



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

UNIVERSITÉ DE METZ
INSTITUT DE PHYSIQUE ET DE CHIMIE

THÈSE DE DOCTORAT

BIBLIOTHEQUE UNIVERSITAIRE - METZ	
N° inv.	19981945
Cote	S/M2 98/65
Loc	mag

PRÉSENTÉE PAR
RACHID EL MKHANTER
POUR L'OBTENTION DU

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE METZ
(SPECIALITE PHYSIQUE)

ETUDE DES MECANISMES DE LA DOUBLE
IONISATION DE L'HELIUM PAR IMPACT
ELECTRONIQUE

Soutenu le Vendredi 24 avril 1998 à 14h 00
Amphithéâtre II IUT Mesures Physiques, Technopôle 2000

Devant la commission d'Examen :

- | | |
|---|---------------------|
| B. PIRAUX, Docteur ès Sciences, Université Catholique
de LOUVAIN, BELGIQUE | rapporteur |
| R. TWEED, Professeur à l'Université de BRETAGNE
OCCIDENTALE | rapporteur |
| A. LAHMAM-BENNANI, Professeur à l'Université
de Paris-Sud (Orsay) | examinateur |
| P.A. HERVIEUX, Maître de Conférences de l'Université de METZ | examinateur |
| J. HUGEL, Professeur à l'Université de Metz | examinateur |
| C.DAL CAPPELLO Professeur à l'Université de Metz | Directeur de Thèse. |

BIBLIOTHEQUE UNIVERSITAIRE DE METZ



031 536272 1

UNIVERSITÉ DE METZ
INSTITUT DE PHYSIQUE ET DE CHIMIE

THÈSE DE DOCTORAT

PRÉSENTÉE PAR

RACHID EL MKHANTER

POUR L'OBTENTION DU

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE METZ

(SPECIALITE PHYSIQUE)

**ETUDE DES MECANISMES DE LA DOUBLE
IONISATION DE L'HELIUM PAR IMPACT
ELECTRONIQUE**

Soutenue le Vendredi 24 avril 1998 à 14h 00

Amphithéâtre II IUT Mesures Physiques, Technopôle 2000

Devant la commission d'Examen :

B. PIRAUX , Docteur ès Sciences, Université Catholique de LOUVAIN, BELGIQUE	rapporteur
R. TWEED , Professeur à l'Université de BRETAGNE OCCIDENTALE	rapporteur
A. LAHMAM-BENNANI , Professeur à l'Université de Paris-Sud (Orsay)	examineur
P.A. HERVIEUX , Maître de Conférences de l'Université de METZ	examineur
J. HUGEL , Professeur à l'Université de Metz	examineur
C.DAL CAPPELLO , Professeur à l'Université de Metz	Directeur de Thèse.

à ma mère et à la mémoire de mon père.

Remerciements

Ce travail a été effectué au sein du laboratoire de physique moléculaire et des collisions de l'Université de Metz. Je tiens tout d'abord à remercier le professeur C. Dal. Cappello d'avoir accepté de diriger ce travail. Qu'il soit aussi remercié pour m'avoir initié au travail de chercheur ainsi que d'avoir toujours été disponible malgré ses diverses occupations administratives.

Je remercie B. PIRAUX, docteur ès Sciences à l'Université Catholique de LOUVAIN, BELGIQUE d'avoir accepté d'être rapporteur.

Je remercie également R. TWEED, professeur à l'Université Bretagne Occidentale d'avoir accepté d'être rapporteur.

Je remercie A. Lahmam-Bennani, professeur à l'Université de Paris-Sud (Orsay), qui a bien voulu accepter d'être examinateur.

Je remercie J. HUGEL, professeur à l'Université de METZ, qui a bien voulu accepter présider le jury.

Je voudrais également exprimer ma reconnaissance à P. A. HERVIEUX , Maître de conférences à l'Université de Metz qui a collaboré à une partie de ce travail et qui a accepté aussi de faire partie des membres de jury.

Je suis reconnaissant à J. Hanssen, professeur à l'Université de Metz, C. Tavard, professeur à l'Université de Metz, B. Joulakian, professeur à l'Université de Metz qui m'ont fait bénéficier de leurs remarques et commentaires. Je les remercie vivement.

J'exprime également ma gratitude à P. Senot pour l'assistance technique qu'il m'a apporté durant mon travail.

Que tous les membres du laboratoire, chercheurs, techniciens, secrétaire et thésards soient ici remerciés pour leur gentillesse et leur disponibilité.

SOMMAIRE

Introduction	3
I La double ionisation des atomes par impact électronique :	
généralités	5
<i>I-1 - Rappels</i>	5
<i>I-1-1 - Condition de validité de la théorie des perturbations</i>	5
<i>I-1-2 - Approximation de Born</i>	7
<i>I-2 - Aspects théoriques de la double ionisation</i>	9
<i>I-3 - Aspects expérimentaux de la double ionisation des gaz rares par impact électronique</i>	13
<i>I-3-1 - Principe des expériences</i>	14
<i>I-3-2 - La détection par coïncidence</i>	14
<i>I-3-3 - Contraintes liées à la détection par coïncidence</i>	15
II Calcul de la section efficace différentielle de double ionisation	17
<i>II-1 - Description de l'état initial</i>	17
<i>II-2 - Description de l'état final</i>	19
<i>II-3 - Cas du mécanisme shake-off (SO)</i>	19
<i>II-4 - Mécanisme Two-step (1)</i>	21
<i>II-5 - mécanisme TS2</i>	27
III Interprétation des mécanismes collisionnels de la	
double ionisation	31
<i>A) Modélisation ondes planes</i>	31
<i>III-1 - Mécanisme shake-off</i>	31
<i>III-2 - Mécanisme TWO Step (2)</i>	37
<i>III-2-1 -Principe du calcul</i>	37
<i>III-2-2 -Conditions cinématiques</i>	39
<i>III-2-3 Effet de la corrélation dans l'état initial</i>	39

III-2-4 Etat initial non corrélé.....	42
III-3 - Mécanisme TWO Step (1).....	44
III-3-1- corrélation dans l'état final.....	45
B) Modélisation ondes coulombiennes.....	47
III-4-Etude de la contribution du mécanisme SO dans les expériences (e,3-1e) sur l' argon	47
III-4-1-Introduction.....	47
III-4-2-théorie.....	47
III-4-3- Résultats et discussion.....	50
III-4-4- Conclusion.....	54
III-5-Mise en évidence de l'importance du mécanisme TS2 dans ionisation des atomes à haute énergie incidente	54
III-6-Evaluation des mécanismes SO, TS1 et TS2 dans la double ionisation de l'Helium par impact électronique à haute énergie incidente.....	62
III-6-1- Introduction.....	62
III-6-2- Résultats et discussion.....	63
Conclusion générale.....	67
REFERENCES.....	69
ANNEXE I.....	71
ANNEXE II.....	74
ANNEXE III.....	80
ANNEXE IV.....	83

Introduction

La double ionisation d'atomes a depuis fort longtemps intéressé les physiciens car elle constitue un test très sévère pour la description des systèmes à deux électrons.

Les premières études théoriques de la double ionisation datent des années 1966-1967. Byron et Joachain^[1] ont ainsi montré pour la première fois l'importance capitale de la corrélation dans l'état initial : l'utilisation d'une description de l'atome d'hélium par un modèle à électrons indépendants donne une section efficace de double ionisation nulle^[2]. Ils ont aussi estimé que la corrélation dans la voie finale (les deux électrons éjectés) était négligeable dans le cas du calcul de la section efficace totale de la double photoionisation de l'hélium. Tweed^[3] a pour la première fois essayé d'inclure la corrélation dans l'état final par l'intermédiaire de charges effectives. Mais tous ces calculs et tous ceux qui suivront jusqu'aux années 1994 ont été effectués dans le cadre d'un modèle basé sur une collision en une étape (une première ionisation) appelé shake-off. Pourtant, Mc Guire^[4], Carlson et Krause^[5] entre autres avaient déjà émis l'hypothèse de mécanismes en deux étapes. C'est donc seulement en 1994 que Popov et al^[6] ont calculé, à l'aide de nombreuses approximations, la contribution d'un mécanisme en deux étapes appelé TS1 où le premier électron éjecté heurte un électron de la cible et l'ionise.

Nous avons donc repris le calcul de la contribution TS1 sans les approximations utilisées par Popov et al et effectué pour la première fois celui de la contribution de TS2 (l'électron incident heurte et ionise successivement deux électrons de la cible) pour la double ionisation de l'hélium par impact électronique. Ces calculs sont difficiles car ils nécessitent l'utilisation de la deuxième approximation de Born qui aboutit à l'évaluation numérique très délicate d'une intégrale triple. Nous avons, à ce propos, repris la méthode de Piraux^[7] (développée dans sa dissertation doctorale soutenue à l'Université de Louvain

(1983)) qui avait alors calculé la section efficace différentielle d'ionisation de l'hydrogène atomique par impact d'électrons à l'aide de l'approximation de Born.

L'absence d'expériences de type $(e,3e)$ (les deux électrons éjectés et l'électron diffusé sont détectés en coïncidence) sur ce même atome d'hélium ne permet pas à l'heure actuelle de confirmer ou d'infirmer nos calculs mais les récentes expériences du groupe d'Orsay sur l'argon^[8] et le néon^[9] ont clairement démontré l'existence du mécanisme TS2.

Chapitre I : La double ionisation des atomes par impact électronique : généralités

I-1- Rappels

On se propose de rappeler ici quelques éléments de la théorie générale des perturbations appliquée aux collisions ionisantes par impact électronique (L. Landau and E. Lifchitz physique théorique tome 3 mécanique quantique).

I-1-1 - Condition de validité de la théorie des perturbations

Soit une particule soumise à un champ extérieur dont l'énergie potentielle est considérée comme une perturbation. L'équation de son mouvement s'écrit (en appliquant l'équation de Schrödinger non perturbée) :

$$\Delta \psi^{(0)} + k^2 \psi^{(0)} = 0 \quad k = \frac{\sqrt{2mE}}{\hbar} = \frac{P}{\hbar} \quad (1-1)$$

dont les solutions sont des ondes planes. L'équation de la correction $\psi^{(1)}$ de première approximation à la fonction d'onde donne :

$$\Delta \psi^{(1)} + k^2 \psi^{(1)} = \frac{2m}{\hbar^2} U \psi^{(0)} \quad (1-2)$$

où U est l'énergie potentielle.

La solution de cette équation peut s'écrire sous forme de potentiel retardé :

$$\psi^{(1)}(x, y, z) = -\frac{m}{2\pi\hbar^2} \int \psi^{(0)} U(x', y', z') e^{ikr} \frac{dV'}{r} \quad (1-3)$$

$$\text{avec } dV' = dx' dy' dz' \text{ et } r^2 = (x - x')^2 + (y - y')^2 + (z - z')^2. \quad (1-4)$$

La condition de validité de la théorie des perturbations que doit satisfaire U pour l'identifier à une perturbation est que : $\psi^{(1)} \ll \psi^{(0)}$. Soit (a) l'ordre de grandeur de l'espace où le potentiel est non nul. Si on suppose que l'énergie de la particule est assez petite pour que (ak) soit inférieur à l'unité ou soit du même ordre, alors le facteur e^{ikr} dans (1-3) n'est pas essentiel dans l'évaluation de l'ordre de grandeur et l'intégrale entière est de l'ordre de $\psi^{(0)} |U| a^2$, de sorte que $\psi^{(1)} \sim (ma^2 |U| / \hbar^2) \psi^{(0)}$, et nous obtenons la condition :

$$|U| \ll \frac{\hbar^2}{ma^2} \text{ (pour } ka \lesssim 1). \quad (1-5)$$

On note que $\frac{\hbar^2}{ma^2}$ correspond à l'ordre de grandeur de l'énergie cinétique que posséderait la particule si elle était enfermée dans un volume de dimensions linéaires (a) .

Dans le cas des grandes énergies, tel que $ka \gg 1$, le facteur e^{ikr} joue un rôle essentiel, réduisant considérablement la valeur de l'intégrale. Si on prend pour axe des x la direction du mouvement non perturbé la fonction d'onde non perturbée s'écrit $\psi^{(0)} = e^{ikx}$. Si on cherche des solutions pour l'équation :

$$\Delta \psi^{(1)} + k^2 \psi^{(1)} = \frac{2m}{\hbar^2} U e^{ikx} \quad (1-6)$$

telles que $\psi^{(1)} = e^{ikx} \omega$, k étant supposé grand, il suffirait de garder dans $\Delta \psi^{(1)}$ les seuls termes où le facteur e^{ikx} est dérivé, ce qui nous donne :

$$2i k \frac{\partial \omega}{\partial x} = \frac{2mU}{\hbar^2}. \quad (1-7)$$

On en déduit que :

$$\psi^{(1)} = e^{ikx} \omega = -\frac{i}{\hbar^2 k} m \int U dx. \quad (1-8)$$

Cette intégrale donne (dans le cadre de la théorie des perturbations):

$$|\Psi^{(1)}| \sim m |U| a / (\hbar^2 k)$$

d'où

$$|U| \ll \frac{\hbar^2}{ma^2} ka = \frac{\hbar v}{a} (ka \gg 1) \quad (1-9)$$

et

$$v = \hbar k / m$$

On remarque que cette condition est plus faible que (1-5), donc si on peut assimiler le champ à une perturbation pour de petites énergies de la particule, ceci reste aussi valable pour les grandes énergies mais la réciproque est généralement fausse.

I-1-2 - Approximation de Born

La section efficace de diffusion peut être calculée sous une forme générale dans le cas très important où le champ diffusant peut être considéré comme une perturbation. Ceci est vrai si l'une des deux conditions suivantes est réalisée (voir *I-1-1*) :

$$|U| \ll \frac{\hbar^2}{ma^2} \quad (1-10)$$

$$|U| \leq \frac{\hbar v}{a} = \frac{\hbar^2}{ma^2} ka \quad (1-11)$$

a est le rayon d'action du champ $U(r)$, et U son ordre de grandeur dans la région principale de son existence.

Lorsque la première condition est satisfaite, l'approximation envisagée s'applique pour toutes les vitesses de la deuxième condition, et donc dans le cas de particules suffisamment rapides.

D'après le paragraphe I-1-1 de ce chapitre, si on cherche la fonction d'onde de la forme $\psi = \psi^{(0)} + \psi^{(1)}$, où $\psi^{(0)} = e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}$ correspond à une particule incidente de vecteur d'onde $\vec{k} = \vec{P} / \hbar$, on déduit de la formule (1-3) :

$$\psi^{(1)}(x, y, z) = -\frac{m}{2\pi\hbar^2} \int U(x', y', z') e^{i(kr' + kR)} \frac{dV'}{R} \quad (1-12)$$

Si on prend l'origine au centre diffusant, nous mènerons le rayon vecteur \vec{R}_o de l'origine au point d'observation de $\psi^{(1)}$ et nous désignerons par \vec{n} le vecteur unité de \vec{R}_o . Soit \vec{r}' le rayon vecteur de l'élément de volume dV' ; on a $\vec{R} = \vec{R}_o - \vec{r}'$. Aux grandes distances du centre $R_o \gg r'$ on obtient:

$$R = |\vec{R}_o - \vec{r}'| \approx R_o - \vec{r}' \cdot \vec{n} \quad (1-13)$$

Si on substitue ceci dans (1-12), on obtient l'expression asymptotique suivante de $\psi^{(1)}$:

$$\psi^{(1)} \approx -\frac{m}{2\pi\hbar^2} \frac{e^{ikR_o}}{R_o} \int U(\vec{r}') e^{i(\vec{k} - \vec{k}') \cdot \vec{r}'} dV' \quad (1-14)$$

($\vec{k}' = k \vec{n}'$ étant le vecteur d'onde de la particule après diffusion). Comparant avec la définition de l'amplitude de diffusion dans (1-12) on obtient l'expression :

$$\omega = \frac{-m}{2\pi\hbar^2} \int U e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}'} dV' \quad (1-15)$$

où il y a eu changement des variables d'intégration ainsi que l'introduction du vecteur :

$$\vec{q} = \vec{k}' - \vec{k} \quad (1-16)$$

tel que
$$q = 2\hbar \sin \frac{\theta}{2} \quad (1-17)$$

θ est l'angle entre \vec{k} et \vec{k}' , c'est à dire l'angle de diffusion.

Si on élève au carré le module de l'amplitude de diffusion, on obtient la formule suivante pour la section de diffusion dans l'élément d'angle solide $d\Omega$:

$$d\sigma = \frac{m^2}{4\pi^2 \hbar^4} \left| \int U e^{iq \cdot r} dV \right|^2 d\Omega \quad (1-18)$$

On voit que la diffusion avec variation d'impulsion de $\hbar q$ est déterminée par le carré du module de la composante de Fourier correspondante du champ U .

La formule (1-18) a été introduite la première fois par M. Born (1926) : une telle approximation dans la théorie de collision est dite approximation de Born.

1-2 - Aspects théoriques de la double ionisation

Les premières expériences (e,3e) effectuées par (Lahmam-Bennani^[10-12] et al (1989,1992)) ont ouvert une nouvelle voie de recherche dans ce processus intéressant et très informatif que constitue la double ionisation.

La notation (e,3e) se réfère à une collision doublement ionisante par impact électronique où les trois électrons dans la voie finale sont détectés en coïncidence.

Ces expériences sont difficiles à réaliser car les événements de triple coïncidence sont faibles, surtout lorsqu'on les compare à ceux de double coïncidence (e,2e) correspondant à une simple ionisation. Les sections efficaces totales sont de même très faibles puisque pour le cas d'une cible d'hélium, le rapport entre les sections efficaces totales de double ionisation σ^{++} et les sections efficaces totales de simple ionisation σ^+ est de 0,5%.

Les événements de triple coïncidence correspondent à la section efficace quintuplement différentielle notée 5DCS : $\frac{d^5\sigma}{dE_1 dE_2 d\Omega_3 d\Omega_1 d\Omega_2}$, où tous les paramètres cinématiques de la collision sont déterminés (énergie et position angulaire de chaque électron dans la voie finale).

Généralement cette section efficace quintuplement différentielle est exprimée en fonction de la variation de la position angulaire de l'un des électrons éjectés.

Ces expériences, difficiles à réaliser en particulier dans le cas de l'hélium, sont remplacées par celles notées (e,3-1e) qui consistent à ne détecter que deux des trois

électrons dans la voie finale. Dans ce cas la section efficace quadruplement différentielle

4DCS s'écrit: $\frac{d^4\sigma}{dE_1 dE_2 d\Omega_1 d\Omega_2}$ (lorsque l'électron diffusé n'est pas détecté).

Les premiers travaux théoriques significatifs ont été effectués par Byron et Joachain^[1] (1967), Tweed^[3], Neudatchin^[13] et al (1977), Smirnov^[14] et al (1978). Ces auteurs ont pris en compte la corrélation électronique de la cible dans leurs calculs, mais ont estimé négligeable la corrélation électronique dans la voie de sortie. Byron et Joachain^[1] ont calculé la section efficace totale de double photoionisation de l'hélium alors que Smirnov^[14] et al, Neudatchin^[13] et al ont calculé des sections efficaces différentielles pour la double photoionisation de l'hélium, de l'hydrogène moléculaire et des gaz rares. Les derniers auteurs ont aussi considéré la double ionisation de ces mêmes cibles par impact électronique. Du point de vue historique on peut considérer que l'article de Neudatchin^[13] et al est le premier à montrer l'avantage de déterminer les sections quintuplements différentielles. Tweed a également déterminé les sections efficaces totales et simplement différentielles de la double ionisation de l'hélium, de l'ion hydrure et de l'ion lithium. Il fut le premier à utiliser des charges effectives dépendantes de la situation relative de chaque électron éjecté. Mais ces charges ne dépendaient que des modules des impulsions de chaque électron éjecté.

Ce n'est qu'en 1991 que Le Rouzo^[15] et Dal Cappello^[16] ont amélioré le modèle de Tweed.

Pour rendre compte de toutes les interactions coulombiennes Le Rouzo^[15] et Dal Cappello^[16] ont introduit des charges effectives qui dépendent explicitement de la situation relative de chaque électron éjecté. Ce modèle permet de trouver une section efficace différentielle nulle lorsque les deux électrons sont éjectés avec une même énergie et en une même position. Les modèles précédents donnaient alors un maximum pour cet événement car ils négligeaient l'interaction électron-électron dans la voie finale.

Néanmoins le modèle élaboré par Dal Cappello^[16] et Le Rouzo^[15] ne rend pas compte des récents résultats de la double photoionisation de l'hélium^[17].

Il semble que la variation des charges effectives soit trop brutale pour des énergies d'électrons éjectés proches (les charges varient de deux à moins l'infini sur un faible domaine angulaire).

C'est finalement l'utilisation du modèle BBK (Brauner Briggs et Klar^[18-19] (1989)) qui permet de mieux rendre compte de la plupart des résultats expérimentaux. Le modèle BBK, appliqué pour la première fois par Joulakian^[20], Dal Cappello et Brauner (1992) à la double ionisation de l'hélium par impact électronique, traite de manière exacte le comportement asymptotique de la fonction d'onde du double continuum. Cette dernière est un produit de trois fonctions d'ondes Coulombiennes représentant d'une part les interactions électron éjecté-noyau et d'autre part l'interaction mutuelle électron-électron par l'introduction d'un facteur de Gamow :

$$\Gamma(1 - i / |\bar{k}_1 - \bar{k}_2|)$$

multiplié par une fonction hypergéométrique confluyente

$${}_1F_1\left(i / |\bar{k}_1 - \bar{k}_2|, 1, -i(k_{12}R_{12} + \bar{k}_{12} \cdot \bar{R}_{12})\right)$$

avec $\bar{k}_{12} = \frac{1}{2}(\bar{k}_1 - \bar{k}_2)$ et où \bar{k}_1 et \bar{k}_2 désignent respectivement les impulsions des électrons éjectés.

Dal Cappello^[21-22] et al ont montré que dans la plupart des cas le seul facteur de Gamow suffisait à rendre compte qualitativement des résultats expérimentaux. Cette dernière modélisation (modèle BBK approché) appliquée au cas de la double ionisation des gaz rares par impact électronique, a donné un bon accord avec les précédents résultats expérimentaux du groupe d'Orsay^[23-24]. Il faut toute fois préciser que le modèle BBK ou le modèle BBK approché donnent effectivement un bon accord qualitatif avec l'expérience mais non quantitatif. Le désaccord pour ce dernier aspect est flagrant et a été prouvé lors de l'étude de la double photoionisation de l'hélium. Dans ce cas, et si le traitement proposé était bon, les formes longueurs et vitesse devaient donner le même résultat, or il n'en est rien^[25] mais en absence actuelle de meilleurs modèles nous nous sommes contentés d'utiliser le modèle BBK approché dans notre approche afin de modéliser au mieux les deux électrons éjectés dans la voie de finale. Les dernières expériences (e,3e) sur l'argon et le néon^[8,9] ont néanmoins montré une dissymétrie de la 5DCS par rapport au transfert d'impulsion $\vec{K} = \vec{k}_1 - \vec{k}_2$, lorsqu'un électron est éjecté suivant cette même direction de \vec{K} . Ceci démontre de

façon formelle qu'un mécanisme réactionnel en deux étapes, nécessitant l'application de la deuxième approximation de Born, intervient dans un processus de double ionisation.

Ceci démontre également que le modèle BBK ne peut expliquer les dernières expériences puisqu'il respecte la symétrie autour du transfert d'impulsion^[26-27].

On distingue trois mécanismes réactionnels possibles pour la double ionisation d'atomes par impact électronique^[4-5].

Le premier, appelé shake-off (SO), consiste en une première ionisation (analogue à celle rencontrée dans une collision (e,2e)) suite à un choc binaire avec l'un des électrons de la cible. Après ce premier choc, un des autres électrons de la cible est soumis à une variation brutale du potentiel d'interaction (diminution de la charge d'une unité) et peut alors être éjecté de la cible.

Ce premier mécanisme est décrit par la seule première approximation de Born et les sections efficaces différentielles présenteront toujours une symétrie par rapport au transfert d'impulsion \vec{K} lorsque l'un des électrons est éjecté suivant cette direction. Dans tout ce travail nous considérons le cas de collisions par impact électronique de haute énergie (de 1 keV à 5 keV) sur des cibles atomiques neutre de numéro atomique petit. On peut donc considérer que les électrons incident et diffusé sont décrits par des ondes planes.

Le deuxième mécanisme, appelé two-step1 (TS1), est un processus comportant deux chocs. Le premier est analogue à celui du SO : choc binaire électron incident-électron de la cible.

Le deuxième choc est dû à une interaction électron éjecté-électron de la cible ionisée. Ce deuxième mécanisme est décrit par la seconde approximation de Born mais conserve la symétrie autour de \vec{K} énoncée plus haut.

Le troisième mécanisme, appelé two-step2 (TS2), est une succession de deux collisions électron incident-électron de la cible. La première est encore une fois identique à la première étape de SO et de TS1. La seconde concerne l'électron diffusé une première fois et un autre électron de la cible.

Ce mécanisme nécessite aussi la deuxième approximation de Born pour être décrit mais, cette fois-ci, présente une dissymétrie autour du transfert d'impulsion \vec{K} .

L'étude des collisions (e,3e) devrait permettre, dans un très proche avenir, d'établir la part de chaque mécanisme réactionnel suivant le type de conditions cinématiques étudiées. Mais les collisions (e,3e) présentent aussi un intérêt majeur en spectroscopie atomique : celui d'étudier la corrélation électronique d'une cible. Dans ce dernier cas il est nécessaire que les mécanismes TS1 et TS2 n'interviennent pas et que seul le mécanisme S.O domine. Il avait déjà été montré en (1985) par Yudin^[28] et al que la 5DCS est proportionnelle au module de la double transformée de Fourier de la fonction d'onde initiale de la cible lorsque les deux électrons éjectés avaient une énergie élevée (ils pouvaient alors être décrits par des ondes planes). Ceci n'est actuellement pas possible au point de vue expérimental.

Plus récemment, Popov^[29] et al ont proposé les conditions cinématiques (coplanaires) suivantes :

- un des électrons éjectés a la même énergie que l'électron diffusé (de 250 eV à 1 keV)
- l'autre électron éjecté est très lent (de 1 eV à 20 eV)
- l'électron diffusé et l'électron éjecté rapide sont détectés de part et d'autre de la direction de l'électron incident avec un même angle ($20^\circ \leq \theta \leq 60^\circ$)

La modélisation utilisée (ondes planes pour les électrons incident, diffusé et éjecté rapide, onde Coulombienne ou onde distordue pour l'électron éjecté lent) a montré l'extrême sensibilité de la 5DCS par rapport aux fonctions d'ondes utilisées pour décrire la cible^[29].

I-3 - Aspects expérimentaux de la double ionisation des gaz rares par impact électronique

Les expériences (e,3e) sont réalisées, actuellement, en géométrie coplanaire asymétrique. L'énergie de l'électron diffusé est alors très supérieure à celle de chacun des électrons éjectés (typiquement 5 keV pour l'électron diffusé et de 5 eV à 75 eV pour un électron éjecté). L'électron incident d'énergie E_i et d'impulsion \vec{k}_i entre en collision avec un atome au repos et l'ionise doublement, produisant ainsi trois électrons dans la voie finale identifiés par e_s, e_1 et e_2 , d'énergie E_s, E_1 et E_2 et d'impulsions \vec{k}_s, \vec{k}_1 et \vec{k}_2 . Ils sont repérés par leurs angles θ_s, θ_1 et θ_2 par rapport à la direction de l'incident.

Les équations de conservation d'énergie et de quantité de mouvement pour cette collision sont :

L'étude des collisions (e,3e) devrait permettre, dans un très proche avenir, d'établir la part de chaque mécanisme réactionnel suivant le type de conditions cinématiques étudiées. Mais les collisions (e,3e) présentent aussi un intérêt majeur en spectroscopie atomique : celui d'étudier la corrélation électronique d'une cible. Dans ce dernier cas il est nécessaire que les mécanismes TS1 et TS2 n'interviennent pas et que seul le mécanisme S.O domine. Il avait déjà été montré en (1985) par Yudin^[28] et al que la 5DCS est proportionnelle au module de la double transformée de Fourier de la fonction d'onde initiale de la cible lorsque les deux électrons éjectés avaient une énergie élevée (ils pouvaient alors être décrits par des ondes planes). Ceci n'est actuellement pas possible au point de vue expérimental.

Plus récemment, Popov^[29] et al ont proposé les conditions cinématiques (coplanaires) suivantes :

- un des électrons éjectés a la même énergie que l'électron diffusé (de 250 eV à 1 keV)
- l'autre électron éjecté est très lent (de 1 eV à 20 eV)
- l'électron diffusé et l'électron éjecté rapide sont détectés de part et d'autre de la direction de l'électron incident avec un même angle ($20^\circ \leq \theta \leq 60^\circ$)

La modélisation utilisée (ondes planes pour les électrons incident, diffusé et éjecté rapide, onde Coulombienne ou onde distordue pour l'électron éjecté lent) a montré l'extrême sensibilité de la 5DCS par rapport aux fonctions d'ondes utilisées pour décrire la cible^[29].

I-3 - Aspects expérimentaux de la double ionisation des gaz rares par impact électronique

Les expériences (e,3e) sont réalisées, actuellement, en géométrie coplanaire asymétrique. L'énergie de l'électron diffusé est alors très supérieure à celle de chacun des électrons éjectés (typiquement 5 keV pour l'électron diffusé et de 5 eV à 75 eV pour un électron éjecté). L'électron incident d'énergie E_i et d'impulsion \vec{k}_i entre en collision avec un atome au repos et l'ionise doublement, produisant ainsi trois électrons dans la voie finale identifiés par e_s, e_1 et e_2 , d'énergie E_s, E_1 et E_2 et d'impulsions \vec{k}_s, \vec{k}_1 et \vec{k}_2 . Ils sont repérés par leurs angles θ_s, θ_1 et θ_2 par rapport à la direction de l'incident.

Les équations de conservation d'énergie et de quantité de mouvement pour cette collision sont :

$$E_i = E_1 + E_2 + E^{++} + E_s$$

$$\vec{k}_i = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 + \vec{k}_{ion} + \vec{k}_s$$

On note que le transfert est tel que $\vec{k} = \vec{k}_i - \vec{k}_s = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 + \vec{k}_{ion}$,

où E^{++} est l'énergie nécessaire pour arracher à l'atome cible deux électrons.

Le but de ces expériences est de connaître la distribution angulaire des électrons éjectés dans l'espace, leurs énergies étant fixées.

I-3-1 - Principe des expériences

On rappelle que le travail de l'expérimentateur consiste à mesurer en angle et en énergie les électrons diffusés et éjectés provenant du centre de collision; cette analyse se fait en deux étapes :

a) - la première étape consiste à détecter les électrons, pour cela il existe plusieurs types de détecteurs. Le choix du détecteur utilisé dépend essentiellement de la gamme d'énergie dans laquelle se situe celle de l'électron à détecter : dans le cas des électrons rapides (diffusés) il y a tout d'abord sélection en énergie par un analyseur électrostatique puis ensuite détection par un ensemble scintillateur photomultiplicateur; par contre dans le cas des électrons lents (éjectés), il a été mis au point dernièrement et pour la première fois un système permettant l'analyse simultanée en multiangles et multiénergies grâce à un spectromètre à électrons et ceci dans tout le plan de collision^[30-31].

b) - la deuxième étape consiste à trier les électrons détectés, c'est à dire déterminer les électrons ayant participé à une collision de même type et pour cela la technique de coïncidence reste la meilleure méthode de sélection.

I-3-2 - La détection par coïncidence

La technique de détection par coïncidence a été mise au point pour les collisions (e,2e) pour l'étude de la simple ionisation par impact électronique avec excitation ou non de l'ion résiduel : les deux électrons sortants sont détectés par coïncidence.

Pour les réactions (e,3e) c'est une technique très difficile car elle consiste à détecter les trois électrons sortants en coïncidence ce qui rend la fréquence des vraies coïncidences de l'ordre

de $0,6 \cdot 10^{-3}$ c/sec (1c/heure) dans le cas de l'hélium entraînant un temps d'accumulation conséquent pouvant aller jusqu'à plusieurs mois.

Ceci nécessite le perfectionnement du matériel pour maintenir la stabilité des grandeurs physiques. Une autre méthode possible est la coïncidence (e,(3-1)e), qui se situe entre les (e,2e) et les (e,3e). Elle est nettement plus facile que (e,3e) car seuls deux des trois électrons sortant sont détectés en coïncidence, ce qui augmente considérablement le nombre des vraies coïncidences et par conséquent réduit le temps d'accumulation.

I-3 -3 - Contrainte liée à la détection par coïncidence

Pendant les expériences de détection par coïncidence, les électrons émis lors de la collision sont analysés en angles et en énergies correspondant aux données de l'expérience étudiée, puis sont détectés. Le grand problème qui se pose lors de cette manipulation est de reconnaître les électrons ayant participé à la même collision (appelés électrons corrélés), or ces électrons ont une énergie connue par suite, leur vitesse l'est aussi; ce qui permettra de connaître le temps (appelé temps de vol) qu'ils mettent pour parcourir la distance du centre de collision au détecteur qui doit être une constante pour les électrons corrélés.

Donc la technique va consister à mesurer la différence de temps entre deux électrons partant du centre de collision, la comparaison de ces temps mesurés permettra de savoir si les électrons sont corrélés ou non.

Chapitre II : Calcul de la section efficace différentielle de double ionisation

La section efficace quintuplement différentielle (SEQD) de la double ionisation d'un atome par impact électronique s'écrit :

$$\frac{d^5\sigma}{d\Omega_s d\Omega_1 d\Omega_2 d\left(\frac{k_1^2}{2}\right) d\left(\frac{k_2^2}{2}\right)} = \frac{4 K_s K_1 K_2}{K_i K^2} (|M|^2) \quad (2-1)$$

où M est l'amplitude de diffusion qui dépend essentiellement des mécanismes collisionnels considérés. Sa forme générale dépend de la fonction d'onde décrivant le système (cible et particule incidente) dans son état initial et de celle décrivant ce même système mais cette fois-ci dans son état final (ion, électron éjecté, électron diffusé) et du potentiel qui décrit l'interaction entre l'électron incident et la cible (dans notre cas il sera Coulombien).

II-1 - Description de l'état initial

Les atomes étudiés dans ce travail se caractérisent par une dernière couche fermée de type $1s^2$ ou $ns^2 np^6$. Dans le cadre de l'approximation du coeur gelé on pourra négliger l'action des électrons des autres couches et donc nous aurons à examiner uniquement l'état final et initial des électrons concernés par la collision.

On s'intéressera dans nos applications à des cibles d'hélium et d'argon.

cas de l'argon

La fonction d'onde initiale, déterminée par J. Langlois^[32], s'écrit :

$$\Phi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \sum_{\lambda\mu} C_{\lambda-\mu_0}^{\lambda\mu_0} Y_{\lambda}^{\mu}(\vec{r}_1) Y_{\lambda}^{-\mu}(\vec{r}_2) \sum_{ij} \alpha_{ij} R(n_j, \varepsilon_j, r_2) R(n_i, \varepsilon_i, r_1) + (r_1 \leftrightarrow r_2) \quad (2-2)$$

$$R(n, \varepsilon, r) = (2n!)^{-1/2} (2\varepsilon)^{n+1/2} r^{n-1} \exp(-\varepsilon r) \quad (2-3)$$

et $C_{N-\mu_0}^{\lambda\mu_0}$ est le coefficient de Clebsch-Gordan. Les coefficients α_{ij} sont donnés par le tableau :

i	j	α_{ij}
1	1	-0,318825
2	2	0,9529636
1	3	0,861769
2	2	-0,413939
2	3	-0,280631
3	3	0,023109
4	4	0,084186
4	5	-0,117540
5	5	0,078558
6	6	-0,008608

Cette fonction inclut 94% de l'énergie totale de corrélation. Dans le cas de gaz rare comme l'argon $3p^6$, la fonction d'onde utilise une superposition de configurations qui inclut huit composantes.

$$3p^6 - 3p^4(^1S)3d^2(^1S) - 3p^4(^1S)4^2S(^1S) - 3p^4(^1S)4p^2(^1S) - 3p^3(^3P)4p^2(^3P) - 3p^4(^3P)3d^2(^3P) - 3p^4(^1D)4p^2(^1D) - 3p^4(^1D)3d^2(^1D) \quad (2-4)$$

Cas de l'Hélium

La fonction d'onde initiale, établie par Silvermann et al^[33], s'écrit :

$$\psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \frac{1}{\sqrt{1+\lambda^2}} \left[\begin{array}{l} N(1s(1)1s'(2) + 1s'(1)1s(2)) + \frac{\lambda}{\sqrt{3}}(2p_o(1)2p_o(2)) \\ - 2p_1(1)2p_{-1}(2) - 2p_1(2)2p_{-1}(1) \end{array} \right] \quad (2-5)$$

N est la constante de normalisation pour (1s, 1s'), λ est un paramètre variationnel, 1s et 2p sont des orbitales atomiques d'atomes hydrogénoïde. Cette fonction d'onde inclut 80% de l'énergie de corrélation. Bien que de qualité modeste elle nous permet néanmoins de rendre compte d'une partie des corrélations radiales et angulaires dans l'atome d'hélium tout en se prêtant fort bien aux calculs analytiques et numériques lors de l'utilisation de la seconde approximation de Born.

II-2- Description de l'état final

L'état final sera décrit par un produit de deux fonctions d'ondes coulombiennes, proposées par Byron et Joachain^[1], multiplié par le facteur de Gamow^[21-22]:

$$\Phi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1} e^{i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}_2} \Gamma\left(1 + \frac{iZ_1}{k_1}\right) {}_1F_1\left(-i\frac{Z_1}{k_1}, 1; i(\vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1 + k_1 r_1)\right) \times \quad (2-6)$$

$$\frac{1}{(2\pi)^{3/2}} e^{i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}_2} e^{i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}_2} \Gamma\left(1 + i\frac{Z_2}{k_2}\right) {}_1F_1\left(-i\frac{Z_2}{k_2}, 1; -i(\vec{k}_2 \cdot \vec{r}_2 + k_2 r_2)\right) \Gamma\left(1 - \frac{1}{K_{12}}\right)$$

Γ et ${}_1F_1$ sont respectivement les fonctions gamma et hypergéométrique confluente, la charge effective vue par l'électron éjecté correspond à celle de l'ion résiduel et vaut donc 2.

II-3 - Cas du mécanisme shake-off (SO)

Lors d'une collision électron-atome, il est habituel de considérer que le projectile interagit avec un seul électron de la cible et l'éjecte tandis que le deuxième électron est éjecté de l'ion résiduel : ceci peut-être expliqué par le mécanisme dit de shake-off dans

lequel le réarrangement de la cible suite à l'éjection du premier électron entraîne l'éjection du deuxième :

$$M_{so} = \left\langle \frac{e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}}}{(2\pi)^{3/2}} \phi_f(1, \dots, N) \left| -\frac{N}{r} + \sum_{j=1}^N \frac{1}{|r - r_j|} \right| \frac{e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}}}{(2\pi)^{3/2}} \phi_i(1, \dots, N) \right\rangle \quad (2-7)$$

On note que :

r_j est la position du $j^{\text{ème}}$ électron, r est la position de l'électron incident ou diffusé par rapport au noyau et

N est le nombre d'électrons de l'atome.

L'électron incident ainsi que le diffusé seront décrits par des ondes planes $\left(\frac{e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}}}{(2\pi)^{3/2}}, \frac{e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}}}{(2\pi)^{3/2}} \right)$ car ces deux électrons auront une énergie toujours supérieure à 1KeV.

Les fonctions d'ondes ϕ_i et ϕ_f représentent l'état initial et final de la cible.

Après intégration sur la variable \vec{r} on obtient :

$$M_{so} = \frac{1}{2\pi^2 K^2} \left\langle \phi_f(1, \dots, N) \left| -N + \sum_{j=1}^N \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}_j) \right| \phi_i(1, \dots, N) \right\rangle \quad (2-8)$$

Dans le cas de cibles constituées de gaz rares dont la dernière couche est np^6 on utilise les approximations suivantes :

- la première consiste à ne tenir compte que des électrons de la couche np^6 du gaz rare car deux de ces six électrons vont être éjectés et que les autres électrons seront considérés comme spectateurs (approximation du coeur gelé).

$$\text{On obtient alors : } M_{so} = \frac{1}{2\pi^2 K^2} \left\langle \phi_f(1, \dots, 6) \left| -6 + \sum_{j=1}^6 \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}_j) \right| \phi_i(1, \dots, 6) \right\rangle \quad (2-9)$$

- La deuxième consiste à supposer que les fonctions d'ondes de l'état final et initial peuvent s'écrire simplement en fonction des deux électrons concernés par le processus de double ionisation^[26], d'où

$$M_{so} = \left\langle \Phi_i(1,2) \left| e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}_1} + e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}_2} - 2 \right| \Phi_f(1,2) \right\rangle \quad (2-10)$$

Le calcul de M_{so} se réduit alors à un problème à deux électrons actifs.

Pour calculer M_{so} on a besoin des fonctions d'ondes $\Phi_i(1,2)$ et $\Phi_f(1,2)$.

II-4 - Mécanisme Two-step (1)

II-4-1- Formulation du mécanisme

Le mécanisme two-step 1 (décrit par Carlson et Krause^[51]) consiste en deux interactions successives liées : une ionisation directe (identique à celle existante dans les collisions (e ,2 e) où un électron est éjecté préférentiellement suivant la direction du transfert d'impulsion (+ \vec{K} ou - \vec{K}) suivie d'une collision entre ce premier électron éjecté et un électron de la cible. Lors de la première ionisation l'ion (He^+) est soit dans un état $n=1$ ou dans n'importe quel autre état intermédiaire (de $n=2$ à $n=\infty$). L'utilisation de la seconde approximation de Born conduit au terme M_{TS1} :

$$M_{TS1} = -\frac{1}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \int \frac{d\vec{k}_a}{(2\pi)^3} \left\langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) \left| V_{12} \right| \psi_a^{n1}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \times$$

$$\frac{\left\langle \psi_a^{n1}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_o} \left| V_o \right| e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_o} \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle}{\left[k_i^2 - k_a^2 - k_s^2 - 2I_n + i\eta \right]} \quad (2-11)$$

$$\text{avec} \quad V_{12} = \frac{1}{r_{12}}, \text{ et} \quad V_o = -\frac{2}{r_o} + \frac{1}{r_{o1}} + \frac{1}{r_{o2}}$$

où \vec{k}_a désigne l'impulsion de l'électron éjecté après la première collision (de type (e,2e)) et I_n est l'énergie nécessaire pour éjecter un premier électron de la cible ($n=1$) et

éventuellement exciter le deuxième électron ($n=2$). Il est intéressant de souligner ici que la conservation de l'énergie n'est pas respectée dans le formalisme de Born : l'intégrale sur \vec{k}_a a comme bornes zéro et l'infini. Par contre l'une des contributions principales à cette intégrale provient bien de la conservation de l'énergie lors de la première collision, :

$$\frac{K_i^2}{2} = \frac{K_a^2}{2} + \frac{K_s^2}{2} + I_n \quad (2-12)$$

Le calcul complet du terme M_{TS1} étant long et difficile on va s'intéresser uniquement aux cas où :

$n = 1(1s)$ et $n = 2(2s, 2p_0, 2p_1, 2p_{-1})$ d'où :

$$\begin{aligned} M_{TS1} = & -\frac{1}{\pi} \left[\int \frac{d\vec{k}_a}{(2\pi)^3} \frac{\langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) | V_{12} | \psi_a^{1s\perp}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle}{[k_i^2 - k_a^2 - k_s^2 - 2I_{1s} + i\eta]} \right. \\ & \left. \langle \psi_a^{1s\perp}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0} | V_0 | e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \right. \\ & + \int \frac{d\vec{k}_a}{(2\pi)^3} \langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) | V_{12} | \psi_a^{2s\perp}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \frac{\langle \psi_a^{2s\perp}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0} | V_0 | e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle}{[k_i^2 - k_a^2 - k_s^2 - 2I_{2s} + i\eta]} \\ & + \int \frac{d\vec{k}_a}{(2\pi)^3} \frac{\langle \Psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) | V_{12} | \Psi_a^{2p_0\perp}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle}{[k_i^2 - k_a^2 - k_s^2 - 2I_{2p_0} + i\eta]} \langle \Psi_a^{2p_0\perp}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0} | V_0 | e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \\ & + \int \frac{d\vec{k}_a}{(2\pi)^3} \frac{\langle \Psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) | V_{12} | \Psi_a^{2p_1\perp}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle}{[k_i^2 - k_a^2 - k_s^2 - 2I_{2p_1} + i\eta]} \langle \Psi_a^{2p_1\perp}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0} | V_0 | e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \\ & + \int \frac{d\vec{k}_a}{(2\pi)^3} \frac{\langle \Psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) | V_{12} | \Psi_a^{2p_{-1}\perp}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle}{[k_i^2 - k_a^2 - k_s^2 - I_{2p_{-1}} + i\eta]} \langle \Psi_a^{2p_{-1}\perp}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0} | V_0 | e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \left. \right] \end{aligned} \quad (2-13)$$

II-4-2- Calcul des termes du mécanisme TS1 (cas $n=1$ (1s))

Le terme correspondant s'écrit

$$M_{TS1}(1s) = -\frac{1}{\pi} \int \frac{d\vec{k}_a}{(2\pi)^3} \frac{\langle \Psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) | V_{12} | \Psi_a^{1s\perp}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle}{[k_i^2 - k_a^2 - k_s^2 - 2I_{1s} + i\eta]} \langle \Psi_a^{1s\perp}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) | e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} | V_0 | e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \quad (2-14)$$

En appliquant la formule de Bethe on obtient :

$$M_{TS2}(1s) = -\frac{1}{\pi} \frac{4\pi}{K^2} \int \frac{d\vec{k}_a}{(2\pi)^3} \left\langle \Psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) \left| \frac{1}{r_{12}} \right| \Psi_a^{1s\perp}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle_x \langle \Psi_a^{1s\perp}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) | -2 + e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_1} + e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_2} | \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \quad (2-15)$$

En introduisant l'orthogonalisation de l'état intermédiaire par rapport à l'état initial $\Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$:

$$\left| \Psi_a^{1s\perp}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle = \left| \Psi_a^{1s}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle - \langle \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) | \Psi_a^{1s}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle | \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \quad (2-16)$$

on obtient :

$$M_{TS1}(1s) = -\frac{4}{k^2} \int \frac{d\vec{k}_a}{(2\pi)^{3/2}} \left(\left\langle \Psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) \left| \frac{1}{r_{12}} \right| \Psi_a^{1s}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle - \left\langle \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \left| \Psi_a^{1s}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \left\langle \Psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) \left| \frac{1}{r_{12}} \right| \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \right) \left(\left\langle \Psi_a^{1s}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) \left| e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_1} + e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_2} \right| \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle - \left\langle \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \left| \Psi_a^{1s}(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \left\langle \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \left| e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_1} + e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_2} \right| \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \right) \quad (2-17)$$

Dans un premier temps on va s'intéresser au terme :

$$\omega_{ii}(V_o) = \langle \Psi_i(\bar{r}_1, \bar{r}_2) | e^{i\bar{k}\bar{r}_1} + e^{i\bar{k}\bar{r}_2} | \Psi_i(\bar{r}_1, \bar{r}_2) \rangle \quad (2-18)$$

Calcul du terme $\omega_{ii}(V_o)$

En remplaçant $\Psi_i(\bar{r}_1, \bar{r}_2)$ par son expression (équation (2-5)) on trouve :

$$\begin{aligned} \omega_{ii}(V_o) = & \frac{2}{1+\lambda^2} \left(N^2 \left(\langle \varphi_{1s} | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi_{1s} \rangle + \langle \varphi_{1s'} | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi_{2p_o} \rangle + 2 \langle \varphi_{1s} | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi_{1s'} \rangle \langle \varphi_{1s} | \varphi_{1s'} \rangle \right) \right. \\ & \left. + \frac{\lambda^2}{3} \left(\langle \varphi_{2p_o} | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi_{2p_o} \rangle + \langle \varphi_{2p_1} | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi_{2p_1} \rangle + \langle \varphi_{2p_{-1}} | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi_{2p_{-1}} \rangle \right) \right) \end{aligned} \quad (2-19)$$

ce terme est calculé analytiquement (voir annexe III)

Calcul du terme $\omega_{ai}(V_o)$:

$$\omega_{ai}(V_o) = \langle \Psi_a^{1s}(\bar{k}_a, \bar{r}_1, \bar{r}_2) | V_o | \Psi_i(\bar{r}_1, \bar{r}_2) \rangle \quad (2-20)$$

$$\begin{aligned} \omega_{ai}(V_o) = & \sqrt{\frac{2}{1+\lambda^2}} \left\{ N \left(\langle \varphi_c(k_a) | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi_{1s} \rangle \langle \varphi_{n1s} | \varphi_{1s'} \rangle + \langle \varphi_c(k_a) | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi_{1s'} \rangle \langle \varphi_{n1s} | \varphi_{1s} \rangle \right) \right. \\ & + \langle \varphi_{n1s} | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi_{1s} \rangle \langle \varphi_c(k_a) | \varphi_{1s'} \rangle + \langle \varphi_{n1s} | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi_{1s'} \rangle \langle \varphi_c(k_a) | \varphi_{1s} \rangle \\ & + \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \left(\langle \varphi_{n1s} | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi_{2p_o} \rangle \langle \varphi_c(k_a) | \varphi_{2p_o} \rangle - \langle \varphi_{n1s} | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi_{2p_1} \rangle \langle \varphi_c(k_a) | \varphi_{1s} \rangle \right. \\ & \left. - \langle \varphi_{n1s} | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi_{2p_{-1}} \rangle \langle \varphi_c(k_a) | \varphi_{2p_1} \rangle \right) \left. \right\} \end{aligned} \quad (2-21)$$

le développement de ce terme est donné dans l'annexe, il est calculé analytiquement.

$$\text{Calcul du terme } \omega_{fa} \left(\frac{1}{r_{12}} \right) : \langle \Psi_f(\bar{k}_1, \bar{k}_2) | \frac{1}{r_{12}} | \Psi_a(\bar{k}_a, \bar{r}_1, \bar{r}_2) \rangle \quad (2-22)$$

$$\omega_{\beta} \left(\frac{1}{r_{12}} \right) = \int d\vec{r}_1 F_{\vec{k}_1}^{(-)*}(\vec{r}_1) V_T(\vec{r}_1) F^{(+)}(\vec{r}_1) \quad (2-23)$$

$$\text{avec: } F_{\vec{k}_e}^{(-)*}(\vec{r}) = \sum_{l,m_e} (4\pi)(-i)^{l_e} e^{i\sigma_{l_e}(k_e)} \frac{R_{l_e}^{(-)}(k_e r)}{k_e r} Y_{l_e m_e}(\hat{k}_e) Y_{l_e m_e}^*(\hat{r}_e)$$

$$\text{et tel que: } R_{l_e}^{(-)}(kr) = \frac{|\Gamma(l+1+i\eta)|}{2(2l+1)!} e^{-\frac{1}{2}\eta\pi} (2kr)^{l+1} \times e^{-ikr} M(l+1-i\eta, 2l+2, 2ikr).$$

$$\text{avec: } V_T(\vec{r}_1) = \int d\vec{r}_2 \varphi^*(1_s, \vec{r}_2) \left(\frac{1}{|\vec{r}_{12}|} \right) F_{\vec{k}_2}^{(-)*}(\vec{r}_2) \quad (2-24)$$

$$\text{dont } \varphi(1_s, \vec{r}_2) = R_{1s}(r_2) Y_{00}(\hat{r}_2); \quad R_{1s}(r_2) = 2Z_T^{3/2} e^{-Z_T r_2} \quad (Z_T = 2(He^+))$$

$$\text{Ceci nous donne: } V_T(\vec{r}_1) = \frac{Z_T^{3/2}}{k_2} \frac{16\pi^{3/2}}{(2\pi)^{3/2}} \sum_{l_2, m_2} (-i)^{l_2} e^{i\sigma_{l_2}(k_2)} \frac{1}{\ell_2} v_{l_2}(r_1) Y_{l_2 m_2}^*(\hat{r}_1) Y_{l_2 m_2}(\hat{k}_2) \quad (2-25)$$

$$\text{tel que: } v_{l_2}(r_1) = \int_0^\infty r \bar{e}^{2r} F_{l_2}(k_2 r) \left(\frac{r_{<}^{l_2}}{r_{>}^{l_2+1}} - \frac{\delta_{l_2,0}}{r} \right) dr \quad (2-26)$$

en remplaçant dans (2-25) on obtient :

$$Z = \frac{Z_T^{3/2} 16\pi^{3/2} (4\pi)^2}{k_2 k_1 k_a (2\pi)^{9/2}} \sum_{\substack{l_1 l_2 l_a \\ m_1 m_2 m_a}} i^{-l_2 - l_1 + l_a} e^{i(\sigma_{l_2}(k_2) + \sigma_{l_1}(k_1) + \sigma_{l_a}(k_a))} \frac{1}{\hat{\ell}_2} \int d\hat{r}_1 Y_{l_2 m_2}^*(\hat{r}_1) Y_{l_1 m_1}^*(\hat{r}_1) Y_{l_a m_a}(\hat{r}_1) R_{l_a l_1}^{l_2} Y_{l_2 m_2}(\hat{k}_2) Y_{l_1 m_1}(\hat{k}_1) Y_{l_a m_a}^*(\hat{k}_a) \quad (2-27)$$

on rappelle que:

$$\int d\hat{r}_1 Y_{l_2 m_2}^* Y_{l_1 m_1}^* Y_{l_a m_a} = (-1)^{m_2 + m_1} \left(\frac{\ell_1 \ell_2 \ell_3}{4\pi} \right)^{1/2} \begin{pmatrix} \ell_2 & \ell_1 & \ell_a \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \ell_2 & \ell_1 & \ell_a \\ -m_2 & -m_1 & m_a \end{pmatrix} \quad (2-28)$$

$$\text{et que: } R_{l_a l_1}^{l_2} \equiv \int_0^\infty F_{l_a}(k_a r_1) v_{l_2}(r_1) F_{l_1}(k_1 r) dr \quad (2-29)$$

le calcul de ce terme est purement numérique voir annexe I et II.

$$\text{Calcul du terme } \omega_{\beta} \left(\frac{1}{r_{12}} \right)$$

$$\omega_{\beta} \left(\frac{1}{r_{12}} \right) = \left\langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) \left| \frac{1}{r_{12}} \right| \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \quad (2-30)$$

$$\begin{aligned}
\omega_f\left(\frac{1}{r_{12}}\right) &= \sqrt{\frac{2}{1+\lambda^2}} \left\langle \varphi_c(\bar{k}_1, \bar{r}_1) \varphi_c(\bar{k}_2, \bar{r}_2) \left| \frac{1}{r_{12}} \right| \varphi(1s, \bar{r}_1) \varphi(1s', \bar{r}_2) \right\rangle \\
&+ \left\langle \varphi_c(\bar{k}_1, \bar{r}_1) \varphi_c(\bar{k}_2, \bar{r}_2) \left| \frac{1}{r_{12}} \right| \varphi(1s', \bar{r}_1) \varphi(1s, \bar{r}_2) \right\rangle \\
&+ \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \left\langle \varphi_c(\bar{k}_1, \bar{r}_1) \varphi_c(\bar{k}_2, \bar{r}_2) \left| \frac{1}{r_{12}} \right| \varphi(2p_o, \bar{r}_1) \varphi(2p_o, \bar{r}_2) \right\rangle \\
&- \left\langle \varphi_c(\bar{k}_1, \bar{r}_1) \varphi_c(k_2, \bar{r}_2) \left| \frac{1}{r_{12}} \right| \varphi(2p_1, \bar{r}_1) \varphi(2p_{-1}, \bar{r}_2) \right\rangle \\
&- \left\langle \varphi_c(\bar{k}_1, \bar{r}_1) \varphi_c(k_2, \bar{r}_2) \left| \frac{1}{r_{12}} \right| \varphi(2p_1, \bar{r}_2) \varphi(2p_{-1}, \bar{r}_1) \right\rangle
\end{aligned} \tag{2-31}$$

en introduisant la formule de Bethe : $\frac{1}{r_{12}} = \frac{1}{2\pi^2} \int \frac{d\bar{\lambda}}{\lambda^2} e^{i\bar{\lambda} \cdot \bar{r}_1} e^{-i\bar{\lambda} \cdot \bar{r}_2}$

on obtient :

$$\begin{aligned}
\omega_f\left(\frac{1}{r_{12}}\right) &= \frac{1}{2\pi^2} \sqrt{\frac{2}{1+\lambda^2}} \left\{ \int \frac{d\bar{\lambda}}{\lambda^2} N \left[\left\langle \varphi_c(\bar{k}_1) \left| e^{i\bar{\lambda} \cdot \bar{r}} \right| \varphi(1s) \right\rangle \left\langle \varphi_c(\bar{k}_1) \left| e^{-i\bar{\lambda} \cdot \bar{r}} \right| \varphi(1s') \right\rangle \right. \right. \\
&+ \left. \left. \left\langle \varphi_c(\bar{k}_1) \left| e^{i\bar{\lambda} \cdot \bar{r}} \right| \varphi(1s') \right\rangle \left\langle \varphi_c(\bar{k}_2) \left| e^{-i\bar{\lambda} \cdot \bar{r}} \right| \varphi(1s) \right\rangle \right] + \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \left[\left\langle \varphi_c(\bar{k}_1) \left| e^{i\bar{\lambda} \cdot \bar{r}} \right| \varphi(2p_o) \right\rangle \left\langle \varphi_c(\bar{k}_2) \left| e^{-i\bar{\lambda} \cdot \bar{r}} \right| \varphi(2p_o) \right\rangle \right. \\
&- \left. \left. \left\langle \varphi_c(\bar{k}_1) \left| e^{i\bar{\lambda} \cdot \bar{r}} \right| \varphi(2p_1) \right\rangle \left\langle \varphi_c(\bar{k}_2) \left| e^{-i\bar{\lambda} \cdot \bar{r}} \right| \varphi(2p_{-1}) \right\rangle - \left\langle \varphi_c(\bar{k}_1) \left| e^{i\bar{\lambda} \cdot \bar{r}} \right| \varphi(2p_{-1}) \right\rangle \left\langle \varphi_c(\bar{k}_2) \left| e^{-i\bar{\lambda} \cdot \bar{r}} \right| \varphi(2p_1) \right\rangle \right]
\end{aligned} \tag{2-32}$$

après développement (voir annexe III) on obtient une somme d'intégrales triples qui nécessite un traitement numérique.

II-5- mécanisme TS2

II-5-1- Formulation du mécanisme

Le mécanisme two-step2 (TS2) (décrit par Carlson et Krause^[5]) consiste également en deux interactions successives liées : une ionisation directe où un électron de la cible est éjecté préférentiellement suivant la direction du transfert d'impulsion intermédiaire (différence des vecteurs $\vec{k}_i - \vec{k}_a$) suivie d'une collision entre l'électron diffusé et un autre électron de la cible.

L'électron incident est donc diffusé deux fois par la cible dans ce mécanisme TS2^[34]. Lors de la première ionisation l'ion He⁺ est soit dans un état fondamental n=1 ou dans n'importe quel autre état excité (n>1). L'utilisation de la seconde approximation de Born conduit à :

$$\begin{aligned}
 M_{TS2} = & \left[-\frac{1}{\pi} \sum_n \int \frac{d\vec{k}_a}{(2\pi)^3} \frac{\langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} | V_o^{(1)} | \psi_o^n(\vec{k}_1, \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_a \cdot \vec{r}_0} \rangle}{[k_i^2 - k_a^2 - k_1^2 - 2I_n + i\eta]} \times \right. \\
 & \langle \psi_b^n(\vec{k}_1, \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} | V_o' | \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \rangle \\
 & \left. - \frac{1}{\pi} \sum_n \int \frac{d\vec{k}_a}{(2\pi)^3} \frac{\langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} | V_o^{(2)} | \psi_b^n(\vec{k}_2, \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_a \cdot \vec{r}_0} \rangle}{[k_i^2 - k_a^2 - k_2^2 - 2I_n + i\eta]} \times \right. \\
 & \left. \langle \psi_b^n(\vec{k}_2, \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_0} | V_o' | \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \rangle \right] \quad (2-33)
 \end{aligned}$$

on note que :

$$V_o^{(1)} = \frac{1}{r_{o2}}; \quad V_o^{(2)} = \frac{1}{r_{o1}}; \quad V_o' = -\frac{2}{r_o} + \frac{1}{r_{o1}} + \frac{1}{r_{o2}}$$

La présence de termes dans l'expression de M_{TS2} est rendue nécessaire par le fait que l'on ne peut pas savoir si l'électron (\vec{k}_1) a été éjecté avant l'électron (\vec{k}_2).

II-5-2 - Développement du calcul

En introduisant la formule de Bethe on obtient :

$$\begin{aligned}
M_{TS2} = & \frac{-1}{\pi} \sum_n \int \frac{d\vec{k}_a}{(2\pi)^3} \frac{\langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) | e^{i(\vec{k}_a - \vec{k}_s)\vec{r}_2} | \psi_b^n(\vec{k}_1, \vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \langle \psi_b^n(\vec{k}_1, \vec{r}_1, \vec{r}_2) | e^{i(\vec{k}_i - \vec{k}_a)(\vec{r}_1 + \vec{r}_2)} | \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle}{(k_i^2 - k_a^2 - k_1^2 - 2I_n)} \\
& - \frac{1}{\pi} \sum_n \int \frac{d\vec{k}_a}{(2\pi)^3} \frac{\langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) | e^{i(\vec{k}_a - \vec{k}_s)\vec{r}_1} | \psi_b^n(\vec{k}_a, \vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \langle \psi_b^n(\vec{k}_1, \vec{r}_1, \vec{r}_2) | e^{i(\vec{k}_i - \vec{k}_a)(\vec{r}_1 + \vec{r}_2)} | \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle}{(k_i^2 - k_a^2 - k_2^2 - 2I_n)}
\end{aligned} \tag{2-34}$$

et en tenant compte de l'orthogonalisation de Ψ_b^n par rapport à Ψ_i , on obtient :

$$\begin{aligned}
M_{TS2} = & \frac{1}{\pi} \sum_n \int \frac{d\vec{k}_a}{(2\pi)^3} \langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) | e^{i(\vec{k}_a - \vec{k}_s)\vec{r}_2} | \psi_b^n(\vec{k}_1, \vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \\
& \frac{\langle \psi_b^n(\vec{k}_1, \vec{r}_1, \vec{r}_2) | e^{i\vec{k}_i a(\vec{r}_1 + \vec{r}_2)} | \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle - \langle \psi_b^n(\vec{k}_1, \vec{r}_1, \vec{r}_2) | \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \langle \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) | e^{i\vec{k}_i a(\vec{r}_1 + \vec{r}_2)} | \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle}{[k_i^2 - k_a^2 - k_1^2 - 2I_n]} \\
& - \frac{1}{\pi} \sum_n \int \frac{d\vec{k}_a}{(2\pi)^3} \langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) | e^{i(\vec{k}_a - \vec{k}_s)\vec{r}_1} | \psi_b^n(\vec{k}_2, \vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \\
& \frac{\langle \psi_b^n(\vec{k}_2, \vec{r}_1, \vec{r}_2) | e^{i\vec{k}_i a(\vec{r}_1 + \vec{r}_2)} | \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle - \langle \psi_b^n(\vec{k}_2, \vec{r}_1, \vec{r}_2) | \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \langle \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) | e^{i\vec{k}_i a(\vec{r}_1 + \vec{r}_2)} | \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle}{(k_i^2 - k_a^2 - k_2^2 - 2I_n)}
\end{aligned} \tag{2-35}$$

On s'intéressera dans un premier temps au cas où $n = 1$

$$\text{soit le terme } \omega_{bi} = \langle \psi_b^n(\vec{k}_1, \vec{r}_1, \vec{r}_2) | e^{i\vec{k}_i a \vec{r}_1 + i\vec{k}_i a \vec{r}_2} | \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \tag{2-36}$$

$$\begin{aligned}
\text{on a } \omega_{bi} = & \sqrt{\frac{2}{1 + \lambda^2}} \left\{ N \left(\langle \varphi_c(\vec{k}_1) | e^{i\vec{k}_i a \vec{r}} | \varphi_{1s'} \rangle \langle \varphi_{ns} | \varphi_{1s'} \rangle + \langle \varphi_c(\vec{k}_1) | e^{i\vec{k}_i a \vec{r}} | \varphi_{1s'} \rangle \langle \varphi_n | \varphi_{1s} \rangle \right. \right. \\
& + \langle \varphi_{ns} | e^{i\vec{k}_i a \vec{r}} | \varphi_{1s} \rangle \langle \varphi_c(\vec{k}_a) | \varphi_{1s'} \rangle + \langle \varphi_{ns} | e^{i\vec{k}_i a \vec{r}} | \varphi_{1s'} \rangle \langle \varphi_c(\vec{k}_1) | \varphi_{1s} \rangle \left. \right) + \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \left(\langle \varphi_c(\vec{k}_1) | e^{i\vec{k}_i a \vec{r}} | \varphi_{2p_o} \rangle \right. \\
& \langle \varphi_{ns} | \varphi_{2p_o} \rangle + \langle \varphi_c(\vec{k}_1) | \varphi_{2p_o} \rangle \langle \varphi_{ns} | e^{i\vec{k}_i a \vec{r}} | \varphi_{2p_o} \rangle - \langle \varphi_c(\vec{k}_1) | e^{i\vec{k}_i a \vec{r}} | \varphi_{2p_1} \rangle \langle \varphi_{ns} | \varphi_{2p_1} \rangle \\
& \left. - \langle \varphi_c(\vec{k}_1) | \varphi_{2p_1} \rangle \langle \varphi_{ns} | e^{i\vec{k}_i a \vec{r}} | \varphi_{2p_1} \rangle - \langle \varphi_c(\vec{k}_1) | e^{i\vec{k}_i a \vec{r}} | \varphi_{2p_1} \rangle \langle \varphi_{ns} | \varphi_{2p_1} \rangle \langle \varphi_{ns} | \varphi_{2p_1} \rangle \right)
\end{aligned}$$

$$-\langle \varphi_c(\vec{k}_1) | \varphi_{2p-1} \rangle \langle \varphi_{ns} | e^{i\vec{k}_a \cdot \vec{r}} | \varphi_{2p_1} \rangle \quad (2-37)$$

Soit à calculer $\omega_{fi} = \langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) | e^{i\vec{k}_a \cdot (\vec{r}_1, \vec{r}_2)} | \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle$

$$\begin{aligned} \omega_{fi} = & \sqrt{\frac{2}{1+\lambda^2}} \left\{ N \left[\langle \varphi_c(\vec{k}_1) | e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} | \varphi_{1s} \rangle \langle \varphi_c(\vec{k}_2) | \varphi_{1s'} \rangle + \langle \varphi_c(\vec{k}_1) | e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} | \varphi_{1s'} \rangle \langle \varphi_c(\vec{k}_2) | \varphi_{1s} \rangle \right. \right. \\ & + \langle \varphi_c(\vec{k}_2) | e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} | \varphi_{1s} \rangle \langle \varphi_c(\vec{k}_1) | \varphi_{1s'} \rangle + \langle \varphi_c(\vec{k}_2) | e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} | \varphi_{1s'} \rangle \langle \varphi_c(\vec{k}_1) | \varphi_{1s} \rangle \left. \right] \\ & + \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \left[\langle \varphi_c(\vec{k}_1) | e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} | \varphi_{2p_0} \rangle \langle \varphi_c(\vec{k}_2) | \varphi_{2p_0} \rangle + \langle \varphi_c(\vec{k}_2) | e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} | \varphi_{2p_0} \rangle \langle \varphi_c(\vec{k}_1) | \varphi_{2p_0} \rangle \right. \\ & - \langle \varphi_c(\vec{k}_1) | e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} | \varphi_{2p_1} \rangle \langle \varphi_c(\vec{k}_2) | \varphi_{2p_1} \rangle - \langle \varphi_c(\vec{k}_1) | e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} | \varphi_{2p_1} \rangle \langle \varphi_c(\vec{k}_2) | \varphi_{2p_1} \rangle \\ & \left. - \langle \varphi_c(\vec{k}_2) | e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} | \varphi_{2p_1} \rangle \langle \varphi_c(\vec{k}_1) | \varphi_{2p_1} \rangle - \langle \varphi_c(\vec{k}_2) | e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} | \varphi_{2p_1} \rangle \langle \varphi_c(\vec{k}_2) | \varphi_{2p_1} \rangle \right] \end{aligned} \quad (2-38)$$

Soit à calculer $\omega_{ii} = \langle \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) | e^{i\vec{k}_a \cdot (\vec{r}_1, \vec{r}_2)} | \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle$

Ce terme a été développé dans la partie TS1 de ce chapitre.

Chapitre III Interprétation des mécanismes collisionnels de la double ionisation

A) Modélisation ondes planes

On rappelle que le but de ce travail est de déterminer les mécanismes collisionnels lors de la double ionisation des gaz rares par impact électronique.

Dans un premier temps on se propose de dégager les aspects fondamentaux de ces processus en décrivant chaque électron non lié par une onde plane. Cette modélisation très grossière nous permet une simplification des calculs tout en conservant globalement la physique des mécanismes mis en jeu.

III-1 Mécanisme shake-off

On considère le cas simple suivant :

-un atome cible d'hélium

-un état initial non corrélé : $\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \varphi_o(\vec{r}_1)\varphi_o(\vec{r}_2)$ avec $\varphi_o(\vec{r}_1) = \frac{Z^{3/2}}{\sqrt{\pi}} e^{-Zr_1}$ ($Z = 2/16$)

(3-1)

La section efficace quintuplement différentielle s'écrit :

$$\frac{d^5\sigma}{d\Omega_1 d\Omega_2 d\Omega_s d\frac{k_b^2}{2} d\frac{k_c^2}{2}} = \frac{k_a k_b k_c}{k_a} |f_{B1}|^2 \quad (3-2)$$

Dans le cas du mécanisme SO :

$$f_{B1} = -\frac{1}{2\pi} \left\langle \Psi_f^*(\bar{k}_b, \bar{k}_c, \bar{r}_1, \bar{r}_2) e^{i\bar{k}_s \cdot \bar{r}_0} \left| -\frac{2}{r_o} + \frac{1}{r_{o1}} + \frac{1}{r_{o2}} \right| e^{i\bar{k}_i \cdot \bar{r}_0} \Psi_i(\bar{r}_1, \bar{r}_2) \right\rangle \quad (3-3)$$

En intégrant sur \bar{r}_0 (formule de Bethe) on aura

$$f_{B1} = -\frac{2}{K^2} \left\langle \Psi_f^*(\bar{k}_b, \bar{k}_c, \bar{r}_1, \bar{r}_2) \left| -2 + e^{i\bar{k} \cdot \bar{r}_1} + e^{i\bar{k} \cdot \bar{r}_2} \right| \Psi_i(\bar{r}_1, \bar{r}_2) \right\rangle \quad (3-4)$$

avec $\bar{K} = \bar{k}_i - \bar{k}_s$ vecteur transfert.

En supposant que l'état final est décrit par un produit d'ondes planes symétrisé :

$$\Psi_f^- = \frac{\varphi_c(\bar{k}_b, \bar{r}_1) \varphi_c(\bar{k}_c, \bar{r}_2) + \varphi_c(\bar{k}_b, \bar{r}_2) \varphi_c(\bar{k}_c, \bar{r}_1)}{\sqrt{2}} \quad (3-5)$$

f_{B1} s'écrit :

$$f_{B1} = -\frac{2}{K^2} \sqrt{2} \left[-2 \langle \varphi_c(k_b) | \varphi_o \rangle \langle \varphi_c(k_c) | \varphi_o \rangle + \langle \varphi_c(k_b) | e^{i\bar{k} \cdot \bar{r}} | \varphi_o \rangle \times \right. \\ \left. \langle \varphi_c(k_c) | \varphi_o \rangle + \langle \varphi_c(k_c) | e^{i\bar{k} \cdot \bar{r}} | \varphi_o \rangle \langle \varphi_c(k_b) | \varphi_o \rangle \right] \quad (3-6)$$

- Le premier terme $N = -2 \langle \varphi_c(k_b) | \varphi_o \rangle \langle \varphi_c(k_c) | \varphi_o \rangle$ correspond à l'interaction entre l'électron incident et le noyau.

- Le deuxième terme correspond au produit d'une simple ionisation $\langle \varphi_c(k_b) | e^{i\bar{k} \cdot \bar{r}} | \varphi_o \rangle$ et du terme de shake off du deuxième électron $\langle \varphi_c(k_c) | \varphi_o \rangle$

- le troisième terme provient de l'antisymétrie des états électroniques (indiscernabilité des électrons).

On peut écrire f_{B1} tel que :

$$f_{B1} = -\frac{2}{K^2} \sqrt{2} \left[\left[-\langle \varphi_c(k_b) | \varphi_o \rangle + \langle \varphi_c(k_b) | e^{i\vec{k}\vec{r}} | \varphi_o \rangle \right] \langle \varphi_c(k_c) | \varphi_o \rangle \right. \\ \left. + \left[-\langle \varphi_c(k_c) | \varphi_o \rangle + \langle \varphi_c(k_c) | e^{i\vec{k}\vec{r}} | \varphi_o \rangle \right] \langle \varphi_c(k_b) | \varphi_o \rangle \right] \quad (3-7)$$

On en déduit que f_{B1} est le produit de 2 termes : l'un décrit bien une ionisation de type (e,2e): $(-\langle \varphi_c | \varphi_o \rangle + \langle \varphi_c(k_b) | e^{i\vec{k}\vec{r}} | \varphi_o \rangle)$, l'autre décrit bien le shake-off: $\langle \varphi_c | \varphi_o \rangle$.

Supposons que l'on fixe l'électron (b) dans une direction et que l'on détecte l'électron (c) en faisant varier la position du détecteur (sachant que toutes les énergies sont fixées) on aura :

$$N=Z \langle \varphi_o(k_o) | \varphi_o \rangle \langle \varphi_c(k_b) | \varphi_o \rangle = \frac{-2(8\pi Z)(8\pi Z)}{(Z^2 + k_b^2)^2 (Z^2 + k_c^2)^2}$$

- le terme $A = \langle \varphi_c(k_c) | \varphi_o \rangle \langle \varphi_c(k_b) | e^{i\vec{k}\vec{r}} | \varphi_o \rangle$ se réduit à :

$$A_1 = \langle \varphi_c(k_b) | e^{i\vec{k}\vec{r}} | \varphi_o \rangle = \frac{8\pi Z}{(Z^2 + (\vec{K} - \vec{k}_b)^2)^2} \quad (3-8)$$

qui est constant aussi car \vec{k}_b est fixé multiplié par :

$$A_2 = \langle \varphi_c(k_c) | \varphi_o \rangle = \frac{8\pi Z}{(Z^2 + k_c^2)^2} \quad (3-9)$$

qui est aussi constant, car il ne dépend pas de θ_c .

Le tracé du terme $AA^* = (A_1 A_2)(A_1 A_2)^*$ correspond au résultat d'une isotropie par rapport à la direction de θ_c (figure3-1).

L'autre terme $\langle \varphi_c(k_b) | \varphi_o \rangle \langle \varphi_c(k_c) | e^{i\vec{k}\vec{r}} | \varphi_o \rangle$ se réduit à:

$$B_1 = \langle \varphi_c(k_c) | e^{i\vec{k}\vec{r}} | \varphi_o \rangle = \frac{8\pi Z}{(Z^2 + (\vec{K} - \vec{k}_c)^2)^2} \quad (3-10)$$

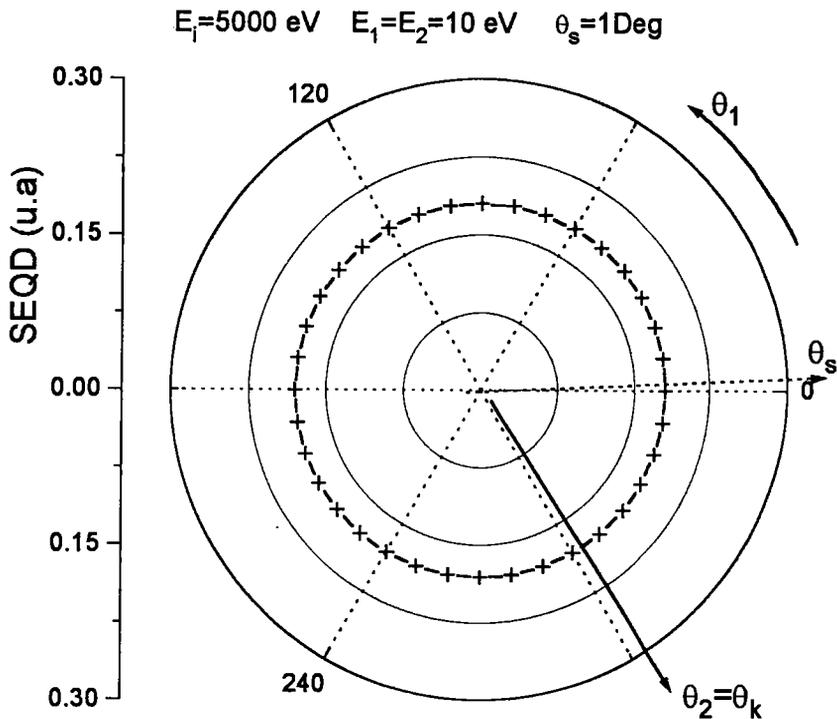


Figure 3-1 $\text{---} + \text{---}$ représente le SEQD (u.a) terme $|A|^2$ en coordonnées polaires de l'hélium en fonction de la direction du deuxième électron éjecté
 \uparrow représente le direction du transfert qui est la même que celle du premier électron éjecté.

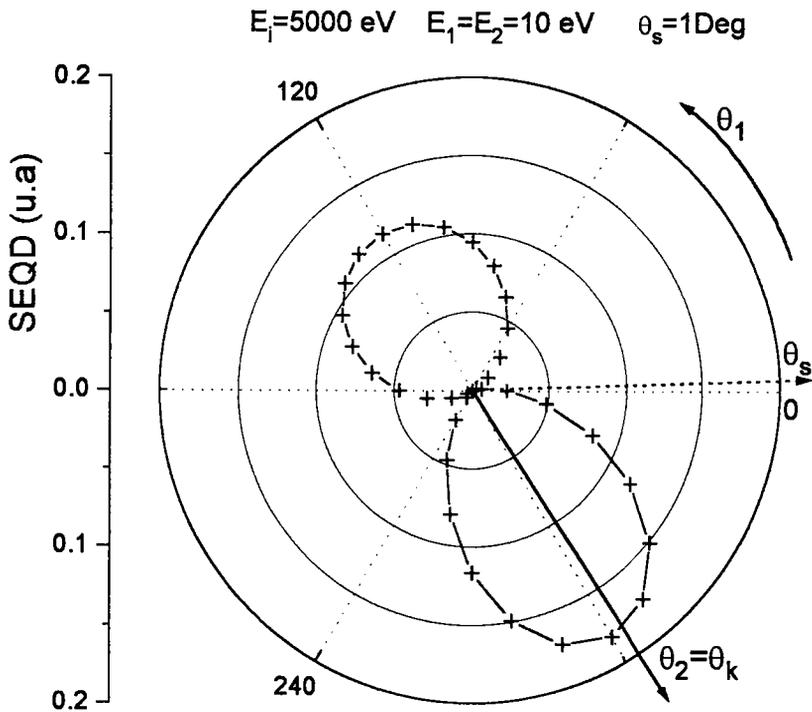


Figure 3-2 $\text{---} + \text{---}$ représente la SEQD (u.a) terme $|B|^2$ en coordonnées polaires de l'hélium en fonction de la direction du deuxième électron éjecté
 \uparrow représente la direction du transfert qui est la même que celle du premier éjecté.

qui varie suivant la position de \vec{k}_c : il est maximum pour \vec{k}_c parallèle à \vec{K} (pic binaire); (le terme N qui correspond à l'interaction avec le noyau va nous donner dans ce cas le lobe de recul) multiplié par une constante $B_2 = \langle \varphi_c(k_b) | \varphi_o \rangle$. Le tracé de ce terme BB^* correspondra au résultat classique obtenu par une collision de type (e,2e) multiplié par une constante figure 3-2.

L'interprétation rapide du terme de shake off (f_{BI}) laisse penser que la section efficace quintuplement différentielle dans ce cas donnerait le même résultat que celui obtenu pour une simple ionisation : ceci pourrait être vrai si f_{BI} s'écrivait comme somme des carrés:

$$f_{BI} = \text{cste} (A^2 + B^2) \quad (3-11)$$

or f_{BI} s'écrit comme le carré de la somme de A et B d'où les phénomènes d'interférences qui sont dans ce cas très importants et détruisent la forme de la section efficace prévue initialement figure 3-3.

On note que lors de ce raisonnement on n'a pas tenu compte de l'interaction entre les deux électrons éjectés qui est très importante (les deux électrons peuvent avoir des énergies du même ordre de grandeur). Pour cela on a calculé la SEQD pour les mêmes conditions cinématiques que la figure 3-3, mais dans ce cas on a tenu compte de l'interaction coulombienne entre les deux éjectés (en introduisant le facteur de Gamow figure 3-4). Dans ce cas on trouve que la SEQD est très sensible à cet effet et change complètement par rapport à celle où l'on ne tient pas compte de la corrélation dans la voie de sortie.

IIV-2 - Mécanisme TWO Step (2)

IIV-2-1 -Principe du calcul

Le TWO Step (2) nécessite l'utilisation de la deuxième approximation de Born. La contribution de ce mécanisme s'écrit (dans les mêmes conditions que le mécanisme SO) :

$$\begin{aligned}
 f_{B2}(TS2) = & \left(\frac{-1}{\pi} \right) \sum_n \int \frac{d\vec{k}_b}{(2\pi)^3 (k_i^2 - k_b^2 - k_1^2 - 2I_n)} \left\langle \Psi_f^-(\vec{k}_2, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_o} \left| \frac{1}{r_{o2}} \right| e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_o} \varphi_N(\vec{r}_2) \right\rangle \\
 & \left\langle \Psi_n^-(\vec{k}_1; \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_o} \left| -\frac{2}{r_o} + \frac{1}{r_{o1}} + \frac{1}{r_{o2}} \right| \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_o} \right\rangle \\
 & + \left(\frac{-1}{\pi} \right) \sum_n \int \frac{d\vec{k}_b}{(2\pi)^3 (k_i^2 - k_b^2 - k_2^2 - 2I_n)} \left\langle \Psi_f^-(\vec{k}_1, \vec{r}_1) e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_o} \left| \frac{1}{r_{o1}} \right| e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_o} \varphi_N(\vec{r}_1) \right\rangle \\
 & \left\langle \Psi_n^-(\vec{k}_2, \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_o} \left| -\frac{2}{r_o} + \frac{1}{r_{o1}} + \frac{1}{r_{o2}} \right| \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_o} \right\rangle \quad (3-12)
 \end{aligned}$$

Cette amplitude $f_{B2}(TS2)$ représente l'interaction successive entre l'électron incident et la cible.

$$\left\langle \Psi_n^-(\vec{k}_i; \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_o} \left| -\frac{2}{r_o} + \frac{1}{r_{o1}} + \frac{1}{r_{o2}} \right| \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_o} \right\rangle \quad (3-13)$$

avec $i = 1$ ou $i = 2$ qui correspond à une simple ionisation ($i = 1$) ou simple ionisation puis excitation de He^+ ($i = 2$). On note que l'électron incident intermédiaire sera décrit par une onde plane (cette considération est motivée par le fait que la contribution principale à l'intégrale (3-12) est due à des énergies (de l'électron intermédiaire) proches de celles de l'électron incident c'est à dire de l'ordre de 5 KeV).

L'interaction entre l'électron intermédiaire et le deuxième électron éjecté est décrite par l'équation suivante :

$$\left\langle \Psi_f^-(\vec{k}_i, \vec{r}_i) e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \left| \frac{1}{r_{oi}} \right| e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_0} \varphi_N(\vec{r}_i) \right\rangle \quad (3-14)$$

$i = 1$ ou $i = 2$

La remarque importante que l'on peut faire ici est que la symétrie par rapport au transfert est rompue par l'existence de deux transferts intermédiaires différents : $\vec{k}_i - \vec{k}_b$ et $\vec{k}_b - \vec{k}_s$. On note que ce même résultat a été obtenu lors de l'utilisation de la deuxième approximation de Born pour calculer la section efficace de collision (e,2e) à faible énergie d'incidence. Le calcul du terme f_{B2} (TS2) a été effectué numériquement.

La présence de plusieurs pôles dans les intégrales rend ce calcul numérique délicat. Nous avons testé notre méthode d'intégration numérique par l'évaluation de l'intégrale^[36] :

$$I = \frac{1}{\pi^2} \int \frac{d\vec{q}}{(q^2 - p^2 - i\varepsilon)k_i^2 k_f^2} \quad \varepsilon \rightarrow 0$$

avec $\vec{k}_i = \vec{q} - \vec{k}_0$, $\vec{k}_f = \vec{q} - \vec{k}_a$

et $p^2 = k_0^2 - 2\bar{w}$, la quantité \bar{w} est la différence d'énergie entre l'état initial de la cible et un état excité « moyen » de cette même cible.

Utilisant les résultats de l'article de Lewis^[36] on obtient :

$$I = \frac{i}{ks} \ln \left(\frac{pk + s}{pk - s} \right)$$

où $s = [(pk)^2 + 4\bar{w}(\bar{w} - w)]^{\frac{1}{2}}$

et $\bar{w} - w$ représente la différence d'énergie entre l'état final et l'état excité « moyen ».

Si $(\bar{w} - w) > 0$ et si la cible est dans l'état fondamental alors $\bar{w} > 0$ et $s > pk$ ^[37].

D'où :

$$\text{Réel}(I) = \frac{\Pi}{ks} \quad \text{et} \quad \text{Im} I = \frac{1}{ks} \ln \left[\frac{(pk + s)^2}{4\bar{w}(\bar{w} - w)} \right]$$

Si $(\bar{w} - w) < 0$ et $\bar{w} > 0$ (l'état excité « moyen » se trouve entre l'état initial et final de la cible) alors $s < pk$

$$\text{Réel}(I) = 0 \quad \text{et} \quad \text{Im}I = \frac{1}{ks} \ln \left[\frac{(pk + s)^2}{4\bar{w}(-\bar{w} + w)} \right]$$

Notre méthode d'intégration numérique (basée également sur la méthodologie utilisée par B. Piraux^[7]) donne les résultats exacts précédents à 2% près.

Dans cette première approche du mécanisme TS2 on va préalablement étudier son amplitude pour une énergie élevée de chaque électron éjecté de façon à justifier le traitement ondes planes de ces électrons.

On se placera également dans les mêmes conditions cinématiques que celles étudiées par Popov et al^[6] lors de son étude des mécanismes TS1 et SO.

III-2-2 -Conditions cinématiques

On s'intéresse ici au cas d'une double ionisation de l'hélium à haute énergie incidente et avec des énergies d'électrons éjectés élevées.

$$E_0=6079 \text{ eV} \quad E_d=5000 \text{ eV} \quad E_1=500 \text{ eV} \quad E_2=500 \text{ eV}$$

On note que ces conditions permettent de valider l'utilisation des ondes planes pour décrire les électrons incident, diffusé et éjectés.

L'angle de diffusion est $\theta_s = -1 \text{ deg}$ et l'angle d'éjection du premier électron est $\theta = 110 \text{ deg}$.

III-2-3 -Effet de la corrélation dans l'état initial

On tient compte ici de la corrélation dans l'état initial (équation 2-10), aussi bien radiale qu'angulaire.

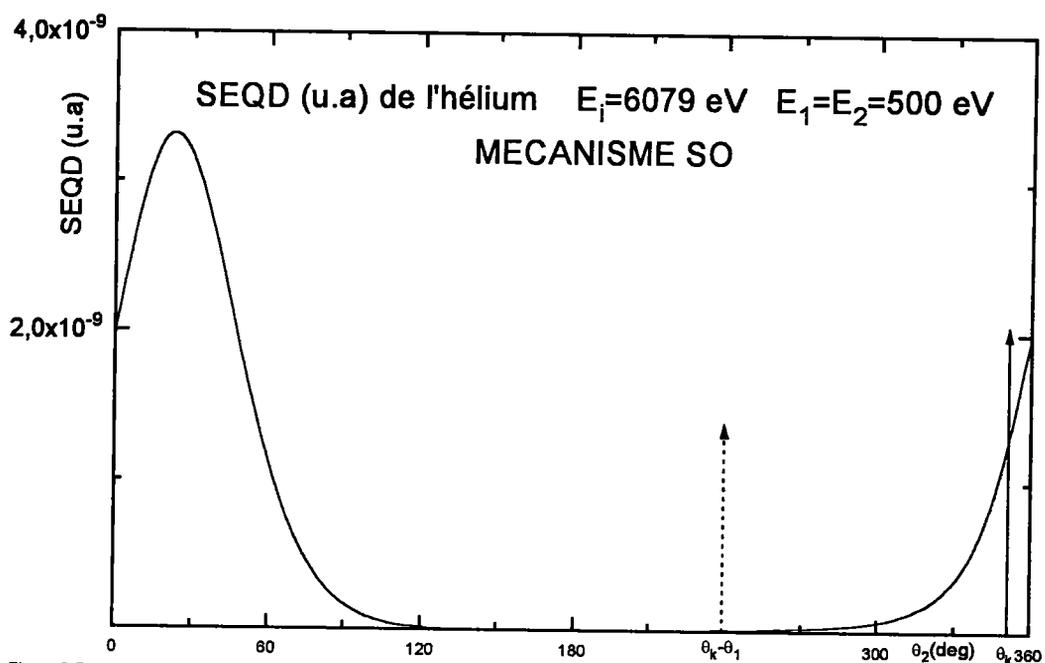


Figure 3-5a _____ représente la SEQD (u.a) de l'hélium en fonction de la direction du deuxième électron éjecté, seul le mécanisme SO est considéré ici
 ↑
 ↑
 représente la direction du transfert qui est la même que celle du premier électron éjecté
 représente la direction de $\theta_k - \theta_1$.

avec corrélation dans l'état initial.

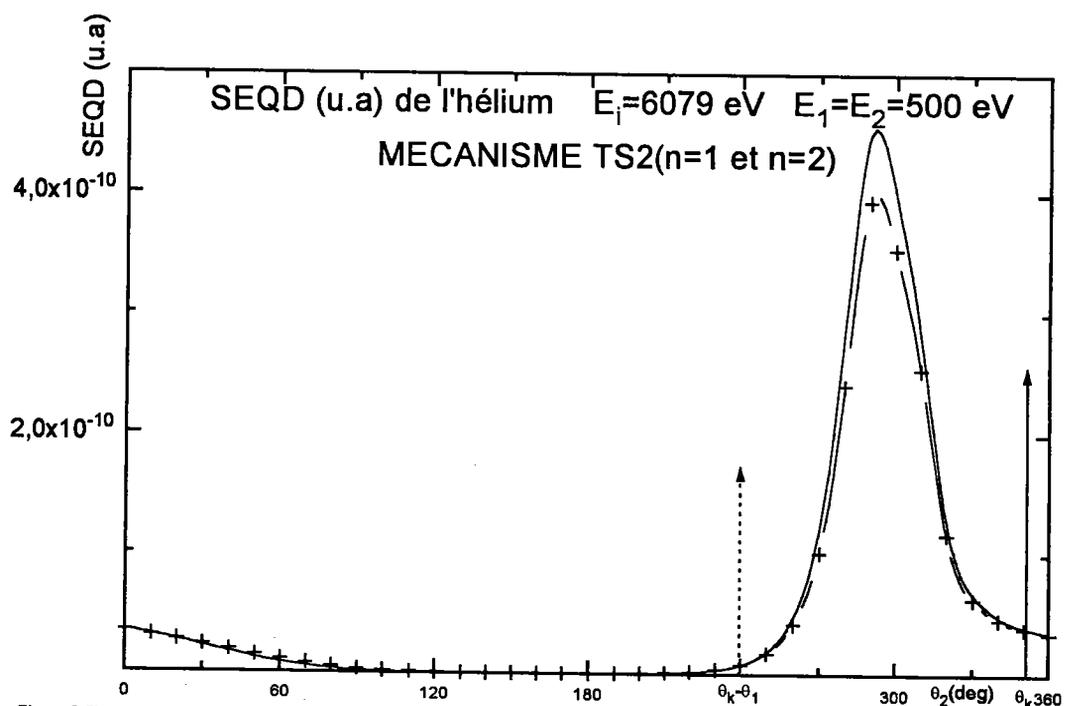


Figure 3-5b _____ représente la SEQD (u.a) de l'hélium en fonction de la direction du deuxième électron éjecté, seul le mécanisme TS2 (n=1) est considéré ici, + + TS2 (n=1 et n=2)
 ↑
 ↑
 représente la direction du transfert qui est la même que celle du premier électron éjecté
 représente la direction de $\theta_k - \theta_1$.

La figure 3-5a et la figure 3-5b représentent la SEQD pour l'atome d'hélium en tenant compte du mécanisme SO puis du mécanisme TS2. On observe un maximum au voisinage de la direction de $\vec{k} - \vec{k}_1$ dans le cas de TS2 (figure 3-5b). Si l'on tient compte des mécanismes SO et TS2 le maximum précédent disparaît car l'amplitude de TS2 est inférieure à celle de SO pour les conditions cinématiques étudiées ici.

La présence de ce maximum peut s'expliquer dans le cadre de la modélisation ondes planes. Le premier terme de la relation (3-12) contient deux facteurs :

$$A_1 = \left\langle \Psi_f^-(\vec{k}_2, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_o} \left| \frac{1}{r_{o2}} \right| e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_o} \varphi_N(\vec{r}_2) \right\rangle$$

$$\text{et } A_2 = \left\langle \Psi_n^-(\vec{k}_1, \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_o} \left| -\frac{2}{r_o} + \frac{1}{r_{o1}} + \frac{1}{r_{o2}} \right| \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_o} \right\rangle$$

En utilisant la modélisation ondes planes pour Ψ_f^- et Ψ_n^- on voit que A_1 est proportionnel à

$$\frac{1}{(Z_N^2 + (\vec{k}_b - \vec{k}_s - \vec{k}_2)^2)^2} \text{ et que } A_2 \text{ dépend principalement de } \frac{1}{(Z_i^2 + (\vec{k}_i - \vec{k}_b - \vec{k}_1)^2)^2}.$$

Les termes Z_N et Z_i proviennent des fonctions d'ondes décrivant l'état fondamental de l'atome d'hélium et de l'ion He^+ .

Les termes A_1 et A_2 seront chacun maximal lorsque :

$$\begin{cases} \vec{k}_b - \vec{k}_s - \vec{k}_2 = 0 \\ \vec{k}_i - \vec{k}_b - \vec{k}_1 = 0 \end{cases} \text{ d'où } \vec{k}_i - \vec{k}_s - \vec{k}_2 - \vec{k}_1 = 0$$

soit $\vec{k}_2 = \vec{K} - \vec{k}_1$.

De même le deuxième terme de la relation (3-12) contient deux facteurs :

$$B_1 = \left\langle \Psi_f^-(\vec{k}_1, \vec{r}_1) e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_o} \left| \frac{1}{r_{o2}} \right| e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_o} \varphi_N(\vec{r}_1) \right\rangle$$

$$\text{et } B_2 = \left\langle \Psi_n^-(\vec{k}_2, \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_o} \left| -\frac{2}{r_o} + \frac{1}{r_{o1}} + \frac{1}{r_{o2}} \right| \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_o} \right\rangle$$

En utilisant également la modélisation ondes planes pour Ψ_f^- et Ψ_n^- on voit que B_1 est proportionnel à $\frac{1}{(Z_N^2 + (\vec{k}_b - \vec{k}_s - \vec{k}_1)^2)^2}$ et que B_1 dépend principalement de

$$\frac{1}{(Z_i^2 + (\vec{k}_i - \vec{k}_b - \vec{k}_2)^2)^2}$$

Les termes B_1 et B_2 seront chacun maximal lorsque :

$$\begin{cases} \vec{k}_b - \vec{k}_s - \vec{k}_1 = 0 \\ \vec{k}_i - \vec{k}_b - \vec{k}_2 = 0 \end{cases} \text{ d'où } \vec{k}_i - \vec{k}_s - \vec{k}_1 - \vec{k}_2 = 0$$

soit $\vec{k}_2 = \vec{K} - \vec{k}_1$.

Il est à remarquer ici que l'intégration sur $d\vec{k}_b$ (électron diffusé intermédiaire lors du processus TS2) donne en fait un maximum voisin de $\vec{K} - \vec{k}_1$ mais ne correspond pas exactement à cette direction (écart ici de 10° à 20°).

III-2-4- Etat initial non corrélé

Dans ce cas la fonction d'onde initiale de l'atome d'hélium s'écrit :

$$\varphi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = [N(1s(1)1s'(2) + 1s'(1)1s(2))] \quad (3-20)$$

N est la constante de normalisation et les orbitales atomiques $1s$ et $1s'$ sont celles d'un atome hydrogénoïde ($Z=27/16$). Les figures 3-6a et 3-6b montrent que la corrélation dans l'état initial ne joue pas un rôle très important ici.

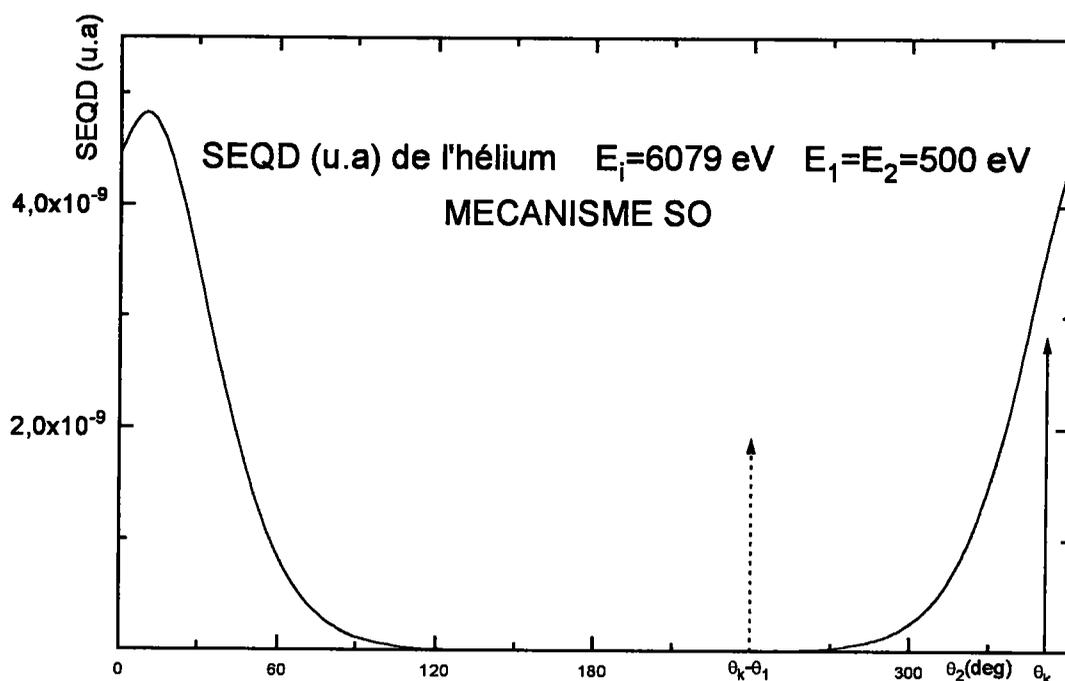


Figure 3-6a _____ représente la SEQD (u.a) de l'hélium en fonction de la direction du deuxième électron éjecté, seul le mécanisme SO est considéré ici (on n'a pas tenu compte ici de la corrélation dans l'état initial $Z=27/16$)

↑ _____ représente la direction du transfert qui est la même que celle du premier électron éjecté
 ↑ _____ représente la direction de $\theta_k - \theta_1$.

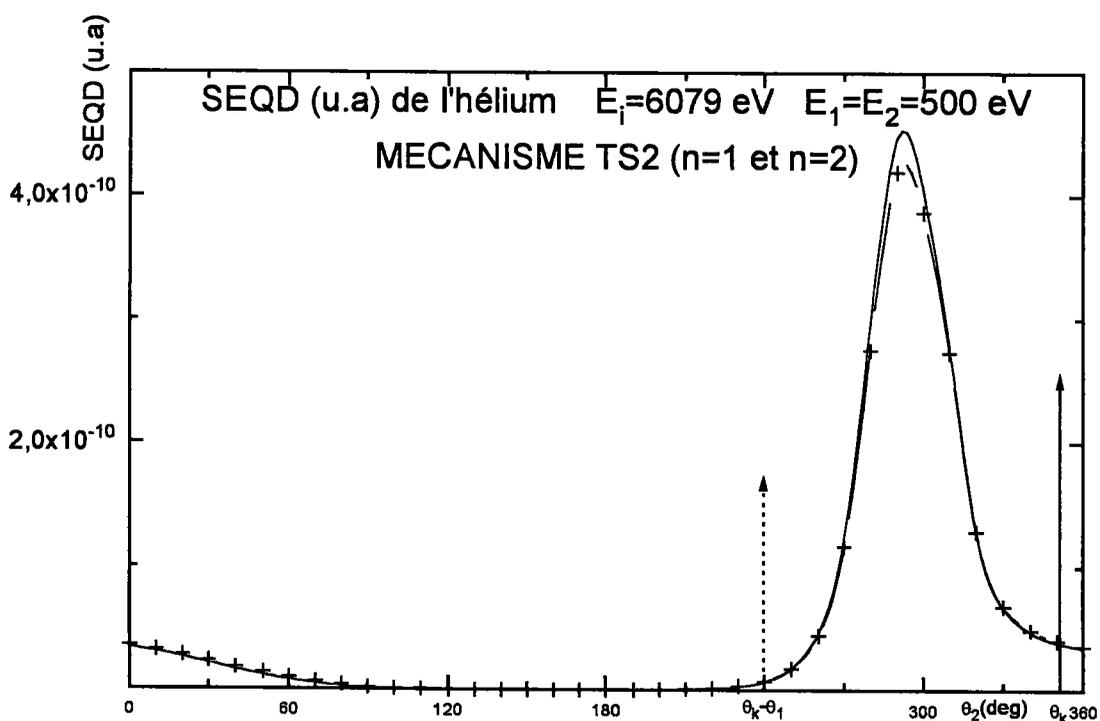


Figure 3-6b _____ représente la SEQD (u.a) de l'hélium en fonction de la direction du deuxième électron éjecté, seul le mécanisme TS2 ($n=1$) est considéré ici (on n'a pas tenu compte ici de la corrélation dans l'état initial $Z=27/16$). _____ + _____ TS2 ($n=1$ et $n=2(2s,2p)$)

↑ _____ représente la direction du transfert qui est la même que celle du premier électron éjecté
 ↑ _____ représente la direction de $\theta_k - \theta_1$.

III-3 - Mécanisme TWO Step (1)

Comme le TWO Step (2) le mécanisme TWO Step (1) nécessite l'utilisation de la deuxième approximation de Born. La contribution de ce mécanisme s'écrit :

$$f_{B2}(TS1) = -\frac{1}{\pi} \sum_n \int \frac{d\vec{k}_a}{(2\pi)^3 [k_i^2 - k_a^2 - k_s^2 - 2I_n]} \left\langle \Psi_f^-(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) \left| \frac{1}{|\vec{r}_{12}|} \right| \Psi_n^+(\vec{k}_a; \vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle$$

$$\left\langle \Psi_n^-(\vec{k}_a; \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0} \left| -\frac{2}{r_o} + \frac{1}{r_{o1}} + \frac{1}{r_{o2}} \right| \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \right\rangle \quad (3-15)$$

$$\text{avec } \Psi_n^\pm(\vec{k}_a; \vec{r}_1, \vec{r}_2) = \frac{1}{\sqrt{2}} [\varphi_c^\pm(\vec{k}_a, \vec{r}_1) \varphi_n(\vec{r}_2) + \varphi_c^\pm(\vec{k}_a, \vec{r}_2) \varphi_n(\vec{r}_1)] \text{ et ici } \varphi_c^+(\vec{k}, \vec{r}) = \frac{e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}}}{(2\pi)^{3/2}} \quad (3-16)$$

où $\varphi_n(\vec{r})$ est la fonction d'onde décrivant l'atome He^+ .

Dans cette étude on va s'intéresser aux cas $n = 1$ et $n = 2$, le terme I_n est l'énergie nécessaire pour éjecter un premier électron de la cible ($n = 1$) et éventuellement exciter le deuxième électron ($n = 2$).

Le premier terme :

$$\left\langle \Psi_n^-(\vec{k}_a; \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0} \left| -\frac{2}{r_o} + \frac{1}{r_{o1}} + \frac{1}{r_{o2}} \right| \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \right\rangle \quad (3-17)$$

correspond à une simple ionisation ($n = 1$) (et si $n=2$ il correspond à une ionisation et à une excitation). L'électron éjecté va entrer en collision avec le deuxième électron et l'éjecte, cette collision est décrite par le terme :

$$\left\langle \Psi_f^-(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) \left| \frac{1}{r_{12}} \right| \Psi_n^+(\vec{k}_a; \vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle. \quad (3-18)$$

qui est facile à calculer dans le cas d'une modélisation ondes planes. On note que dans le terme $f_{B2}(TS1)$ il n'y a qu'un seul transfert $\vec{K} = \vec{k}_i - \vec{k}_s$ et par la suite la symétrie par rapport au transfert est maintenue.

Si on utilise les mêmes conditions cinématiques que celles de Popov et al^[29] ($E_0=6079$ eV, $E_d=5000$ eV, $E_1=500$ eV et $E_2=500$ eV, $\theta_s = -1$ deg, $\theta_1 = 110$ deg.) on observe également un maximum dans la direction $\vec{K} - \vec{k}_1$. Mais, contrairement au cas de TS2, le maximum subsiste si on prend en compte les mécanismes SO+TS1 (figure 3-7a). On peut déjà en conclure que dans ces conditions cinématiques le mécanisme TS1 est prépondérant.

Le maximum peut aussi s'expliquer à partir des expressions (3-17) et (3-18).

Toujours dans le cadre de la modélisation ondes planes l'expression (3-17) dépend essentiellement du terme

$$\frac{1}{(Z_i^2 + (\vec{k}_i - \vec{k}_s - \vec{k}_a)^2)^2}$$

L'expression (3-18) donne (en utilisant les relations $\frac{1}{r_{12}} = \frac{1}{2\pi^2} \int \frac{d\vec{\lambda}}{\lambda^2} e^{i\vec{\lambda}\cdot\vec{r}_1} e^{i\vec{\lambda}\cdot\vec{r}_2}$ et

$$\frac{1}{r_{12}} = \frac{1}{2\pi^2} \int d\vec{r}_0 e^{i(\vec{k}-\vec{\lambda})\cdot\vec{r}_0}) \text{ un terme proportionnel à : } \frac{1}{(Z_N^2 + (\vec{k}_a - \vec{k}_1 - \vec{k}_2)^2)^2}$$

Dans cette partie, on va essayer de mettre en évidence l'importance de plusieurs phénomènes physiques tel que la corrélation dans l'état initial et final.

IIV-3-1- Corrélation dans l'état final

La corrélation dans l'état final peut être représenté par la prise en compte de l'interaction entre les deux électrons éjectés par l'intermédiaire du facteur de Gamow :

$$\begin{aligned} \varphi \left(\left| \vec{k}_1 - \vec{k}_2 \right| \right) &= e^{-\pi\chi_{12}} \mu(1 - i\chi_{12}) \\ \text{avec } \chi_{12} &= \frac{1}{\left| \vec{k}_1 - \vec{k}_2 \right|} \end{aligned} \quad (3-19)$$

le calcul dans ce cas nous montre (figure 3-7a et figure 3-7b) que l'effet de la corrélation dans l'état final est négligeable, en effet les électrons éjectés ont une énergie de 500 e.V d'où l'interaction coulombienne entre ces deux particules va être faible.

Pour la corrélation dans l'état initial on obtient les mêmes conclusions que pour TS2 (pas de corrélation dans l'état initial).

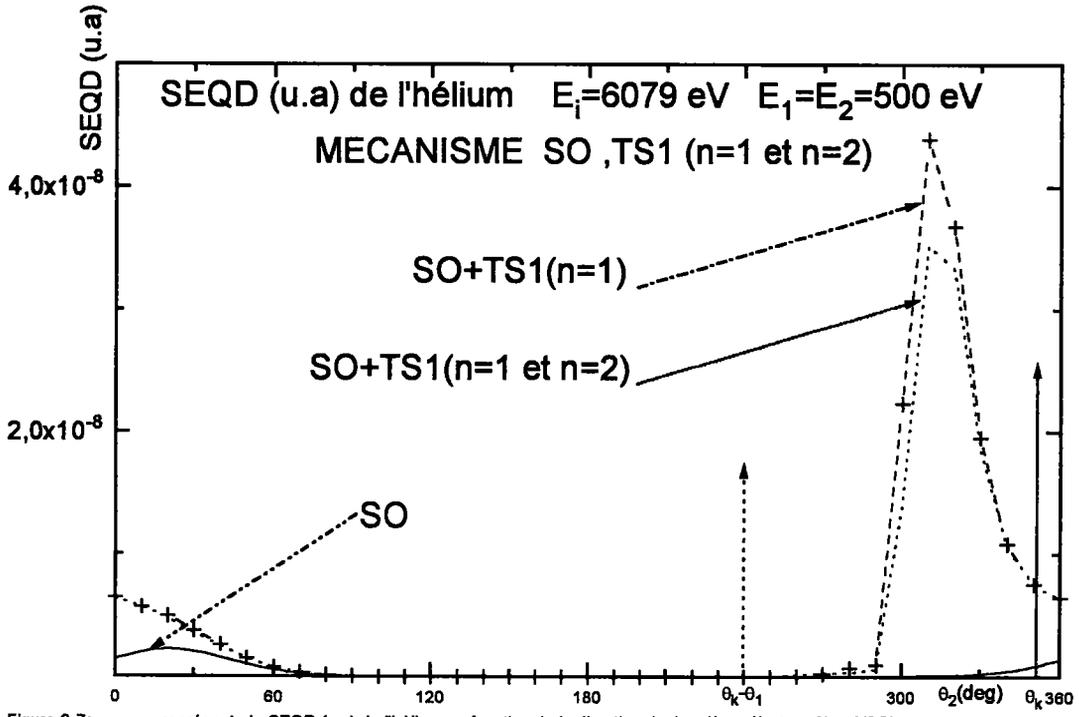


Figure 3-7a ——— représente la SEQD (u.a) de l'hélium en fonction de la direction du deuxième électron éjecté(SO)
 - - - (SO+TS1(n=1)) et - + - + (SO+TS1(n=1 et n=2))
 ↑ ——— représente la direction du transfert qui est la même que celle du premier électron éjecté
 ↑ ——— représente la direction de $\theta_k-\theta_1$.

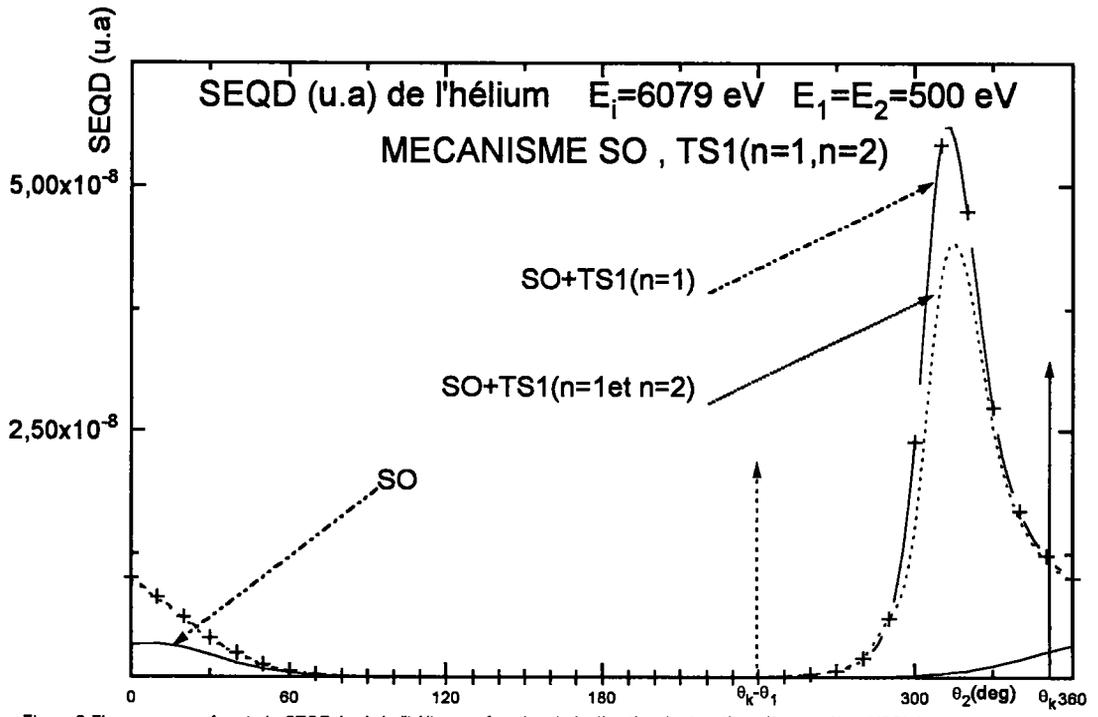


Figure 3-7b ——— représente la SEQD (u.a) de l'hélium en fonction de la direction du deuxième électron éjecté(SO) (on n'a pas tenu compte ici de la corrélation dans l'état initial Z=27/16), - - - (SO+TS1(n=1)) et - + - + (SO+TS1(n=1 et n=2))
 ↑ ——— représente la direction du transfert qui est la même que celle du premier électron éjecté
 ↑ ——— représente la direction de $\theta_k-\theta_1$.

B) Modélisation ondes coulombiennes

III-4 Etude de la contribution du mécanisme SO dans les expériences (e,3-1e) sur l'argon

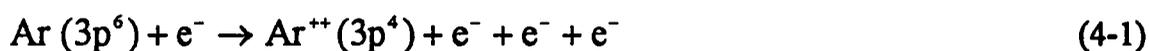
III-4-1-Introduction

Les premières expériences (e,3e) du groupe d'Orsay^[10,12] sur l'argon, le krypton et le néon ont été relativement bien interprétées par Hda et al^[23] et Dal Cappello et al^[24] en utilisant le modèle BBK approché et le seul mécanisme SO. Nous nous proposons dans cette partie de confronter ce même modèle aux résultats des expériences (e,3-1e) du groupe d'Orsay^[38].

Ces expériences (e,3-1e) consistent à ne détecter ici que les deux électrons éjectés de la cible en coïncidence. L'électron incident ayant une énergie de 5500 eV dans ces expériences on peut raisonnablement négliger les effets d'échanges entre l'électron diffusée (non détecté) et chacun des deux électrons éjectés. Le bilan énergétique étant inconnu (l'énergie de l'électron diffusé n'est pas déterminée) on doit donc considérer tous les processus de la double ionisation à l'ionisation multiple. Le fait de détecter les deux électrons éjectés ne nous permet pas d'écarter l'hypothèse d'un troisième (ou d'autres) électrons éjectés. Néanmoins on peut considérer comme événement prépondérant la double ionisation de deux électrons de la couche (np⁶) de la cible.

III-4-2-théorie :

En utilisant l'approximation du cœur gelé on réduit le problème à N-électrons-cible à un problème de 6-électrons-cible (3p⁶) (Hda et al 1994)^[23] :



Si on se limite aux cas de faible transfert (Hda et al 1994)^[23] on peut réduire ce problème de six électrons à un problème à deux électrons actifs (les deux électrons éjectés après la collision). Ceci nous permettra de rappeler la théorie de la double ionisation de l'hélium et l'appliquer à l'atome d'argon.

On rappelle que la section efficace quintuplement différentielle dans le cas de l'hélium est donnée par l'équation suivante :

$$\frac{d^5\sigma}{d\Omega_s d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1 dE_2} = \frac{k_i k_1 k_2}{k_s} |f_{so}|^2 \quad (4-2)$$

où $d\Omega_s, d\Omega_1$ et $d\Omega_2$ représente respectivement les angles solides du diffusé et les deux éjectés, et E_1 et E_2 sont les énergies des deux électrons éjectés. Les moments de l'incident, diffusé, premier et deuxième éjecté sont respectivement : $\vec{k}_i, \vec{k}_s, \vec{k}_1$ et \vec{k}_2 . On note que le moment de transfert sera noté tel que : $\vec{K} = \vec{k}_i - \vec{k}_s$.

f_{so} représente un processus du premier ordre et ne tient compte que d'une interaction unique entre l'incident et la cible et nécessite l'application de la première approximation de Born ; f_{B1} s'écrit dans ce cas tel que :

$$f_{B1} = \frac{-1}{2\pi} \left\langle \Psi_f \left(\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{r}_1, \vec{r}_2 \right) e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0} |V_o| e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \Psi_i \left(\vec{r}_1, \vec{r}_2 \right) \right\rangle \quad (4-3)$$

avec :

$$V_o = \frac{-2}{r_o} + \frac{1}{r_{o1}} + \frac{1}{r_{o2}} \quad (4-4)$$

Cette formulation peut être appliquée à la double ionisation de l'argon si on tient compte des 15 possibilités dans lesquelles on peut trouver les quatre électrons restant dans l'état final $3p^4$. Neuf d'entre eux correspondent à l'état ionique $Ar^{++} (3p^4) ^3P$, 5 à l'état ionique 1D et un à l'état ionique 1s . Dans ce cas l'équation (4-2) sera modifiée et s'écrira :

$$\frac{d^5\sigma}{d\Omega_s d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1 dE_2} = \sum_{i=1}^{i=15} \frac{k_s k_1 k_2}{k_i} |f_{Bi}^i|^2 \quad (4-5)$$

Pour calculer finalement la section efficace quadruplement différentielle correspondante à (e,3-1e), on intègre sur l'angle solide élémentaire $d\Omega_s$, l'équation donnée par (4-5). On note qu'ici on a considéré uniquement l'équation (4-1) et on a négligé tous les autres états ioniques possibles comme $3s^13p^5$.

La fonction d'onde utilisée pour décrire l'état initial est basée sur une superposition de configurations^[23] et s'écrit

$$\Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \sum_j \sum_l \Psi_j(\vec{r}_1) \Psi_l(\vec{r}_2) \quad (4-6)$$

Elle est symétrique pour l'état 1S et 1D et antisymétrique pour l'état 3P .

La fonction d'onde de l'état final s'écrit sous forme d'une combinaison symétrique et antisymétrique de produits de deux fonctions d'onde coulombienne :

$$\Psi_f^{\pm}(\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{r}_1, \vec{r}_2) = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\varphi_c^-(\vec{k}_1, \vec{r}_1; Z_1) \varphi_c^-(\vec{k}_2, \vec{r}_2; Z_2) \pm (\vec{r}_1 \leftrightarrow \vec{r}_2) \right] \quad (4-7)$$

Ce modèle consiste à décrire les deux électrons éjectés par des fonctions d'ondes coulombiennes avec des charges variables qui satisfont les conditions de Rudge^[39] (Rudge 1968) :

$$\frac{Z_1}{k_1} + \frac{Z_2}{k_2} = \frac{2}{k_1} + \frac{2}{k_2} - \frac{1}{\left| \begin{array}{c} \rightarrow \\ k_1 - k_2 \end{array} \right|} \quad (4-8)$$

Le signe + ou - correspond à la symétrie de $\Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ en l'absence d'interaction spin-spin et spin-orbite. En introduisant (4-7) dans (4-3) on arrive à l'expression :

$$f_{Bi}^i = \frac{-2\sqrt{2}}{k} \sum_j \sum_l \left[M_{jl}^{(1)}(\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}) + P_{12} M_{jl}^{(2)}(\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}) \right] \quad (4-9)$$

avec

$$\begin{aligned}
 M_{ji}^{(1)}(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{k}) &= \frac{1}{k} \langle \varphi_c^-(\vec{k}_1, \vec{r}_1, Z_1) | e^{i\vec{k}\vec{r}_1} - 1 | \varphi_j(\vec{r}_1) \rangle \langle \varphi_c^-(\vec{k}_2, \vec{r}_2, Z_2) | \varphi_j(\vec{r}_2) \rangle \\
 M_{ji}^{(2)}(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{k}) &= \frac{1}{k} \langle \varphi_c^-(\vec{k}_2, \vec{r}_2, Z_2) | e^{i\vec{k}\vec{r}_2} - 1 | \varphi_j(\vec{r}_2) \rangle \langle \varphi_c^-(\vec{k}_1, \vec{r}_1, Z_1) | \varphi_j(\vec{r}_1) \rangle
 \end{aligned}
 \tag{4-10}$$

où P_{12} est l'opérateur de symétrisation.

III-4-3- Résultats et discussion

On examine pour la première fois les résultats expérimentaux de Lahmam-Bennani et al^[38] (1991) qui ont été réalisés dans le cas où l'un des deux électrons éjectés a une énergie relativement supérieure au deuxième électron éjecté : 75 eV et 5 eV.

Les auteurs ont utilisé un modèle semi-classique qui leur permettait de distinguer les deux processus suivants :

-l'électron « rapide » (75 eV) sera éjecté préalablement par un choc direct de l'incident sur la cible puis l'électron « lent » sera éjecté par réarrangement de la cible (électron SO).

-l'électron « lent » (5 eV) sera éjecté préalablement par un choc direct de l'incident sur la cible puis l'électron « rapide » (75 eV) sera éjecté par réarrangement de la cible (électron SO).

Bien que la mécanique quantique interdise une telle distinction entre ces deux processus (effet d'échange) nous avons néanmoins calculé leurs amplitudes respectives dans le cadre du modèle suivant :

l'électron (« rapide » ou « lent ») éjecté par le choc direct de l'incident sur la cible voit une charge $Z_1=1$ (qui correspond à la charge de l'ion Ar^+) tandis que le deuxième (« lent » ou « rapide ») éjecté voit une charge $Z_2=2$ (qui correspond à la charge de l'ion Ar^{++}).

Ceci nous permet de considérer deux processus différents :le premier est donné par

$$\frac{k_1^2}{2} = E_1 \quad Z_1=1 \quad \frac{k_2^2}{2} = E_2 \quad \text{et} \quad Z_2=2$$

et le deuxième par :

$$\frac{k_1^2}{2} = E_1 \quad Z_1=2 \quad \frac{k_2^2}{2} = E_2 \quad \text{et} \quad Z_2=1$$

On ne peut faire une sélection entre ces deux processus que si le terme $M_{ji}^{(1)}$ est très supérieur au terme $M_{ji}^{(2)}$ (dans ce cas l'effet d'échange est évidemment négligeable).

on a inclus également un troisième modèle qui consiste à décrire chacun des électrons éjectés par une onde coulombienne comme précédemment mais avec des charges variables :

$$Z_1 = 2 - \frac{k_1}{2 \left| \vec{k}_1 - \vec{k}_2 \right|} \quad (4-11)$$

et

$$Z_1 = 2 - \frac{k_2}{2 \left| \vec{k}_1 - \vec{k}_2 \right|} \quad (4-12)$$

Les figures 3-8 et 3-9 montrent que nos modèles basés sur une description des deux électrons éjectés par des ondes coulombiennes (à charges fixées ou à charges variables) donnent un relatif bon accord avec l'expérience^[40].

L'amplitude des deux processus considérés précédemment étant du même ordre de grandeur il ne nous est pas possible de confirmer ici le raisonnement semi-classique de Lahmam-Bennani et al^[38].

L'accord théorie-expérience semble indiquer la présence prépondérante du mécanisme SO. Dans le cas d'électrons éjectés rapides (155 eV et 75 eV) nos modèles donnent un désaccord flagrant avec l'expérience (figures 3-10 et 3-11).

Ce désaccord pourrait provenir du fait que le mécanisme TS1 est souvent prépondérant pour des électrons éjectés rapides (Popov et al^[6]).

Ces derniers auteurs ont établi ce résultat en considérant le double ionisation de l'hélium, il resterait donc à étendre le formalisme TS1 au cas des gaz rares.

La figure 3-12 indique un accord satisfaisant théorie-expérience^[38,40] pour des électrons éjectés relativement lents (10 eV). Il nous est également impossible de privilégier l'un des deux processus car l'amplitude associée à chacun d'eux est du même ordre de grandeur.



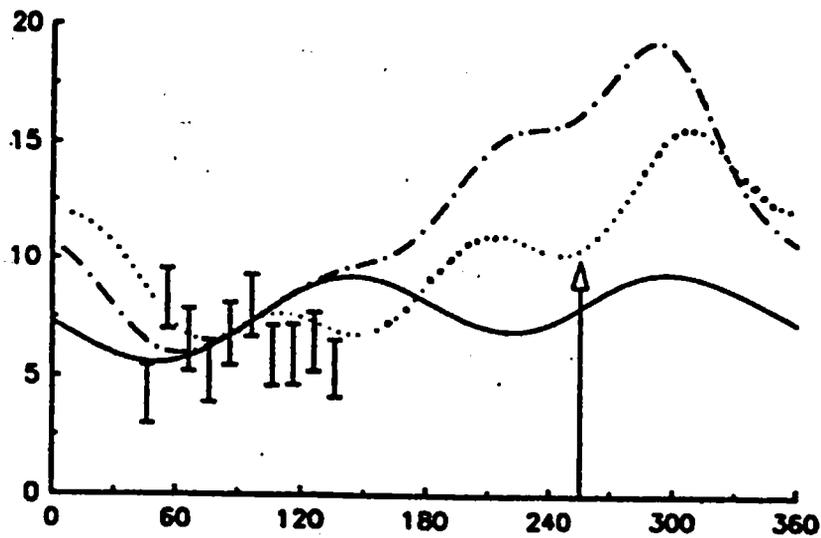


Figure3-8 La section efficace quadruplement différentielle pour la double ionisation de l'argon. L'énergie des électrons est 5500, 75, 5 eV, respectivement, pour l'incident et les deux éjectés. Un des deux éjectés (5 eV) est détecté à différentes valeurs angulaires tandis que l'autre (75 eV) sera détecté à $\theta_2 = 255^\circ$. \blacksquare , points expérimentaux (Lahmam-Bennani et al 1991); \uparrow , direction du deuxième éjecté (75 eV); ---, modèle coulombien avec les charges effectives; _____, modèle coulombien avec $Z_1=1$ (5 eV) et $Z_2=2$ (75 eV); ,modèle coulombien avec $Z_1=2$ (5eV) et $Z_2=1$ (75 eV).

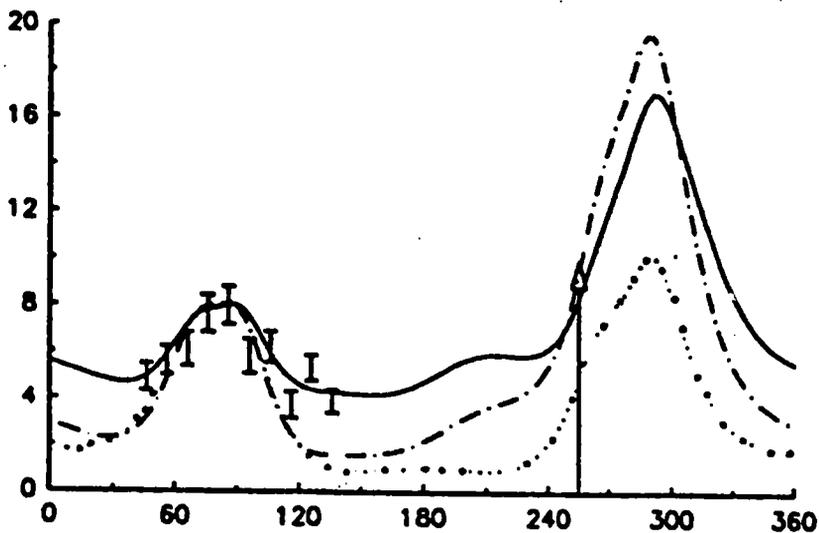


Figure3-9 Comme la figure 3-8, un des deux éjectés (75 eV) est détecté à différentes valeurs angulaires tandis que l'autre (5 eV) sera détecté à $\theta_2 = 255^\circ$. \blacksquare , points expérimentaux (Lahmam-Bennani et al 1991); \uparrow , direction du deuxième éjecté (5 eV); ---, modèle coulombien avec les charges effectives; _____, modèle coulombien avec $Z_1=1$ (75 eV) et $Z_2=2$ (5 eV); ,modèle coulombien avec $Z_1=2$ (75eV) et $Z_2=1$ (5 eV).

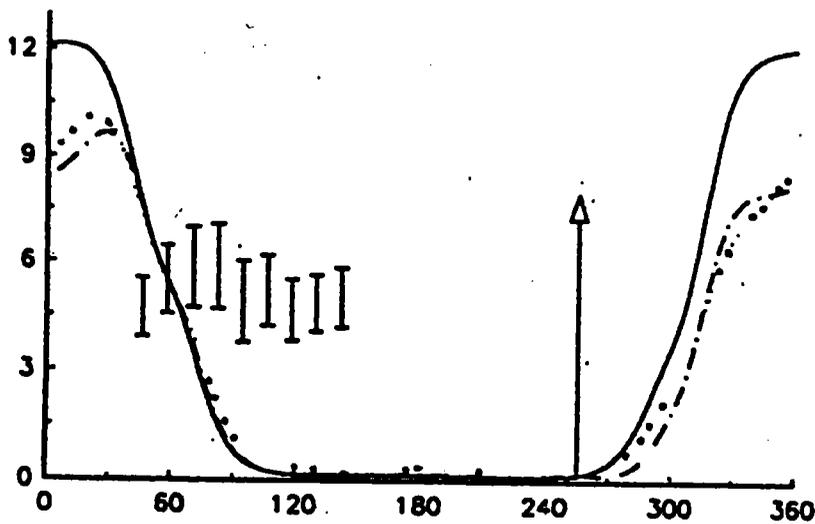


Figure3-10 La section efficace quadruplement différentielle pour la double ionisation de l'argon. L'énergie des électrons est 5773, 155, 75 eV, respectivement, pour l'incident et les deux éjectés. Un des deux éjectés (75 eV) est détecté à différentes valeurs angulaires tandis que l'autre (155 eV) sera détecté à $\theta_2 = 255^\circ$. $\bar{\square}$ points expérimentaux (Lahmam-Bennani et al 1991); \uparrow direction du deuxième éjecté (155 eV); $-\cdot-, modèle coulombien avec les charges effectives; $-\cdot-, modèle coulombien avec $Z_1=1$ (75 eV) et $Z_2=2$ (155 eV); \cdots , modèle coulombien avec $Z_1=2$ (75eV) et $Z_2=1$ (155 eV).$$

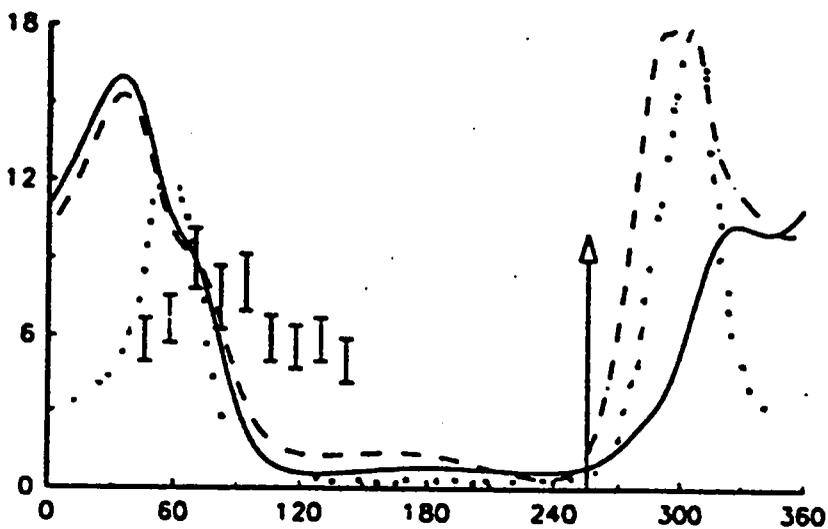


Figure3-11 Comme la figure 3-10, un des deux éjectés (155 eV) est détecté à différentes valeurs angulaires tandis que l'autre (75 eV) sera détecté à $\theta_2 = 255^\circ$. $\bar{\square}$ points expérimentaux (Lahmam-Bennani et al 1991); \uparrow direction du deuxième éjecté (155 eV); $-\cdot-, modèle coulombien avec les charges effectives; $-\cdot-, modèle coulombien avec $Z_1=1$ (155 eV) et $Z_2=2$ (75 eV); \cdots , modèle coulombien avec $Z_1=2$ (155eV) et $Z_2=1$ (75 eV).$$

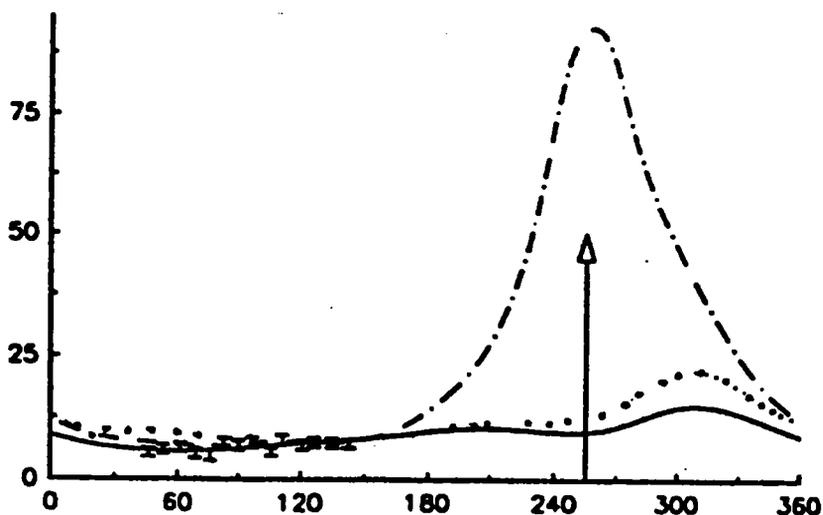


Figure 3-12 La section efficace quadruplement différentielle pour la double ionisation de l'argon. L'énergie des électrons est 10 et 20 eV pour les deux éjectés. Un des deux éjectés (10 eV) est détecté à différentes valeurs angulaires tandis que l'autre (20 eV) sera détecté à $\theta_2 = 255^\circ$. \bullet points expérimentaux (Lahmam-Bennani et al 1991), \uparrow direction du deuxième éjecté (20 eV); $-\cdot-$, modèle coulombien avec les charges effectives; $---$, modèle coulombien avec $Z_1=1$ (10 eV) et $Z_2=2$ (20 eV); \cdots , modèle coulombien avec $Z_1=2$ (10 eV) et $Z_2=1$ (20 eV).

III-4-4- Conclusion

Nos calculs ont montré pour la première fois que le seul mécanisme SO ne pouvait pas interpréter les expériences (e,3-1e) sur l'argon. Ceci nous a motivé pour entreprendre des calculs relatifs aux deux autres mécanismes TS1 et TS2 jusque là négligés.

III-5-Mise en évidence de l'importance du mécanisme TS2 dans la double ionisation des atomes à haute énergie incidente

On se propose ici de discuter les résultats obtenus par le calcul explicite des contributions des mécanismes TS1 et TS2 dans le cas de la double ionisation de l'atome d'hélium. Jusqu'à présent le seul travail concernant ces mécanismes en deux étapes est celui de Popov et al^[6].

Ces derniers auteurs ont considéré le seul mécanisme TS1 et à l'aide d'un modèle très simplifié : les électrons éjectés sont décrits par des ondes planes, l'intégrale figurant dans le

terme de la seconde approximation de Born est approximée, et la fonction d'onde décrivant l'état initial ne contient pas de termes de corrélation^[6].

Nous avons repris ces calculs en tenant compte de la corrélation dans l'état initial, en décrivant les électrons éjectés par un modèle BBK approché et en calculant, sans aucune approximation, l'intégrale figurant dans le terme de la seconde approximation de Born.

Toutes les mesures (e,3e) et (e,3-1e) ont été réalisées à haute énergie incidente, à faible angle de diffusion et généralement avec des électrons éjectés de faible énergie. Ces expériences sont en plus coplanaires. Nous avons donc entrepris nos calculs sous les mêmes conditions.

A ce jour il n'y a pas d'expériences (e,3e) sur l'hélium mais les dernières expériences sur les gaz rares du groupe d'Orsay^[8,9] ont clairement établi la présence d'un mécanisme TS2 intervenant dans la double ionisation des gaz rares.

La figure 3-13 montre que le mécanisme TS2 n'est pas négligeable^[41,42] (comme le pensaient divers auteurs, Popov et al^[6] et J.Mc Guire^[4]) pour une énergie incidente de 5 KeV.

L'angle de diffusion est fixé à 1° , les énergies de chaque électron éjecté sont identiques et fixées à 10eV.

Un des deux électrons éjectés est détecté suivant la direction du moment de transfert \vec{K} . Le mécanisme SO est ici prédominant mais une dissymétrie par rapport à la direction du transfert apparaît. Le lobe droit (θ_2 compris entre 0° et 90°) est ainsi amplifié alors que l'amplitude du lobe gauche (pour θ_2 compris entre 210° et 240°) diminue.

On s'aperçoit aussi que la contribution principale au mécanisme TS2 provient de la prise en compte de l'état intermédiaire $n=1$ (ionisation sans excitation de l'ion restant). La contribution $n=2$ (ionisation avec excitation de l'ion He^+) est très faible.

Les figures 3-14 (a,b et c) constituent une étude de la SEQD en fonction de l'énergie incidente pour une énergie identique des électrons éjectés (40 eV). Un des électrons éjectés est détecté suivant la direction du transfert \vec{K} . L'angle de diffusion est fixé à 1° . La dissymétrie par rapport au transfert augmente lorsque l'énergie incidente diminue. Ainsi pour une énergie incidente de 1159 eV l'écart entre la direction du maximum de la SEQD correspondant aux mécanismes SO et TS2 et la direction du transfert atteint 10° .

Les figures 3-15 (a, b et c) nous permettent d'étudier des SEQD en fonction de l'énergie des électrons éjectés pour une énergie incidente fixée à 1159 eV et un angle de diffusion de 1° . Un des deux électrons éjectés est détecté suivant la direction de \vec{K} (fig. 5-15a et 5-15b) pour des énergies d'électrons éjectés de 10 eV et 5 eV. On remarque l'apparition d'un lobe important au voisinage de $\theta_2 = 200^\circ$ qui détruit la structure symétrique des 2 lobes pour la mécanique SO. Le cas où l'énergie des électrons éjectés est de 1 eV est intéressant car la structure de départ de la SEQD (mécanisme SO seul) est complètement différente des précédentes. On observe ici un lobe unique (de recul) dans la direction de $-\vec{K}$. Si on ajoute la contribution de TS2 on note une rotation du maximum de près de 20° .

Un autre point important à examiner est de savoir si le mécanisme TS2 est sensible à la prise en compte de la corrélation dans l'état initial. La figure 3-16 (réalisée pour les mêmes conditions que celles de la figure 3-15a) est obtenue ici en ne tenant compte que de la corrélation radiale dans l'état initial. On constate que le lobe important vers $\theta_2 = 200^\circ$ présent dans la figure 3-15a a disparu. Ceci démontre bien que la corrélation dans l'état initial ne doit jamais être négligée lorsque l'on détermine la SEQD à l'aide des mécanismes SO et TS2.

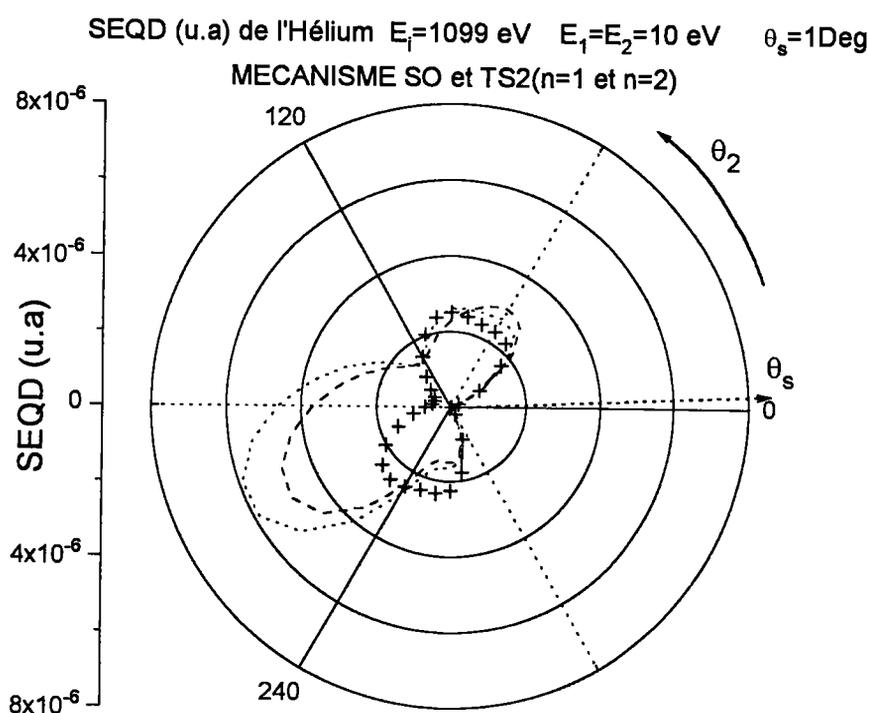


Figure 3-15a $+$ $+$ $+$ représente la SEQD (u.a) en coordonnées polaires de l'hélium en fonction de la direction du deuxième électron éjecté en tenant compte de la contribution SO, $---$ SO+TS2(n=1), $.....$ SO+TS2(n=1 et n=2)

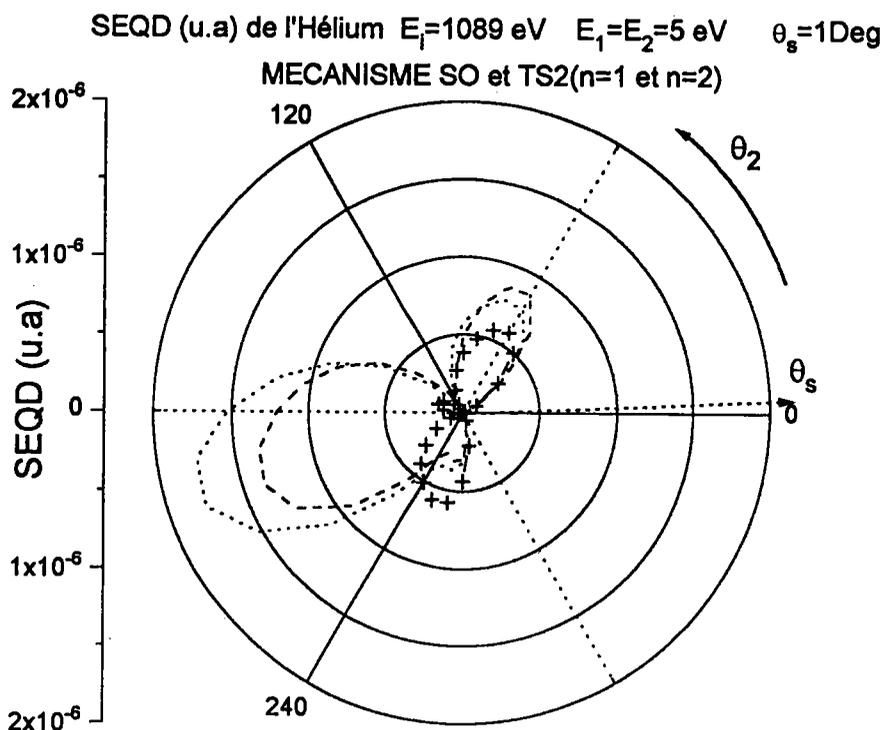


Figure 3-15b $+$ $+$ représente la SEQD (u.a) en coordonnées polaires de l'hélium en fonction de la direction du deuxième électron éjecté en tenant compte de la contribution SO, $---$ SO+TS2(n=1), \cdots SO+TS2(n=1 et n=2)

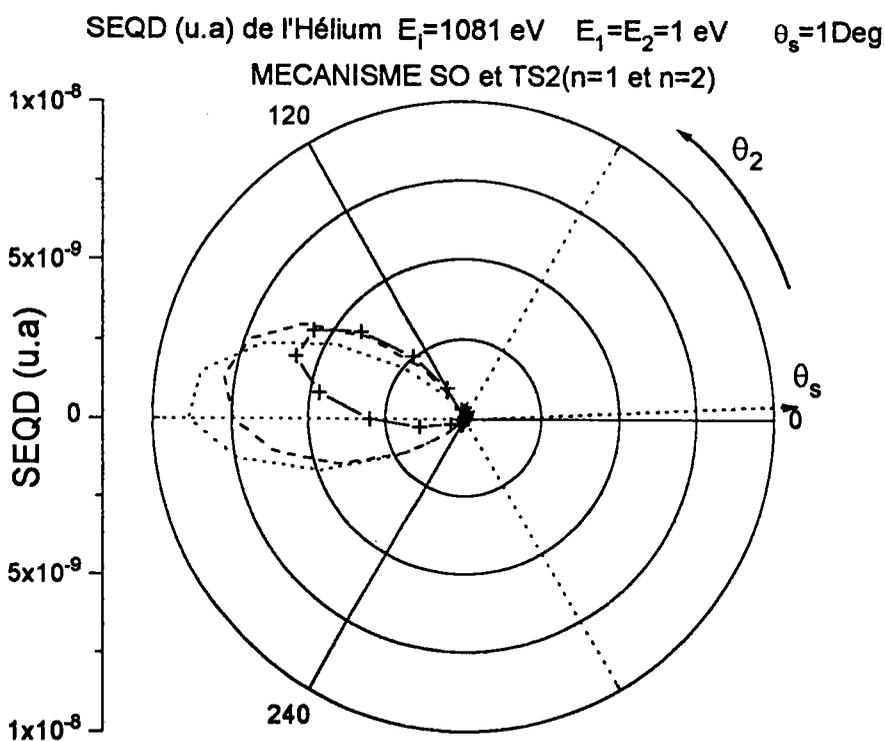


Figure 3-15c $+$ $+$ représente la SEQD (u.a) en coordonnées polaires de l'hélium en fonction de la direction du deuxième électron éjecté en tenant compte de la contribution SO, $---$ SO+TS2(n=1), \cdots SO+TS2(n=1 et n=2)

La figure 3-17a illustre une étude de la dépendance de la SEQD en fonction de la répartition en énergie des électrons éjectés. Dans un premier temps on détecte un électron éjecté de 5 eV suivant \vec{K} tandis que l'autre a une énergie de 75 eV.

Dans ce cas (fig 5-17a) le mécanisme TS2 a une contribution pratiquement négligeable. Si dans un deuxième temps, on détecte un électron éjecté de 75 eV suivant \vec{K} et que l'autre électron a une énergie de 5 eV alors la contribution de TS2 (fig 5-17b) se manifeste au niveau du lobe de recul. Ce dernier effectue une faible rotation lorsque l'on examine l'apport de TS2. On peut en conclure que le mécanisme TS2 semble plus important lorsque chaque électron éjecté possède la même énergie.

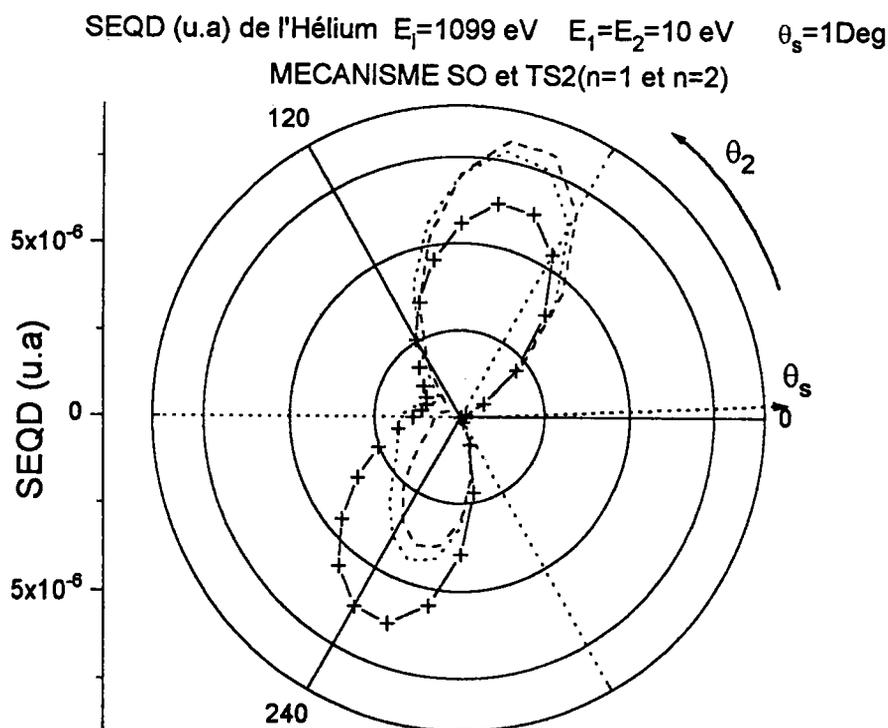


Figure 3-18 $-\cdot-\cdot-$ représente la SEQD (u.a) en coordonnées polaires de l'hélium en fonction de la direction du deuxième électron éjecté en tenant compte de la contribution SO, $-\cdot-\cdot-$ SO+TS2(n=1), $\cdots\cdots\cdots$ SO+TS2(n=1 et n=2) avec corrélation dans l'état initial.

La figure 3-18 représente l'étude de la SEQD pour des électrons éjectés de même énergie fixée à 100 eV. Ce choix correspond à celui utilisé récemment par Ford et al^[43] lors de leurs expériences (e,3-1e) sur le magnésium ($3s^2$). L'énergie de l'électron incident est fixée à 1279 eV. Un électron éjecté est détecté à $\theta_1=285^\circ$ et l'on observe un maximum pour

SEQD (u.a) de l'Hélium $E_1=1159$ eV $E_1=5$ eV $E_2=75$ eV $\theta_s=1$ Deg
 MECANISME SO et TS2(n=1 et n=2)

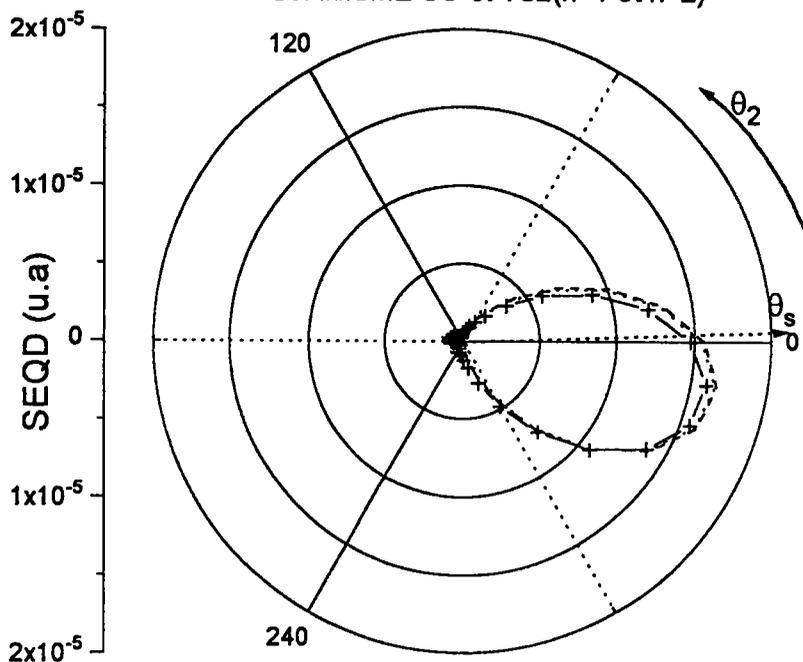


Figure 3-17a $+$ $+$ $+$ représente la SEQD (u.a) en coordonnées polaires de l'hélium en fonction de la direction du deuxième électron éjecté en tenant compte de la contribution SO, $---$ SO+TS2(n=1), \cdots SO+TS2(n=1 et n=2)

SEQD (u.a) de l'Hélium $E_1=1159$ eV $E_1=75$ eV $E_2=5$ eV $\theta_s=1$ Deg
 MECANISME SO et TS2(n=1 et n=2)

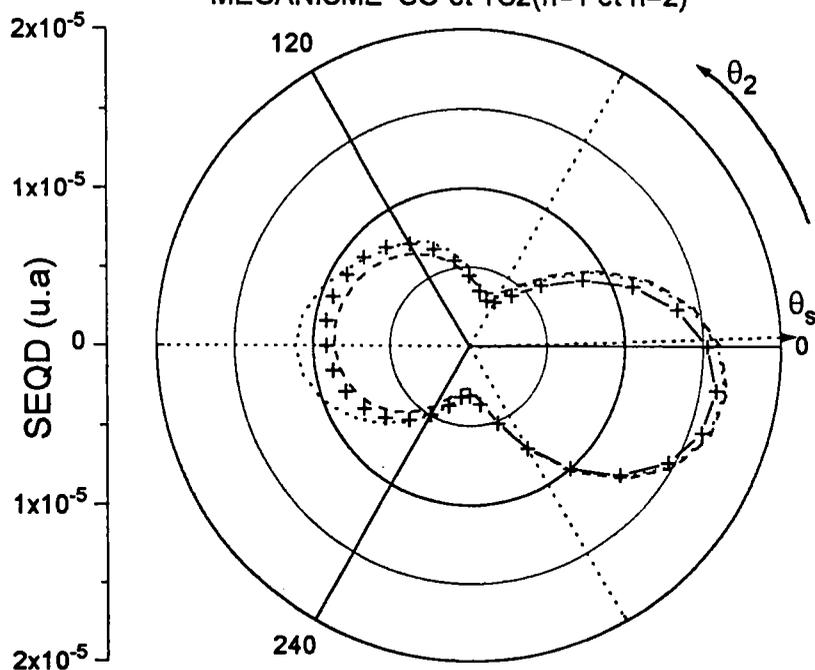


Figure 3-17b $+$ $+$ $+$ représente la SEQD (u.a) en coordonnées polaires de l'hélium en fonction de la direction du deuxième électron éjecté en tenant compte de la contribution SO, $---$ SO+TS2(n=1), \cdots SO+TS2(n=1 et n=2)

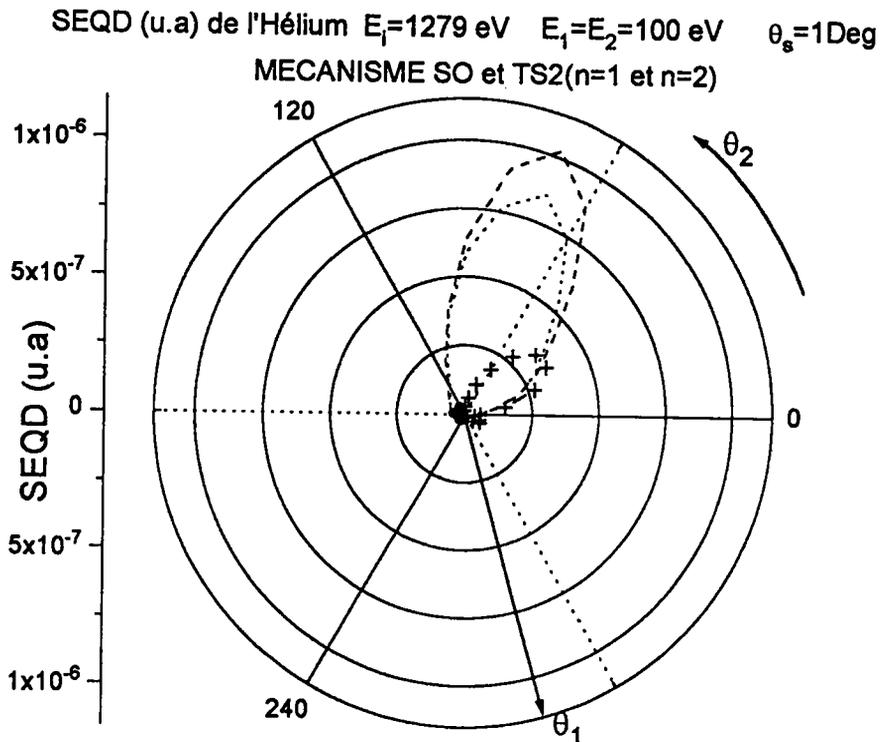


Figure 3-18 $+$ $+$ $+$ représente la SEQD (u.a) en coordonnées polaires de l'hélium en fonction de la direction du deuxième électron éjecté en tenant compte de la contribution SO, $---$ SO+TS2(n=1), \cdots SO+TS2(n=1 et n=2)

$\theta_2 = 70^\circ$. La contribution de TS2 est très importante et le maximum est proche de $\vec{k}_1 - \vec{K}$. Néanmoins il faut ici se rappeler que le mécanisme TS1 n'est pas négligeable^[6] surtout pour des énergies d'électrons éjectés de 100 eV.

III-6-Evaluation des mécanismes SO, TS1 et TS2 dans la double ionisation de l'hélium par impact électronique à haute énergie d'incidence (5KeV) et à faible énergie d'éjection

III-6-1 Introduction

Il a été montré précédemment que le mécanisme TS2 intervenait dans le processus de double ionisation même pour une énergie incidente élevée. Il nous reste maintenant à

prendre en compte la contribution du mécanisme TS1. Cette dernière est difficile à calculer car elle nécessite l'évaluation d'un terme où figurent trois ondes coulombiennes (voir annexe I).

Malgré l'utilisation intensive d'un centre de calcul performant, (CNUSC de Montpellier) il nous a été seulement possible d'obtenir trois distributions angulaires. On se propose d'étudier ces trois distributions en incluant les trois mécanismes de double ionisation calculés sans aucune approximation et sans aucun paramètre. On peut rappeler que jusqu'à présent seul Popov et al^[6] (1994) avaient étudié le mécanisme TS1 en calculant sa contribution à l'aide de nombreuses approximations .

III-6-2 Résultats et discussion

Les conditions cinématiques sont celles du groupe d'Orsay : un électron incident et diffusé rapide (5 KeV), un angle de diffusion faible ($\theta_s=1^\circ$), des électrons éjectés de faible énergie ($E_e=E_1+E_2=20$ eV) et l'un de ces électrons (éjectés) détecté suivant la direction du transfert \vec{K} .

La figure 3-19 présente les résultats donnés par le mécanisme SO seul, les mécanismes SO et TS1 puis les mécanismes SO, TS1 et TS2. On peut déjà constater^[44] que contrairement aux estimations de Mc Guire^[4] et Popov et al^[6] les mécanismes en deux étapes (TS1 et TS2) interviennent dans le processus de double ionisation à haute énergie incidente.

Le mécanisme SO semble le plus probable mais la dissymétrie de la distribution angulaire indique bien la contribution de TS2. De même la contribution TS1, si elle ne détruit pas la symétrie autour de \vec{K} , change considérablement la forme de la distribution angulaire.

La figure 3-20 montre un cas où un éjecté rapide ($E_1=15$ eV) est détecté suivant \vec{K} alors que l'autre éjecté (lent, $E_2=5$ eV) est détecté de $\theta_2=0^\circ$ à $\theta_2=360^\circ$. La contribution de TS1 semble ici importante, celle de TS2 est plus faible mais suffit à détruire la symétrie autour de \vec{K} . On peut également noter que l'amplitude liée à l'observation de l'électron lent suivant $-\vec{K}$ est ici détruite par le terme d'interférence dû à TS1. Il serait intéressant dans un proche avenir de réaliser des expériences (e,3e) pour confirmer ce résultat.

SEQD (SO+TS1+TS2) de l'hélium $E_i=5000$ eV $E_1=10$ eV $E_2=10$ eV $\theta_s=1$ Deg

MECANISME SO, TS1 et TS2

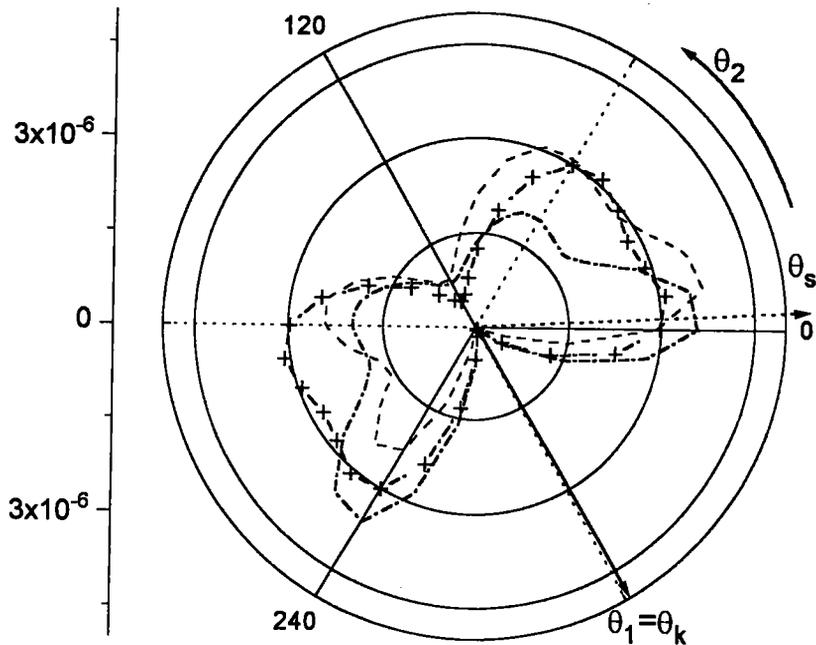


Figure 3-19 $+$ $+$ $+$ représente la SEQD (u.a) (SO) en coordonnées polaires de l'hélium en fonction de la direction du deuxième électron éjecté
 $- - -$ représente les contributions des mécanismes SO et TS1 \dots représente la contribution des mécanismes SO, TS1 et TS2.
 \uparrow représente la direction du transfert qui est la même que celle du premier éjecté.

SEQD (SO+TS1+TS2) de l'hélium $E_i=5000$ eV $E_1=15$ eV $E_2=5$ eV $\theta_s=1$ Deg

MECANISME SO, TS1 et TS2

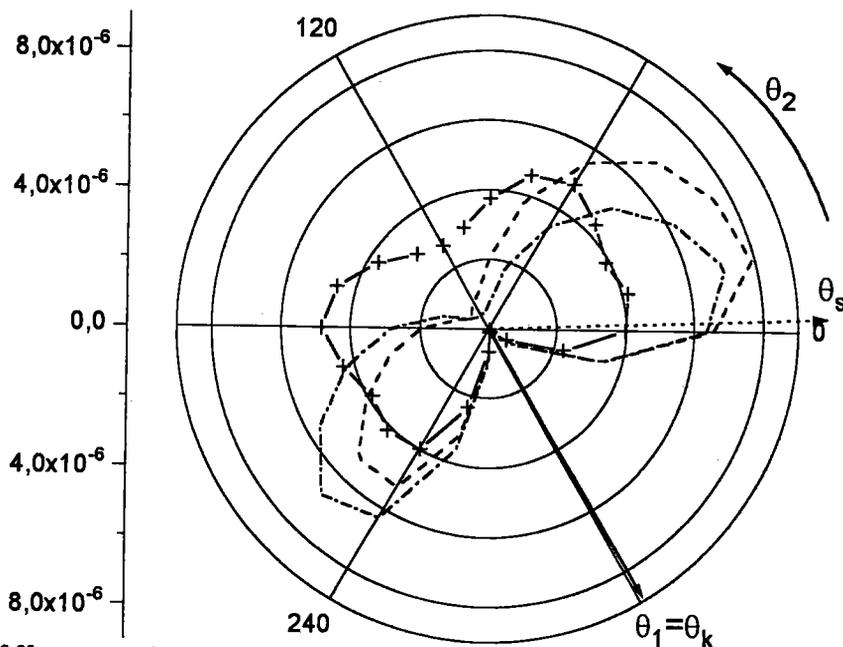


Figure 3-20 $+$ $+$ $+$ représente la SEQD (u.a) (SO) en coordonnées polaires de l'hélium en fonction de la direction du deuxième électron éjecté
 $- - -$ représente les contributions des mécanismes SO et TS1 \dots représente la contribution des mécanismes SO, TS1 et TS2.
 \uparrow représente la direction du transfert qui est la même que celle du premier éjecté.

SEQD (SO+TS1+TS2) de l'hélium $E_1=5000$ eV $E_1=5$ eV $E_2=15$ eV $\theta_g=1$ Deg
 MECANISME SO, TS1 et TS2

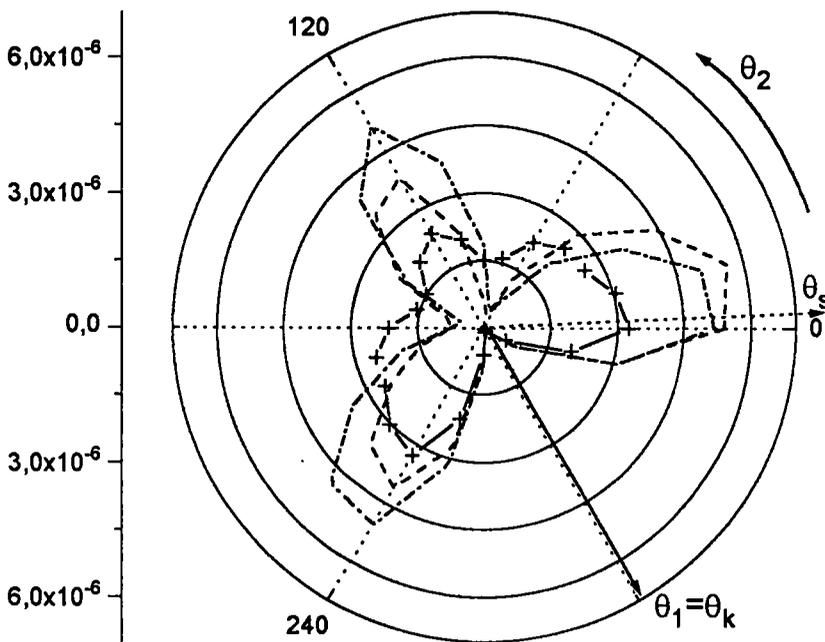


Figure 3-21 $+$ $+$ $+$ représente la SEQD (u.a) (SO) en coordonnées polaires de l'hélium en fonction de la direction du deuxième électron éjecté
 ----- représente les contributions des mécanismes SO et TS1, ----- représente la contribution des mécanismes SO, TS1 et TS2.
 ↑ représente la direction du transfert qui est la même que celle du premier éjecté.

La figure 3-21 montre un cas semblable au précédent mais cette fois l'électron lent ($E_1=5$ eV) est détecté dans la direction du transfert \vec{K} alors que l'électron rapide est détecté à θ_2 quelconque. La forme de la distribution angulaire est complètement différente des précédentes. On note en particulier une très forte amplitude liées à l'observation de l'électron rapide suivant $-\vec{K}$. Cette fois c'est un effet d'interférence constructif du TS1 qui explique ce résultat.

La contribution de TS2 est relativement faible même si la dissymétrie finale par rapport à \vec{K} est bien présente.

Conclusion générale

Ce travail a, pour la première fois, permis de montrer que le mécanisme de la double ionisation d'atomes neutres par impact d'électrons rapides n'est pas seulement celui du shake-off mais, fait intervenir deux autres mécanismes en deux étapes (TS1 et TS2).

Cet important résultat, confirmé qualitativement par les dernières expériences du groupe d'Orsay sur les gaz rares, nécessite l'application de la seconde approximation de Born laquelle permet de traduire exactement les idées développées par Carlson et Krause^[5] il y a 30 ans.

On a également montré l'importance croissante de la contribution du mécanisme TS2 lorsque l'énergie incidente diminue. Ce résultat confirme les prévisions de Mc Guire^[4]. Ce même mécanisme TS2 semble important pour des événements où les électrons sont éjectés avec une même énergie.

Il resterait à calculer les contributions des mécanismes TS1 et TS2 pour le cas de la double ionisation de gaz rares et confronter ces résultats à ceux obtenus par le groupe d'Orsay.

Il faudrait également inclure les contributions de ces mêmes mécanismes en deux étapes dans le cas de la double ionisation du magnésium ($3s^2$) pour laquelle les expériences de type (e,3-1e) ont été publiées récemment^[43].

L'importance des mécanismes en deux étapes a été très récemment confirmée lors de l'étude de l'ionisation et excitation simultanée de l'atome d'hélium par impact électronique^[45]. Ce processus double a pu être décrit en utilisant l'approximation de Born limitée au deuxième ordre comme dans ce travail. P. Marchalant et al^[45] ont ainsi pu obtenir

un bon accord avec l'expérience^[46] réalisée avec une énergie incidente de 5500 eV (l'électron éjecté ayant une énergie de 5 eV).

En fait il semble maintenant bien établi que lorsqu'un processus décrit dans le cadre de l'approximation de Born donne un terme nul pour le premier terme de ce développement (quand on utilise un modèle à électrons indépendants) le deuxième terme n'est jamais négligeable^[45].

REFERENCES

- [1] - F. W. Byron Jr. et C. J. Joachain, *Phys. Rev. A* 164, 1 (1967).
- [2] - F. W. Byron Jr. et C. J. Joachain, *Phys. Rev. Lett.* 16, 1139 (1966)
- [3] - R. T. Tweed, *J. Phys. B* 6, 270 (1973).
- [4] - J. H. Mc Guire, *Phys. Rev. Lett.* 49, 1153 (1982)
- [5] - T. A. Carlson et M. O. Krause, *Phys. Rev.* 140 A 1057 (1965)
- [7] - B. Piraux dissertation doctorale, Louvain, (1983)
- [6] - Yu. V. Popov, C. Dal Cappello, B. Joulakian et N. M. Kuzmina *J. Phys. B* 27, 1599 (1994)
- [7] - B. Piraux dissertation doctorale, Louvain, (1983)
- [8] - B. El Marji, C. Schroter, A. Duguet, A. Lahmam-Bennani, M. Lecas et L. Spielberger, *J. Phys. B*, 30, 3677 (1997)
- [9] - C. Schroter, B. El Marji, A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, M. Lecas et L. Spielberger, soumis à *J. Phys. B*
- [10] - A. Lahmam-Bennani, C. Dupré et A. Duguet, *Phys. Rev. Lett.* 63, 1582 (1989)
- [11] - A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, A. M. Grisogono et M. Lecas, *J. Phys. B* 25, 2873 (1992)
- [12] - A. Duguet and A. Lahmam-Bennani, *Z. Phys.*, D 23, 383 (1992).
- [13] - V.G. Neudatchin, Yu. F. Smirnov, A. V. Pavlitchenkov, V. G. Levin, *Phys. Lett.* 64 A, 31 (1977)
- [14] - Yu. F. Smirnov, A. L. Pavlitchenkov, V. G. Levin et V. G. Neudatchin, *J. Phys. B* 11, 20 (1978)
- [15] - H. Le Rouzo et C. Dal Cappello, *Phys. Rev. A* 43, 318 (1991)
- [16] - C. Dal Cappello et H. Le Rouzo, *Phys. Rev. A* 43, 1395 (1991)
- [17] - O. Schwartzkopf, B. Krassig, J. Elmiger et V. Schmidt, *Phys. Rev. Lett.* 70, 3008 (1993)
- [18] - M. Brauner, H. Klar et J.S. Briggs, *Z. Phys. D* 11, 257 (1989)
- [19] - M. Brauner, J. S. Briggs et H. Klar, *J. Phys. B* 22, 2265 (1989)
- [20] - B. Joulakian, C. Dal Cappello et M. Brauner, *J. Phys. B.* 25, 2863 (1992)
- [21] - C. Dal Cappello et B. Joulakian, in *Proceedings of the NATO Advanced Research Workshop on (e,2e) and Related Process*, Cambridge (1992), edited by C. T. Whelan (Kluwer, Dordrecht (1993))
- [22] - C. Dal Cappello, B. Joulakian et J. Langlois, *J. Phys.* 3, 125, (1993)
- [23] - H. Hda, C. Dal Cappello et J. Langlois, *Z. Phys. D* 29, 25 (1994)
- [24] - C. Dal Cappello, H. Hda et A. C. Roy, *Phys. Rev. A* 51, 3735 (1995)
- [25] - M. A. Kornberg et J. E. Miraglia, *Phys. Rev. A* 48, 3714 (1993)
- [26] - C. Dal Cappello, J. Langlois, M. C. Dal Cappello, B. Joulakian, A. Lahmam-Bennani, A. Duguet et R. Tweed, *Z. Phys. D* 23, 389 (1992).
- [27] - B. Joulakian et C. Dal Cappello, *Phys. Rev. A* 47, 3788 (1993)
- [28] - N. P. Yudin, A.V. Pavlitchenkov et V. G. Neudatchin, *Z. Phys. A* 320, 565 (1985)
- [29] - Yu. V. Popov, C. Dal Cappello et V. Kuzakov, *J. Phys. B* 29, 5901 (1996)
- [30] - B. El Marji, Thèse de Doctorat, Université d'Orsay (1996)
- [31] - A. Duguet, A. Lahmam-Bennani, M. Lecas et B. El Marji soumis à *Rev. Sci. Instrum.*
- [32] - H. Hda, Thèse de Doctorat, Université de Metz (1994)
- [33] - J.N. Silverman, O. Platas and F.A. Matsen, *J. Chem. Phys.* 32 : 1402 (1960)
- [34] - R. J. Tweed, *Z Phys. D*, 23, 309 (1992)
- [35] - F.W. Byron Jr., C.J. Joachain et B. Piraux, *J. Phys. B* 18 3203 (1985)
- [36] - R. R. Lewis Jr., *Phys. Rev.* 102, 537 (1956)

- [37] - F. W. Byron Jr. et C. J. Joachain , Phys. Rep 34, 233 (1977)
- [38] - A. Lahmam-Bennani , H. Ehrhardt , C. Dupre et A. Duguet , J. Phys. B.: At. Mol. Opt. Phys., 24, 3645 (1991).
- [39] - M. Rudge, Rev. Mod. Phys. 40, 564 (1968)
- [40] - R. El Mkhater, C. Dal Cappello, A. Lahmam-Bennani et Yu. V. Popov, J. Phys. B 29 : 1101 (1996)
- [41] - R. El Mkhater et C. Dal. Cappello, J.Phys.B 31 : 301-312 (1998)
- [42] - R. EL Mkhater, C. Dal. Cappello et P. Lamy, Proc. Euro Conference on coincidence studies of electron and photo impact ionization (Belfast) (London :Plenum) (1997)
- [43] - M. D. Ford, J. P. Doering, M. A. Coplan, J. W. Cooper et J. H. Moore, Phys. Rev. A51, 1402 (1995)
- [44] - C. Dal Cappello, R. El Mkhater et P. A. Hervieux , Phys. Rev. A57 R693 (1998)
- [45] - P. J. Marchalant, C. T. Whelan et H. R. J. Walters Proc. Euro Conference on coincidence studies of electron and photo impact ionization (Belfast) (London :Plenum) (1997)
- [46] - C. Dupre, A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, F. Mota-Furtado, P.F. O'Mahony et C. Dal Cappello, J. Phys. B 25,259 (1992)

ANNEXE I

Evaluation de l'élément de matrice I

Cet élément de matrice intervient dans le calcul de l'amplitude correspondant au mécanisme TS1.

$$\text{Soit } I = \left\langle \psi_f(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \left| \frac{1}{|\vec{r}_{12}|} \right| \psi_a(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle. \quad (\text{A-1})$$

En remplaçant $\psi_f(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ et $\psi_a(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ par leurs expressions (equation (2-11)) on obtient :

$$\begin{aligned} I = & \left\langle \varphi_c(\vec{k}_1 | \vec{r}_1) \varphi_c(\vec{k}_2 | \vec{r}_2) \left| \frac{1}{|\vec{r}_{12}|} \right| \varphi_c(\vec{k}_a | \vec{r}_1) \varphi(1s | \vec{r}_2) \right\rangle \\ & + \left\langle \varphi_c(\vec{k}_1 | \vec{r}_1) \varphi_c(\vec{k}_2 | \vec{r}_2) \left| \frac{1}{|\vec{r}_{12}|} \right| \varphi_c(\vec{k}_a | \vec{r}_2) \varphi(1s | \vec{r}_1) \right\rangle \end{aligned} \quad (\text{A-2})$$

On rappelle ici que:

$$\varphi(1s, \vec{r}_2) = R_{1s}(r_2) Y_{\infty}(\hat{r}_2) \quad ; \quad (\text{A-3})$$

$$R_{1s}(r_2) = 2Z_T^{3/2} e^{-Z_T r_2} \quad (Z_T = 2(\text{He}^+)) \quad (\text{A-4})$$

Dans l'expression (A-2) φ_c représente la fonction d'onde coulombienne du continuum.

L'électron lié qui va être ionisé lors de la deuxième collision est dans l'état fondamental de He^+ .

Dans une première étape on évaluera le premier terme Z de l'équation (A-2):

$$Z = \left\langle \varphi_c(\vec{k}_1, \vec{r}_1) \varphi_c(\vec{k}_2, \vec{r}_2) \left| \frac{1}{|\vec{r}_{12}|} \right| \varphi_c(\vec{k}_a, \vec{r}_1) \varphi(1s, \vec{r}_2) \right\rangle. \quad (\text{A-5})$$

On peut écrire Z sous la forme suivante:

$$Z = \int d\vec{r}_1 F_{\vec{k}_1}^{(-)*}(\vec{r}_1) V_T(\vec{r}_1) F_{\vec{k}_a}^{(+)}(\vec{r}_1) \quad (\text{A-6})$$

$$\text{avec : } V_T(\vec{r}_1) = \int d\vec{r}_2 \varphi(1s, \vec{r}_2) \left(\frac{1}{|\vec{r}_{12}|} \right) F_{\vec{k}_e}^{(-)*}(\vec{r}_2) \quad (\text{A-7})$$

(V_T sera appelé le potentiel de transition)

En utilisant les développements multipolaires de l'interaction coulombienne $\frac{1}{|\vec{r}_{12}|}$ et de la fonction coulombienne du continuum $F_{\vec{k}_e}^{(-)*}(\vec{r})$:

$$\frac{1}{|\vec{r}_2 - \vec{r}_1|} - \frac{1}{r_2} = \sum_{\lambda m_\lambda} \frac{4\pi}{2\lambda + 1} \left(\frac{r_<^\lambda}{r_>^{\lambda+1}} - \frac{\delta_{\lambda 0}}{r_2} \right) Y_{\lambda m_\lambda}(\hat{r}_1) Y_{\lambda m_\lambda}^*(\hat{r}_2) \quad \text{avec } \begin{cases} r_> = \sup(r_1, r_2) \\ r_< = \inf(r_1, r_2) \end{cases} \quad (\text{A-8})$$

$$F_{\vec{k}_e}^{(-)*}(\vec{r}) = \sum_{l, m_l} (4\pi) (-i)^{l_2} e^{i\sigma_{l_2}(k_2)} \frac{F_{l_2}(k_2 r)}{k_2 r} Y_{l_2 m_{l_2}}(\hat{k}_e) Y_{l_2 m_{l_2}}^*(\hat{r}_e) \quad (\text{A-9})$$

avec:

$$F_{l_2}(kr) = \frac{|\Gamma(l+1+i\eta)|}{2(2l+1)!} e^{-\frac{1}{2}\eta\pi} (2kr)^{l+1} \times e^{-ikr} M(l+1-i\eta, 2l+2, 2ikr).$$

L'expression de V_T se réécrit:

$$V_T(\vec{r}_1) = \frac{Z_T^{3/2}}{k_2} \frac{16\pi^{3/2}}{(2\pi)^{3/2}} \sum_{l_2 m_2} (-i)^{l_2} e^{i\sigma_{l_2}(k_2)} \frac{1}{\tilde{\ell}_2} \gamma_{l_2}(r_1) Y_{l_2 m_2}^*(\hat{r}_1) Y_{l_2 m_2}(\hat{k}_2) \quad (\text{A-10})$$

$$\text{avec : } \gamma_{l_2}(r_1) = \int_0^\infty r e^{-2r} F_{l_2}(k_2 r) \left(\frac{r_<^{l_2}}{r_>^{l_2+1}} - \frac{\delta_{l_2 0}}{r_1} \right) dr \quad (\text{A-11})$$

$$\text{et } \sigma_1(k) = \arg \Gamma(l+1+i\eta) \quad \text{avec } \eta = \frac{-Z_T}{k}.$$

En remplaçant dans (A-6) l'expression (A-10) de V_T et en utilisant les développements multipolaires des fonctions $F_{\vec{k}_1}^{(-)*}$ et $F_{\vec{k}_a}^{(+)}(\vec{r}_1)$ on obtient:

$$Z = \frac{Z_T^{3/2} 16\pi^{3/2} (4\pi)^2}{k_2 k_1 k_a (2\pi)^{9/2}} \sum_{\substack{l_1 l_2 l_a \\ m_1 m_2 m_a}} i^{-l_2 - l_1 + l_a} e^{i(\sigma_{l_2}(k_2) + \sigma_{l_1}(k_1) + \sigma_{l_a}(k_a))} \frac{1}{\tilde{\ell}_2}$$

$$\left\{ \int d\hat{r}_1 Y_{\ell_2 m_2}^*(\hat{r}_1) Y_{\ell_1 m_1}^*(\hat{r}_1) Y_{\ell_a m_a}(\hat{r}_1) \right\} R_{\ell_a \ell_1}^{\ell_2} Y_{\ell_2 m_2}(\hat{k}_2) Y_{\ell_1 m_1}(\hat{k}_1) Y_{\ell_a m_a}(\hat{k}_a) \quad (\text{A-12})$$

On rappelle ici que :

$$\int d\hat{r}_1 Y_{\ell_2 m_2}^* Y_{\ell_1 m_1}^* Y_{\ell_a m_a} = (-1)^{m_2+m_1} \left(\frac{\ell_1 \ell_2 \ell_3}{4\pi} \right)^{1/2} \begin{pmatrix} \ell_2 & \ell_1 & \ell_a \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \ell_2 & \ell_1 & \ell_a \\ -m_2 & -m_1 & m_a \end{pmatrix} \quad (\text{A-13})$$

et on définit : $R_{\ell_a \ell_1}^{\ell_2} \equiv \int_0^\infty F_{\ell_a}(k_a r) \gamma_{\ell_2}(r) F_{\ell_1}(k_1 r) dr$. (A-14)

Le calcul du terme (A-12) est fait numériquement sauf pour le cas où $\ell_2=1$. Ce dernier a été traité séparément, pour des raisons qui seront exposées dans l'annexe II.

ANNEXE II

On montre que La partie radiale du potentiel de transition (A-11) se comporte asymptotiquement comme $\frac{\alpha}{r^{l+1}}$ pour $l \geq 1$, et pour $l=0$ $\gamma_0(r)$ décroît exponentiellement vers zéro aux grandes distances.

Pour $l > 1$ et $l=0$ l'évaluation de (A-14) peut se faire numériquement. Cependant pour $l=1$, comme $\gamma_1(r)$ est lentement décroissant et que les fonctions coulombiennes oscillent violemment, on est obligé d'utiliser une procédure particulière pour calculer les éléments de matrices (A-14).

Un autre point important est que comme nous travaillons en dehors de la couche d'énergie on peut avoir la situation énergétique suivante: $k_a \approx k_1$; $k_e \neq 0$. Dans ce cas, les éléments de matrice coulombiens $R_{l_a, l}^1$ décroissent très lentement vers zéro quand l_a augmente ($R_{l_a, l}^1 \approx \frac{1}{l_a}$). Par conséquent, il est impossible de faire converger la somme (sur l_a) qui apparait dans l'expression (A-12).

Nous avons donc été amené à développer une procédure qui permet d'éviter la sommation sur l_a pour obtenir Z.

On se propose ici de calculer le terme de l'équation (A-6) pour le cas où $l_2=1$.

$$\text{On note } Z = \int d\vec{r}_1 F_{\vec{k}_1}^{(-)*} V_T(\vec{r}_1) F_{\vec{k}_a}^{(+)}(\vec{r}_1) \quad (\text{A-15})$$

avec

$$V_T(\vec{r}_1) = \underbrace{\frac{Z_T^{3/2}}{k_2} \frac{16\pi^{3/2}}{(2\pi)^{3/2}}}_{A} \sum_{n_2} (-i)^{l_2} e^{i\sigma_1(k_2)} \frac{1}{\ell_2} \gamma_1(r_1) Y_{1m_2}^*(\hat{r}_1) Y_{1m_2}(\hat{k}_2). \quad (\text{A-17})$$

On remarque que la partie radiale du potentiel de transition peut s'écrire sous la forme:

$$\gamma_1(r_1) = \tilde{\gamma}_1(r_1) + \frac{\alpha}{r_1^2}$$

où $\tilde{\gamma}_1(r_1)$ est une fonction de r_1 qui décroît exponentiellement vers zéro aux grandes distances.

Ceci nous permet de réécrire V_T et Z comme

$$V_T = \tilde{V}_T + V_T^d$$

et

$$Z = \tilde{Z} + \alpha Z^d.$$

On évaluera numériquement \tilde{Z} comme décrit dans l'annexe I.

On peut écrire le terme Z^d sous le forme:

$$Z^d = \frac{A}{3} (-i) e^{i\alpha_1(k_2)} \sum_{m_2=-1}^1 \int d\vec{r}_1 F_{\vec{k}_1}^{(-)*}(\vec{r}_1) \frac{Y_{1m_2}^*(\hat{r}_1)}{r_1^2} F_{\vec{k}_a}^{(+)}(\vec{r}_1) Y_{1m_2}(\hat{k}_2). \quad (\text{A-18})$$

Soit \vec{r}_1 le rayon vecteur de composantes (x_{11}, x_{12}, x_{13}) , les harmoniques sphériques sont reliées aux composantes de ce vecteur par les relations suivantes:

$$Y_{10}(\hat{r}_1) = \frac{\sqrt{3}}{\sqrt{4\pi}} \frac{x_{13}}{r_1} \quad Y_{1+1}(\hat{r}_1) = -\sqrt{\frac{3}{8\pi}} \left(\frac{x_{11} + ix_{12}}{r_1} \right) \quad Y_{1-1}(\hat{r}_1) = -Y_{1+1}^*(\hat{r}_1) = \sqrt{\frac{3}{8\pi}} \left(\frac{x_{11} - ix_{12}}{r_1} \right).$$

En remplaçant les expressions des harmoniques sphériques ci-dessus dans (A-18), on remarque que l'évaluation de Z^d se résume au calcul d'éléments de matrice de la forme :

$$Z_i^d = \int d\vec{r}_1 F_{\vec{k}_1}^{(-)*}(\vec{r}_1) \frac{x_{1i}}{r_1^3} F_{\vec{k}_a}^{(+)} \equiv \langle \chi_1 | \frac{x_i}{r^3} | \chi_a \rangle \quad (\text{A-19})$$

χ_i étant la fonction d'onde coulombienne du continuum décrivant l'électron i .

D'après le théorème d'Ehrenfest on obtient :

$$Z_i^d = \frac{(E_1 - E_a)^2}{Z_T} \langle \chi_1 | x_i | \chi_a \rangle \quad (\text{A-20})$$

où Z_T est la charge vue par l'électron a et E_1 est l'énergie de l'électron 1.

Le calcul du terme donné par l'équation (A-20) se résume à l'évaluation du terme J tel que :

$$J = \int d\vec{r} F_{\vec{k}_1}^{(-)*}(\vec{r}) \vec{r} F_{\vec{k}_a}^+(\vec{r}) \quad (\text{A-21})$$

Pour évaluer J on transforme cette intégrale en une intégrale de type Bremsstrahlung:

$$J_i = \lim_{\substack{\varepsilon \rightarrow 0 \\ k_i \rightarrow 0}} \left(\frac{1}{i} \frac{\partial}{\partial k_i} \right) \left(\frac{-\partial}{\partial \varepsilon} \right) \int d\vec{r} F_{k_1}^{(-)*}(\vec{r}) e^{i\vec{k}\vec{r}} F_{k_a}^+(\vec{r}) \frac{e^{-\sigma}}{r} = \frac{Z_1^d \times Z_T}{(E_1 - E_a)^2} \quad (\text{A-22})$$

et d'après Nordsieck

$$J_i = \lim_{\substack{\varepsilon \rightarrow 0 \\ k_i \rightarrow 0}} \left(\frac{1}{i} \frac{\partial}{\partial k_i} \right) \left(\frac{-\partial}{\partial \varepsilon} \right) \left[\frac{2\pi}{\alpha} e^{-\pi\alpha_a} \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{i\alpha_a} \left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{-i\alpha_1} F \left(1 - i\alpha_a, i\alpha_1, 1, \frac{\alpha\delta - \beta\gamma}{\alpha(\gamma + \delta)} \right) \right] \quad (\text{A-23})$$

$$\text{On note que : } \begin{cases} \alpha_1 = \frac{Z_1}{k_1} & \text{et} & \alpha_a = \frac{Z_a}{k_a} \\ \alpha = \frac{1}{2}(q^2 + \varepsilon^2); & \beta = \vec{k}_1 \cdot \vec{q} - i\varepsilon \vec{k}_1; \\ \gamma = \vec{k} \cdot \vec{q} + i\varepsilon k_a - \alpha; & \delta = \vec{k}_1 \cdot \vec{k}_a + k_1 \cdot k_a - \beta \end{cases}$$

la 1ère dérivation nous donne

$$J_i = \left(\frac{-1}{i} \frac{\partial}{\partial k_i} \right) \left[F \left(1 - i\alpha_a, i\alpha_1, 1, \frac{\alpha\delta - \beta\gamma}{\alpha(\gamma + \delta)} \right) (\sigma_1 + \sigma_2 + \sigma_3) + \sigma_4 F \left(2 - i\alpha_a, 1 + i\alpha_1, 2, \frac{\alpha\delta - \beta\gamma}{\alpha(\gamma + \delta)} \right) \right] \\ (1 - i\alpha_a)(i\alpha_1) \quad (\text{A-24})$$

Cette première dérivation a été vérifié numériquement en utilisant la définition de la dérivée:

$$\sigma_1 = \frac{-\varepsilon}{\alpha^2} \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{i\alpha_1} \left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{-i\alpha_2} \quad (\text{A-25})$$

$$\sigma_2 = \frac{1}{\alpha} (i\alpha_1) \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{(i\alpha_1-1)} \left(\frac{\gamma\varepsilon - \alpha(i\vec{k}_a - \varepsilon)}{\gamma^2} \right) \left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{-i\alpha_2} \quad (\text{A-26})$$

$$\sigma_3 = \frac{1}{\alpha} \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{ia_1} (-ia_2) \left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{(-ia_2-1)} \left(\frac{\gamma(ik_a - \varepsilon + ik_1) - (\gamma + \delta)(ik_a - \varepsilon)}{\gamma^2} \right) \quad (A-27)$$

$$\sigma_4 = \left(\frac{1}{\alpha} \right) \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{ia_1} \left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{-ia_2} \left[\frac{\alpha(\gamma + \delta)(\delta\varepsilon + \alpha ik_1 + \gamma ik_1 - \beta(ik_a - \varepsilon)) - (\alpha\delta - \beta\gamma)(\alpha(ik_a - \varepsilon + ik_1) + (\gamma + \delta)\varepsilon)(1 - ia_1)(ia_2)}{\alpha^2(\gamma + \delta)^2} \right] \quad (A-28)$$

La 2ème dérivation nous donne après vérification numérique :

$$J_i = \left(\frac{-2\pi}{i} e^{-\pi a_1} \right) \left[(\sigma_{1,j} + \sigma_{2,j} + \sigma_{3,j}) F \left(1 - ia_1, ia_2, 1, \frac{\alpha\delta - \beta\gamma}{\alpha(\gamma + \delta)} \right) \right. \\ \left. + (\sigma_1 + \sigma_2 + \sigma_3)(\arg, j(1 - ia_1)(ia_2)) F \left(2 - ia_1, ia_2 + 1, 2, \frac{\alpha\delta - \beta\gamma}{\alpha(\gamma + \delta)} \right) \right. \\ \left. + \sigma_{4,j} F \left(2 - ia_1, ia_2 + 1, 2, \frac{\alpha\delta - \beta\gamma}{\alpha(\gamma + \delta)} \right) + \sigma_4 \frac{(2 - ia_1)(ia_2 + 1)}{2} F \left(3 - ia_1, ia_2 + 2, 3, \frac{\alpha\gamma - \beta\gamma}{\alpha(\gamma + \delta)} \right) \right] \quad (A-29)$$

$$\sigma_{1,j} = \frac{2\varepsilon}{\alpha^3} q_j \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{ia_1} \left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{-ia_2} + \left(\frac{-\varepsilon}{\alpha^2} \right) ia_1 \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{ia_1-1} \left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{-ia_2} \left(\frac{\gamma q_j - \alpha(k_{aj} - q_j)}{\gamma^2} \right) \quad (A-30)$$

$$\sigma_{2,j} = (ia_1) \left(\frac{-q_j}{\alpha^2} \right) \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{(ia_1-1)} \left(\frac{\gamma\varepsilon - \alpha(ik_a - \varepsilon)}{\gamma^2} \right) \left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{-ia_2} +$$

$$\left(\frac{ia_1}{\alpha} \right) (ia_1 - 1) \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{ia_1-2} \left(\frac{\gamma q_j - \alpha(k_{aj} - q_j)}{\gamma^2} \right) \left(\frac{\gamma\varepsilon - \alpha(ik_a - \varepsilon)}{\gamma^2} \right) \left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{-ia_2} +$$

$$\left(\frac{ia_1}{\alpha} \right) \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{(ia_1-1)} \left(\gamma^2(\varepsilon(k_{aj} - q_j) - q_j(ik_a - \varepsilon)) - (\gamma\varepsilon - \alpha(ik_a - \varepsilon))2\gamma(k_{aj} - q_j) \right)$$

$$\left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{-ia_2} + \left(\frac{ia_1}{\alpha} \right) \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{ia_1-1} \left(\frac{\gamma\varepsilon - \alpha(ik_a - \varepsilon)}{\gamma^2} \right) (-ia_2) \left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{-ia_2-1}$$

(A-31)

$$\left(\frac{\gamma(k_{aj} - q_j - k_{ij}) - (\gamma + \delta)(k_{aj} - q_j)}{\gamma^2} \right)$$

$$\sigma_{3,j} = \left(\frac{-q_j}{\alpha^2} \right) \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{ia_1} (-ia_2) \left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{(-ia_2-1)} \left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{(-ia_2-1)}$$

$$\left(\frac{\gamma(ik_a - \varepsilon + ik_1) - (\gamma + \delta)(ik_a - \varepsilon)}{\gamma^2} \right) + \left(\frac{1}{\alpha} \right) (ia_1) \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{(ia_1-1)}$$

$$\left(\frac{\gamma q_j - \alpha(k_{aj} - q_j)}{\gamma^2} \right) (-ia_2) \left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{-ia_2-1} \left(\frac{\gamma(ik_a - \varepsilon + ik_1) - (\gamma + \delta)(ik_a - \varepsilon)}{\gamma^2} \right)$$

$$+ \frac{1}{\alpha} \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{ia_1} (-ia_2) (-ia_2 - 1) \left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{(-ia_2-2)} \left(\frac{(\gamma(k_{aj} - q_j) - \gamma k_{ij}) - (\lambda + \delta)(k_{aj} - q_j)}{\gamma^2} \right)$$

$$\left(\frac{\gamma(ik_a - \varepsilon + ik_1) - (\gamma + \delta)(ik_a - \varepsilon)}{\gamma^2} \right) + \left(\frac{1}{\alpha} \right) ia_1 \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{(-ia_1-1)}$$

$$\left(\frac{\gamma q_j - \alpha(k_{aj} - q_j)}{\gamma^2} \right) (-ia_2) \left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{-ia_2-1} \left(\frac{\gamma(ik_a - \varepsilon + ik_1) - (\gamma + \delta)(ik_a - \varepsilon)}{\gamma^2} \right)$$

$$+ \left(\frac{1}{\alpha} \right) \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{ia_1} (-ia_2) \left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{(-ia_2-1)} \left(\gamma^2 \{ ((ik_a - \eta + ik_1)(k_{aj} - q_j) - (ik_a - \varepsilon)(k_{aj} - q_j - k_{ij})) \} \right)$$

$$- \left(\frac{\gamma(ik_a - \varepsilon + ik_1) - (\gamma + \delta)(ik_a - \varepsilon)}{\gamma^4} \right) 2\gamma(k_{aj} - q_j)$$

(A-32)

$$\begin{aligned}
\sigma_{4,j} &= \left(\frac{-q_j}{\alpha_2} \right) \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{ia_1} \left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{-ia_2} \\
&\left(\frac{\alpha(\gamma + \delta)(\gamma\epsilon + \alpha ik_1 + \gamma ik_1 - \beta(ik_a - \epsilon) - (\alpha\delta - \beta\gamma)(\alpha(ik_a - \epsilon + ik_1) + (\gamma + \delta)\epsilon))}{\alpha^2(\gamma + \delta)^2} \right) (1 - ia_1)(ia_2) \\
&\left(\frac{1}{\alpha} \right) (ia_1) \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{ia_1-1} \left(\frac{\gamma q_j - \alpha(k_{aj} - q_j)}{\gamma^2} \right) \left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{-ia_2} \\
&\left(\frac{\alpha(\gamma + \delta)(\gamma\epsilon + i\alpha k_1 + \gamma ik_1 - \beta(ik_a - \epsilon)) - (\alpha\delta - \beta\gamma)(\alpha(ik_a - \epsilon + ik_1) + (\gamma + \delta)\epsilon)}{\alpha^2(\gamma + \delta)^2} \right) (1 - ia_1)(ia_2) \\
&+ \frac{1}{\alpha} \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{ia_1} (-ia_2) \left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{(-ia_2-1)} \left(\frac{\gamma(ka_j - q_j - k_{1j}) - (\gamma + \delta)(ka_j - q_j)}{\gamma^2} \right) \\
&\left(\frac{\alpha(\gamma + \delta)(\delta\epsilon + \alpha ik_1 + \gamma ik_1 - \beta(ik_a - \epsilon)) - (\alpha\delta - \beta\gamma)(ik_a - \epsilon + ik_1) + \epsilon(\gamma + \delta)}{\alpha^2(\gamma + \delta)^2} \right) \\
&(1 - ia_1)(ia_2) + \left(\frac{1}{\alpha} \right) \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{ia_1} \left(\frac{\gamma + \delta}{\gamma} \right)^{-ia_2} \\
&\left(\frac{\alpha^2(\gamma + \delta)^2 [A + B - C - D] - [E - F] 2\alpha(\gamma + \delta) [(\gamma + \delta)q_j + \alpha(ka_j - q_j - k_{1j})]}{\alpha^4(\gamma + \delta)^4} \right)
\end{aligned} \tag{A-33}$$

$$A = (\gamma\epsilon + \alpha ik_1 + \gamma ik_1 - \beta(ik_a - \epsilon))(\alpha_j(\gamma + \delta) + \alpha(k_{aj} - q_j - k_{1j}))$$

$$B = \alpha(\gamma + \delta)(-\epsilon k_{1j} + ik_1 q_j + ik_1(ka_j - q_j) - (ik_a - \epsilon)k_{1j})$$

$$C = (\alpha(ik_a - \epsilon + ik_1) + (\gamma + \delta)\epsilon)(\delta q_j + \alpha(-k_{1j}) - \beta(k_{aj} - q_j) - \gamma k_{1j})$$

$$D = \alpha(\gamma + \delta)(\delta\epsilon + \alpha ik_1 + \gamma ik_1 - \beta(ik_a - \epsilon))$$

$$E = (\alpha\delta - \beta\gamma)(\alpha(ik_a - \epsilon + ik_1) + (\gamma + \delta)\epsilon)$$

$$\arg_j = \frac{\alpha(\gamma + \delta) [\delta q_j - \alpha k_{1j} - \gamma k_{1j} - \beta(k_{aj} - q_j)] - [(\alpha\delta - \beta\gamma)(\alpha(k_{aj} - q_j - k_{1j}) + (\alpha + \delta)q_j)]}{\alpha^2(\gamma + \delta)^2} \tag{A-34}$$

ANNEXE III

Soit à calculer :

$$I_{12} = \left\langle \psi_f(\bar{r}_1, \bar{r}_2) \left| \frac{1}{r_{12}} \right| \psi_i(\bar{r}_1, \bar{r}_2) \right\rangle \quad (\text{A-35})$$

après simplification on obtient :

$$\begin{aligned} I_{12} = & \frac{1}{\sqrt{2(1+\lambda^2)\pi^2}} \int \frac{d\bar{\lambda}}{\lambda^2} \left[N \left\langle \varphi_c(k_1) \left| e^{i\bar{N}\bar{r}} \right| \varphi_{1s} \right\rangle \left\langle \varphi_c(k_2) \left| e^{-i\bar{\lambda}\bar{r}} \right| \varphi_{1s} \right\rangle \right. \\ & + \left\langle \varphi_c(k_1) \left| e^{i\bar{\lambda}\bar{r}} \right| \varphi_{1s'} \right\rangle \left\langle \varphi_c(k_2) \left| e^{-i\bar{\lambda}\bar{r}} \right| \varphi_{1s} \right\rangle + \\ & \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \left(\left\langle \varphi_c(k_1) \left| e^{i\lambda r} \right| \varphi_{2p_0} \right\rangle \left\langle \varphi_c(k_2) \left| e^{-i\lambda r} \right| \varphi_{2p_0} \right\rangle \right. \\ & - \left\langle \varphi_c(k_1) \left| e^{i\lambda r} \right| \varphi_{2p_1} \right\rangle \left\langle \varphi_c(k_2) \left| e^{-i\lambda r} \right| \varphi_{2p_{-1}} \right\rangle \\ & \left. - \left\langle \varphi_c(k_1) \left| e^{i\lambda r} \right| \varphi_{2p_{-1}} \right\rangle \left\langle \varphi_c(k_2) \left| e^{-i\lambda r} \right| \varphi_{2p_1} \right\rangle \right) \end{aligned} \quad (\text{A-36})$$

Cette intégrale a été effectuée numériquement avec :

$$\left\langle \varphi_c(k_1) \left| e^{i\lambda r} \right| \varphi_{1s} \right\rangle = \frac{-2\varepsilon^{3/2} e^{\pi\alpha/2} \mu(1-i\alpha) 2\sqrt{\pi}}{2^{3/2} \pi^{3/2}} [f'g + fg'] \quad (\text{A-37})$$

$$f = A^{\alpha-1}, \quad g = (A+B); \quad A = \varepsilon^2 + (\bar{k} - \bar{k}_e)^2;$$

$$A+B = \varepsilon^2 + k^2 - ke^2 - 2i\epsilon ke; \quad \alpha = Z/ke$$

$$f' = 2\varepsilon(i\alpha - 1)A^{\alpha-2}; \quad g' = (-i\alpha)2(\varepsilon - ike)(A+B)$$

$$h = (k_x - k_a \omega \vartheta_a) [A + B(1 - i\alpha)] + k_a \omega \vartheta_a (i\alpha A)$$

$$h' = (k_x - k_a \omega \vartheta_a) (2\varepsilon 2p_o - 2ik_a(1 - i\alpha)) + k_a \omega \vartheta_a i\alpha 2\varepsilon p_o$$

Les expressions $\langle \varphi_c(k_1) | e^{i\lambda r} | \varphi_{2p_{\pm 1}} \rangle$ sont déduites de $\langle \varphi_c(k_1) | e^{i\lambda r} | \varphi_{2p_o} \rangle$.

Soit à calculer :

$$I_o = \frac{1}{\sqrt{2}} \left\langle \varphi_c(\bar{k}_o, \bar{r}_1) \varphi(1s^*, \bar{r}_2) + \varphi_c(\bar{k}_o, \bar{r}_2) \varphi(1s^*, \bar{r}_1) \middle| e^{i\bar{k}_1} + e^{i\bar{k}_2} \middle| \frac{1}{\sqrt{1+\lambda^2}} (N(\varphi(1s, \bar{r}_1) \varphi(1s', \bar{r}_2) + \varphi(1s, \bar{r}_2) \varphi(1s', \bar{r}_1)) \right. \\ \left. + \frac{\lambda}{\sqrt{3}} (\varphi(2p_o, \bar{r}_1) \varphi(2p_o, \bar{r}_2) - \varphi(2p_1, \bar{r}_1) \varphi(2p_{-1}, \bar{r}_2) - \varphi(2p_1, \bar{r}_2) \varphi(2p_{-1}, \bar{r}_1)) \right\rangle$$

$$I_o = \frac{2}{\sqrt{2}\sqrt{1+\lambda^2}} \langle \varphi_c(\bar{k}_a, \bar{r}_1) \varphi(1s, \bar{r}_2) + \varphi_c(\bar{k}_a, \bar{r}_2) \varphi(1s, \bar{r}_1) \middle| e^{i\bar{k}_1} + e^{i\bar{k}_2} \rangle$$

$$\left\langle N(\varphi(1s, \bar{r}_1) \varphi(1s', \bar{r}_2) + \varphi(1s, \bar{r}_2) \varphi(1s', \bar{r}_1)) + \frac{\lambda}{\sqrt{3}} (\varphi(2p_o, \bar{r}_1) \varphi(2p_o, \bar{r}_2) - \varphi(2p_1, \bar{r}_1) \varphi(2p_{-1}, \bar{r}_2)) \right. \\ \left. - \varphi(2p_1, \bar{r}_2) \varphi(2p_{-1}, \bar{r}_1) \right\rangle$$

$$I_o = \sqrt{\frac{2}{1+\lambda^2}} \left(N \left\{ \langle \varphi_c(k_a) | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi(1s) \rangle \langle \varphi(1s) | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi(1s') \rangle + \langle \varphi_c(k_a) | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi(1s') \rangle \langle \varphi(1s) | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi(1s) \rangle \right\} \right.$$

$$+ \langle \varphi(1s) | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi(1s) \rangle \langle \varphi_c(k_a) | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi(1s') \rangle + \langle \varphi(1s) | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi(1s') \rangle \langle \varphi_c(k_a) | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi(1s) \rangle$$

$$+ \frac{N}{\sqrt{3}} \left\{ \langle \varphi(1s) | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi_{2p_o} \rangle \langle \varphi_c(k_a) | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi_{2p_o} \rangle - \langle \varphi(1s) | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi_{2p_1} \rangle \langle \varphi_c(k_a) | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi_{2p_{-1}} \rangle \right\} \\ \left. - \langle \varphi(1s) | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi_{2p_{-1}} \rangle \langle \varphi_c(k_a) | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi_{2p_1} \rangle \right\}$$

On rappelle que :

$$\langle \varphi_c(k_a) | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi(1s) \rangle = \frac{\varepsilon^{5/2} 2^{3/2}}{\pi ((\bar{k}_a - \bar{K})^2 + \varepsilon^2)^2}$$

$$\langle \varphi(1s) | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi(1s') \rangle = \frac{8(\varepsilon\varepsilon')^{3/2} (\varepsilon + \varepsilon')}{((\varepsilon + \varepsilon')^2 + K^2)^2}$$

$$\langle \varphi(1s) | e^{i\bar{k}\bar{r}} | \varphi_{2p_o} \rangle = \frac{32\varepsilon^{3/2} \varepsilon_{2p}^{5/2} (\varepsilon + \varepsilon_{2p})}{(K^2 + (\varepsilon + \varepsilon_{2p})^2)^2}$$

$$\langle \varphi_{1s} | e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} | \varphi_{2p_{-1}} \rangle = \frac{32}{\sqrt{2}} \frac{\varepsilon^{3/2} \varepsilon_{2p}^{5/2} (\varepsilon + \varepsilon_{2p})}{(K^2 + (\varepsilon + \varepsilon_{2p})^2)^3}$$

$$J_0 = \langle \psi_i(1,2) / V_0 / \psi_i(1,2) \rangle$$

$$J_0 = \frac{1}{(1+\lambda^2)} \left\langle N(\varphi(1s, r_1) \varphi(1s', \bar{r}_2) + \varphi(1s, \bar{r}_2) \varphi(1s', r_1)) + \frac{\lambda}{\sqrt{3}} (\varphi(2p_0, \bar{r}_1) \varphi(2p_0, \bar{r}_2) - \varphi(2p_0, \bar{r}_1) \varphi(2p_{-1}, \bar{r}_2) - \varphi(2p_1, \bar{r}_2) \varphi(2p_{-1}, \bar{r}_1)) \right| e^{i\mathbf{k}\bar{r}_1} + e^{i\mathbf{k}\bar{r}_2} |$$

$$N(\varphi(1s, \bar{r}_1) \varphi(1s', \bar{r}_2) + \varphi(1s, \bar{r}_2) \varphi(1s', \bar{r}_1)) + \frac{\lambda}{\sqrt{3}} (\varphi(2p_0, \bar{r}_1) \varphi(2p_0, \bar{r}_2) - \varphi(2p_1, \bar{r}_1) \varphi(2p_{-1}, \bar{r}_2) - \varphi(2p_1, \bar{r}_2) \varphi(2p_{-1}, \bar{r}_1)) \rangle$$

$$J_0 = \frac{2}{(1+\lambda^2)} \left[N^2 \left(\left\langle \varphi(1s) | e^{i\mathbf{k}\bar{r}} | \varphi(1s) \right\rangle + \left\langle \varphi(1s') | e^{i\mathbf{k}\bar{r}} | \varphi(1s') \right\rangle + 2 \left\langle \varphi(1s) | e^{i\mathbf{k}\bar{r}} | \varphi(1s') \right\rangle \right) \right]$$

$$\left(\left\langle \varphi(1s) / \varphi(1s') \right\rangle + \lambda^2 \left\langle \varphi(2p_0) | e^{i\mathbf{k}\bar{r}} | \varphi(2p_0) \right\rangle \right)$$

On rappelle que :

$$\langle \varphi(2p_0) | e^{i\mathbf{k}\bar{r}} | \varphi(2p_0) \rangle = \frac{4}{3} (\varepsilon_1 \varepsilon_2)^{5/2} \left[\frac{24 (\varepsilon_1 + \varepsilon_2) ((\varepsilon_1 + \varepsilon_2)^2 - K^2)}{(K^2 + (\varepsilon_1 + \varepsilon_2)^2)^4} \right]$$

ANNEXE IV

Dans cette annexe on se propose de confronter notre méthode d'intégration numérique utilisée dans le calcul de TS1 et TS2 , au calcul d'intégrale type donné par B. Piraux^[7] , où le résultat analytique est connu (Lewis^[36]).

a-Méthode d'intégration utilisée

le calcul de la section efficace quintuplement différentielle dans le cas du second ordre fait intervenir des termes de type J tel que : (cités pas B. Piraux^[7]).

$$J = \lim_{\varepsilon \rightarrow 0^+} \int d\vec{q} \frac{1}{q^2 - p^2 - i\varepsilon} f(q, \theta_q, \varphi_q) \quad (\text{A-38})$$

En utilisant la relation suivante :

$$\frac{1}{q^2 - p^2 - i\varepsilon} = P \frac{1}{q^2 - p^2} + i\pi\delta(q^2 - p^2) \quad (\text{A-39})$$

Et en remplaçant dans l'équation (A-38) J devient

$$J = P \int d\vec{q} \frac{1}{q^2 - p^2} f(q, \theta_q, \varphi_q) + \frac{i\pi}{2} p \int d\vec{q} f(p, \theta_q, \varphi_q)$$

b-Test de la méthode d'intégration

On se propose ici de confronter la méthode numérique indiquée ci-dessus pour intégrer le terme I dont la solution analytique est connue.

$$I = \frac{1}{\pi^2} \int \frac{d\vec{q}}{(q^2 - p^2 - i\varepsilon) k_i^2 k_f^2} \quad \varepsilon \rightarrow 0$$

avec $\vec{k}_i = \vec{q} - \vec{k}_0$, $\vec{k}_f = \vec{q} - \vec{k}_a$

et $p^2 = k_0^2 - 2\bar{w}$, la quantité \bar{w} est la différence d'énergie entre l'état initial de la cible et un état excité « moyen » de cette même cible.

Utilisant les résultats de l'article de Lewis^[35] on obtient :

$$I = \frac{i}{ks} \ln \left(\frac{pk + s}{pk - s} \right)$$

où $s = [(pk)^2 + 4\bar{w}(\bar{w} - w)]^{\frac{1}{2}}$

et $\bar{w} - w$ représente la différence d'énergie entre l'état final et l'état excité « moyen ».

Si $(\bar{w} - w) > 0$ et si la cible est dans l'état fondamental alors $\bar{w} > 0$ et $s > pk$ ^[36].

D'où :

$$\text{Réal}(I) = \frac{\Pi}{ks} \quad \text{et} \quad \text{Im} I = \frac{1}{ks} \ln \left[\frac{(pk + s)^2}{4\bar{w}(\bar{w} - w)} \right]$$

Si $(\bar{w} - w) < 0$ et $\bar{w} > 0$ (l'état excité « moyen » se trouve entre l'état initial et final de la cible) alors $s < pk$

$$\text{Réal}(I) = 0 \quad \text{et} \quad \text{Im} I = \frac{1}{ks} \ln \left[\frac{(pk + s)^2}{4\bar{w}(-\bar{w} + w)} \right]$$

Dans nos conditions cinématiques on est plus proche du cas où $(\bar{w} - w) < 0$ et $\bar{w} > 0$.

Dans le calcul numérique plusieurs paramètres interviennent comme le nombre de points de chacune des variables d'intégration ainsi que le ε cité dans l'équation (a-38).

Conditions cinématiques: (calcul sur l'hélium)

$$E_i = 5426.6 \text{ eV} \quad E_f = 5373.6 \text{ eV} \quad E_1 = E_2 = 10 \text{ eV}$$

$$\theta_1 = \theta_k \quad \text{et} \quad \theta_2 = 75^\circ \quad \theta_s = 1^\circ$$

Résultat analytique

(0.0;1.0514347988)

test en ε

Dans ce premier cas on étudie l'influence de ε sur l'intégrale de terme comme ceux de l'équation (A-38).

valeur de ε	valeur numérique
E-07	(-5.57E-02;1.04370)
E-05	(-5.57E-02;1.0437)
E-04	(-5.59E-02;1.0437)
E-03	(-3.15E-02;1.0437)
E-02	(-3.15E-02;1.0437)
E-01	(4.90E-03;0.692)

On constate que dans ces conditions cinématiques l'influence de ε peut être contrôlée, et une valeur de E-02 est suffisante pour donner des valeurs satisfaisantes.

test en q

Dans cette partie on s'intéresse à la variation de notre intégrale en fonction de la composante radiale de \bar{q} .

On note que le nombre de points d'intégration indiqués dans le tableau ci-dessous est utilisé du 0 au pôle et du pôle à l'infini.

nombre de point pour q	valeur numérique
50points	(0.106;1.04370)
60points	(-3.15E-02;1.0437)
80points	(2.750E-02;0.437)
90points	(8.03E-03;1.0437)
100points	(-3.76E-02;1.0437)
150points	(1.60E-03;1.0437)
180points	(-7.5E-03;1.0437)
190points	(-7.5E-03,1.0437)

On remarque que l'intégrale converge convenablement à partir de 60 points d'intégration.

test en φ

Dans ce troisième test on fait varier le nombre de points d'intégration de l'angle φ .

teste en φ	valeur numérique
10points	(-3.11E-02;1.043)
15points	(-3.73E-02;1.043)
20points	(-3.16E-02;1.0437)
30points	(3.15E-02;1.0437)
40points	(3.511E-02;1.0437)
50points	(-3.151E-02;1.043)
60points	(-3.1513E-02;1.043)
100points	(-3.151E-02;1.0437)
180points	(-3.1513E-02;1.0437)

On constate que la valeur de l'intégrale est satisfaisante, et on obtient des bonnes valeurs à partir de 30 points d'intégration.

test en θ

On s'intéresse ici à l'influence du nombre de points d'intégration par rapport à θ

teste en θ	valeur numérique
10points	(-2.043E-02;0.2270)
20points	(-0.1720;1.20)
30points	(0.16979;1.052)
35points	(-0.343;1.2211)
40points	(-4.62E-02;1.1579)
50points	(0.1812;1.02)
60points	(-0.1211;1.066)
70points	(0.1278;1.0352)
100points	(-0.5638;1.0542)
150points	(1.39E-02;1.0512)
190points	(-2.17E-02;1.05142)
200points	(-4.53E-02;1.05144)
220points	(-3.1075;1.051436)
250points	(-0.108;1.0514348)
280points	(2.2022E-02;1.0514347)
285points	(-7.80E-02;1.05143479)
295points	(-4.76E-02;1.05143479)
350points	(-1.25E-02;1.05143479)
450points	(-5.21E-02;1.05143479)

On conclut que la valeur de l'intégrale est sensible à la variation du nombre de points d'intégration de θ , à partir de 100 points d'intégration on obtient des valeurs satisfaisantes.

Calcul de l'incertitude lors de l'évaluation numérique de I

D'après les résultats B. Piraux citées dans sa thèse, l'évaluation de l'erreur lors du calcul numérique de I consiste à évaluer des termes de types:

$$\Delta I = I_0 \left(\frac{i\pi}{2} + \frac{\varepsilon'}{2q} \right) + \varepsilon' I_1 + O(\varepsilon'^3).$$

avec

$$I_n = \int_{-1}^{+1} d(\cos\theta_q) \left\{ \frac{\partial^n}{\partial q^n} F(q, \cos\theta_q) \right\}_{q=p} \quad n \neq 0.$$

et

$$F(q, \cos\theta_q) = q \left[\int_0^{2\pi} d\varphi_q f(q, \theta_q, \varphi_q) \right] \quad \text{et} \quad I_0 = \int_{-1}^{+1} d(\cos\theta_q) F(p, \cos\theta_q).$$

c- Remarque

On a évalué aussi l'incertitude ΔI sur le calcul de l'intégrale I, et on a remarqué que sa valeur décroît rapidement et tend vers zéro quand l'intégrale converge.

D'autres tests ont été abordés, ils ont concerné le calcul exact de la contribution TS2 (équation 3-12) et de la contribution TS1 (équation 3-15), on a remarqué dans ces cas que la convergence est plus rapide que dans le cas du test cité ci-dessus. Ceci nous a permis de vérifier que la statistique déduite des tests de calcul numérique de I est largement suffisante pour évaluer numériquement les contributions de TS2 et TS1.

Résumé

Français

De récentes expériences de double ionisation ont montré l'insuffisance du modèle basé sur la description du mécanisme d'éjection en une étape. Nous avons conçu un modèle tenant compte des mécanismes en deux étapes où deux électrons de la cible sont éjectés par chocs successifs de l'électron incident et par chocs internes. Le calcul entrepris dans le cadre de ce modèle nécessite l'utilisation de la seconde approximation de Born et des fonctions d'ondes corrélées pour décrire les états initial et final de la cible.

Nous avons montré que les processus à deux étapes ne sont pas négligeables même à haute énergie incidente.

Anglais

Recent high-energy experiments indicate that the one-step mechanism is insufficient. We have performed a calculation that takes into account all the two-step mechanisms of double ionization. This calculation uses the second Born approximation and correlated wave functions for the initial bound state. We show that the two-step processes are not negligible even for an high incident energy.