.713	11.59	10.15	9.07
300	0.10	0.10	0.419	9.66	10.12	9.23
320	0.07	0.06	0.416	6.65	6.65	7.37
340		0.06		3.11	3.54	3.50
360				3.50	5.10	4.94

Tableau IV-3 : Sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation de la molécule du méthane par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($1t_2$) dans des conditions géométriques asymétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection est $E_e = 74$ eV, énergie de diffusion $E_s = 500$ eV et l'angle de diffusion est $\theta_s = 6^\circ$, les données de l'expérience, les données du modèle BBK et 1CW.

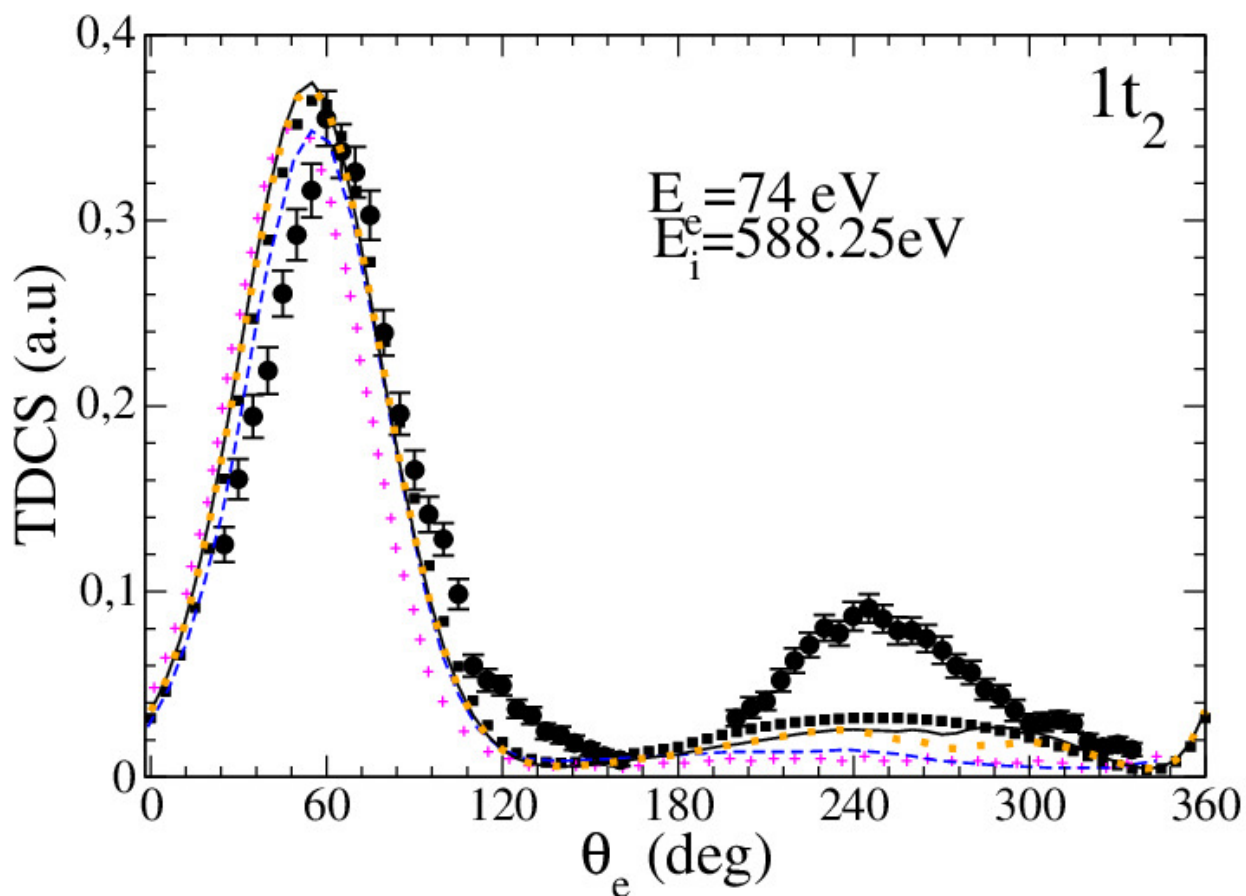


Figure IV-03 : Sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation de la molécule du méthane par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbitale ($1t_2$) dans des conditions géométriques asymétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection est $E_e = 74 \text{ eV}$, énergie de diffusion $E_s = 500 \text{ eV}$ et l'angle de diffusion est $\theta_s = 6^\circ$, **cercles pleins** (\bullet) : les données de l'expérience, **carrés pleins** (\blacksquare), **ligne continue** (—) et **petits carrés orange** (\blacksquare) : nos résultats dans la première et la deuxième approximation de Born et Schwinger respectivement. **Ligne discontinue** (---) : les résultats du modèle 3CW, **les plus** ($+$) : représentent les résultats du modèle 1CW.

θ_e	BBK	1CW	Expérience	Born1	Born2	Schwinger
0	0.01	0.01		2.17	2.55	2.47
20	0.03	0.08		9.21	10.72	10.17
40	0.17	0.23	0.186	26.53	30.07	28.75
60	0.35	0.35	0.370	45.52	49.21	47.46
80	0.26	0.18	0.249	45.91	48.90	48.25
100	0.10	0.04	0.0988	27.08	27.38	27.37
120	0.02		0.0516	9.40	8.82	8.84
140	0.02		0.0139	2.32	1.99	2.02
160	0.01	0.007	0.254	1.51	1.26	1.24
180	0.01	0.12		2.38	2.12	2.04
200	0.01	0.005	0.889	4.35	3.86	3.78
220	0.01	0	0.216	5.60	4.96	4.97
240	0.01	0	0.231	6.19	5.32	5.32
260	0.01	0.007	0.222	6.24	5.01	4.76
280	0.009	0.008	1.45	5.79	5.07	4.53
300	0.01	0.007	0.0724	4.83	5.06	4.61
320			0.432	3.32	3.79	3.68
340				1.55	1.77	1.75
360				2.17	2.55	2.47

Tableau IV-4: Sections efficaces triplement différentielle de l'ionisation de la molécule du méthane par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($2a_1$) dans des conditions géométriques asymétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection est $E_e = 12\text{eV}$, énergie de diffusion $E_s = 500\text{eV}$ et l'angle de diffusion est $\theta_s = 6^\circ$, les données de l'expérience, les données du modèle BBK et 1CW.

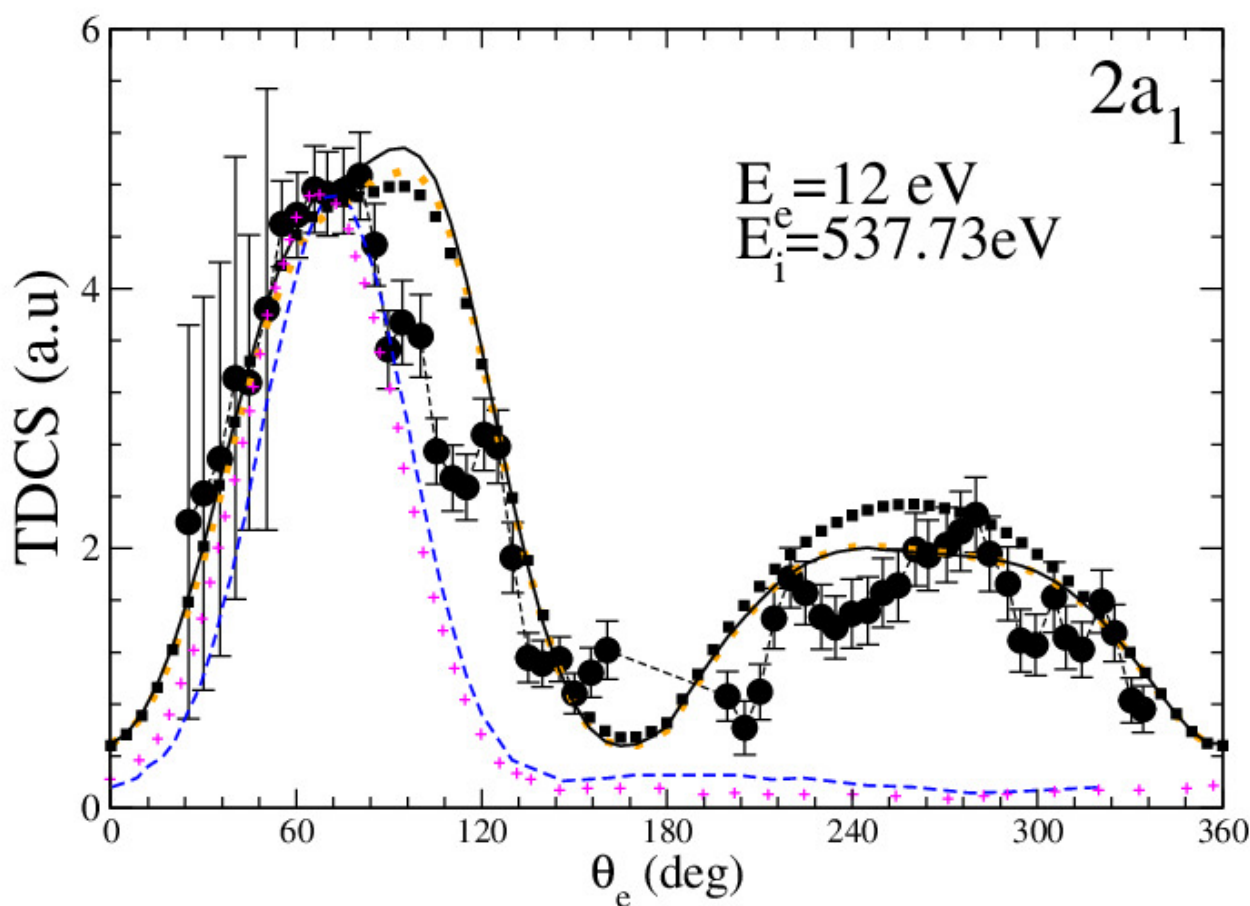


Figure IV-4 : Sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation de la molécule du méthane par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour les orbitales ($2a_1$) dans des conditions géométriques asymétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection est $E_e = 12 \text{ eV}$, énergie de diffusion $E_s = 500 \text{ eV}$ et l'angle de diffusion est $\theta_s = 6^\circ$, **cercles pleins** (●) : les données de l'expérience, **carrés pleins** (■), **ligne continue** (—) et **petits carrés orange** (■) : nos résultats dans la première et la deuxième approximation de Born et Schwinger respectivement. **Ligne discontinue** (- -) : les résultats du modèle 3CW, **les plus** (+) : représentent les résultats du modèle 1CW.

θ_e	BBK	1CW	Expérience	Born1	Born2	Schwinger
0	0.14			1.01	1.28	1.27
20	0.03	0.14		3.93	5	4.91
40	0.17	0.33	0.186	9.26	11.29	11.08
60	0.35	0.30	0.370	11.59	13.09	12.92
80	0.26	0.15	0.249	7.51	7.62	7.69
100	0.10	0.04	0.0988	2.68	2.51	1.23
120	0.02	0.009	0.0516	0.60	0.53	0.52
140	0.02		0.01392	0.24	0.20	0.20
160	0.01	0.004	0.004	0.36	0.30	0.30
180	0.01	0.007		0.51	0.43	0.42
200	0.01	0.008	0.0889	0.78	0.63	0.63
220	0.01	0.008	0.216	0.94	0.82	0.82
240	0.01		0.231	1.01	0.92	0.89
260	0.01	0.007	0.222	1.003	0.91	0.71
280	0.009	0.008	0.145	0.89	0.93	0.59
300	0.01	0.008	0.0724	0.68	0.91	0.68
320			0.432	0.36	0.50	0.45
340				0.11	0.16	0.16
360				1.01	1.28	1.27

Tableau IV-5 : représente données de la section efficace triplement différentielle de l'ionisation de la molécule du méthane par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($2a_1$) dans des conditions géométriques asymétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection est $E_e = 37\text{eV}$, énergie de diffusion $E_s = 500\text{ eV}$ et l'angle de diffusion est $\theta_s = 6^\circ$, les données de l'expérience, les données du modèle BBK et 1CW.

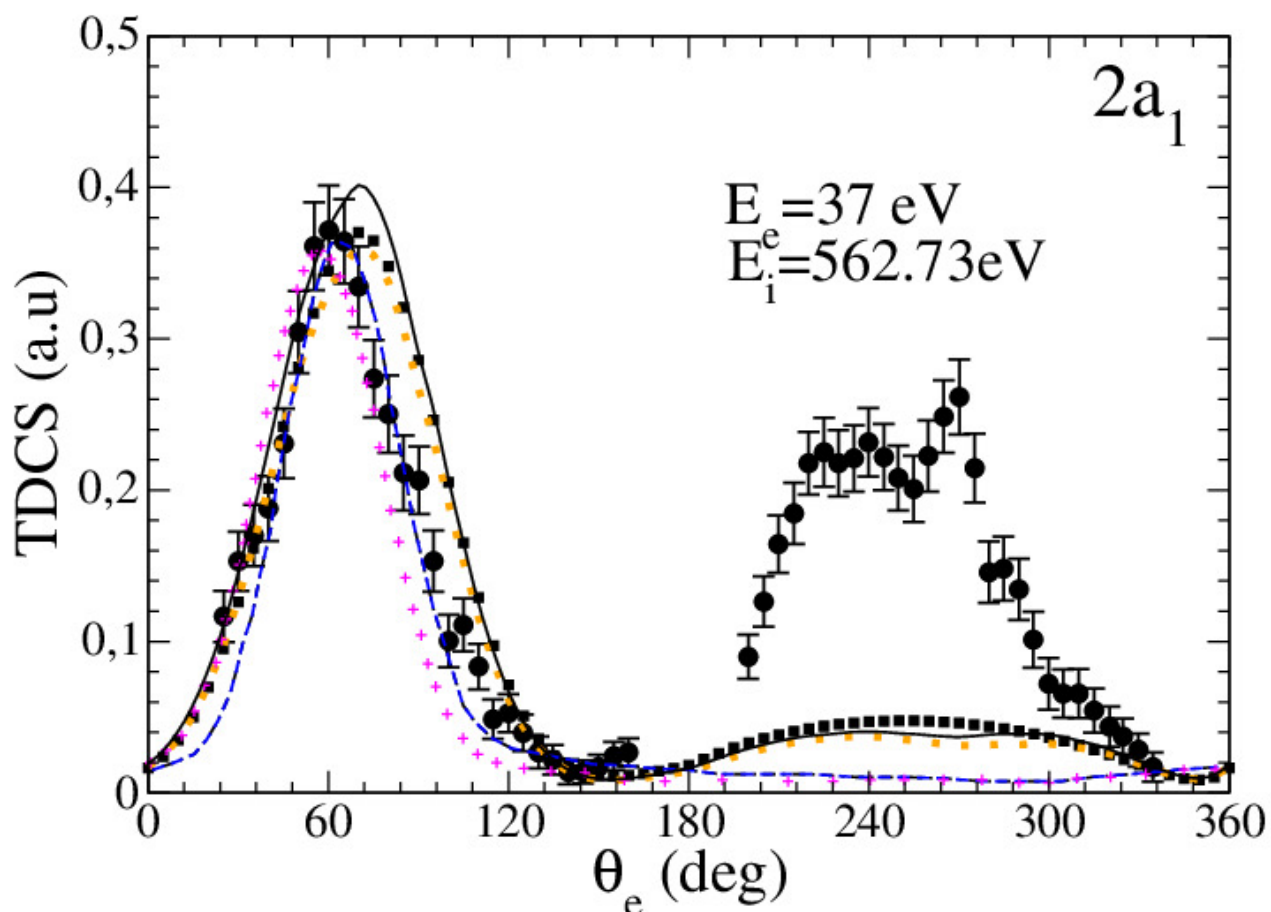


Figure IV-5 : Sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation de la molécule du méthane par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour les orbitales ($2a_1$) dans des conditions géométriques asymétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection est $E_e = 37$ eV, énergie de diffusion $E_s = 500$ eV et l'angle de diffusion est $\theta_s = 6^\circ$, **cercles pleins** (\bullet) : les données de l'expérience, **carrés pleins** (\blacksquare), **ligne continue** (—) et **petits carrés orange** (\blacksquare) : nos résultats dans la première et la deuxième approximation de Born et Schwinger respectivement. **Ligne discontinue** (- -) : les résultats du modèle 3CW, **les plus** (+) : représentent les résultats du modèle 1CW.

θ_e	BBK	1CW	Expérience	Born1	Born2	Schwinger
0	0.14			0.50	0.64	0.63
20	0.002	0.005		1.96	2.50	2.45
40	0.002		0.00855	4.63	5.64	5.54
60	0.009		0.00978	5.79	6.54	6.46
80	0.009	0.008	0.00769	3.75	3.81	3.84
100		0.001	0.00437	1.34	1.25	1.23
120			0.00202	0.30	0.26	0.26
140			0.00109	0.12	0.101	0.10
160			0.000944	0.18	0.15	0.15
180				0.25	0.21	0.21
200	0.001	0.001	0.00365	0.39	0.31	0.31
220		0.008	0.00675	0.47	0.41	0.41
240			0.00785	0.50	0.46	0.44
260	0.001	0.007	0.00594	0.50	0.45	0.35
280	0.0008	0.008	0.00496	0.44	0.46	0.29
300	0.0001	0.0002	0.00264	0.34	0.45	0.34
320		0.0003	0.123	0.18	0.25	0.22
340		0.0009		0.05	0.08	0.08
360				2.17	0.64	0.63

Tableau IV-6 : représente donnés de la section efficace triplement différentielle de l'ionisation de la molécule du méthane par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbitale ($2a_1$) dans des conditions géométriques asymétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection est $E_e = 74$ eV, énergie de diffusion $E_s = 500$ eV et l'angle de diffusion est $\theta_s = 6^\circ$, les données de l'expérience, les données du modèle BBK et 1CW.

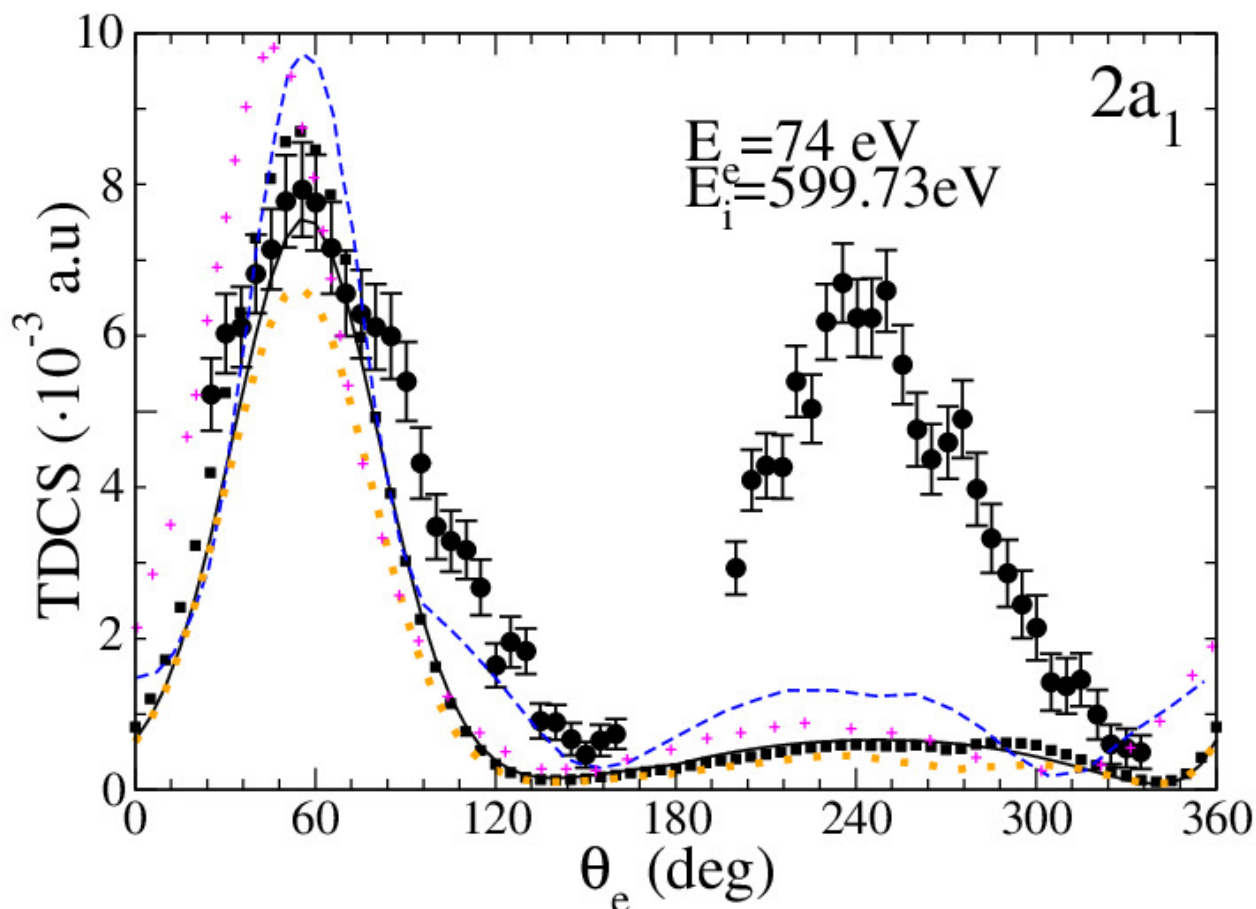


Figure IV-6 : Sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation de la molécule du méthane par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour les orbitales ($2a_1$) dans des conditions géométriques asymétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection est $E_e = 74 \text{ eV}$, énergie de diffusion $E_s = 500 \text{ eV}$ et l'angle de diffusion est $\theta_s = 6^\circ$, **cercles pleins (●)** : les données de l'expérience, **carrés pleins (■)**, **ligne continue (—)** et **petits carrés orange (■)** : nos résultats dans la première et la deuxième approximation de Born et Schwinger respectivement. **Ligne discontinue (---)** : les résultats du modèle 3CW, **les plus (+)** : représentent les résultats du modèle 1CW.

Nous devons également nous rappeler que dans nos prédictions, on prend en compte l'effet de transition de l'état intermédiaire inclus dans la deuxième approximation de Born. Cet effet devient important dans la région de recul pour les énergies basses et intermédiaires, c'est ce qu'on peut voir à partir de la comparaison du SBA et FBA (notre FBA prédit un seul pic dans la région de recul ce qui nous amène à dire que les prédictions des deux pics dans cette région par le SBA reflète l'effet de transitions de l'état intermédiaire supporté par le deuxième terme de l'approximation de Born).

La comparaison de nos résultats obtenus à partir du modèle FBA (Born 1) avec l'expérience et ceux de Lahmam *et al.* [3] qui provient du modèle 1CW montre clairement que nos calculs sont plus précis.

La comparaison de nos résultats obtenus à partir du modèle SBA (Born 2) avec le modèle 3CW montre clairement qu'on a besoin de décrire les particules diffusées et éjectées par des fonctions d'onde plus précises pour prendre en compte l'interaction avec l'ion résiduel. A titre d'exemple, si on prend l'orbital ($1t_2$) et ($2a_1$) pour $E_e = 74eV$ et $12eV$, il est clair que le modèle 3CW décrit la région de recul mieux que le modèle SBA pour l'orbital $2a_1$ les résultats du modèle 3CW est très conforme à l'expérience dans la région binaire de 90° à 180° .

Il est évident que les résultats expérimentaux reflètent d'autres processus qui ne sont pas pris en compte par les formalismes théoriques précédents et même présents.

Dans le cas d'une molécule simple, les électrons interagissent avant l'ionisation par impact électronique. Après collision, un des deux est éjecté de la molécule et les autres restent comme constituants du noyau de l'ion moléculaire. La fonction d'onde moléculaire va changer avec une certaine quantité qui ne peut pas être négligé. Donc l'approximation du cœur gelé ne peut pas être une bonne approximation dans la gamme énergétique utilisée dans notre travail. Cela peut être une des causes de la présence d'un accord insuffisant entre la théorie et l'expérience dans la partie de recul. Il fait que cette insuffisance est très important pour l'orbitale ($2a_1$) ($E_e = 74eV$, $12eV$) ce qui nous mène à réfléchir en structure satellitaire associée avec l'orbital ($2a_1$) [9]. Malgré sa faiblesse relative, la structure satellitaire peut devenir très importante pour certaines énergies. Si on trouve que cela est vérifié, une description rigoureuse de la corrélation complexe et l'effet de réorganisation orbitale devient nécessaire dans les calculs de la section efficace d'ionisation de l'orbitale ($2a_1$).

ii) Géométrie symétrique coplanaire

Dans cette partie, nous nous sommes intéressés à la simple ionisation par impact électronique la molécule de Méthane (CH_4) et la molécule d'ammoniac (NH_3) dans une géométrie symétrique coplanaire où $E_e = E_s$, ce qui signifie que pendant l'expérience, les deux électrons diffusés sont indiscernables. C'est pour cette raison qu'il est important de considérer l'effet d'échange dans la théorie. Pour démontrer ceci, on compare dans les figures de la partie 2 et 3, l'approximation de Born au premier et au second ordre ainsi que l'approximation de Schwinger avec et sans effet d'échange. La comparaison montre que l'effet d'échange ne peut pas être négligé.

Dans les courbes de la 2^{ème} partie, on présente les résultats des sections efficaces triplement différentielles (TDCS) des deux orbitales ($1t_2$) et ($2a_1$) de la molécule de Méthane (CH_4). Les figures de la partie 3 présentent les résultats des sections efficaces triplement différentielles (TDCS) des deux orbitales ($1e_1$) et ($3a_1$) de la molécule d'ammoniac (NH_3).

Dans ces figures, on compare nos résultats obtenus avec les calculs théoriques et expérimentales de Nixon *et al.* [6] [10]. Les résultats expérimentaux sont obtenus de manière à ce que chaque orbitale ne soit pas influencée par son voisin, c'est pour ça, le signal sortant de l'orbitale ($2a_1$) est mesuré séparément de l'orbitale ($1t_2$). Donc le problème de la structure satellitaire associée à l'orbitale ($2a_1$) est résolu dans l'expérience.

Les orbitales de valence ($1e_1$) et ($3a_1$) de l'ammoniac sont bien séparées énergétiquement. Par conséquent, les mesures des sections efficaces triplement différentielles (TDCS) pour chaque orbitale ne furent pas influencées par la contribution des orbitales voisines.

Les résultats théoriques de Nixon *et al.* [6] [10] sont extraits en utilisant le modèle (M3DW). Dans ce modèle, trois fonctions d'onde distordues sont utilisées pour décrire l'électron sortant, éjecté et diffusé.

Dans ce qui suit, nous allons présenter les résultats des sections efficaces triplement différentielles (TDCS) de l'ionisation du méthane dans des conditions symétrique :

θ_e	M3DW	Expérience	Sans échange			Avec échange		
			Born1	Born2	Schwinger	Born1	Born2	Schwinger
0								
10	0.04		1.00	13.8	13.8	22.68	38.39	20.79
20	0.34	0.920	0.15	5.17	5.17	11.08	17.66	7.76
30	0.48		0.04	1.80	1.80	4.91	7.57	2.70
40	0.86	0.999	0.03	0.79	0.79	2.26	3.49	1.18
50	0.81	0.696	0.02	0.43	0.43	1.13	1.71	.65
60	0.48	0.444	0.01	0.27	0.27	0.64	0.88	0.41
70	0.16	0.310	0.01	0.18	0.18	0.41	0.47	0.27
80	0.03	0.274	0.009	0.12	0.12	0.29	0.28	0.19
90	0.11		0.007	0.09	0.09	0.22	0.19	0.13
100	0.36	0.429	0.006	0.06	0.06	0.17	0.15	0.10
110	0.53	0.434	0.005	0.05	0.05	0.14	0.13	0.07
120	0.42		0.004	0.05	0.05	0.11	0.12	0.06
130	0.16		0.004	0.34	0.34	0.09	0.12	0.05
140	0.03		0.004	0.29	0.29	0.08	0.12	0.04
150			0.003	0.25	0.25	0.06	0.12	0.03
160			0.003	0.23	0.23	0.06	0.13	0.03
170			0.003	0.22	0.22	0.06	0.13	0.03
180								

Tableau IV-7 : représente données de la section efficace triplement différentielle de l'ionisation de la molécule du méthane par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($1t_2$) dans des conditions géométriques symétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection $E_e = E_s = 20$ eV, L'angle de diffusion est $\theta_s = \theta_e$, les données de l'expérience et les données du modèle 3MDW.

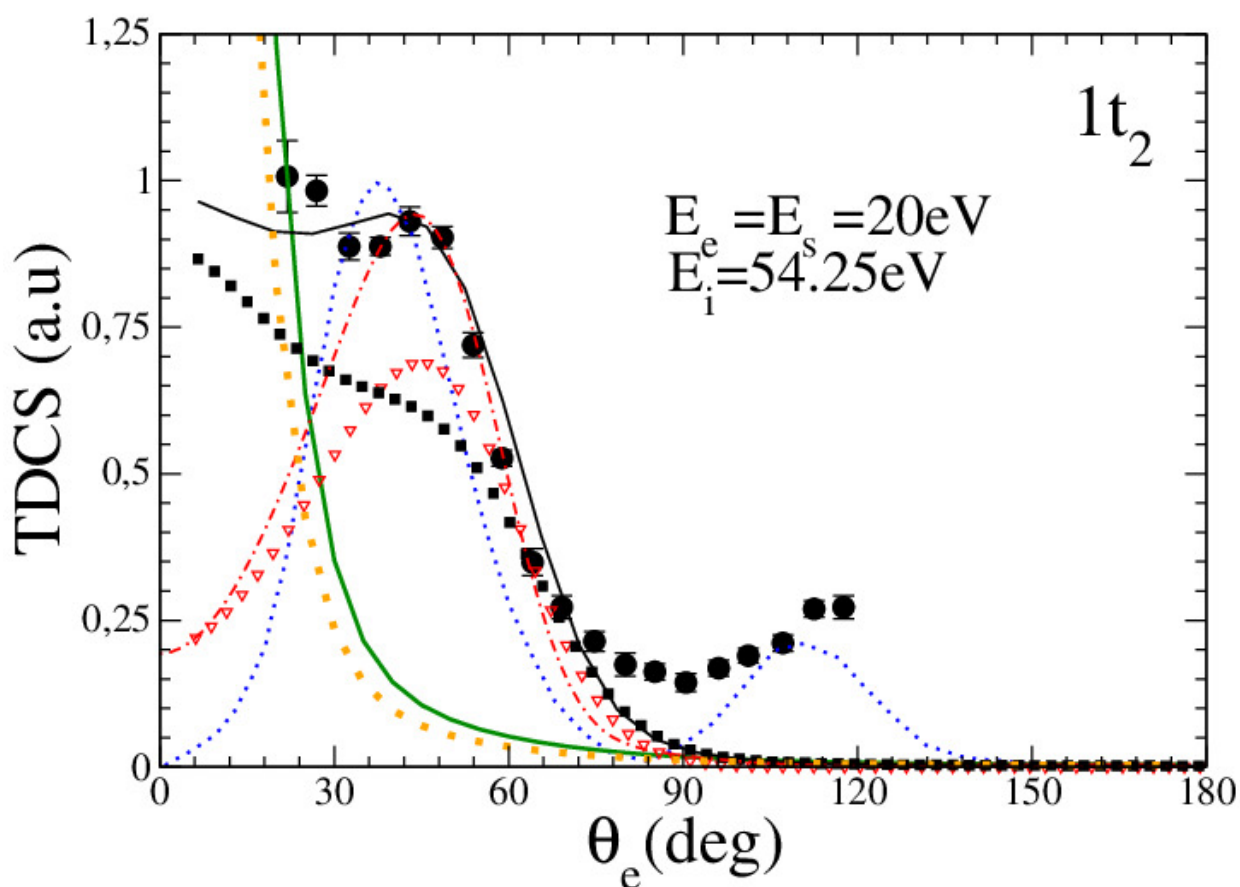


Figure IV-7 : Section efficace triplement différentielle de l'ionisation de la molécule du méthane par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($1t_2$) dans des conditions géométriques symétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection est $E_e = E_s = 20 \text{ eV}$ l'angle de diffusion est $\theta_s = \theta_e$, **cercles pleins (●)** : les données de l'expérience, **carrés pleins (■)**, **ligne continue (—)** et **ligne continue verte (—)** : nos résultats dans la première, la deuxième approximation de Born et Schwinger **avec effets d'échange** respectivement, **les triangles (▽)**, **ligne discontinue (---)** et **petits carrés orange (■)** : nos résultats dans la première, la deuxième approximation de Born et Schwinger **sans effets d'échange**, respectivement, **les pointillés (···)** : représentent les résultats du modèle M3DW.

θ_e	M3DW	Expérience	Sans échange			Avec échange		
			Born1	Born2	Schwinger	Born1	Born2	Schwinger
0	0.003							
10	0.054		0.89	8.05	8.05	14.17	23.09	12.07
20	0.263	1.007	0.10	2.33	2.33	6.05	8.96	3.50
30	0.813	0.887	0.02	0.66	0.66	2.46	3.43	1.00
40	0.962	0.930	0.01	0.27	0.27	1.08	1.51	0.41
50	0.612		0.01	0.15	0.15	0.52	0.73	0.23
60	0.278	0.526	0.006	0.09	0.09	0.29	0.37	0.14
70			0.004	0.06	0.06	0.18	0.20	0.09
80		0.174	0.004	0.04	0.04	0.12	0.11	0.06
90		0.143	0.003	0.03	0.03	0.09	0.08	0.04
100	0.149	0.189	0.002	0.02	0.02	0.07	0.06	0.03
110	0.210	0.269	0.002	0.01	0.01	0.06	0.05	0.02
120	0.140		0.002	0.01	0.01	0.05	0.05	0.01
130	0.036		0.001	0.01	0.01	0.03	0.05	0.01
140	0.03		0.001	0.01	0.01	0.03	0.05	0.01
150			0.001	0.009	0.009	0.03	0.05	0.01
160	0.003		0.001	0.008	0.008	0.03	0.05	0.01
170			0.001	0.008	0.008	0.02	0.05	0.01
180								

Tableau IV-8 : représente donnés de la section efficace triplement différentielle de l'ionisation de la molécule du méthane par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($1t_2$) dans des conditions géométriques symétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection $E_e = E_s = 15$ eV, L'angle de diffusion est $\theta_s = \theta_e$, les données de l'expérience, les données du modèle 3MDW.

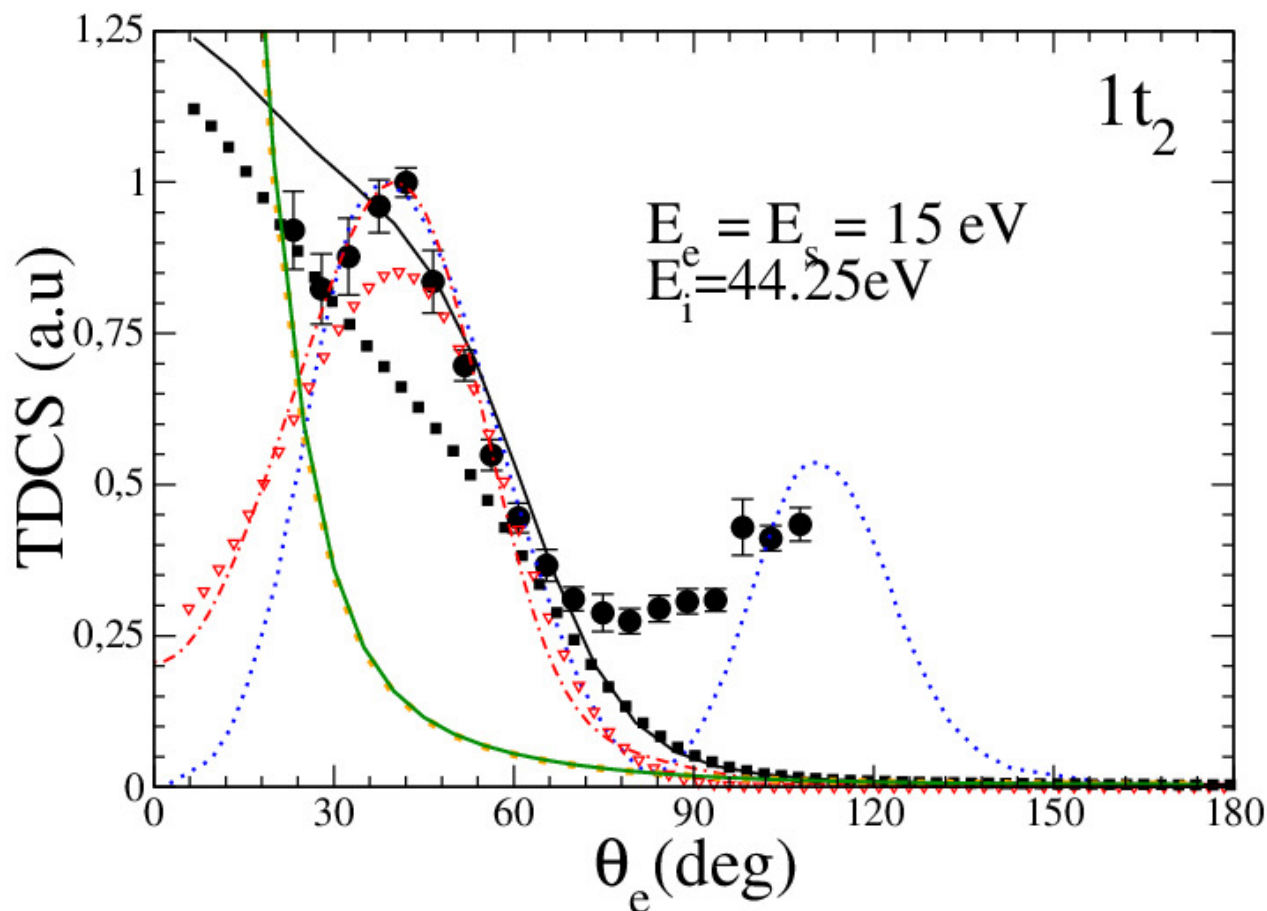


Figure IV-08 : Section efficace triplement différentielle de l'ionisation de la molécule du méthane par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($1t_2$) dans des conditions géométriques symétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection est $E_e = E_s = 15$ eV l'angle de diffusion est $\theta_s = \theta_e$, **cercles pleins** (\bullet) : les données de l'expérience, **carrés pleins** (\blacksquare), **ligne continue** (\longrightarrow) et **ligne continue verte** (\longrightarrow) : nos résultats dans la première, la deuxième approximation de Born et Schwinger **avec effets d'échange** respectivement, **les triangles** (∇), **ligne discontinue** (\dashrightarrow) et **petits carrés orange** (\blacksquare) : nos résultats dans la première, la deuxième approximation de Born et Schwinger **sans effets d'échange**, respectivement, **les pointillés** (\cdots) : représentent les résultats du modèle M3DW.

θ_e	M3DW	Expérience	Sans échange			Avec échange		
			Born1	Born2	Schwinger	Born1	Born2	Schwinger
0								
10	0.06		0.42	2.67	2.67	0.47	2.46	2.67
20	0.37		0.15	1.53	1.53	0.21	1.44	1.53
30	0.82	0.844	0.03	0.73	0.73	0.07	0.71	0.73
40		0.557	0.008	0.33	0.33	0.02	0.33	0.33
50	0.93		0.003	0.16	0.16	0.01	0.16	0.16
60	0.70	0.324	0.002	0.05	0.05	0.007	0.09	0.09
70			0.002	0.05	0.05	0.004	0.05	0.05
80	0.16		0.002	0.03	0.03	0.003	0.03	0.03
90	0.01	0.187	0.002	0.02	0.02	0.002	0.02	0.02
100	0.06	0.128	0.001	0.01	0.01	0.002	0.01	0.01
110	0.27		0.001	0.01	0.01	0.001	0.01	0.01
120	0.68	0.0684	0.001	0.01	0.01	0.001	0.01	0.01
130	0.81	0.365	0.001	0.01	0.01	0.001	0.01	0.01
140	0.53		0.001	0.009	0.009	0.001	0.01	0.01
150	0.29		0.001	0.009	0.009	0.001	0.009	0.009
160			0.0009	0.008	0.008	0.001	0.008	0.008
170	0.02		0.0009	0.008	0.008	0.0009	0.008	0.008
180	0.004							

Tableau IV-9: représente données de la section efficace triplement différentielle de l'ionisation de la molécule du méthane par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($2a_1$) dans des conditions géométriques symétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection $E_e = E_s = 20$ eV, L'angle de diffusion est $\theta_s = \theta_e$, les données de l'expérience, les données du modèle 3MDW.

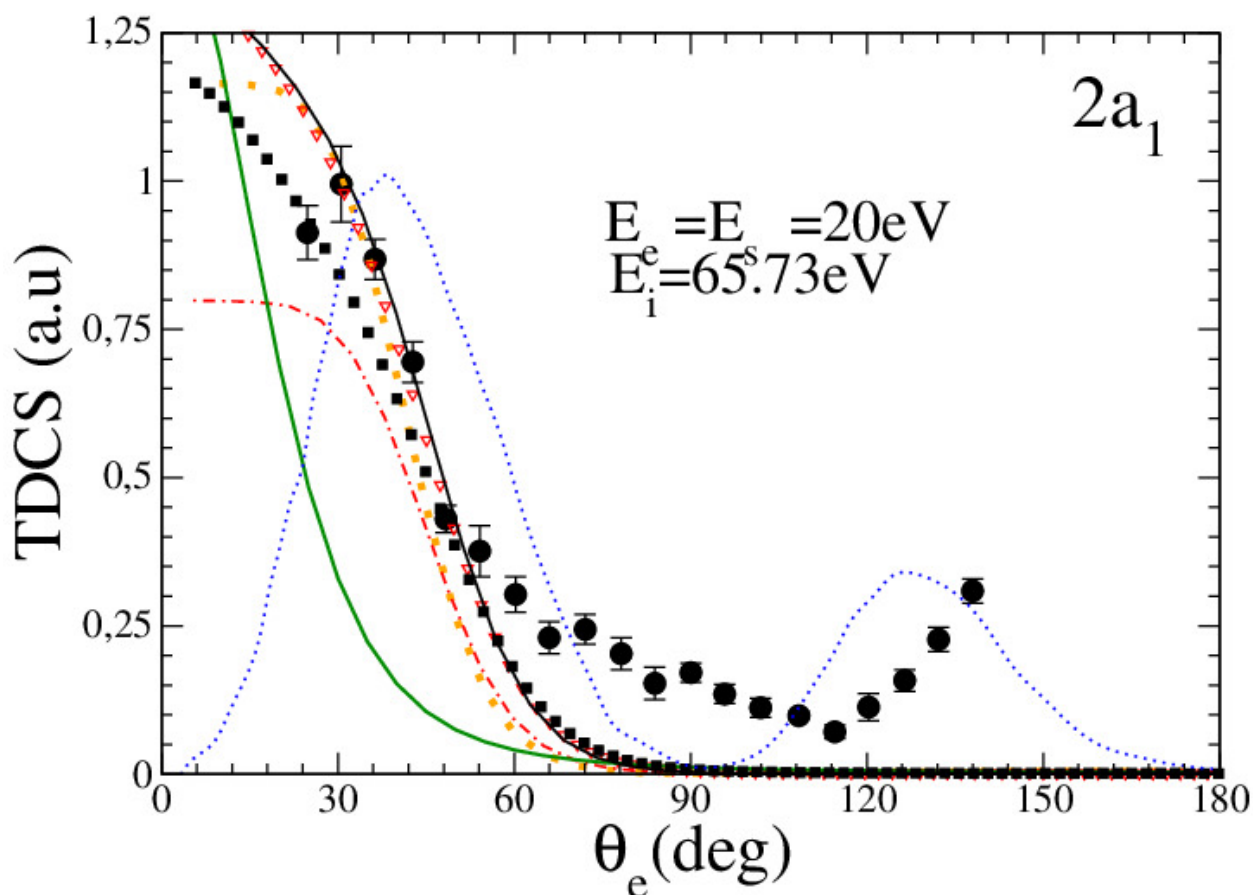


Figure IV-9 : Section efficace triplement différentielle de l'ionisation de la molécule du méthane par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($2a_1$) dans des conditions géométriques symétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection est $E_e = E_s = 20 \text{ eV}$ l'angle de diffusion est $\theta_s = \theta_e$, **cercles pleins (●)** : les données de l'expérience, **carrés pleins (■)**, **ligne continue (—)** et **ligne continue verte (—)** : nos résultats dans la première, la deuxième approximation de Born et Schwinger **avec effets d'échange** respectivement, **les triangles (▽)**, **ligne discontinue (---)** et **petits carrés orange (■)** : nos résultats dans la première, la deuxième approximation de Born et Schwinger **sans effets d'échange**, respectivement, **les pointillés (···)** : représentent les résultats du modèle M3DW.

θ_e	M3DW	Expérience	Sans échange			Avec échange		
			Born1	Born2	Schwinger	Born1	Born2	Schwinger
0								
10	0.06		0.23	1.14	1.14	0.25	1.05	1.14
20	0.37		0.07	0.59	0.59	0.10	0.56	0.59
30	0.84	0.995	0.01	0.25	0.25	0.24	0.24	0.25
40	0.96		0.002	0.10	0.10	0.01	0.10	0.10
50	0.74		0.001	0.04	0.04	0.004	0.05	0.04
60	0.46	0.303	0.001	0.02	0.02	0.002	0.02	0.02
70	0.20		0.001	0.01	0.01	0.001	0.01	0.01
80	0.06		0.0009	0.01	0.01	0.001	0.01	0.01
90	0.01	0.171	0.0007	0.007	0.007	0.0009	0.007	0.007
100	0.06	0.112	0.0006	0.005	0.005	0.0007	0.005	0.005
110	0.15		0.0005	0.004	0.004	0.0005	0.004	0.004
120	0.30	0.113	0.0004	0.003	0.003	0.0004	0.003	0.003
130		0.227	0.0003	0.002	0.002	0.0004	0.002	0.002
140	0.23		0.0003	0.002	0.002	0.0003	0.002	0.002
150	0.12		0.0003	0.002	0.002	0.0003	0.002	0.002
160	0.04		0.0003	0.002	0.002	0.0003	0.002	0.002
170	0.01		0.0002	0.002	0.002	0.0003	0.002	0.002
180	0.004							

Tableau IV-10: représente donnés de la section efficace triplement différentielle de l'ionisation de la molécule du méthane par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($2a_1$) dans des conditions géométriques symétriques; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection $E_e = E_s = 15$ eV, L'angle de diffusion est $\theta_s = \theta_e$, les données de l'expérience, les données du modèle 3MDW.

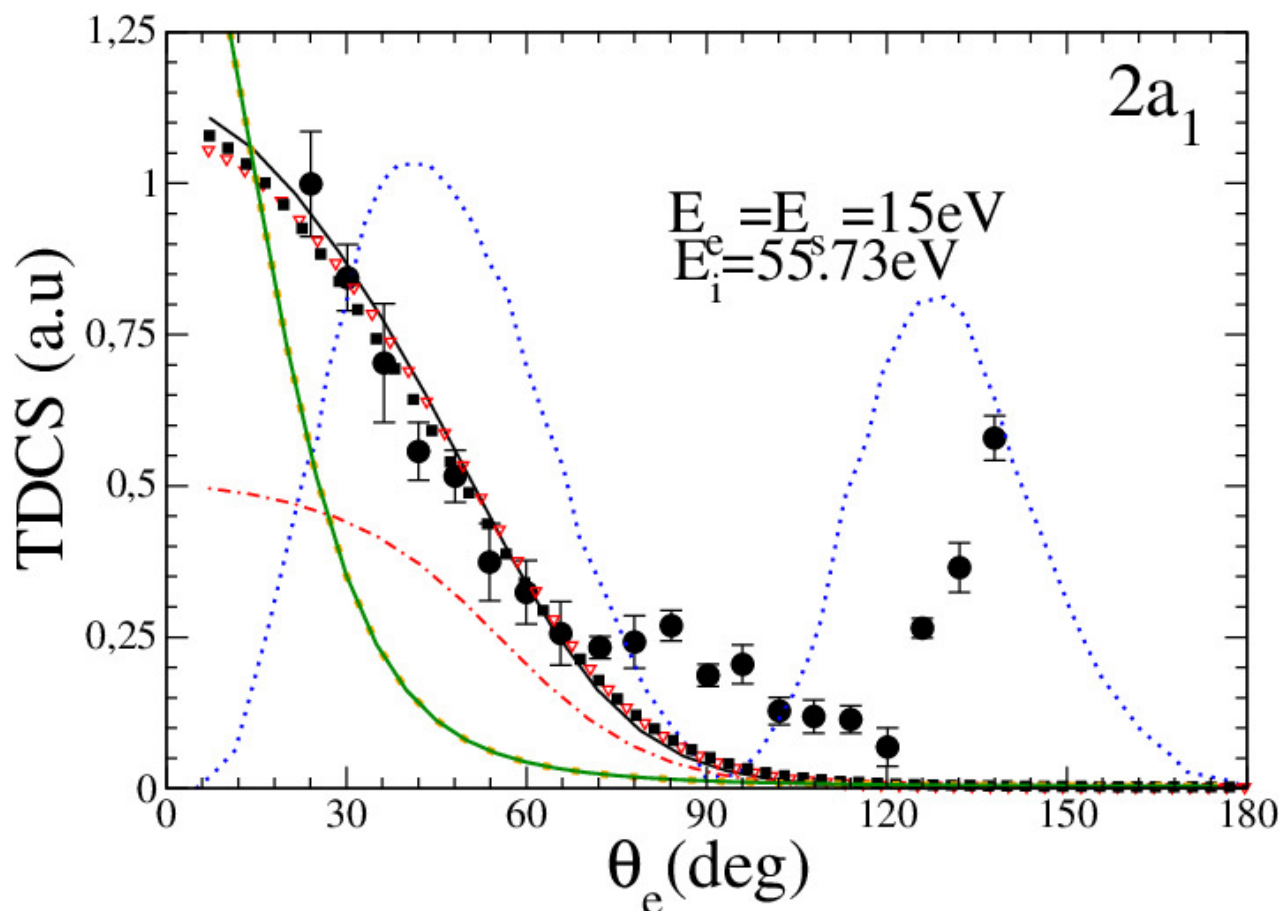


Figure IV-10 : Section efficace triplement différentielle de l'ionisation de la molécule du méthane par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($2a_1$) dans des conditions géométriques symétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection est $E_e = E_s = 15 \text{ eV}$ l'angle de diffusion est $\theta_s = \theta_e$, **cercles pleins** (●) : les données de l'expérience, **carrés pleins** (■), **ligne continue** (—) et **ligne continue verte** (—) : nos résultats dans la première, la deuxième approximation de Born et Schwinger **avec effets d'échange** respectivement, **les triangles** (▽), **ligne discontinue** (---) et **petits carrés orange** (■) : nos résultats dans la première, la deuxième approximation de Born et Schwinger **sans effets d'échange**, respectivement, **les pointillés** (···) : représentent les résultats du modèle M3DW.

Dans ce qui suit, nous allons présenter les résultats des sections efficaces triplement différentielles (TDCS) de l'ionisation de la molécule d'Ammoniac (NH_3) dans des conditions symétrique :

On rappelle que les résultats théoriques de Nixon *et al.* [6] [10] sont extraits en utilisant le modèle (M3DW). Dans ce modèle, trois fonctions d'onde distordues sont utilisées pour décrire l'électron sortant, éjecté et diffusé. C'est une bonne description depuis l'interaction de la particule incidente avec la molécule cible et l'électron diffusé avec l'ion résiduel et qui sont pris avec une bonne précision.

L'interaction post-collision entre les électrons sortants est aussi décrite avec précision dans ce modèle en utilisant la fonction d'onde de coulomb. Cependant, nous sommes pas totalement d'accord avec Nixon *et al.* [6][10] sur la description de la cible moléculaire dans ce modèle. Dans le travail de Nixon *et al.* [6][10], la moyenne sphérique de la fonction d'onde moléculaire est utilisée pour décrire la cible moléculaire. Dans notre point de vue, ceci est un point faible du modèle M3DW. Il est très important de considérer toutes les orientations possibles pendant la réaction de collision, la moyenne des fonctions d'onde conduit à étudier l'impact d'électron avec le nuage électronique sphérique. par contre, chaque résultat expérimental est une moyenne sur plusieurs mesures de la réaction ($e,2e$). Dans chaque réaction, la cible est dans une unique orientation possible avant la collision.

Dans les autres travaux, chaque mesure expérimental est une moyenne des TDCS pour une collision électronique avec une cible moléculaire orientée aléatoirement, c'est pourquoi il est plus précis de moyennner les TDCS sur toutes les orientations possibles, pour modéliser une ionisation moléculaire.

θ_e	M3DW	Expérience	Sans échange			Avec échange		
			Born1	Born2	Schwinger	Born1	Born2	Schwinger
0	0.03							
10	0.22		2.86	2.57	1.49	18.71	21.20	1.49
20	0.51		4.65	4.96	2.31	15.12	18.83	2.31
30	0.80	0.972	6.25	7.29	3.00	12.07	16.66	3.00
40	0.98		6.20	7.05	3.14	9.05	12.64	3.14
50	0.90		3.92	3.65	2.27	5.23	6.23	2.27
60	0.70	0.767	1.44	1.07	0.90	2.10	1.91	0.90
70	0.47		0.31	0.40	0.21	0.70	0.61	0.21
80	0.21		0.04	0.18	0.08	0.29	0.28	0.08
90	0.08	0.403	0.004	0.071	0.006	0.17	0.15	0.006
100	0.01		0.003	0.028	0.004	0.12	0.11	0.004
110		0.257	0.004	0.014	0.007	0.09	0.09	0.007
120	0.26	0.269	0.004	0.007	0.005	0.07	0.07	0.003
130	0.55		0.004	0.005	0.002	0.062	0.071	0.001
140	0.66		0.004	0.006	0.001	0.053	0.068	0.001
150	0.62	0.459	0.003	0.007	0.001	0.047	0.066	0.001
160	0.44		0.003	0.008	0.001	0.043	0.064	0.001
170	0.25		0.003	0.008	0.0009	0.041	0.063	0.0009
180	0.11							

Tableau IV-11: représente donnés de la section efficace triplement différentielle de l'ionisation de la molécule de l'ammoniac par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($1e_1$) dans des conditions géométriques symétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection $E_e = E_s = 15$ eV, L'angle de diffusion est $\theta_s = \theta_e$, les données de l'expérience, les données du modèle 3MDW.

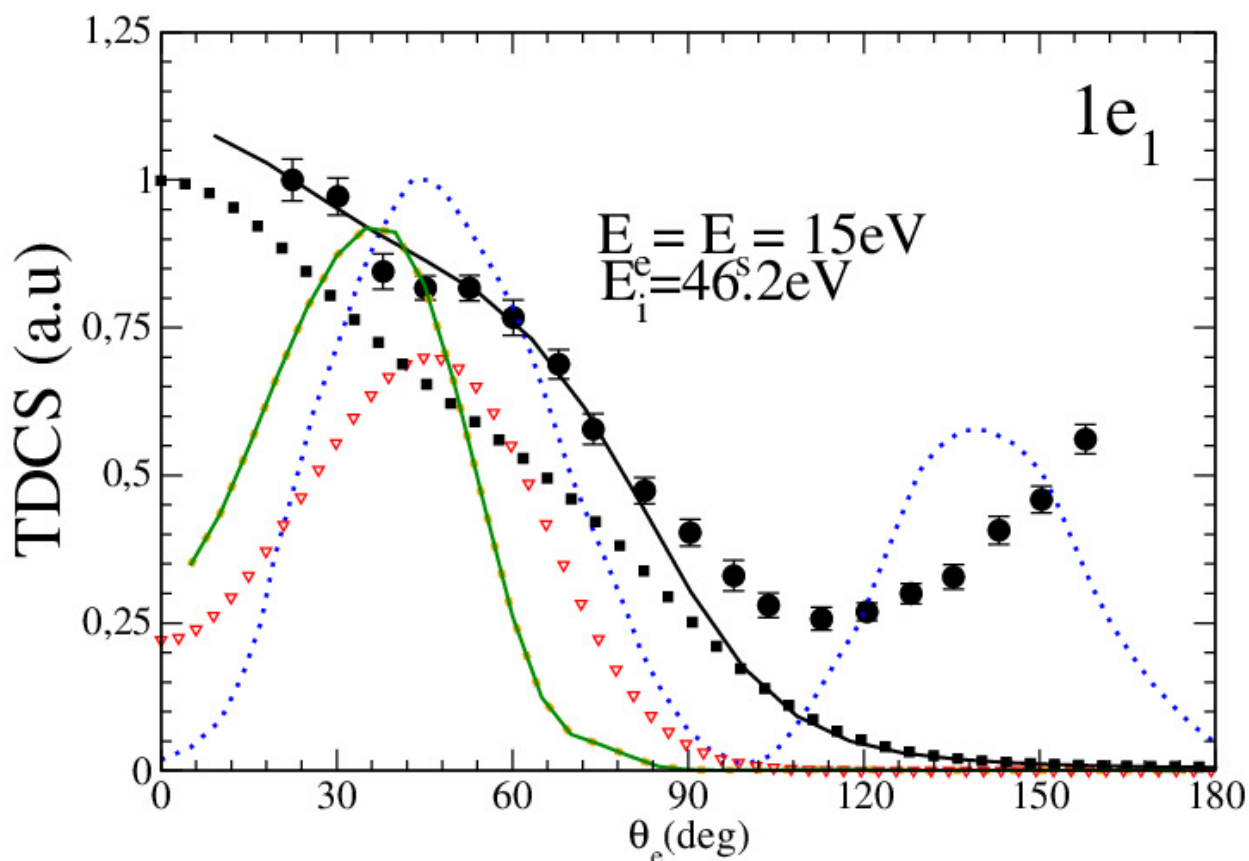


Figure IV-11 : Section efficace triplement différentielle de l'ionisation de la molécule de l'ammoniac par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($1e_1$) dans des conditions géométriques symétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection est $E_e = E_s = 15\text{eV}$ l'angle de diffusion est $\theta_s = \theta_e$, **cercles pleins (●)** : les données de l'expérience, **carrés pleins (■)**, **ligne continue (—)** et **ligne continue verte (—)** : nos résultats dans la première, la deuxième approximation de Born et Schwinger **avec effets d'échange** respectivement, **les triangles (▽)**, **Ligne discontinue (---)** et **petits carrés orange (■)**: nos résultats dans la première, la deuxième approximation de Born et Schwinger **sans effets d'échange**, respectivement, **les pointillés (⋯)** : représentent les résultats du modèle M3DW.

θ_e	M3DW	Expérience	Sans échange			Avec échange		
			Born1	Born2	Schwinger	Born1	Born2	Schwinger
0								
10	0.084		1.43	1.28	0.74	9.359	10.60	.74
20	0.35		2.32	2.48	1.15	7.56	9.41	1.15
30	0.76	0.879	3.12	3.64	1.50	6.03	8.33	1.50
40	0.96		3.10	3.52	1.57	4.52	6.32	1.57
50			1.96	1.82	1.13	2.61	3.11	1.13
60	0.78	0.613	0.72	0.53	0.45	1.05	0.95	0.45
70	0.5		0.15	0.20	0.10	0.35	0.30	0.10
80	0.27		0.02	0.09	0.14	0.14	0.14	0.042
90	0.07	0.247	0.002	0.03	0.003	0.08	0.07	0.003
100	0.01		0.001	0.014	0.002	0.06	0.056	0.002
110	0.12		0.002	0.007	0.003	0.047	0.04	0.003
120	0.25	0.158	0.002	0.003	0.002	0.03	0.038	0.002
130	0.50		0.002	0.002	0.001	0.031	0.035	0.001
140	0.57		0.002	0.003	0.0008	0.026	0.034	0.0008
150	0.50	0.358	0.001	0.003	0.0006	0.023	0.033	0.0006
160	0.30		0.001	0.004	0.0005	0.021	0.032	0.0005
170	0.14		0.001	0.004	0.0004	0.020	0.031	0.0004
180	0.05							

Tableau IV-12: représente donnés de la section efficace triplement différentielle de l'ionisation de la molécule de l'ammoniac par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($3a_1$) dans des conditions géométriques symétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection $E_e = E_s = 15$ eV, L'angle de diffusion est $\theta_s = \theta_e$, les données de l'expérience, les données du modèle 3MDW.

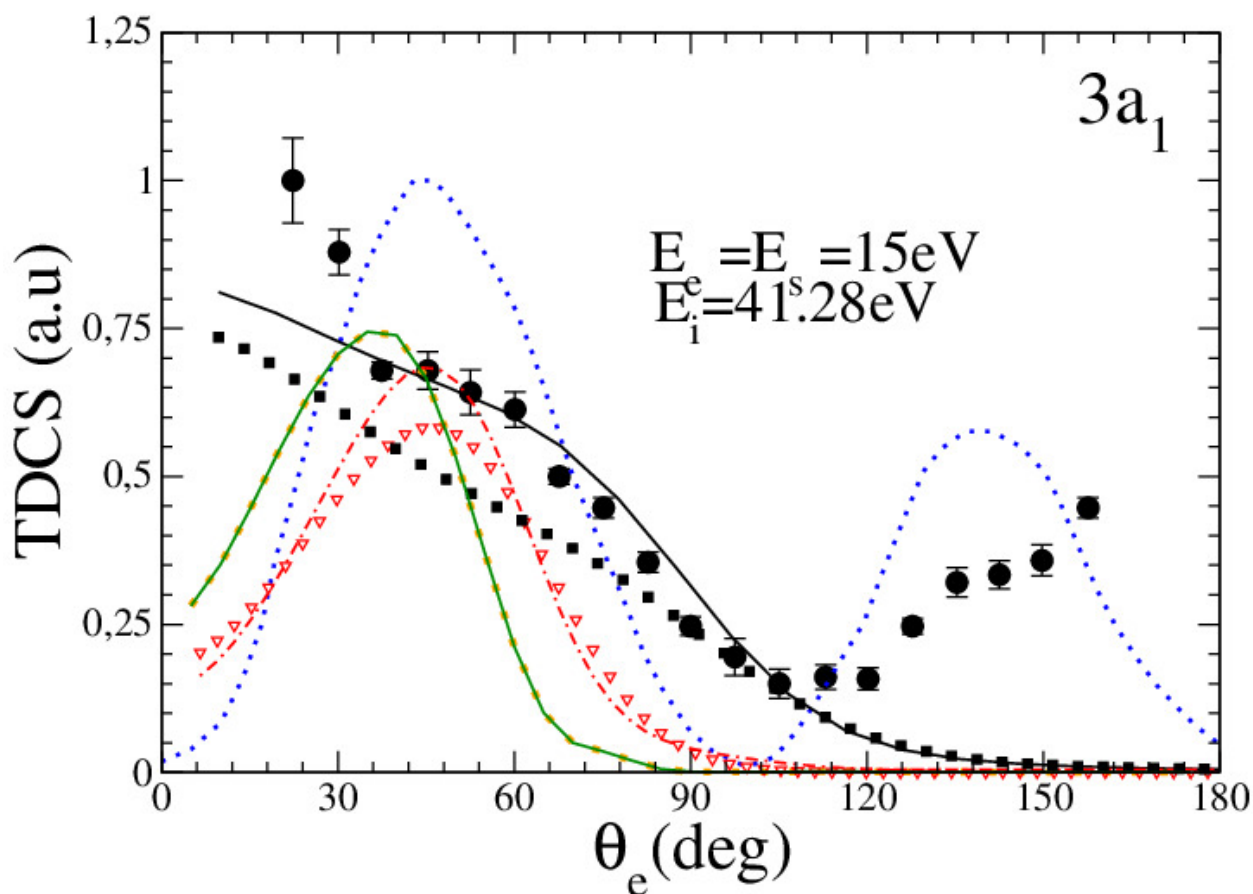


Figure IV-12: Section efficace triplement différentielle de l'ionisation de la molécule de l'ammoniac par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($3a_1$) et dans des conditions géométriques symétriques ; l'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection est $E_e = E_s = 15\text{eV}$ l'angle de diffusion est $\theta_s = \theta_e$, **cercles pleins (●)** : les données de l'expérience, **carrés pleins (■)**, **ligne continue (—)** et **ligne continue verte (—)** : nos résultats dans la première, la deuxième approximation de Born et Schwinger **avec effets d'échange** respectivement, **les triangles (▽)**, **Ligne discontinue (---)** et **petits carrés orange (■)**: nos résultats dans la première, la deuxième approximation de Born et Schwinger **sans effets d'échange**, respectivement, **les pointillés (···)** : représentent les résultats du modèle M3DW.

θ_e	M3DW	Expérience	Sans échange			Avec échange		
			Born1	Born2	Schwinger	Born1	Born2	Schwinger
0	0.02							
10			2.77	3.01	1.57	6.37	7.34	0.78
20	0.45		4.51	5.69	2.45	5.43	7.13	1.22
30	0.81	0.849	6.43	8.82	3.32	4.95	7.40	1.66
40	1.02		6.78	8.92	3.53	4.22	6.40	1.76
50	0.87		4.17	4.18	2.37	2.45	3.09	1.18
60	0.57	0.707	1.32	0.84	0.75	0.83	0.76	0.37
70	0.30		0.23	0.24	0.12	0.21	0.20	0.06
80	0.14		0.02	0.10	0.02	0.07	0.07	0.01
90	0.03	0.250	0.002	0.032	0.003	0.04	0.03	0.001
100	0.009		0.001	0.011	0.001	0.02	0.026	0.0006
110	0.037		0.001	0.005	0.003	0.02	0.02	0.001
120	0.111	0.160	0.001	0.003	0.001	0.017	0.017	0.0009
130			0.001	0.001	.0009	0.01	0.01	0.0004
140	0.25		0.002	0.001	.0006	0.012	0.014	0.0003
150	0.22	0.347	0.001	0.002	.0004	0.010	0.014	0.0002
160	0.11		0.001	0.002	.0004	0.009	0.013	0.0002
170			0.001	0.002	.0003	0.009	0.013	0.0001
180	0.01							

Tableau IV-13: représente donnés de la section efficace triplement différentielle de l'ionisation de la molécule de l'ammoniac par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($1e_1$) dans des conditions géométriques symétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection $E_e = E_s = 20$ eV, L'angle de diffusion est $\theta_s = \theta_e$, les données de l'expérience, les données du modèle 3MDW.

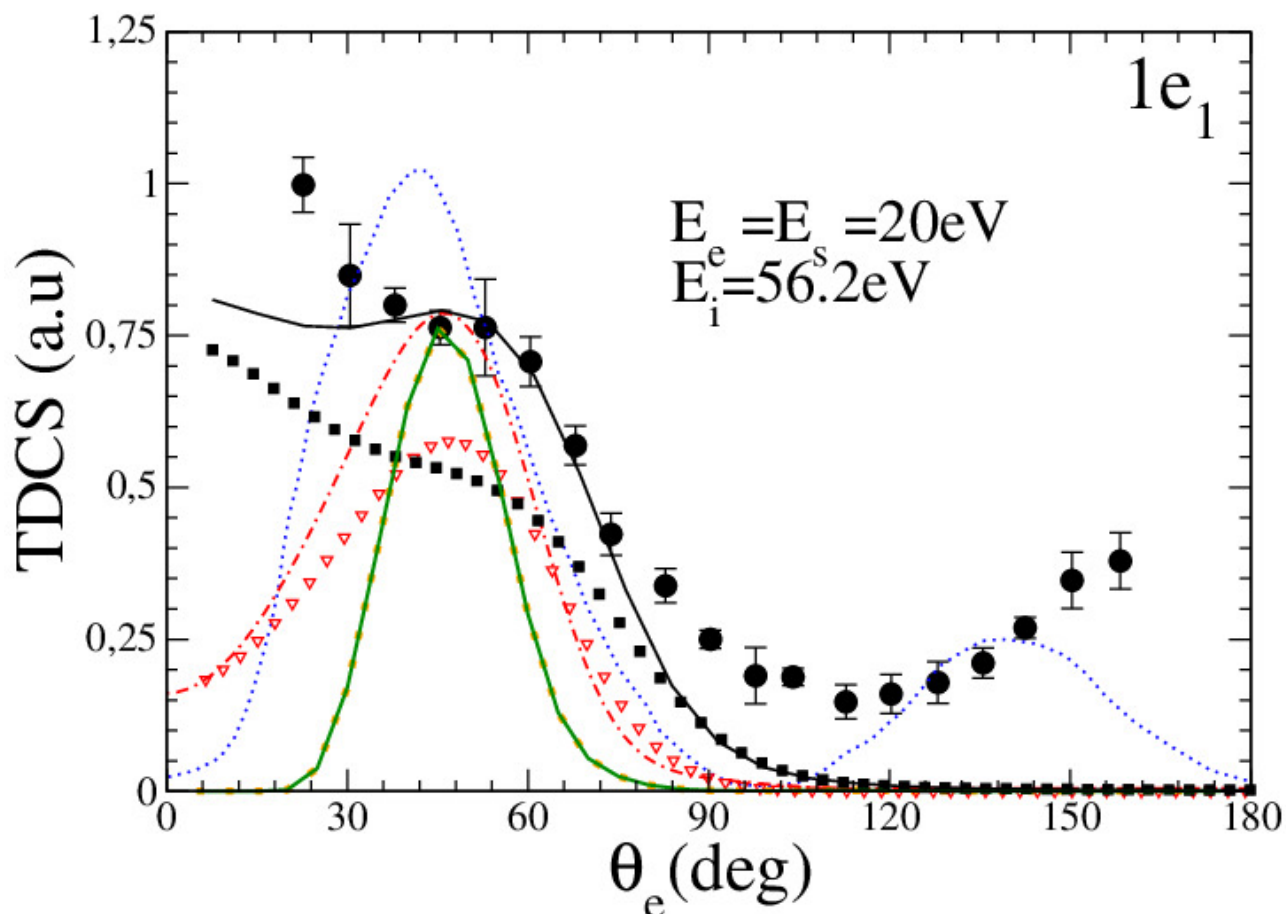


Figure IV-13 : Section efficace triplement différentielle de l'ionisation de la molécule de l'ammoniac par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($1e_1$) et dans des conditions géométriques symétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection est $E_e = E_s = 20\text{ eV}$ l'angle de diffusion est $\theta_s = \theta_e$, **cercles pleins (●)** : les données de l'expérience, **carrés pleins (■)**, **ligne continue (—)** et **ligne continue verte (—)** : nos résultats dans la première, la deuxième approximation de Born et Schwinger **avec effets d'échange** respectivement, **les triangles (▽)**, **Ligne discontinue (---)** et **petits carrés orange (■)** : nos résultats dans la première, la deuxième approximation de Born et Schwinger **sans effets d'échange**, respectivement, **les pointillés (⋯)** : représentent les résultats du modèle M3DW..

θ_e	M3DW	Expérience	Sans échange			Avec échange		
			Born1	Born2	Schwinger	Born1	Born2	Schwinger
0	0.02							
10			1.38	1.50	0.78	6.37	7.34	0.78
20	0.45		2.25	2.84	1.22	5.43	7.13	1.22
30	0.81	0.735	3.22	4.41	1.66	4.95	7.40	1.66
40	1.02		3.39	4.46	1.76	4.22	6.40	1.76
50	0.87		2.08	2.09	1.18	2.45	3.09	1.18
60	0.57	0.432	0.66	0.42	0.37	0.83	0.76	0.37
70	0.30		0.11	0.12	0.06	0.21	0.20	0.06
80	0.14		0.01	0.05	0.01	0.07	0.07	0.01
90	0.03	0.0932	0.001	0.016	0.001	0.04	0.03	0.001
100	0.009		0.0007	0.005	0.0006	0.02	0.026	0.0006
110	0.037		0.0009	0.002	0.001	0.02	0.02	0.001
120	0.111	0.0586	0.0009	0.001	0.0009	0.017	0.017	0.0009
130			0.0009	0.0009	0.0004	0.01	0.01	0.0004
140	0.25		0.0008	0.0009	0.0003	0.012	0.014	0.0003
150	0.22	0.145	0.0007	0.001	0.0002	0.010	0.014	0.0002
160	0.11		0.0007	0.0013	0.0002	0.009	0.013	0.0002
170			0.0006	0.0014	0.0001	0.009	0.013	0.0001
180	0.01							

Tableau IV-14: représente donnés de la section efficace triplement différentielle de l'ionisation de la molécule de l'ammoniac par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($3a_1$) dans des conditions géométriques symétriques ; L'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection $E_e = E_s = 20$ eV, L'angle de diffusion est $\theta_s = \theta_e$, les données de l'expérience, les données du modèle 3MDW.

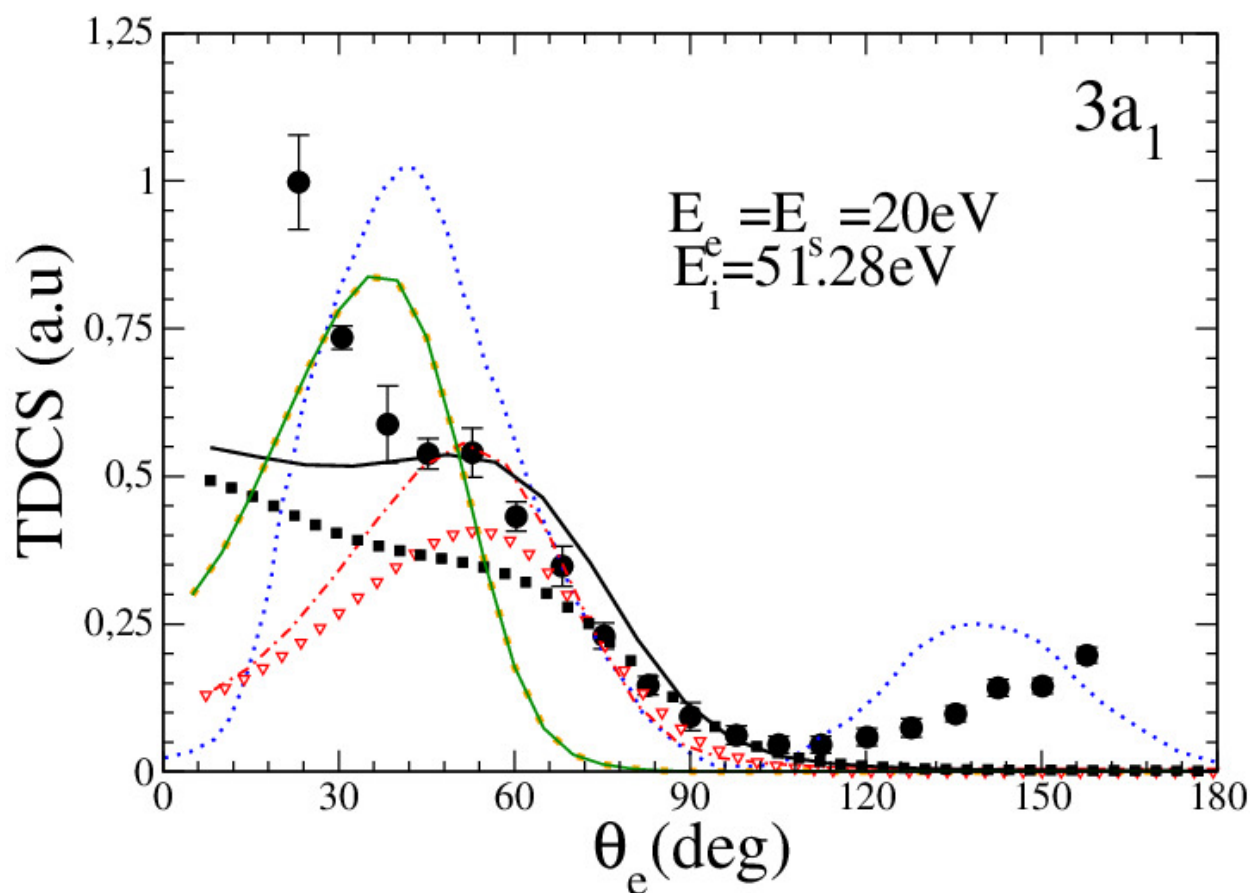


Figure IV-14: Section efficace triplement différentielle de l'ionisation de la molécule de l'ammoniac par impact électronique tracée en fonction de l'angle d'éjection θ_e , pour l'orbital ($3a_1$) et dans des conditions géométriques symétriques ; l'énergie d'incidence est E_i , l'énergie d'éjection est $E_e = E_s = 20 \text{ eV}$ l'angle de diffusion est $\theta_s = \theta_e$, **cercles pleins (●)** : les données de l'expérience, **carrés pleins (■)**, **ligne continue (—)** et **ligne continue verte (—)** : nos résultats dans la première, la deuxième approximation de Born et Schwinger **avec effets d'échange** respectivement, **les triangles (▽)**, **Ligne discontinue (---)** et **petits carrés orange (■)**: nos résultats dans la première, la deuxième approximation de Born et Schwinger **sans effets d'échange**, respectivement, **les pointillés (⋯)** : représentent les résultats du modèle M3DW.

On peut remarquer que dans les parties 2 et 3 et qui concerne l'ionisation de la molécule du Méthane (CH_4) ainsi que la molécule d'Ammoniac (NH_3), et pour une géométrie coplanaire symétrique, nos résultats obtenus pour $E_e = E_s = 20 \text{ eV}$ sont plus précis que de $E_e = E_s = 15 \text{ eV}$ cela a été prévu car plus la vitesse de la particule diffusé est élevé, plus l'approximation de Born devient précise. D'une autre manière, cela veut dire, plus la vitesse de la particule diffusée est faible, plus l'interaction avec l'ion résiduel devient importante, dans ce cas la particule doit être décrite avec une fonction d'onde soigneusement choisie, cela peut être bien vu lors de la comparaison entre la seconde approximation de Born (SBA) et l'expérience dans la région de 0 à 90° .

L'effet de distorsion de l'ion résiduel sur les deux électrons diffusés peut être observé dans la région de 90 à 180° . Il est clair, que dans cette région là où notre modèle ne donne pas d'excellents résultats, le modèle M3DW qui utilise les fonctions d'onde distordu pour décrire les électrons éjectés et diffusé donne des résultats précis. Par contre, ce qu'on n'arrive pas à comprendre pourquoi dans la région entre 0 et 40° modèle M3DW ne donne pas de bons résultats. A notre avis, et à partir de nos précédents travaux et surtout ceux de l'ionisation par impact électronique de l'atome d'hydrogène et de l'hélium ainsi que la molécule d'eau [12], on peut dire que peut être, si une moyenne sur les orientations moléculaire des sections efficaces triplement différentielles (TDCS) est utilisé dans le modèle M3DW au lieu de la moyenne de la fonction d'onde moléculaire, les résultats provenant de ce modèle seront très précis. La comparaison entre la première et la seconde approximation de Born (FBA et la SBA) conduit au fait que la transition des états intermédiaires est également un effet important dans les énergies considérées.

A partir des figures précédentes concernant la 2^{ème} et la 3^{ème} partie, on peut faire une remarque très importante, c'est que notre formalisme établi est le seul qui représente un pic dans la région de 0 et 30° , ce qui est en bon accord avec les résultats expérimentaux disponibles. Ici, nous voulons dire que nous ne croyons pas vraiment que l'énergie $E_e = 15 \text{ eV}$ et en dessous convienne à notre SBA pour les molécules traités dans le présent travail aussi bien que les courbes pour les énergies 15 eV sont présents seulement pour vérifier la validité du SBA dans les basse énergies ainsi que pour enrichir la discussion. En fait, les sections efficaces triplement différentielles (TDCS) ont été calculées pour les basses énergies 12.5 , 10 et 7.5 eV suivant les données expérimentales exigés par Nixon et *al.* [6] [10] et pour ces énergies, l'approximation de Born au premier ordre s'avère insuffisante.

Evidement, les résultats expérimentaux présentés dans les précédentes parties reflètent d'autres processus qui ne sont pas pris en compte dans les formalismes théoriques précédents et actuels comme par exemple, les effets de corrélation électronique et la réorganisation orbitale. Cela peut être l'une des causes de l'accord insuffisant entre la théorie et l'expérience. On rappelle également que dans ce travail, l'effet d'échange est considéré seulement pour le premier terme de l'approximation de Born est aussi peut être une cause de cet accord insuffisant.

Références

- [1]- Moccia R *J. Chem. Phys.* **40** 2164(1964).
- [2]- Moccia R *J. Chem. Phys.* **40** 2176(1964).
- [3]- Lahmam-Bennani A, Naja A, Staicu Casagrande E M, Okumus N, Dal Cappello C, Charpentier I et Houamer S *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **42** 165201(2009)
- [4] -Tachino C A, Monti J M, Fojon O A, Champion C et Rivarola R D *J Phys : Conf Ser* **583** 012020(2015).
- [5]- Montanari C C et Miraglia J E. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **47** 015201(2014).
- [6] -Nixon K L, Murray A J, Chaluvadi H , Ning C, Colgan J et Madison D H. *J. Chem. Phys.* **138** 174304 (2013)
- [7] - Naja A, Staicu Casagrande E M, ,Lahmam-Bennani A , Nekkab M, Mezdari F, Joulakian B, Chuluunbaatar O et Madison D H *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **40** 3775(2007)
- [8] - Catoire F, Staicu Casagrande E M, Lahmam-Bennani A, Duguet A, Naja A, Ren X G, Lohmann B et Avaldi L *Rev. Sci. Instrum.* **78** 013108(2007).
- [9] - Clark S A C, Reddish T J, Brion C E, Davidson E R et Frey R F *Chem. Phys.* **143** 1{10(1990)
- [10] - Nixon K L, Murray A J, Chaluvadi H , Ning C et Madison D H. *J. Chem. Phys.* **134** 174304(2011)
- [11]- Brauner M, Briggs J S and Klar H *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **22** 2265(1989).
- [12]- Sahlaoui M. Thèse de doctorat, : « Application du Formalisme Variationnel à l'ionisation de la Molécule d'Eau » Université Abou-Bekr-Belkaïd de Tlemcen (2012).

Conclusion générale

Dans ce travail, nous nous sommes intéressés aux calculs des sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation simple de la molécule du Méthane CH_4 ainsi que la molécule d'Ammoniac NH_3 .

Le formalisme théorique et mathématique est établi dans le cadre de la première approximation de Born (FBA) et de la deuxième approximation de Born (SBA) utilisant le modèle à une onde de Coulomb (1CW) afin de calculer les sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation par impact électronique d'une cible moléculaire de structure chimique XH_n , avec X un atome très lourd devant l'atome d'hydrogène H.

Les divers résultats obtenus et qui concernent principalement l'étude et le calcul des sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation simple de la molécule du méthane (CH_4) et celles de l'ammoniac (NH_3) par impact électronique obtenus dans le cadre de la première et la deuxième approximation de Born ainsi qu'à partir du principe variationnel de Schwinger s'avèrent globalement en bon accord en les comparant avec ceux d'autres modèles théoriques comme le 1CW et M3DW ainsi que les données expérimentales disponibles.

Dans le domaine des énergies intermédiaires et pour une meilleure précision, nous nous sommes basés sur la seconde approximation de Born ainsi que l'approche variationnel de Schwinger.

La comparaison de nos résultats actuels avec les données expérimentales nous a permis de constater que nos formalismes donnent une précision de calcul acceptable dans la gamme des énergies considérées.

Dans la région binaire de la géométrie asymétrique coplanaire, nos résultats sont en bon accord avec les données expérimentales. Dans le cas de la géométrie symétrique coplanaire, nous constatons que notre formalisme décrit la région comprise entre 0 et 90° mieux que les autres modèles, mais il devient insuffisant pour les énergies $E_e = E_s$ inférieures à 15 eV.

Ce travail nous a permis de constater que l'ionisation d'une cible moléculaire par un impact d'électrons est loin d'être une simple interaction de collision à des énergies faibles et intermédiaires.

Dans cette réaction, plusieurs effets doivent être pris en considération comme par exemple, une description précise des interactions post-collision, la distorsion des fonctions d'onde des états initiaux et finaux, la corrélation entre les orbitales moléculaires (MOs), les effets de réorganisation orbitale, l'interaction post-collision entre les électrons sortants et la transition à partir des états intermédiaires.

L'effet d'échange doit être également pris en compte lorsque les deux particules sortantes diffusent avec des énergies proches. La moyenne sphérique d'une fonction d'onde moléculaire utilisée pour décrire une orbitale cible, de notre point de vue, n'est pas une approximation précise lorsqu'il s'agit d'une molécule. La polarisation, l'effet d'interférence quantique, les collisions multiples et l'effet Auger peuvent être à l'origine de l'accord insuffisant entre la théorie et l'expérience.

Publication

PAPER

Electron-impact ionization of the CH₄ and NH₃ molecules in coplanar symmetric and asymmetric geometries

To cite this article: Asma Bouchikhi *et al* 2018 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **52** 015201

View the [article online](#) for updates and enhancements.



IOP | ebooks™

Bringing together innovative digital publishing with leading authors from the global scientific community.

Start exploring the collection—download the first chapter of every title for free.

Electron-impact ionization of the CH₄ and NH₃ molecules in coplanar symmetric and asymmetric geometries

Asma Bouchikhi¹ , Mohammed Sahlaoui^{1,2}, Boumediene Lasri^{1,3}, Abdessamad Sekkal^{4,5} and Mammam Bouamoud^{1,6}

¹Theoretical Physics Laboratory, Aboubekr Belkaid University, Tlemcen, Algeria

²École Supérieure en Sciences Appliquées de Tlemcen, Algeria

³Dr Tahar Moulay University, Saïda, Algeria

⁴Unité de Recherche Matériaux et Énergies Renouvelables (URMER), Tlemcen, Algeria

⁵École Supérieure en Sciences Appliquées d'Alger, Algeria

⁶Universitary Center of Naama, Naama, Algeria

E-mail: asmabouchikhi13@gmail.com

Received 24 February 2018, revised 24 July 2018

Accepted for publication 15 August 2018

Published 30 November 2018



Abstract

In the present paper, we study the single ionization of methane and ammonia molecules by electron-impact. Our analytical formalism developed in the framework of the first and second Born approximations and the one Coulomb wave model is used to compute the triple differential cross section. Experimental and theoretical results for high and intermediate energies are presented and compared in coplanar symmetric and asymmetric geometries. Good agreement is found between our results and the experimental ones.

Keywords: (e,2e) reaction, coplanar symmetric and asymmetric geometries, triple differential cross section

(Some figures may appear in colour only in the online journal)

1. Introduction

The (e,2e) is a very efficient method used to study the reaction of ionization of atomic and molecular target by electron-impact. Understanding this complex and fundamental reaction is very important for different areas, such as plasma physics, astrophysics, atmospheric physics and radiobiology. The characterization of this reaction leads the researcher to find the better approach, which allows to describe the interaction of charged particles with the target. However, the study of the ionization of a molecular target is a challenge ([1] and references therein). So several approximations are necessary to construct a relatively accurate formalism. We quote some formalisms: relativistic and non-relativistic distorted wave Born approximations [2–4], time dependent close coupling approximation [5], molecular three-body distorted wave approximation (M3DW) [6], convergent close coupling theories [7], R-matrix with pseudo-states models [8], one Coulomb wave (1CW) model, two Coulomb wave (2CW) model

and three Coulomb waves (3CW or Brauner, Briggs and Klar (BBK)) model [9].

Methane and ammonia molecules, like water molecule, are important targets to study from both experimental and theoretical aspects (see, for example, references from [10–17]). These molecules take an important part from the composition of some planetary atmospheres and interstellar medium [18]. This is why it is important to get accurate theoretical and experimental data from the ionization cross sections. The methane and ammonia molecules are relatively simple, which can help us to reduce the complexity of the (e,2e) reaction. Our mathematical formalism [10, 16, 19, 20] developed in the framework of the first Born approximation (FBA) and second Born approximation (SBA) using the 1CW model is employed to study the single ionization of the CH₄ and NH₃ molecules by electron-impact; which allows us to gain computation time and accuracy. Since these molecules present a strong mono-centric character, the molecular wave functions are described by an expansion over Slater-like

functions centered at the heaviest nucleus i.e., the carbon and nitrogen atoms, according to the description proposed by Moccia [21, 22]. The exchange between the two indistinguishable outgoing particles is considered in the first Born term using the so-called Ochkur approximation [23], from the moment that this term represents the dominant part in the transition amplitude. In order to consider the post-collision interaction between the two outgoing electrons, the final state is multiplied by Gamow factor.

For a clear understanding of the (e,2e) reaction, our results obtained in coplanar symmetry and asymmetry geometries are compared to previous experimental and theoretical findings [26, 24, 25]. These previous theoretical results are obtained from the M3DW model using a spherical average molecular orbital (MO) approximation [6], from the BBK model [27] and from the ICW model. In this regard, it is noteworthy, that the present work falls within the framework of development of a variational method which can be used to compute the different cross sections with a high degree of precision. This variational approach is based on the fractional form of the Schwinger variational principle [28, 29]. The approach appears to be a very powerful tool to investigate the direct excitation processes of atoms by ions-impact at intermediate and high impact energies. This variational principle has been introduced by Brendlé *et al* [30] and Gayet *et al* [31] within the impact parameter approximation, and was recently extended by Lasri *et al* [32–35] in order to study the electronic excitation of atoms. Furthermore, this approach was shown to be very successful in predicting the saturation effect of excitation cross sections when the projectile charge is increased.

This paper is presented as follows: the introduction (section 1), a short presentation of the theoretical modeling of the molecular (e,2e) reaction (section 2), comparison of the results to the previous experimental and theoretical findings (section 3), the conclusion (section 4).

2. Theory

The accurate way to study the single ionization of an atomic target by electron-impact, known as the (e,2e) reaction, is to analyze the triple differential cross section (TDCS) given (in atomic units) as:

$$\frac{d^3\sigma}{dE_e d\hat{\mathbf{k}}_e d\hat{\mathbf{k}}_s} = \frac{1}{2\pi^2} \frac{k_e k_s}{k_i} |T|^2, \quad (1)$$

where \mathbf{k}_i , \mathbf{k}_s and \mathbf{k}_e are the momentum of the incident, scattered and ejected electrons, respectively. $E_e = k_e^2/2$ is the ejection energy. We note that in equation (1) the energy E_e can be replaced by the scattering energy $E_s = k_s^2/2$, if the energy spectrum of the scattered electron is selected during the experiment. We note also that the equation (1) obeys the conservation energy condition defined by the equation $E_i - E_e - E_s + U_{IP} = 0$, where $E_i = k_i^2/2$ is the incident energy and U_{IP} is the ionization energy. In equation (1)

$$T = \langle \Psi_f | (V + VG_0^+V) | \Psi_i \rangle \quad (2)$$

is a matrix element for a transition of the projectile-target system from the initial state $|\Psi_i\rangle$ to the final state $|\Psi_f\rangle$ caused as result of the interaction

$$V = -\frac{Z}{r_0} + \sum_{i=1}^N \frac{1}{|\mathbf{r}_0 - \mathbf{r}_i|}, \quad (3)$$

where \mathbf{r}_0 and \mathbf{r}_i are position vectors of the projectile electron and the i th atomic electron, respectively. Z and N are the charge number and the number of the electrons of the atomic target, respectively. G_0^+ in equation (2) represents the Green operator.

Far from the interaction center where the projectile and the scattered electrons are considered free, the initial and final states can be written in the following forms:

$$|\Psi_i\rangle = \Theta_{\mathbf{k}_i}(\mathbf{r}_0)\Phi_a(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_N), \quad (4)$$

$$|\Psi_f\rangle = \Theta_{\mathbf{k}_s}(\mathbf{r}_0)\Phi_b(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_N). \quad (5)$$

Here, it is clear that $|\Theta_{\mathbf{k}_i}\rangle$ and $|\Theta_{\mathbf{k}_s}\rangle$ are the wave functions of the incident and scattered electrons chosen as plane wave functions $\Theta_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \exp(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$.

Usually, a collision problem has a good chance to be defined, and subsequently resolved, if we succeed in identifying the initial and final states. In the non-relativistic collision theory, the most essential property emerges from the fact that in the past (before the collision $t \rightarrow -\infty$) and in the future (after the collision $t \rightarrow +\infty$), particles in continuum are free. This, in particular, means that within the limits $t \rightarrow \pm\infty$, there is no interaction between the free particles and the bound electrons (for more details the reader can see the book cited in [36]). So, in the case of the (e,2e) reaction, far from the target, the ejected particle interacts only with the scattered electron and the effective ion potential. We can understand that, the scattered and ejected particles can be seen as valence electrons. Therefore, in order to simplify this $N + 1$ electrons problem, and since the collision reaction is considered very fast, we can use the so-called frozen-core approximation. This latter allows us to reduce the problem to only two electrons problem, thereby, the collision is seen as a reaction between the projectile and the atomic active electron. In this case, the wave functions given in equations (4) and (5), as well as the interaction energy will be reduced to the following forms;

$$|\Psi_i\rangle = \Theta_{\mathbf{k}_i}(\mathbf{r}_0)\Phi_a(\mathbf{r}_1), \quad (6)$$

$$|\Psi_f\rangle = \Theta_{\mathbf{k}_s}(\mathbf{r}_0)\psi_{\mathbf{k}_e}^{(-)}(\mathbf{r}_1), \quad (7)$$

$$V = -\frac{Z_{eff}}{r_0} + \frac{1}{|\mathbf{r}_0 - \mathbf{r}_1|}, \quad (8)$$

where Z_{eff} is the effective charge of the residual atomic ion (taken here equal to 1 [37]).

However, we are about to study the ionization of a molecular target by electron-impact. The problem lies in the fact that an atomic target has a symmetrical charge distribution that a molecular target does not have. In other words, the orientation of a molecular target must be taken into account during the collision reaction, and since all orientations in the space are equiprobable, a spherical average of the TDCS is

needed. It follows that the TDCS takes the following form:

$$\frac{d^3\sigma}{dE_e d\hat{\mathbf{k}}_e d\hat{\mathbf{k}}_s} = \frac{1}{2\pi^2} \frac{k_e k_s}{k_i} \int \frac{d\Omega}{8\pi} |\mathbb{T}|^2. \quad (9)$$

The integration over $d\Omega$ means a spherical average over all the molecular orientations. In the present formalism, the molecular orientation is defined in the laboratory frame by the Euler angles (α, β, γ) , accordingly $d\Omega = \sin\beta d\beta d\alpha d\gamma$.

The outgoing particles are indiscernible, it follows that the exchange between the scattered and ejected electrons must be considered in the final state:

$$|\Psi_f\rangle = W_{\xi_{se}}^{(-)} \{ \Theta_{\mathbf{k}_s}(\mathbf{r}_0) \psi_{\mathbf{k}_e}^{(-)}(\mathbf{r}_1) \pm \Theta_{\mathbf{k}_s}(\mathbf{r}_1) \psi_{\mathbf{k}_e}^{(-)}(\mathbf{r}_0) \}. \quad (10)$$

In this formula, the so-called Gamow factor $W_{\xi_{se}}^{(-)} = e^{-\frac{\pi\xi_{se}}{2}} \Gamma(1 - i\xi_{se})$ is included to consider the post-collision interaction between the fast and slow electrons, where $\xi_{se} = 1/q_{se}$ and $\mathbf{q}_{se} = \mathbf{k}_s - \mathbf{k}_e$.

We are interested to the CH₄ and the NH₃ molecules. What specifically characterizes this molecular targets is that each one of them contains a heavy atom compared to the hydrogen atoms. The center of mass is then very close to the heavy nucleus. In this case, each MO can be expanded on a set of basis $\{\phi_{n_\nu, l_\nu, m_\nu}^{\alpha_\nu}\}$ centered on the heavy atom [21, 22]:

$$\Phi_{\text{MO}}(\mathbf{r}_0) = \sum_{\nu=1}^M w_\nu \phi_{n_\nu, l_\nu, m_\nu}^{\alpha_\nu}(\mathbf{r}_0), \quad (11)$$

where w_ν is the contribution magnitude of the basis element $\phi_{n_\nu, l_\nu, m_\nu}^{\alpha_\nu}$, given in the molecular frame, as follows:

$$\phi_{n_\nu, l_\nu, m_\nu}^{\alpha_\nu}(\mathbf{r}_0) = R_{n_\nu}^{\alpha_\nu}(\mathbf{r}_0) S_{l_\nu, m_\nu}(\hat{\mathbf{r}}_0) \quad (12)$$

$R_{n_\nu}^{\alpha_\nu}(\mathbf{r}_0)$ is the radial part chosen as a Slater-like function and $S_{l_\nu, m_\nu}(\hat{\mathbf{r}}_0)$ is a real spherical harmonic,

$$S_{l_\nu, m_\nu}(\hat{\mathbf{r}}_0) = \sqrt{\frac{\text{sgn}(m_\nu)}{2}} \{ \text{sgn}(m_\nu) Y_{l_\nu}^{|m_\nu|}(\hat{\mathbf{r}}_0) + (-1)^{m_\nu} Y_{l_\nu}^{-|m_\nu|}(\hat{\mathbf{r}}_0) \} \quad (13)$$

$Y_l^m(\hat{\mathbf{r}}_0)$ is the ortho-normalized spherical harmonic and $\text{sgn}(m) = \frac{m}{|m|}$ is the sign function.

One of the advantages of using a molecular wave function centered at the heaviest nucleus, is the ability to perform analytically the average over all the molecular orientations given in equation (9). We remind that the molecular wave function given in equation (11) is defined in a molecular reference frame, where the main axis (i.e., the highest order axis of the molecule) is the Oz axis. However, in collision reference frame, the Oz axis is chosen in the direction of the incident electrons. For this reason, it is necessary to make a transformation of the molecular wave function from the molecular reference frame to the laboratory reference frame. This is possible thanks to the mathematical relationship:

$$Y_{l_\nu}^{m_\nu}(\hat{\mathbf{r}}_0) = \sum_{\mu=-l_\nu}^{+l_\nu} D_{m_\nu \mu}^{(l_\nu)}(\alpha, \beta, \gamma) Y_{l_\nu}^{\mu}(\hat{\mathbf{r}}_0), \quad (14)$$

where $D_{m_\nu \mu}^{(l_\nu)}$ is a rotation matrix element. As the rotation operator has the ortho-normalization property:

$$\int d\Omega D_{m_1 \mu_1}^{(l_1)}(\Omega) D_{m_2 \mu_2}^{(l_2)}(\Omega) = \frac{8\pi^2}{2l_1 + 1} \delta_{l_1 l_2} \delta_{m_1 m_2} \delta_{\mu_1 \mu_2} \quad (15)$$

we can resolve analytically the spherical average in equation (9). This gives:

$$\frac{d^3\sigma}{dE_e d\hat{\mathbf{k}}_e d\hat{\mathbf{k}}_s} = \frac{1}{2\pi^2} \frac{k_e k_s}{k_i} \sum_{\nu=1}^M \frac{w_\nu}{2l_1 + 1} \sum_{\mu=-l_\nu}^{+l_\nu} |W_{\xi_{se}}^{(-)} \mathbb{T}_\nu|^2, \quad (16)$$

where

$$|\mathbb{T}_\nu|^2 = |\mathbb{T}_\nu^d|^2 + |\mathbb{T}_\nu^e|^2 - \Re(\mathbb{T}_\nu^d \mathbb{T}_\nu^{e*}) \quad (17)$$

\mathbb{T}_ν^d and \mathbb{T}_ν^e are the direct and exchange amplitudes, respectively. A spectral resolution of the Green operator and the closure approximation [15, 16] allows us to get:

$$\begin{aligned} \mathbb{T}_\nu^d &= \frac{4\pi}{q^2} \{ [1 - \mathbb{I}(\mathbf{q}_i, \mathbf{q}_s, \mathbf{q})] F_\nu(\mathbf{q}) - [1 + \mathbb{I}(\mathbf{q}_i, \mathbf{q}_s, \mathbf{q})] P_\nu \} \\ &+ \frac{4}{\pi} \int d\mathbf{k} \frac{F_\nu(\mathbf{q}_s) - F_\nu(\mathbf{q}_i)}{q_s^2 q_i^2 (k^2 - \bar{k} - i\eta)} \end{aligned} \quad (18)$$

where $\mathbf{q} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_s$, $\mathbf{q}_s = \mathbf{k} - \mathbf{k}_s$ and $\mathbf{q}_i = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}$. The singular integral

$$\mathbb{I}(\mathbf{q}_i, \mathbf{q}_s, \mathbf{q}) = \frac{q^2}{\pi^2} \int \frac{d\mathbf{k}}{q_s^2 q_i^2 (k^2 - \bar{k} - i\eta)} \quad (19)$$

can be performed analytically following Byron *et al* [38]. We define also

$$F_\nu(\mathbf{q}) = \langle \psi_{\mathbf{k}_e}^{(-)} | \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_1) | \phi_{n_\nu, l_\nu, m_\nu}^{\alpha_\nu} \rangle, \quad (20)$$

$$P_\nu = \langle \psi_{\mathbf{k}_e}^{(-)} | \phi_{n_\nu, l_\nu, m_\nu}^{\alpha_\nu} \rangle. \quad (21)$$

If the incident energy is sufficiently large, the exchange amplitude \mathbb{T}_ν^e can be approximated by its dominant part i.e., the first Born term. Using the so-called Ochkur approximation [23] we can easily find

$$\mathbb{T}_\nu^e = \frac{4\pi}{|\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_e|^2} \{ F_\nu(\mathbf{q}) - \tilde{P}_\nu \}, \quad (22)$$

where

$$\tilde{P}_\nu = \frac{|\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_e|^2}{4\pi} \langle \Theta_{\mathbf{k}_s} | \phi_{n_\nu, l_\nu, m_\nu}^{\alpha_\nu} \rangle \left\langle \psi_{\mathbf{k}_e}^{(-)} \left| \frac{1}{r_0} \right| \Theta_{\mathbf{k}_i} \right\rangle. \quad (23)$$

The slower outgoing electron can be described by a Coulomb wave function:

$$|\psi_{\mathbf{k}_e}^{(-)}\rangle = \frac{e^{i\mathbf{k}_e \cdot \mathbf{r}_1}}{(2\pi)^{\frac{3}{2}}} W_{\xi_e}^{(-)} \mathbf{F}_1[i\xi_e; 1; -i(\mathbf{k}_e \mathbf{r}_1 + \mathbf{k}_e \cdot \mathbf{r}_1)]. \quad (24)$$

This continuum state wave function is an analytical solution of Schrödinger equation for diffusion of charged particle in a Coulomb potential. The analytical definition of this function allows us to perform mathematically the matrix element given in equations (20), (21) and (23) [15, 39, 40]. The integral

$$\frac{4}{\pi} \int d\mathbf{k} \frac{F_\nu(\mathbf{q}_s) - F_\nu(\mathbf{q}_i)}{q_s^2 q_i^2 (k^2 - \bar{k} - i\eta)} \quad (25)$$

in equation (18) can be computed numerically. It is important to note that, in order to have a good accuracy for the SBA, the numerical computational of the singular integral given in equation (25) must be well controlled. However, it is very hard to control this integral because of the two three dimensional singularity \mathbf{q}_i^{-2} and \mathbf{q}_s^{-2} , and the uni-dimensional one $(k^2 - \bar{k} - i\eta)^{-1}$. That is what pushed us, in our previous work [16], to find a mathematical method to kill analytically all the singularities.

3. Results and discussion

In this section we discuss the single ionization by electron impact of methane and ammonia molecules. We are interested to the outer valence ($1t_2$) and inner valence ($2a_1$) orbitals of CH_4 ; and to the highest occupied ($3a_1$) and next highest occupied ($1e_1$) orbitals of NH_3 . The TDCSs results are given in figures 1–3.

Before discussing the results, we start by talking about the molecular wave function. We remind that a one-center expansion over Slater-like basis is used to describe the target orbitals. In the present work the description proposed by Moccia [21, 22] has been adopted. The accuracy of this latter has been proved in previous works [26, 42, 41]. The accuracy of the wave function proposed to describe the CH_4 molecule has been checked by comparing the TDCS results of the electron momentum spectroscopy experiments with the plane wave impulse approximation theoretical calculations performed in the non-coplanar symmetric geometry for the $1t_2$ and $2a_1$ orbitals [26]. As mentioned by Lahmam-Bennani *et al* [26], the excellent agreement between the theory and experiment indicates that the description proposed by Moccia is of good quality and constitutes an accurate description of the target structure. Concerning the NH_3 , the accuracy of the one-center description of the molecular wave function has been inspired from the works of Tachino *et al* [41], Montanari and Miraglia [42] and Nixon *et al* [25].

In figure 1, the $(e,2e)$ cross sections for the ionization of $1t_2$ and $2a_1$ orbitals of the methane molecule are plotted for coplanar asymmetric geometry versus ejection angle θ_e , at fixed scattering angle $\theta_s = -6^\circ$. The curves are given for the kinematic parameters: ejection energies $E_e = 12, 37$ and 74 eV and scattering energy fixed at $E_s = 500$ eV. Consequently, the incident energy E_i is adjusted to satisfy the energy conservation condition $E_i = E_e + E_s - U_{IP}$. Our results of the TDCS are compared to the theoretical and experimental results of Lahmam-Bennani *et al* [26]. The complete description of the experimental method used to extract the experimental data is given in the references [44, 26, 43]. We note that a satellite structure is associated with the $2a_1$ orbital [45]. Since this structure is considered as a result of a very complex electron-correlation and orbital-reorganization effects, a rigorous theoretical description of these latter is realizable only with advanced theoretical methods. However, as concluded by Clark *et al* [45] from the momentum distribution results, the satellite structure

is weak for the $2a_1$ orbital of methane. Consequently, we assume that this structure should not affect our results.

In figure 2, the TDCSs for the same orbitals $1t_2$ and $2a_1$ are plotted in coplanar symmetric geometry for the kinematic parameters: $E_e = E_s = 20$ and 15 eV. In this symmetric configuration $\theta_e = \theta_s = \theta$. In figure 3, the TDCS for the ionization by electron impact of the $3a_1$ and $1e_1$ orbitals of the ammonia molecule are presented in coplanar symmetric geometry for the same kinematic and geometrical parameters as in figure 2. For more details on the geometrical and symmetrical parameters, as well as on the experiment, the reader can see references [24, 25]. Our theoretical results are compared to the theoretical and experimental results of Nixon *et al* [24, 25]

3.1. Coplanar asymmetric geometry

In figure 1, our predictions of the TDCS using the FBA and SBA are given in the coplanar symmetric geometry for the orbitals $1t_2$ and $2a_2$ of the CH_4 molecule. The results are compared to the experimental and theoretical data of Lahmam-Bennani *et al* [26]. From these figures, we can distinguish two spacial diffusion parts often referred to as binary (θ_e varies from 0° to 180°) and recoil (θ_e varies from 180° to 360°) regions. The theoretical results of Lahmam-Bennani *et al* [26] are extracted from the 1CW model (using the FBA without exchange) and 3CW model [27]. In the 1CW model, the ejected electron is described by the Coulomb wave function (given in equation (25)) to take into account the interaction with the residual molecular ion far from the collision center. In the 3CW model, both outgoing electrons, scattered and ejected, are described by Coulomb wave functions as well as the post-collision interaction between these particles.

From figure 1 we can observe that the theoretical results are in very good agreement with the experimental data in the binary region. It seems that all the theoretical curves predict one peak in this region, except for the curves where $E_e = 12$ eV, all theoretical computations predict two peaks for the orbital $1t_1$ which seems in agreement with the experiment. However, our SBA results are the only ones that predict two peaks in the recoil region, except in the orbital $2a_1$ for $E_e = 74$ eV where the 3CW model predicts also two peaks. This prediction seems somewhat in agreement with the experiment. Evidently, since our model does not accurately describe the interaction between the diffused particles and the residual ion, even before making numerical computations, it is already anticipated that our curves will not conform well to the experiment in the recoil region, despite that our results are (generally speaking) significantly better than the theoretical predictions of Lahmam-Bennani *et al* [26]. We should also remember that, in our forecasts, we take into account the effect of transitions from the intermediate states supported by the second term of Born approximation. This effect becomes important in the recoil region for low and intermediate energies, as we can see from the comparison of the SBA and FBA (Our FBA predicts only one peak in the recoil region. That brings us to say that the prediction of the two peaks in

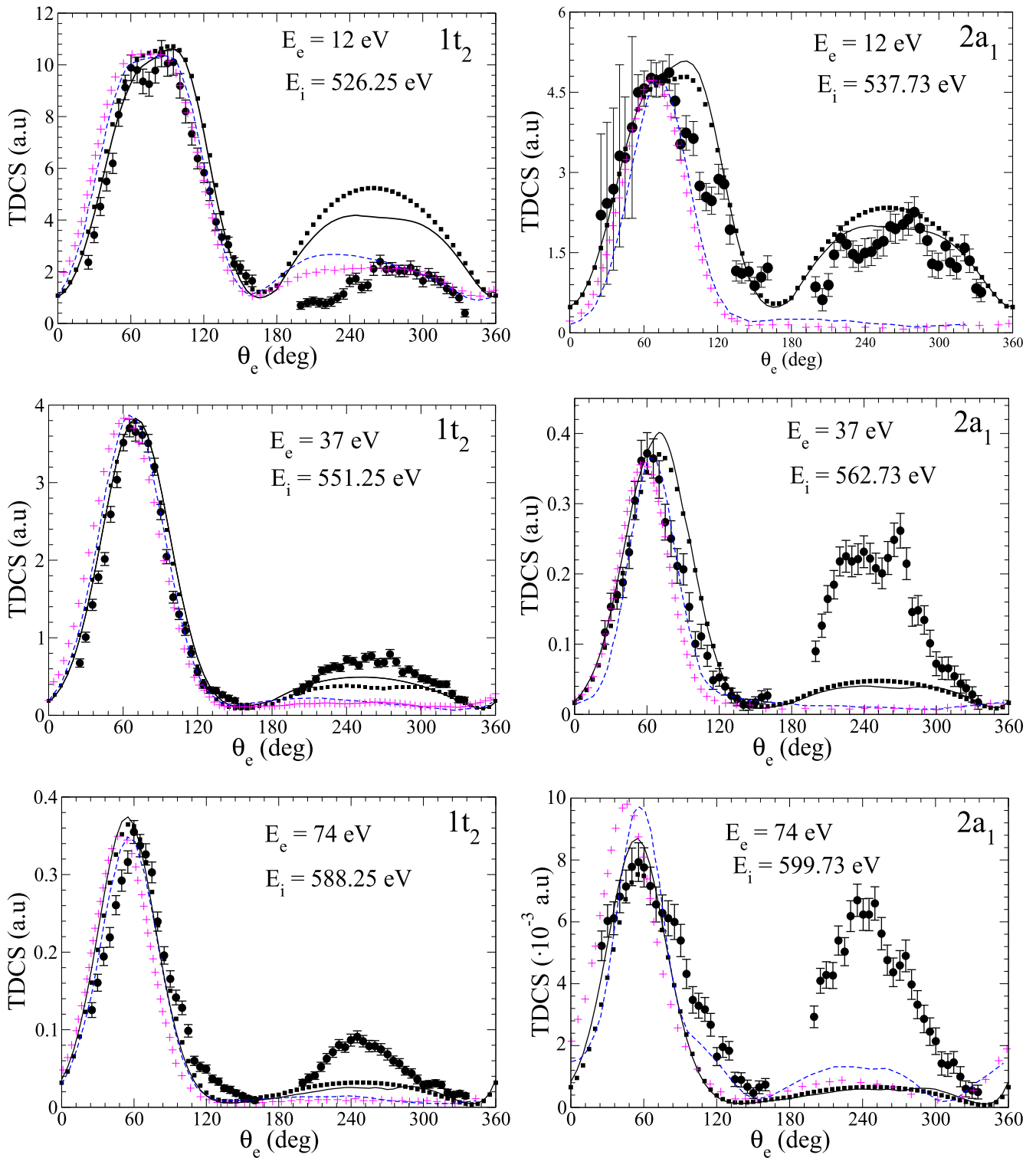


Figure 1. TDCSs of the electron-impact ionization of molecular orbitals $1t_2$ and $2a_1$ of methane molecule in coplanar asymmetric geometry. 12, 37 and 74 eV are ejection energies. The scattering energy and angle are fixed to $E_s = 500$ eV and $\theta_s = 6^\circ$. The solid-circles are the experimental data [26]. Our results are: black squares for the FBA, solid-line for the SBA. Dashed-line for the 3CW model results and the plus for the 1CW model from [26].

this region by the SBA reflects the effect of transitions from the intermediate states supported by the second term of Born approximation). The comparison of our findings from the FBA model with the experiment and those of Lehmann-Benani *et al* [26] derived from the same theoretical model

(1CW model), clearly shows that our computations are more accurate. The comparison of our SBA results with the 3CW model results, clearly shows that we need to describe both the scattered and ejected particles with more precise wave functions to take into-account, with good accuracy, the interaction

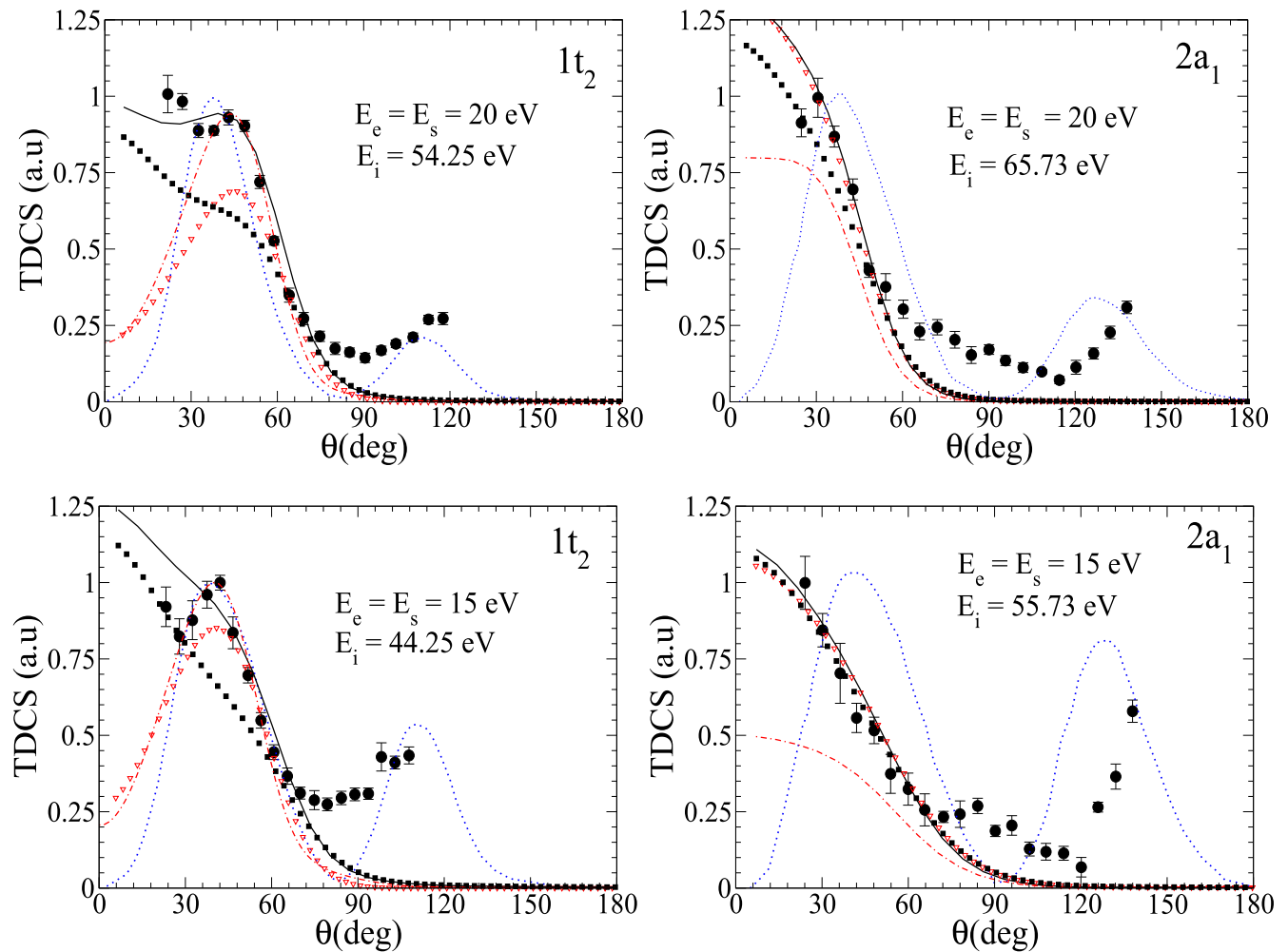


Figure 2. TDCS's for the electron-impact ionization of molecular orbitals $1t_1$ and $2a_1$ of methane molecule in coplanar symmetric geometry where $E_e = E_s = 20$ or 15 eV and $\theta_e = \theta_s$. The solid-circles are experimental data [25]. Our result are : black squares and solid-line, respectively, are the FBA and SBA with exchange effect. Triangle and dashed-dotted line, respectively, are the FBA and SBA without exchange effect. Dotted-line the M3DW model of Nixon *et al* [25].

with the residual ion (for example, 2CWs as in the 2CW model and the 3CW model, or two distorted waves as in the molecular three distorted wave (M3DW) model (described below)). If we take the example of the orbitals $1t_1$ and $2a_1$ for $E_e = 12$ eV and $E_e = 74$ eV, respectively, it is clear that the 3CW model describes the recoil region better than the SBA. In addition to that, in the orbital $2a_1$, the result of the 3CW model is very close to the experiment in the binary region from 90° to 150° .

It is evident that the experimental data reflect other process which are not taken into account by the present and previous theoretical formalism. In the case of simple molecules, the electrons are interacting before the electron impact ionization. After the collision, one of them is ejected from the molecule and the others remain as constituents of the core in the molecular ion. The molecular wave function will change in a certain amount which can not be neglected. Therefore, the frozen-core approximation may not be a good approximation in the energy range in which we are working. This may be one of the causes of the insufficient agreement between the theory and the experiment in the recoil region. The fact that

this insufficient agreement is more important for the orbital $2a_1$ (curves for $E_e = 37$ et 74 eV), made us think to the satellite structure associated with the $2a_1$ orbital [45]. Despite its relative weakness, the satellite structure can become important for certain energies. If we find that this is verified, then a rigorous description of the complex electron-correlation and orbital-reorganization effects becomes necessary in the computation of the ionization cross section of the $2a_1$ orbital.

3.2. Coplanar symmetric geometry

In this part, we are interested in the single ionization by electron-impact of methane and ammonia molecules in the coplanar symmetric geometry. In this geometry $E_e = E_s$, it means that during the experiment, the two diffused electrons are practically indistinguishable. This is why, it is very important to consider the exchange effect in the theory. To demonstrate this, we can compare in figures 2 and 3 the FBA and SBA with and without exchange effect. The comparison clearly shows that the exchange effect can not be neglected.

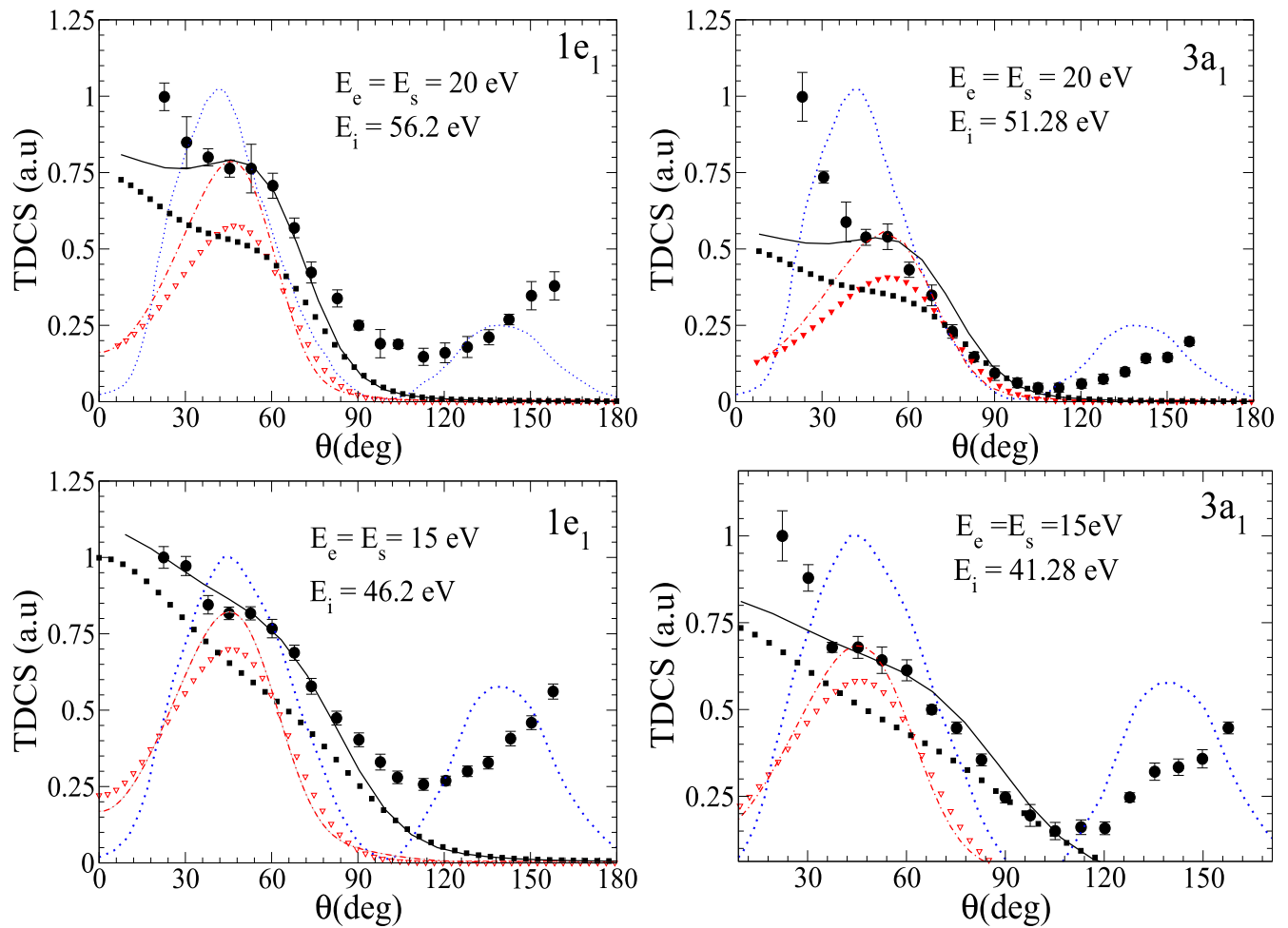


Figure 3. Same as figure 2 for the molecular orbitals $1e_1$ and $3a_1$ of ammonia molecule.

In figure 2 the TDCS results are given for the ionization of the MOs ($1t_1$, $2a_1$) of the CH_4 molecule, and those of MOs ($1e_1$, $3a_1$) of the NH_3 molecule are presented in figure 3.

In figures 2 and 3, we compare our computations of the TDCS to the experimental and theoretical findings of Nixon *et al* [24, 25]. The experimental data are obtained so that each orbital is uncontaminated by its neighbor. That is to say, the coincidence signal from the $2a_1$ orbital is measured separately from the $1t_2$ orbital. So, the problem of the satellite structure associated with the $2a_1$ orbital is resolved in the experiments. The valence orbitals $1e_1$ and $3a_1$ of ammonia are energetically well separated. Consequently, the measure of TDCS for each orbital is uncontaminated by contributions from neighboring orbitals.

The theoretical results of Nixon *et al* [24, 25] are extracted using the molecular three distorted waves (M3DW) model. In this model, three distorted wave functions are used to describe the incident, the scattered and ejected electrons. This is a good description, since the interaction of the incident particle with the ‘molecular target’ and that of the diffused electrons with the ‘residual ion’ are considered with a good accuracy. The post-collision interaction between the outgoing electrons is also accurately described in this model using a Coulomb wave function. However, we disagreed with Nixon

et al [24, 25] on the description of the molecular target in this model. In the work of Nixon *et al* [24, 25] a spherical average of the molecular wave function has been used to describe the molecular target. From our point of view, this is a weak point of the M3DW model since it is very important to consider all the possible molecular orientations during the collision reaction. An average of the wave function leads to study an electron-impact with a spherical electronic cloud. By contrast, each experimental data is an average over several measurements of the $(e,2e)$ reactions. In each reaction, the target is in one possible orientation prior to the collision. In other words, each experimental measure is an average of the TDCS for an electronic collision with a randomly oriented molecular target. This is why, to model a molecular ionization, it is more accurate to average the TDCS over all the possible orientations.

We can remark, in figures 2 and 3, that our computations for $E_e = E_s = 20$ eV are more accurate than those for $E_e = E_s = 15$ eV. This has been expected because more the velocity of the scattered particle is high, more the Born approximation becomes accurate (let Remember that, the scattered particle is described in this model with a plan wave function). In other words, more the velocity of the scattered particle is low, more the interaction with the residual ion

becomes important. In this case, the particle needs to be described with a carefully chosen wave function. That may be well seen from the comparison of the SBA with the experiment in the region from 0° to 90° (more specifically, from 0° to 40°). The distortion effect of the residual ion on the two diffused electrons can be seen in the region from 90° to 180° . Clearly, in this region where our model fails, the M3DW model that uses two distorted wave functions to describe the ejected and scattered electrons gives more accurate results. What we can not understand, is why the curves from the M3DW model fail in the region (generally speaking) from 0° to 40° . From our previous experience with the ionization of water molecule, the hydrogen and helium atoms [46] we can say that, may be, if an average over the molecular orientations at the TDCS is used in the M3DW model instead of the average of the molecular wave function, the results coming from this model will be very accurate. The comparison of the SBA to the FBA leads to the fact that the transition from the intermediate states is also an important effect in the considered energies. An important remark in figures 2 and 3, is that our formalism is the only to predict a peak in the region from 0° to 30° . Which is in agreement with the experimental findings.

Here, we want to say that we do not really believe that the energy $E_e = E_s = 15$ eV (and below) is suitable to our SBA, for the molecules treated in the present work. The curves for the energy 15 eV are present only to be used in checking the SBA validity in low energies. As well as to enrich the discussion. In fact, the TDCS has been computed for low energies 12.5, 10, 7 and 5 eV following the experimental data given by Nixon *et al* [24, 25], and we have found that the SBA becomes disabled for these energies.

Obviously, the experimental data presented in figures 2 and 3 reflect other process which are not taken into account in the present and previous theoretical formalisms. For example, the electron-correlation and orbital-reorganization effects are not considered in the theory. This may be one of the causes of the insufficient agreement between the theory and the experiment. We recall that, the exchange effect is considered in the present formalism only in the first term of Born approximation. This one can be another cause of the insufficient agreement.

4. Conclusion

In this work, we are interested to the single ionization of two simple molecules CH_4 and NH_3 . The SBA is used for better accuracy in intermediate energies. From the comparison of the present results to the experimental data, we can see that our formalism gives an acceptable accuracy in the considered energies range. In the binary region of the coplanar asymmetric geometry, our results are in well agreement with the experimental data. In the coplanar symmetric geometry, we find that our formalism describes the region from 0° to 90° better than the other models. However, the formalism becomes disabled for the energies $E_e = E_s$ below 15 eV.

From this work, we found that the ionization of a molecular target by electron impact is far from a simple collision interaction at low and intermediate energies. In this reaction, several effects must be taken into consideration such as: an accurate description of the post-collision interactions, distortion of the initial and final states wave functions, correlation between the MOs, orbital-reorganization effects, post-collision interaction between the outgoing electrons and transition from the intermediate states. The exchange effect must be considered when the two outgoing particles diffuse with close energies. The spherical average of a molecular wave function used to describe a target orbital, from our point of view, is not an accurate approximation when it is a question of molecule. Polarization, quantum interference effect, multiple collisions and Auger effect may cause the insufficient agreement between the theory and the experiment.

ORCID iDs

Asma Bouchikhi  <https://orcid.org/0000-0002-7501-9457>

References

- [1] Tennyson J 2010 *Phys. Rep.* **491** 29
- [2] Prideaux A and Madison D H 2003 *Phys. Rev. A* **67** 052710
- [3] Champion C, Hanssen J and Hervieux P A 2002 *J. Chem. Phys.* **117** 197–204
- [4] Srivastava R, Zup T, McEachran R P and Stauffer A D 1992 *J. Phys. B* **25** 1073
- [5] Pindzola M S *et al* 2007 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **40** R39
- [6] Gao J, Madison D H and Peacher J L 2005 *J. Chem. Phys.* **123** 204314
- [7] Bray I and Stelbovics A T 1992 *Phys. Rev. Lett.* **69** 53
- [8] Zatsarinny O and Bartschat K 2012 *Phys. Rev. A* **85** 062710
- [9] Champion C, Dal Cappello C, Houamer S and Mansouri A 2006 *Phys. Rev. A* **73** 012717
- [10] Sahlaoui M and Bouamoud M 2011 *Can. J. Phys.* **89** 723–7
- [11] Yavuz M, Ozer Z N, Ulu M, Champion C and Dogan M 2016 *J. Chem. Phys.* **144** 164305
- [12] Tóth I, Nagy L and Campeanu R I 2016 *Eur. Phys. J. D* **70** 170
- [13] Tachino C A, Monti J M, Fojón O A, Champion C and Rivarola R D 2015 *J. Phys.: Conf. Ser.* **583** 012020
- [14] Yavuz M, Okumus N, Ozer Z N, Ulu M, Dogan M, Sahlaoui M, Benmansour H and Bouamoud M 2014 *J. Phys.: Conf. Ser.* **488** 052031
- [15] Sahlaoui M, Bouamoud M, Lasri B and Dogan M 2013 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **46** 115206
- [16] Sahlaoui M and Bouamoud M 2012 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **45** 085201
- [17] Champion C, Boudrioua O and Dal Cappello C 2008 *J. Phys.: Conf. Ser.* **101** 012010
- [18] Luna H, Cavalcanti E G, Nickles J, Sigaud G M and Montenegro E C 2003 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **36** 4717
- [19] Sahlaoui M, Lasri B and Bouamoud M 2014 *Can. J. Phys.* **92** 136–40
- [20] Sahlaoui M and Bouamoud M 2010 *Can. J. Phys.* **88** 905–10
- [21] Moccia R 1964 *J. Chem. Phys.* **40** 2164
- [22] Moccia R 1964 *J. Chem. Phys.* **40** 2176
- [23] Ochkur V I 1965 *Sov. Phys. - JETP* **18** 503
- [24] Nixon K L, Murray A J, Chaluvadi H, Ning C and Madison D H 2011 *J. Chem. Phys.* **134** 174304

- [25] Nixon K L, Murray A J, Chaluvadi H, Ning C, Colgan J and Madison D H 2013 *J. Chem. Phys.* **138** 174304 (2013)
- [26] Lahmam-Bennani A, Naja A, Staicu Casagrande E M, Okumus N, Dal Cappello C, Charpentier I and Houamer S 2009 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **42** 165201
- [27] Brauner M, Briggs J S and Klar H 1989 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **22** 2265
- [28] Szmytkowski R 2003 *Phys. Lett. A* **319** 23–9
- [29] Joachain C J 1975 *Quantum Collision Theory* (Amsterdam: North-Holland) pp 233–8
- [30] Brendlé B, Gayet R, Rozet J P and Wohrer K 1985 *Phys. Rev. Lett.* **54** 2007
- [31] Gayet R and Bouamoud M 1989 *Nucl. Instrum. Methods B* **42** 515–22
- [32] Lasri B, Bouamoud M and Gayet R 2004 *Phys. Chem. News J.* **20** 12
- [33] Lasri B, Bouamoud M and Gayet R 2006 *Nucl. Instrum. Methods B* **251** 66
- [34] Lasri B, Bouamoud M and Hanssen J 2007 *J. Electron Devices* **5** 127
- [35] Lasri B, Champion C, Sahlaoui M, Bouamoud M and Dogan M 2014 *Chin. J. Phys.* **52** 5
- [36] Belkic D 2008 *Quantum Theory of High-Energy Ion-Atom Collisions* (London: Taylor and Francis)
- [37] Brothers M J and Bonham R A 1984 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **17** 4235
- [38] Byron F W Jr., Joachain C J and Piraux B 1985 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **18** 3203
- [39] Sahlaoui M and Bouamoud M 2010 *Can. J. Phys.* **88** 905–10
- [40] Sahlaoui M, Lasri B and Bouamoud M 2014 *Can. J. Phys.* **92** 136–40
- [41] Tachino C A, Monti J M, Fojón O A, Champion C and Rivarola R D 2015 *J. Phys.: Conf. Ser.* **583** 012020
- [42] Montanari C C and Miraglia J E 2014 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **47** 015201
- [43] Naja A, Staicu Casagrande E M, Lahmam-Bennani A, Nekkab M, Mezdari F, Joulakian B, Chuluunbaatar O and Madison D H 2007 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **40** 3775
- [44] Catoire F, Staicu Casagrande E M, Lahmam-Bennani A, Duguet A, Naja A, Ren X G, Lohmann B and Avaldi L 2007 *Rev. Sci. Instrum.* **78** 013108
- [45] Clark S A C, Reddish T J, Brion C E, Davidson E R and Frey R F 1990 *Chem. Phys.* **143** 1–10
- [46] Sahlaoui M 2012 Application du Formalisme Variationnellionisation de la Molcule dEau *PhD Thesis* University of Tlemcen, Algeria [<http://dspace.univ-tlemcen.dz/bitstream/112/3757/1/these-SAHLAOUI-Mohammed.pdf>]

Résumé

Dans ce travail de thèse, nous étudions l'ionisation simple de molécule du méthane (CH_4) et de la molécule d'ammoniac (NH_3) par impact électronique.

Notre formalisme analytique développé dans le cadre de la première, la deuxième approximation de Born et l'approche variationnel de Schwinger est utilisé pour calculer la section efficace triplement différentielle. Les résultats expérimentaux et théoriques pour les hautes énergies et les énergies intermédiaires sont présentés dans les cas des géométries symétriques et asymétriques coplanaires et comparés avec d'autres modèles théoriques ainsi que les résultats expérimentaux disponibles.

Un bon accord est décelé entre nos résultats et les résultats théoriques et expérimentaux disponibles.

Mots Clés: réaction ($e,2e$), géométrie symétrique et asymétrique coplaire, section efficace triplement différentielle.

Abstract

In the present work, we study the single ionization of methane (CH_4) and ammonia (NH_3) molecules by electron-impact. Our analytical formalism developed in the framework of the first, second Born approximations, Schwinger variational approach is used to compute the triple differential cross section. Experimental and theoretical results for high and intermediate energies are presented in coplanar symmetric and asymmetric geometries and compared to other theoretical models and experimental data.

Good agreement is found between our results and available theoretical and experimental data.

Keywords: ($e,2e$) reaction, coplanar symmetric and asymmetric geometries, triple differential cross section.

ملخص

نعرض في طيات هذا العمل تأين كل من جزيء الميثان (CH_4) و جزيء الامونياك (NH_3) بالتصادم مع الالكترونات.

إنّ الطريقة النظرية المطورة في هذه الدراسة و المرتكزة أساساً علي النظرية التقريبية الأولى و الثانية لبورن و كذا المبدأ التغييري لشوينغر تعتبر ركيزة من الركائز المعوّل عليها في حساب المقاطع الفعّالة ثلاثية التفاضلية في المجال الطاقوي المتوسط و العالي. المقارنة بين النتائج التجريبية و كذا النظرية في حالات متحدة المستوي المتماثلة و الغير المتماثلة تدل على توافق جيد.

الكلمات المفتاحية: التفاعل ($e,2e$) ، الهندسة متحدة المستوي المتماثلة و الغير المتماثلة، المقاطع الفعّالة ثلاثية التفاضلية.