



HAL
open science

Étude théorique et expérimentale de la double ionisation par impact électronique incluant l'effet Auger: Interférences d'échanges et de processus

Fabrice Catoire

► **To cite this version:**

Fabrice Catoire. Étude théorique et expérimentale de la double ionisation par impact électronique incluant l'effet Auger: Interférences d'échanges et de processus. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2006. Français. NNT: . tel-00107969

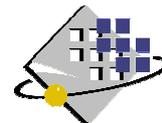
HAL Id: tel-00107969

<https://theses.hal.science/tel-00107969>

Submitted on 19 Oct 2006

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



N° d'ordre : 8399

**UNIVERSITE PARIS-SUD XI
CENTRE SCIENTIFIQUE D'ORSAY**

THESE

Présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCES DE L'UNIVERSITE PARIS-SUD XI

Spécialité : Physique

Par

Fabrice CATOIRE

Sujet :

**Étude théorique et expérimentale de la double
ionisation par impact électronique incluant l'effet
Auger: Interférences d'échanges et de processus**

Soutenue le 27 Septembre 2006

devant la commission d'examen composée de :

Pr. Christian BOULET, Université Paris-Sud XI	Président
Pr. Bernard PIRAUX, Université Catholique de Louvain	Rapporteur
Dr. Francis PENENT, Université Paris VI	Rapporteur
Pr. Claude DAL CAPPELLO, Université de Metz	Examineur
Dr. Alain HUETZ, Université Paris-Sud XI	Examineur
Pr. Azzedine LAHMAM-BENNANI, Université Paris-Sud XI	Directeur de thèse

Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé dans le laboratoire des Collisions Atomiques et Moléculaires. Je remercie tout d'abord son directeur Victor Sidis pour m'avoir accueilli au sein de son laboratoire.

J'exprime ma gratitude à Messieurs Christian Soulet, Bernard Diraux, Francis Denent, Claude Dal Cappello, Alain Huetz pour avoir accepté la tâche qui a été la leur en faisant partie du jury de thèse. Je ne saurais taire la grande contribution des rapporteurs Bernard Diraux et Francis Denent qui ont su apporter une grande clarté à ce manuscrit grâce à leurs lectures attentives et à leurs remarques judicieuses.

Ce travail de thèse n'aurait pas été ce qu'il est sans la contribution de Alain Duguet pour la partie expérimentale et de Claude Dal Cappello pour la partie théorique. Je tiens à leur présenter mon profond respect pour leur contribution, leur gentillesse et la confiance qu'ils ont su me témoigner.

Je tiens à remercier Danielle Doweck et Caroline El Kharrat avec qui j'ai passé la dernière année de thèse en même temps qu'un ATER dans leur groupe.

Je suis reconnaissant envers Angel Abadia et Michel Lecas sans qui le dispositif expérimental ne serait pas ce qu'il est ainsi que pour leur professionnalisme et leur gentillesse.

Je tiens également à remercier Azzedine Lahmam Bennani qui a su diriger de la meilleure manière qui soit, ce travail de thèse. Il a su trouver le juste équilibre entre la liberté dans mon activité de recherche et le nécessaire encadrement, tout ceci venant de ses très grandes qualités humaines. Qu'il trouve dans ce travail toute l'expression de mon amitié. Encore un grand merci pour ces quelques années passées ensemble au laboratoire et en des lieux plus exotiques pendant les conférences.

Je tiens à remercier Magdalena Casagrande (dit Magda) pour son inestimable et constante bonne humeur. Elle a su faire preuve d'écoute aux moments où j'en avais probablement le plus besoin. Je tiens à lui témoigner mon amitié (ainsi qu'à Thomas et à Rami) pour avoir été une confidente attentive.

Je ne peux évidemment pas oublier mon grand ami Syas Ismail, avec qui j'ai passé ces années de thèse en confrontant nos idées sur la science et le monde en général. Je tiens à le remercier pour les soirées passées au ciné, à Ugarit et ses danseuses, ... bref pour son inestimable et incomparable amitié.

Je profite de l'occasion pour remercier aussi tout le groupe « agrégats » et en particulier Fran Ricard pour les séances café et son dévouement à l'enseignement que j'essaierai de prendre en exemple.

Je voudrais aussi remercier les jeunes du labo. pour les joyeux moments passés et surtout pour les soirées en conférences...

Je tiens à remercier les membres du laboratoire qui font que ce laboratoire est aussi convivial pour ne citer que les incomparables discussions au moment de la pause café post prandiale ...

Je ne saurais oublier les membres du Palais de la Découverte. Je pense en particulier à Kamil Fadel, Alexandra De Naenel, Capucine Casati, Poline Aunis, Sigfrido Zayas, Marielle Verges, Sacha et Alain De Botton, ainsi que toutes les personnes que je ne peux pas citer par souci de concision mais qui se reconnaîtront. Ce merveilleux édifice est un lieu qui m'aura énormément appris pendant ces quatre années où j'ai officié. J'estime que cet endroit unique saura toujours attiser un intérêt certain pour les sciences et combler l'incommensurable soif de connaissances de certains visiteurs.

Enfin je souhaite remercier toute ma famille et en particulier mes parents pour la patience qu'ils ont manifesté pendant toutes ces années ainsi que pour leur gentillesse. Je tiens à les remercier plus spécialement pour la liberté qu'ils ont su me donner et qui a été nécessaire à mon épanouissement.

Merci beaucoup.

*Il n'y a guère que dans l'adversité
que l'on se révèle tel que l'on naît.*

TABLE DES MATIÈRES

CHAPITRE I : THEORIE DE L'IONISATION SIMPLE ET DOUBLE.....	11
I. Introduction	12
II. Théorie des collisions : Equation de Lippmann-Schwinger et approximation de Born	13
III. Description de l'état final et initial : Notion de corrélation.....	20
1. Etat initial	20
2. Etat final	26
IV. Mécanismes d'ionisation double	30
1. Shake Off (SO).....	30
2. Two Step 1 (TS1)	32
3. Two Step 2 (TS2)	33
4. L'effet Auger.....	34
V. Mécanismes d'échange.....	48
1. Cas de He	48
2. Cas de Ar.....	52
VI. Orthogonalité entre état final et initial.....	59
1. Modèle OCW et introduction de la charge effective.....	59
2. Cas de deux ondes coulombiennes pour (e,2e)	61
CHAPITRE II :DISPOSITIF EXPERIMENTAL	65
I. Introduction	66
II. Description du dispositif expérimental.....	70
1. Enceinte à vide	70
2. Canon à électrons	70
3. Piège à électrons.....	72
4. Source de gaz	73
III. Analyseur à double tore	74
1. Cas du tore simple	74
2. Détecteur sensible en position (DSP).....	77
IV. Conception et réalisation de l'acquisition par interruption	80
1. Réalisation du circuit; test du protocole de communication	80
2. Acquisition du type Position	84
3. Acquisition du type (e,2e)	89
4. Acquisition du type (e,3e)	93
5. Acquisition du type (e,(3-1)e)	99
V. Mise au point du nouveau tore pour les électrons diffusés.....	101

1-	Description de l'analyseur.....	101
2-	Les effets de bord	103
3-	Alimentation des électrodes et du détecteur.....	105
4-	Calibrage en énergie.....	109
5-	Calibrage angulaire	111
VI.	Caractérisation des analyseurs B et C	121
1.	Résolutions en énergie	121
2.	Spectre Auger.....	122
3.	Distributions angulaires.....	123
CHAPITRE III :	Résultats et discussions	129
I.	Introduction	130
II.	Etude théorique de la corrélation via la section efficace différentielle.....	131
1.	Densité mono-électronique	132
2.	Densité bi-électronique	135
3.	Etude théorique de l'influence de la corrélation sur la double ionisation.....	139
III.	Etude de la simple ionisation de He et Ar	145
1-	Mesures (e,2e) dans le cas de l'hélium	145
2-	Mesures (e,2e) dans le cas de l'argon	148
IV.	Etude de la double ionisation de l'argon en couche 3p.....	156
1-	Mesures (e,(3-1)e) sur la cible d'argon	157
2-	Mesures (e,3e) sur la cible d'Argon.....	176
CONCLUSION GÉNÉRALE.....	187	
ANNEXE I :Compléments aux calculs théoriques.....	191	
V.	3j de Wigner	192
VI.	Calcul de $I_{n_1}^{n_2}(\beta_1, \beta_2; k)$	194
VII.	Calcul de $I_{n_1}^{n_2}(\beta_1, \beta_2; k)$	195
VIII.	Autour des hypergéométriques	196
IX.	Etats propres de Ar ; échanges pour SO et Auger	201
ANNEXE II :	Rappels de Statistiques et applications aux cas (e,2e) et (e,3e)....	205
ANNEXE III :	Complément sur le calcul de la densité bi-électronique.....	213

LEXIQUE

ABBK	: Approximated BBK
API	: Application Programming Interface
BBK	: Brauner Briggs et Klar
BS	: Beam Stop
CCI	: Critère de Corrélation interne
Cle	: Clémenti
CPU	: Central Processing Unit
ESSEQ	: Essai Séquence
GAL	: Generic Array Logic
HF	: Hartree Fock
IRQ	: Interruption request
OCW	: Orthogonal Coulomb Wave
PCI	: au sens de la physique Post Collisional Interaction ; ou pour l'électronique Peripheral Component Interconnect
pcr	: pourcentage de corrélation
Ph	: Pin Hole
RD	: Read
RTSS	: Real-Time Systems Symposium
SEQD	: Section efficace quintuplement différentielle
SO	: Shake Off
SilPlat(ss')	: Fonction d'onde du type Silverman et Platas où sont introduits des corrélation du type ss'
SilPlat(sp)	: Fonction d'onde du type Silverman et Platas où sont introduits des corrélation du type sp
tg	: terme générique
TS1	: Two Step 1
TS2	: Two Step 2

PRÉSENTATION GÉNÉRALE

L'étude des mécanismes de simple et de double ionisation est d'un grand intérêt à plusieurs titres. Du point de vue appliqué, l'ionisation par impact électronique est un domaine de la physique des collisions qui a contribué largement au développement des nouvelles technologies. En particulier, la physique des plasmas, appliquée à la fabrication des composants de la micro-électronique, est un domaine où la physique de l'ionisation simple ou multiple trouve tout son champ d'application. Du point de vue fondamental, ce domaine de la physique est également un excellent outil pour l'étude de plusieurs corps en interaction coulombienne.

Les mécanismes de simple ionisation par impact électronique permettent une analyse fine de la structure des atomes et des molécules. Plus spécifiquement, dans certaines conditions, appelées critère de Bethe, la section efficace est reliée proportionnellement à la densité mono-électronique. Ces conditions ont été très étudiées depuis les années 70, donnant naissance à une technique largement répandue appelée Electron Momentum Spectroscopy (EMS). Les conditions cinématiques permettant d'établir un lien entre section efficace différentielle et densité mono-électronique nécessitent des énergies assez élevées pour l'électron incident ainsi que pour l'électron diffusé.

L'ionisation simple par impact électronique est caractérisée en voie d'entrée par l'électron incident noté e_0 et de vecteur impulsion \vec{k}_0 pour l'état initial. La voie de sortie est quant à elle décrite par les deux électrons e_a , e_b de vecteurs impulsions \vec{k}_a et \vec{k}_b respectivement. Ce sont ces notations que nous utiliserons dans la suite de ce manuscrit à l'exception du chapitre théorique et ce pour des raisons historiques. L'électron diffusé est alors l'électron ayant le plus d'énergie en voie de sortie. Les mécanismes de double ionisation dont les premières expériences ont été réalisées dans les années 90, sont un terrain privilégié pour étudier le triple continuum. Le troisième électron impliqué dans la collision double ionisante est noté e_c de vecteur impulsion \vec{k}_c . A mon arrivée dans le groupe, le dispositif expérimental permettant cette analyse était constitué d'un double analyseur toroïdal effectuant une analyse multi-angulaire des électrons e_b et e_c , et d'un analyseur cylindrique détectant à angle fixe l'électron e_a .

Ce travail de thèse s'intéresse à plusieurs aspects.

Dans un premier temps, nous avons eu pour objectif de développer un nouvel analyseur toroïdal pour l'électron diffusé, capable d'effectuer une analyse multi-angulaire. Cette propriété nous a permis de réaliser en première mondiale une mesure de la section efficace six fois différentielle d'un processus de double ionisation incluant un électron Auger. L'introduction de ce nouvel analyseur a nécessité une modification en profondeur des programmes d'acquisition et de traitement des données. C'est la raison pour laquelle nous

avons poursuivi ces modifications en introduisant une nouvelle logique d'acquisition. La description de l'ensemble du dispositif fait l'objet du chapitre II.

Le chapitre III a pour ambition, entre autres, de montrer le bon fonctionnement de cet analyseur grâce à des études de simple ionisation ($e,2e$) de l'hélium et de l'argon. Plus précisément, nous avons abordé une cinématique particulière où les énergies de l'électron diffusé et de l'électron éjecté sont de l'ordre de la centaine d'eV et dont la valeur du transfert de quantité de mouvement est proche de sa valeur minimale imposée par l'inélasticité du processus.

Dans le chapitre III, nous avons aussi étudié des mécanismes de double ionisation, d'abord sans le nouvel analyseur (mesure $(e,(3-1)e)$ où seulement deux électrons sur trois sont détectés en coïncidence), puis avec celui-ci (mesure $(e,3e)$). Les mécanismes Auger $L_{2,3}M_{2,3}M_{2,3}$ de l'argon ont ainsi été étudiés. Ces mécanismes entrent en compétition avec les mécanismes de double ionisation directe en couche externe et donnent naissance au même état final. Dans le cas des mesures $(e,(3-1)e)$, nous avons étudié le processus Auger pour différentes énergies incidentes où les deux électrons détectés ont la même énergie. Enfin, la mesure $(e,3e)$ que nous avons effectuée dans la cadre de cette thèse vient compléter une des mesures $(e,(3-1)e)$.

Un dernier point abordé dans ce chapitre est l'étude de la corrélation dans le cas de la double ionisation. En effet, le mécanisme de simple ionisation étant relié à la densité mono-électronique, celle-ci est sensible à la *corrélation*. A cet effet, nous avons étudié théoriquement l'influence de la corrélation sur la section efficace. Nous avons en particulier proposé et discuté la mise en avant d'un critère comparable à celui de Bethe pour la double ionisation.

L'ensemble des données expérimentales ont été commenté et analysé à la lumière des calculs de simple et double ionisation. Le chapitre I est consacré à la présentation des modèles que nous avons utilisés et, pour certains, développés. Plus spécifiquement, nous nous sommes intéressés à l'étude du processus Auger où nous avons décrit l'ensemble des électrons dans la voie de sortie par des ondes coulombiennes. Le fait que pour certaines conditions expérimentales les électrons de la voie de sortie aient la même énergie, nous a incité à développer une nouvelle écriture de la section efficace en prenant en compte les effets dits d'échange. Enfin, l'existence « simultanée » des processus Auger et de double ionisation directe a nécessité la prise en compte des interférences entre ces processus dans les modèles décrits dans le chapitre I.

CHAPITRE I :

THEORIE DE L'IONISATION SIMPLE ET DOUBLE

Sommaire

I. Introduction	12
II. Théorie des collisions : Equation de Lippmann-Schwinger et approximation de Born	13
III. Description de l'état final et initial : Notion de corrélation.....	20
1. Etat initial	20
a. Fonction d'onde de l'atome d'hélium	21
b. Fonction d'onde de l'atome d'argon	25
2. Etat final	26
a. Interaction coulombienne dans le continuum.....	27
b. Le cas de trois particules en interaction	28
c. Cas de la double ionisation.....	30
IV. Mécanismes d'ionisation double	30
1. Shake Off (SO).....	30
2. Two Step 1 (TS1)	32
3. Two Step 2 (TS2)	33
4. L'effet Auger.....	34
a. Notations spectroscopiques	34
b. Transition Auger	36
c. Cas onde plane ; règles de sélection.....	37
d. Cas coulombien	44
e. Processus Auger ; interférence de processus.....	45
V. Mécanismes d'échange.....	48
1. Cas de He	48
2. Cas de Ar	52
VI. Orthogonalité entre état final et initial.....	59
1. Modèle OCW et introduction de la charge effective.....	59
2. Cas de deux ondes coulombiennes pour (e,2e)	61

I. Introduction

Les premiers calculs de sections efficaces ont été effectués dans les années 30 [Bet1930]. Ces calculs concernent principalement des mécanismes d'ionisation par impact d'électrons basés sur l'approximation de Born [Bor1926]. Plus tard, dans les années 60, ces modèles ont été améliorés en décrivant plus précisément les états finaux et initiaux [RS1964 ; Pet1977]. La grande difficulté de ces descriptions est la prise en compte des comportements asymptotiques dans un potentiel coulombien où trois particules sont en interaction. Dans le cas de la simple ionisation, des modèles tels que celui de BBK (du nom des auteurs Brauner Brigs et Klar) [BBK1989; DHR1995] ont permis de décrire de manière plus précise ce continuum.

Depuis les années 80, les performances des calculs sur ordinateur ainsi que des algorithmes introduits dans les méthodes numériques ont largement contribué à l'amélioration des modèles. Des mécanismes plus complexes, d'ordre 2 par exemple [PDJ1993 ; Twe1992], ont pu ainsi être introduits pour rendre compte de certains résultats expérimentaux [LDD2003].

La théorie des collisions a été « révolutionnée », et de nouveaux modèles ont pu être élaborés : « Distorted Wave Born Approximation (DWBA) » [ZWW1992], « Convergent Close Coupling (CCC) » [BS1992] où le calcul des déphasages est effectué pour un nombre suffisamment grand d'ondes partielles afin d'assurer une convergence satisfaisante du calcul.

Plus récemment, de nouvelles approches du calcul du double continuum ont été réalisées par des méthodes de propagation de paquet d'ondes sous l'effet du potentiel considéré. Cette méthode dite « Exterior Complex Scaling (ECS) » [MBR2004], a l'avantage d'obtenir une fonction d'onde très « réaliste » du double continuum. Il est alors possible de décrire un processus de simple ionisation en montrant complètement l'aspect dynamique de cette ionisation [RBI1999].

Dans ce chapitre, nous nous proposons de présenter dans un premier temps l'essentiel du formalisme adopté ici en ce qui concerne la théorie des collisions et l'approximation de Born. Ensuite, nous développerons les fonctions d'ondes que nous avons utilisées pour décrire l'état initial et final pour les différentes cibles et mécanismes (simple ou double ionisation). Enfin, nous nous concentrerons sur la partie essentielle de ce travail de thèse, à savoir l'étude du processus Auger dans le cas de l'Argon pour des conditions cinématiques où au moins deux, sinon les trois, électrons de l'état final ont la même énergie. Pour ce faire, nous expliciterons le modèle que nous avons développé décrivant, dans un premier temps, les processus Auger et « Shake-Off » qui sont deux mécanismes qui entrent en compétition dans nos conditions, puis dans un second temps, les mécanismes d'échange entre les trois électrons de l'état.

II. Théorie des collisions : Equation de Lippmann-Schwinger et approximation de Born

La description des processus d'ionisation peut se faire à l'aide de différents modèles plus ou moins sophistiqués. Ce paragraphe se bornera à une description théorique de ces processus par une approche perturbative. Cependant il est intéressant de noter que, depuis quelques décennies, les efforts des théoriciens s'orientent vers des théories de plus en plus complexes telle que la propagation de paquets d'ondes afin de résoudre le problème de l'ionisation [MBR2004]. L'avantage du formalisme perturbatif est qu'il donne une image des processus de simple ou de double ionisation. Ce sont ces images, plus ou moins complexes, qui seront qualifiées de mécanismes.

Considérons un état initial, décrit par le projectile et la cible ainsi que l'hamiltonien correspondant à ce système. De même considérons un état final, décrit par les différentes particules en interaction issues de la collision, le traitement perturbatif consiste à considérer la transition de l'état initial vers l'état final sous l'influence d'un potentiel V permettant cette transition.

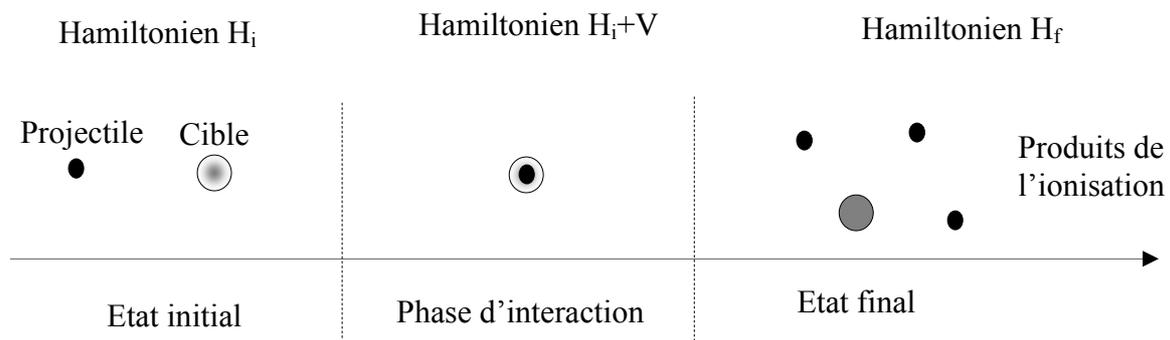


Figure I.1 : Schéma de principe décrivant la méthode des perturbations

La méthode des perturbations permet de calculer la probabilité de transition entre l'état initial et final, tout en reliant cette probabilité à la grandeur physique mesurable qui est la section efficace du processus. Pour ce faire, considérons le vecteur propre correspondant à l'état initial noté $|i\rangle$ solution de l'équation de Schrödinger : $H_i|i\rangle = E_i|i\rangle$. E_i est l'énergie du système dans l'état initial. Introduisons l'opérateur d'évolution intermédiaire par la relation suivante :

$$U_I(t_f, t_i) = U_0(0, t_f)U(t_f, t_i)U_0(t_i, 0)$$

Dans cette relation, le terme de gauche est l'opérateur d'évolution de l'hamiltonien H_i . Le second opérateur d'évolution est, quant à lui, associé à l'hamiltonien H de la phase d'interaction. Enfin, le dernier terme est l'opérateur d'évolution lié à H_f . En réalité H_f est

identique à H_i , seuls les états et les énergies différencient l'état initial de l'état final. Un sens physique sera donné à cet opérateur intermédiaire une fois que toutes les données du problème seront introduites. Notons ensuite le ket $|\Psi_i(t)\rangle = U_I(0,t)|i\rangle$, pour des temps t négatifs. Plus spécifiquement, introduisons le ket

$$|\Psi_i^+\rangle = \lim_{t \rightarrow -\infty} |\Psi_i(t)\rangle = \lim_{t \rightarrow -\infty} U_I(0,t)|i\rangle = U_I(0,-\infty)|i\rangle.$$

A ce stade, il est utile de rappeler quelques propriétés fondamentales des opérateurs d'évolution. Notons U un opérateur d'évolution quelconque. Nous avons alors :

$$\text{- La composition de l'opérateur d'évolution : } U(t_1, t')U(t', t_2) = U(t_1, t_2) \quad [\text{FI.1}]$$

$$\text{- L'identité : } U(0,0) = \mathbf{1} \quad [\text{FI.2}]$$

Enfin, citons un théorème mathématique qui aura son utilité par la suite. Soit une fonction f qui admet une limite en $+\infty$ et en $-\infty$. Définissons la valeur en $\pm\infty$ au sens de Gell-Mann et Goldberger [GG1953]:

$$\begin{aligned} f(+\infty) &= \lim_{\eta \rightarrow 0^+} \eta \int_0^{\infty} f(t) e^{-\eta t} dt \\ f(-\infty) &= \lim_{\eta \rightarrow 0^+} \eta \int_{-\infty}^0 f(t) e^{\eta t} dt \end{aligned} \quad [\text{FI.3}]$$

De plus, si f a un comportement du type $f_0 + f_1 \sin(\omega t + \varphi)$, alors les formules FI.3 donnent comme résultat f_0 . Cette valeur est celle définie par la limite au sens de Gell-Mann et Goldberger. En utilisant ce théorème, $|\Psi_i^+\rangle$ s'écrit (en utilisant FI.1 et 2) :

$$|\Psi_i^+\rangle = \lim_{\eta \rightarrow 0^+} \eta \int_{-\infty}^0 U_I(0,t) e^{\eta t} |i\rangle dt = \lim_{\eta \rightarrow 0^+} \eta \int_{-\infty}^0 e^{-i(E_i - H)t} e^{\eta t} |i\rangle dt = \lim_{\eta \rightarrow 0^+} \eta \frac{i}{E_i - H + i\eta} |i\rangle$$

Cette expression s'écrit sous une autre forme plus simple d'utilisation :

$$|\Psi_i^+\rangle = \lim_{\eta \rightarrow 0^+} \frac{i\eta}{E_i - H + i\eta} |i\rangle = \lim_{\eta \rightarrow 0^+} \frac{i\eta + E_i - H + (H - E_i)}{E_i - H + i\eta} |i\rangle = \lim_{\eta \rightarrow 0^+} \left(1 + \frac{(H - E_i)}{E_i - H + i\eta}\right) |i\rangle$$

Or $H - H_i$ est justement le potentiel V d'interaction d'où :

$$|\Psi_i^+\rangle = \lim_{\eta \rightarrow 0^+} \left(1 + \frac{V}{E_i - H + i\eta}\right) |i\rangle = (1 + G_H^+(E_i)V) |i\rangle \quad [\text{FI.4}]$$

Dans cette expression l'opérateur résolvante a été introduit comme suit :

$$G_H^+(E_i) = \frac{1}{E_i - H + i\eta}$$

Dans cette dernière formule, la limite a été rendue implicite.

Le vecteur $|\Psi_i^+\rangle$ ainsi créé est une solution stationnaire de l'opérateur H. Cet opérateur intervient dans l'équation de Schrödinger dépendante du temps :

$$i \frac{\partial}{\partial t} |\psi(t)\rangle = H |\psi(t)\rangle. \text{ Ce vecteur propre particulier a été généré par l'état initial en lui}$$

appliquant l'opérateur d'évolution. Un autre vecteur propre de H peut ainsi être déterminé à partir du vecteur propre correspondant à l'état final. Montrons dans un premier temps que $|\Psi_i^+\rangle$ est effectivement vecteur propre de H. Pour cela, H est appliqué au ket $|\Psi_i^+\rangle$ en utilisant la formule FI.4 :

$$H |\Psi_i^+\rangle = H(1 + G_H^+(E_i)V)|i\rangle = H|i\rangle + HG_H^+(E_i)V|i\rangle = E_i|i\rangle + V|i\rangle + HG_H^+(E_i)V|i\rangle$$

soit
$$H |\Psi_i^+\rangle = E_i|i\rangle + (1 + HG_H^+(E_i))V|i\rangle$$

or
$$1 + HG_H^+(E_i) = (E_i - H + i\eta + H)G_H^+(E_i) = (E_i + i\eta)G_H^+(E_i)$$

d'où :

$$H |\Psi_i^+\rangle = E_i|i\rangle + (E_i + i\eta)G_H^+(E_i)V|i\rangle = E_i(|i\rangle + G_H^+(E_i)V|i\rangle) + i\eta G_H^+(E_i)V|i\rangle$$

donc :
$$H |\Psi_i^+\rangle = E_i |\Psi_i^+\rangle + i\eta G_H^+(E_i)V|i\rangle. \quad [\text{FI.5}]$$

Notons que jusqu'à présent cette formule a été obtenue sans approximation. Que se passe-t-il si le passage à la limite est effectué dans le second terme de FI.5 ? De manière générale, ce dernier ne tend pas vers 0 sauf si la TF de V a un sens (seules solutions physiques acceptables). Dans le cas coulombien, cette dernière hypothèse n'est pas valable, mais par passage à la limite d'un potentiel de Yukawa (qui est de fait coulombien) [Joa1975] le second terme tend tout de même vers 0. Le résultat obtenu est donc : $H|\psi_i^+\rangle = E_i|\psi_i^+\rangle$ et le ket $|\Psi_i^+\rangle$ est bien un état propre de H.

De la même manière, définissons le vecteur propre $|\Psi_f^+\rangle$ (et donc $\langle \psi_f^- |$) de H de la manière suivante :

$$|\Psi_f^+\rangle = \lim_{t \rightarrow \infty} |\Psi_f(t)\rangle = \lim_{t \rightarrow \infty} U_I(0,t)|f\rangle = U_I(0,\infty)|f\rangle = \langle \Psi_f^- | = \langle f | U_I(\infty,0)$$

En utilisant FI.3 dans l'expression précédente, le ket $|\Psi_f^+\rangle$ s'écrit :

$$|\Psi_f^+\rangle = \lim_{\eta \rightarrow 0^+} \eta \int_0^\infty e^{-it(E_f - H - i\eta)} |f\rangle dt = \lim_{\eta \rightarrow 0^+} \frac{i\eta}{E_f - H - i\eta} |f\rangle = (1 + G_H^-(E_f)V)|f\rangle \quad [\text{FI.6}]$$

Avec les notations précédentes, $\langle \Psi_f^- | = \langle f | (1 + G_H^-(E_f)V)$, qui est état propre de H avec la valeur propre E_f .

Le calcul de la probabilité de transition entre l'état final et initial se fait en introduisant les matrices S et T appelées respectivement la matrice d'Heisenberg et de diffusion. Ce calcul de l'amplitude de probabilité consiste à calculer les termes $S_{if} = \langle \Psi_f^- | \Psi_i^+ \rangle = \langle f | S | i \rangle$. Cependant les kets introduis ici ne sont pas connus explicitement. Il faut donc exprimer chacun d'entre eux en fonction des états propres de H_i et H_f qui sont connus (analytiquement pour certains modèles). A cet effet, établissons une relation utile :

$$\begin{aligned} G_H^\pm(E) - G_{H_f}^\pm(E) &= \frac{1}{E - H \pm i\eta} - \frac{1}{E - H_f \pm i\eta} = \frac{1}{E - H_f \pm i\eta} (E - H_f \pm i\eta - (E - H \pm i\eta)) \frac{1}{E - H \pm i\eta} \\ &= \frac{1}{E - H_f \pm i\eta} (-H_f + H) \frac{1}{E - H \pm i\eta} = G_{H_f}^\pm(E) V G_H^\pm(E) \end{aligned} \quad [\text{FI.7}]$$

En introduisant FI.7 dans FI.4 le ket $|\Psi_i^+\rangle$ s'écrit:

$$|\Psi_i^+\rangle = (1 + G_H^+(E_i)V)|i\rangle = (1 + G_{H_f}^+(E_i)V G_H^+(E_i)V + G_{H_f}^+(E_i)V)|i\rangle$$

$$\text{de fait} \quad |\Psi_i^+\rangle = |i\rangle + G_{H_f}^+(E_i)V(G_H^+(E_i)V + 1)|i\rangle = |i\rangle + G_{H_f}^+(E_i)V|\Psi_i^+\rangle \quad [\text{FI.8}]$$

Cette relation permet d'établir une relation de récurrence sur le ket $|\Psi_i^+\rangle$ en fonction du ket $|i\rangle$: c'est l'équation de Lippmann-Schwinger [Joa1975]. Néanmoins, cette récurrence est infinie et ne permet pas de déterminer complètement le ket $|\Psi_i^+\rangle$. Un développement de $|\Psi_i^+\rangle$ en fonction de $|i\rangle$ à différents ordres est alors nécessaire. Cependant le développement aux ordres élevés est rendu difficile du point de vue calculatoire.

Calculons à présent le terme S_{if} . A cet effet, utilisons la formule FI.6 dans S_{if} , on obtient la relation :

$$S_{if} = \langle \psi_f^- | \psi_i^+ \rangle = \langle f | (1 + VG_H^+(E_f)) | \psi_i^+ \rangle = \langle f | \psi_i^+ \rangle + \langle f | VG_H^+(E_f) | \psi_i^+ \rangle$$

Or dans le premier membre $|\Psi_i^+\rangle$ est remplacé par FI.8, ce qui donne :

$$S_{if} = \langle f | S | i \rangle = \langle f | (|i\rangle + G_{H_f}^+(E_i)V | \psi_i^+ \rangle) + \langle f | VG_H^+(E_f) | \psi_i^+ \rangle$$

L'expression précédente est très intéressante car dans le second terme de l'égalité, $G_H^+(E_f)$ s'applique à $|\Psi_i^+\rangle$ qui est état propre de H. De même, dans le premier terme, $G_{H_f}^+(E_i)$ s'applique à $|f\rangle$ qui est état propre de H_f . D'où la nouvelle écriture de S_{if} :

$$S_{if} = \langle f | S | i \rangle = \langle f | i \rangle + \frac{1}{E_f - E_i + i\eta} \langle f | V | \psi_i^+ \rangle + \frac{1}{E_i - E_f + i\eta} \langle f | V | \psi_i^+ \rangle$$

En simplifiant on obtient :

$$S_{if} = \langle f | S | i \rangle = \langle f | i \rangle - \frac{2i\eta}{(E_i - E_f)^2 + \eta^2} \langle f | V | \psi_i^+ \rangle \quad [\text{FI.9}]$$

La prise en compte de l'équation FI.4 dans FI.9 permet d'écrire la matrice S sous la forme :

$$\begin{aligned} S_{if} &= \langle f | S | i \rangle = \langle f | i \rangle - \frac{2i\eta}{(E_i - E_f)^2 + \eta^2} \langle f | V (|i\rangle + G_H^+(E_i)V |i\rangle) \\ &= \langle f | i \rangle - \frac{2i\eta}{(E_i - E_f)^2 + \eta^2} \langle f | (V + VG_H^+(E_i)V) |i\rangle \end{aligned}$$

En notant $T = V + VG_H^+(E_i)V$ la matrice de diffusion, et en utilisant la relation bien connue

$\lim_{\eta \rightarrow 0} \frac{\eta}{E^2 + \eta^2} = \pi \delta(E)$, l'amplitude de transition est :

$$S_{if} = \langle f | S | i \rangle = \langle f | i \rangle - 2i\pi \delta(E_i - E_f) \langle f | T | i \rangle \quad [\text{FI.10}]$$

Cette relation établit le lien entre les matrices S et T que nous avons définies. Le calcul de la probabilité est défini par :

$$P_{if} = \left| \langle \psi_f^- | \psi_i^+ \rangle \right|^2 = \left| \langle f | S | i \rangle \right|^2 = 4\pi^2 \delta(E_i - E_f) \left| \langle f | T | i \rangle \right|^2 \quad [\text{FI.11}]$$

Cette probabilité ramenée au flux incident nous donne la section efficace différentielle définie par les relations suivantes suivant que ce soit une simple (e,2e) ou double ionisation (e,3e):

$$\frac{d^3 \sigma}{dE_b d\Omega_a d\Omega_b} = \sigma^{(3)} = (2\pi)^4 \frac{k_a k_b}{k_0} \delta(E_i - E_f) \left| \langle f | T | i \rangle \right|^2 \text{ pour des processus (e,2e)} \quad [\text{FI.12}]$$

$$\frac{d^5 \sigma}{dE_b dE_c d\Omega_a d\Omega_b d\Omega_c} = \sigma^{(5)} = (2\pi)^4 \frac{k_a k_b k_c}{k_0} \delta(E_i - E_f) \left| \langle f | T | i \rangle \right|^2 \text{ pour (e,3e)} \quad [\text{FI.13}]$$

La matrice de diffusion T est par définition $T = V + VG_H^+(E_i)V$. L'application de la résolvante $G_H^+(E_i)$ sur les kets présente quelques difficultés. En revanche, l'introduction de la formule FI.7 dans l'expression de T , permet un développement approprié de celui-ci. Plus particulièrement on obtient :

$$T = V + V\left(G_{H_f}^+(E_i) + G_{H_f}^+(E_i)V G_H^+(E_i)\right)V = V + VG_{H_f}^+(E_i)V + \dots$$

Ce développement de l'expression de T est appelé développement de Born aux différents ordres. En particulier, l'approximation Born 1 consiste à assimiler T à V , tandis que l'expression Born 2 équivaut à remplacer T par $V + VG_{H_f}^+(E_i)V$ et ainsi de suite.

Une représentation graphique de la matrice de diffusion est la suivante :

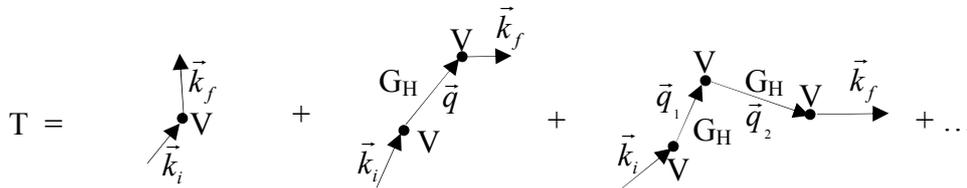


Figure I.2 : Représentation graphique de la matrice de diffusion

La première partie de l'expression de T représente l'action de V qui fait passer la particule incidente de l'état $|\vec{k}_i\rangle$ à l'état $|\vec{k}_f\rangle$. Le second terme représente premièrement l'action de V sur la particule incidente la faisant passer à l'état $|\vec{q}\rangle$, puis de nouveau l'action de V conduisant à l'état final $|\vec{k}_f\rangle$, et ainsi de suite pour les autres termes. L'état intermédiaire $|\vec{q}\rangle$ peut être quelconque, car non observé. Cet état est un état libre caractérisé par l'action de l'opérateur de Green G_H . Finalement, **l'ordre correspondant à la série de Born représente le nombre d'interactions de la particule incidente avec la cible**. Une fois pour Born 1, deux fois pour Born 2 etc. Toute la difficulté est d'introduire les termes de Green car il faut sommer sur tous les états intermédiaires.

La limite de validité de l'approximation Born 1 a été bien établie dans le cas de la simple ionisation de l'atome d'hydrogène. Il faut en principe une énergie pour l'électron incident au moins égale à environ 25 fois l'énergie d'ionisation, ce qui fait une énergie de 340 eV. Le même calcul appliqué à l'atome d'Hélium donne une énergie de l'électron incident de l'ordre de 600 eV. Ceci correspond aux énergies pour lesquelles une grande partie des expériences (e,2e) ont été effectuées [Pir1983; EHV1972].

En revanche dans le cas de la double ionisation, la frontière entre Born 1 et Born 2 n'est pas aussi claire. Toutefois, certaines expériences tendent à montrer qu'à énergie moyenne (autour de 700 eV) l'approximation Born1 reste valable pour He [Dor2003; LCD2005].

Les calculs des sections efficaces de double ionisation, dans le cadre de la première approximation de Born consistent donc en l'étude des transitions entre état initial et état final. Pour un atome donné, le potentiel V est connu *a priori* et représente l'interaction de la particule incidente avec tous les constituants de la cible. Les interactions en question sont, dans le domaine de la physique atomique et moléculaire, de nature coulombienne. Toute la difficulté est désormais de bien décrire les mécanismes responsables de la double ionisation ainsi que la manière dont sont représentés les états initiaux et finaux correspondant à une transition donnée.

L'essentiel de notre travail porte sur l'étude de la double ionisation par impact électronique. Cependant, le calcul de Born reste valable quel que soit la particule incidente. Souvent un parallèle est effectué entre impact électronique et impact photonique. Cette analogie n'est justifiée que dans le cas où l'électron incident a une énergie assez grande et transfère peu de quantité de mouvement à la cible. Dans ce cas, la collision est suffisamment « rapide » pour considérer ces deux collisions comme identiques en terme de mécanismes. Ceci se justifie théoriquement par le fait que dans ce cas, l'approximation de Born est pleinement remplie et le formalisme entre photon et électron est assez similaire, c'est ce qui s'appelle la limite dipolaire. Cependant les conditions expérimentales dans lesquelles ont été effectuées les expériences décrites dans ce travail ne permettent pas vraiment une telle analogie. Celle-ci est tout de même utile pour décrire certains processus plus facilement exploitables dans le cas de la double ionisation par impact photonique. Par exemple, certaines règles de sélection sont particulièrement bien respectées dans le cas de l'ionisation par photon. Au contraire, dans le cas de l'impact d'électrons dans des conditions cinématiques équivalentes, la section efficace aura la même allure mais là où une section efficace nulle est observée, celle sera au mieux remplacée par un minimum dans le cas de l'impact électronique.

Les principaux mécanismes étudiés pour la double ionisation sont au nombre de quatre correspondant aux mécanismes Shake Off, Two Step 1, Two Step 2 et l'effet Auger, qui est notre principal sujet d'intérêt.

III. Description de l'état final et initial : Notion de corrélation

Pour rendre compte de la section efficace, il est nécessaire de calculer les termes composés des amplitudes de transition entre état final et état initial sous l'effet des différents potentiels V . Dans cette partie, les différentes descriptions des états initial et final utilisés dans ce travail sont présentées.

Une des raisons qui font que les mécanismes d'ionisation ont été tant étudiés, réside dans le fait que ces mécanismes sont liés aux corrélations électroniques. La notion de corrélation est assez vague et mérite d'être explicitée. Le mot corrélation est apparu pour la première fois dans les années 1930 (Wigner¹ et Seitz) [McG1997]. La définition moderne du mot corrélation a été introduite par Löwdin en 1959 pour un système atomique. Dans le cadre de la physique atomique et moléculaire, le terme corrélation signifie que toute perturbation appliquée à une partie identifiable du système se répercute alors sur toutes les autres parties. Ce type de corrélation, propre à la cible, est qualifié de manière générale de **corrélation structurelle**. Elle rend compte des interactions coulombiennes entre les électrons de la cible. Le système est alors décrit par une fonction d'onde où une telle propriété a été introduite. Du point de vue mathématique, la corrélation est définie par l'écart qui existe entre une fonction de plusieurs variables et le produit des fonctions individuelles à une variable. Dans ce cas, la notion de corrélation rend compte de la non séparabilité des variables. C'est souvent cette dernière définition qui est utilisée en physique atomique. Dans le cas de l'Hélium, la corrélation structurelle est prise égale à 0 pour un modèle du type Hartree Fock (cf. paragraphe 1). Un dernier type de corrélation est celui induit par la collision elle-même, cette corrélation est appelée **corrélation dynamique**. Par exemple, lors de l'impact électronique, le projectile interagit avec la cible qui est alors polarisée, ce qui a pour effet de modifier la fonction d'onde de l'électron incident. Ces effets de **corrélation dynamique en voie d'entrée**, sont pris en compte par des modèles à ondes distordues, et ne sont importants que pour des énergies de projectile assez faibles (de l'ordre de la centaine d'eV). Enfin, les interactions coulombiennes des électrons issus de l'ionisation, doivent être présentes dans la description de la fonction d'onde de l'état final. Cette dernière corrélation est appelée **corrélation dynamique en voie de sortie**.

1. Etat initial

Prenons un atome contenant N électrons. La fonction d'onde de cet atome doit être anti-symétrique par l'échange de ces électrons qui sont des fermions. La fonction d'onde est composée d'une partie radiale et angulaire ainsi que d'une partie de spin. Globalement, cette

¹ [Rhoades, p.35] commente, "Physics does not even try to give us complete information about the events around us-it gives information about the correlation between those events".

fonction doit être vecteur propre des opérateurs moment cinétique orbital total L^2 et de spin S^2 , chacun de ces opérateurs étant la somme des contributions propres à chaque électron : $\vec{L} = \sum_i \vec{l}_i$ et $\vec{S} = \sum_i \vec{s}_i$. Enfin, la fonction d'onde est normalisée c'est-à-dire que $\langle \psi | \psi \rangle = 1$.

a. Fonction d'onde de l'atome d'hélium

De manière générale, la fonction d'onde décrivant l'atome d'hélium est un produit tensoriel d'une fonction d'espace et d'une fonction de spin : $|\psi\rangle = |\varphi\rangle \otimes |\chi\rangle$. La première partie est solution de l'équation de Schrödinger où le spin n'est pas introduit, la seconde est état propre de l'opérateur de spin $S^2 = (\vec{s}_1 + \vec{s}_2)^2$, avec s_1 et s_2 les opérateurs de spin agissant spécifiquement sur les électrons 1 et 2. Le spin de l'électron étant $1/2$, les seules valeurs possibles de la projection de ce spin sur l'axe z sont $m_s = \pm 1/2$. Pour un électron unique on obtient alors deux états quantiques pour un spin $s = 1/2$ qui sont notés $|+\rangle$ et $|-\rangle$ avec les relations :

$$S^2|\pm\rangle = s(s+1)|\pm\rangle = \frac{3}{4}|\pm\rangle$$

$$S_z|\pm\rangle = m_s|\pm\rangle = \pm\frac{1}{2}|\pm\rangle$$

En couplant le spin des deux électrons de l'atome d'hélium, il y a 4 états possibles notés $|++\rangle, |+-\rangle, |-+\rangle, |--\rangle$. Seuls les états $|++\rangle$ et $|--\rangle$ sont états propres de S^2 , avec la valeur propre 2, ce qui correspond à $S = 1$. En revanche, pour les deux autres états, l'application de l'opérateur S^2 donne :

$$S^2|+-\rangle = |+-\rangle + |-+\rangle$$

$$S^2|-+\rangle = |-+\rangle + |+-\rangle$$

Il est donc nécessaire de reconstruire des états propres de S^2 à partir de ces états. La matrice de spin dans la base $B = (|+-\rangle, |-+\rangle)$ est alors :

$$S^2 = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ 1 & 1 \end{pmatrix}$$

Les valeurs propres de cette matrice sont 0 et 2, soit $S = 0$ et $S = 1$ respectivement. Ceci est conforme avec le fait que le couplage entre des électrons de spin $\frac{1}{2}$ ne peut donner que des spins de 0 ou 1. Les états propres construits² à partir de la base B définie précédemment sont :

$|\chi_1\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\begin{pmatrix} 1 \\ -1 \end{pmatrix}$ pour la valeur propre 0, et $|\chi_2\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix}$ pour la valeur propre 2. Il est à

noter que ces états sont orthogonaux entre eux et normalisés :

$$\langle \chi_1 | \chi_2 \rangle = \langle \chi_2 | \chi_1 \rangle = 0 \text{ et } \langle \chi_1 | \chi_1 \rangle = \langle \chi_2 | \chi_2 \rangle = 1.$$

Notons enfin que tous les états calculés sont aussi états propres de $S_z = s_{1z} + s_{2z}$. En effet :

$$S_z |++\rangle = s_{1z} |++\rangle + s_{2z} |++\rangle = \frac{1}{2}(|++\rangle + |++\rangle) = |++\rangle \text{ de même } S_z |--\rangle = |--\rangle. \text{ Enfin,}$$

$$S_z |\chi_1\rangle = s_{1z} \left(\frac{|+-\rangle - |-+\rangle}{\sqrt{2}} \right) + s_{2z} \left(\frac{|+-\rangle - |-+\rangle}{\sqrt{2}} \right) = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\frac{1}{2} |+-\rangle + \frac{1}{2} |-+\rangle - \frac{1}{2} |+-\rangle - \frac{1}{2} |-+\rangle \right) = 0$$

signifiant que m_S est égal à 0 pour cet état, ce qui est conforme au fait que la seule projection possible pour $S = 0$ est 0. De même, $S_z |\chi_2\rangle = 0$, avec $S = 1$ dans ce cas. Tous les états propres de S^2 , déterminés dans la base B, sont résumés ici :

$$\begin{aligned} & |++\rangle && \text{avec } S = 1 \text{ et } m_S = 1 \\ |\chi_2\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|+-\rangle + |-+\rangle) && \text{avec } S = 1 \text{ et } m_S = 0 \\ & |--\rangle && \text{avec } S = 1 \text{ et } m_S = -1 \\ |\chi_1\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|+-\rangle - |-+\rangle) && \text{avec } S = 0 \text{ et } m_S = 0 \end{aligned}$$

La fonction d'espace est fonction propre de l'opérateur L^2 . L'atome d'hélium a la configuration $1s^2$ dans son état fondamental. Ce qui signifie que l'action de L^2 sur la fonction d'onde spatiale doit donner un résultat nul. La fonction d'onde d'espace est aussi symétrique par construction. De plus, la partie spatiale doit être solution de l'équation de Schrödinger. A ce jour, malgré les efforts des théoriciens dans ce domaine, il n'y a pas de fonction d'onde analytique pour décrire He. En revanche, il existe pléthore de fonctions d'onde appropriées qui ont des degrés de complexité plus ou moins importants.

Pour juger de la qualité d'une fonction d'onde, plusieurs critères sont à prendre en compte. Le premier est l'énergie moyenne de l'hélium défini par le calcul de la valeur moyenne de l'hamiltonien de cet atome soit $E = \langle \varphi | H | \varphi \rangle$, dans la mesure où la fonction d'onde est normée. Différentes fonctions ont été utilisées dans ce travail de thèse. Les fonctions d'ondes choisies sont des fonctions dont certaines sont à variables séparables, c'est-à-dire qui s'écrivent comme un produit de deux fonctions identiques des coordonnées \vec{r}_1 de l'électron 1

²Il est à noter ici que le choix de ces états propres n'est pas unique. L'unicité de la base en construction provient du fait que l'on impose à l'ensemble de ces états propres de former une base orthonormée.

et \vec{r}_2 de l'électron 2, et d'autres non. Les deux fonctions qu'on utilisera dans le modèle développé ici, sont les fonctions de Clementi (Cle) [CR1974] et de Silverman et Platas (SilPlat) [SPM1960].

La première est obtenue par une combinaison linéaire de fonctions du type hydrogénoïde dont les coefficients sont déterminés par une approche du type Hartree-Fock (HF). Le résultat est le suivant :

$$\langle \vec{r} | \varphi \rangle = \left(\sum_{i=1}^5 c_i \xi_i^{3/2} e^{-\xi_i r} \right) Y_0^0(\vec{r}) \quad (\text{Fonction du type Cle})$$

Valeur de i	c_i	ξ_i
1	0,78503	1,43000
2	0,20284	2,44150
3	0,03693	4,09960
4	-0,00293	6,48430
5	0,00325	0,79780

Tableau I.1 : Valeurs des coefficients de la table de Clementi pour décrire l'hélium

Dans cette relation (et pour tout le reste du manuscrit), Y_l^m est l'harmonique sphérique dont les nombres quantiques orbitaux sont m et l .

L'énergie moyenne de l'hélium est dans ce cas de $E_{\text{HF}} = -2,8616799$ (u.a.). La valeur de référence calculée par Drake [Dra1999] correspondant à l'énergie de double ionisation de He est $E_{\text{th}} = -2,9037244$ (u.a.). Expérimentalement, on trouve la valeur $E_{\text{exp}} = -2,90378$ (u.a.). L'écart qui existe entre théorie et expérience vient du fait que les effets relativistes sont négligés dans les modèles. La valeur de Drake est alors la valeur la plus exacte dans ce cadre, et elle sera prise comme référence. La valeur de l'énergie de Cle représente 98,6% de celle de Drake. Dans les 1,4% restants, seuls les effets de corrélations interviennent. Les fonctions d'ondes du type sp, où des corrélations angulaires sont introduites mais pas de termes en $r_{12} = \|\vec{r}_1 - \vec{r}_2\|$, seront utilisées pour rendre compte de ces effets. Deux types de corrélations sont utilisés. Un premier couplage noté ss' où des orbitales du type s sont prises en compte pour chacun des électrons (sans pour autant que la fonction d'onde soit à variable séparable), ou un second couplage noté sp où des orbitales du type s et p sont introduits. De manière générale cette fonction d'onde s'écrit :

$$\begin{aligned} \langle \vec{r}_1, \vec{r}_2 | \varphi \rangle = & \frac{N}{\sqrt{1 + \lambda^2}} \{1s(\vec{r}_1)1s'(\vec{r}_2) + 1s'(\vec{r}_1)1s(\vec{r}_2)\} \\ & + \frac{\lambda}{\sqrt{3}\sqrt{1 + \lambda^2}} \{2p_0(\vec{r}_1)2p_0(\vec{r}_2) - 2p_1(\vec{r}_1)2p_{-1}(\vec{r}_2) - 2p_{-1}(\vec{r}_1)2p_1(\vec{r}_2)\} \end{aligned}$$

Les différentes orbitales s'écrivent :

$$1s(\vec{r}) = 2a^{3/2} e^{-ar} Y_0^0(\vec{r})$$

$$1s'(\vec{r}) = 2b^{3/2} e^{-br} Y_0^0(\vec{r})$$

$$2p_m(\vec{r}) = \frac{2}{\sqrt{3}} g^{5/2} r e^{-gr} Y_1^m(\vec{r})$$

N est un facteur de normalisation donné par :
$$N = \frac{4(ab)^{3/2}}{\sqrt{2 + 2 \frac{(4ab)^3}{(a+b)^6}}}$$

Les valeurs des coefficients pour les différents couplages, ainsi que l'énergie associée à la fonction d'onde, sont données dans le tableau I.2.

Corrélation	a	b	g	λ	E en u.a.
ss'	2,183171	1,188530	0	0	-2,8756614
sp	2,176210	1,201152	2,475470	-0,0617557	-2,8952278

Tableau I.2 : Valeurs des coefficients de la table de Silverman et Platas pour He

La qualité d'une fonction d'onde peut s'estimer en évaluant le pourcentage de corrélation (pcr). Ce terme s'exprime de la manière suivante : $pcr = \frac{E - E_{HF}}{E_{th} - E_{HF}}$ avec E l'énergie définie par $E = \langle \varphi | H | \varphi \rangle$. Les valeurs suivantes pour le pcr sont obtenues : $pcr(ss') = 33\%$ et $pcr(sp) = 80\%$. Ces valeurs signifient que 80% de la corrélation est contenue dans la fonction d'onde du type SP avec corrélation sp. Cependant, cette procédure n'est pas le seul critère permettant d'apprécier la qualité d'une fonction d'onde. Un deuxième critère est que la fonction d'onde doit rendre compte de certaines conditions de dérivabilité plus communément appelées condition de Cusp [AMD2004; Mon2006].

Le point sur lequel nous ferons un dernier commentaire est le fait que la fonction d'onde globale doit être anti-symétrique, or, la partie spatiale étant symétrique par l'échange des deux électrons, le seul état de spin accessible pour l'atome d'Hélium est l'état $|\chi_1\rangle$ vu précédemment.

b. Fonction d'onde de l'atome d'argon

Pour l'argon, la fonction d'onde utilisée est une fonction du type Cle. Chacun des 18 électrons de Ar est décrit par une fonction d'onde comprenant une partie spatiale et une partie de spin. Cette fonction d'onde est ensuite symétrisée par un déterminant de Slater [Sla1960]. La valeur de l'énergie pour l'atome d'Argon est de $E_{cl} = -526,8$ (u.a.) alors que la mesure expérimentale donne $E_{exp} = -528,98$ (u.a.) soit un écart relatif de 0,4%. La fonction d'onde ainsi décrite n'est néanmoins pas corrélée car elle est du type HF. La difficulté ici est de décrire l'ensemble des 18 électrons de l'atome d'argon. En particulier la description d'un processus d'ionisation double faisant intervenir des déterminants aussi grands, est très difficile. Le compromis est alors de ne faire intervenir dans la fonction d'onde de l'état initial que les électrons impliqués dans la collision, cette approximation est appelée : modèle à **deux électrons actifs**. Pour décrire l'état quantique de l'atome d'Ar, la procédure est identique à celle de He. Dans un premier temps, on regarde les différents états quantiques possibles en terme de spin, puis la partie radiale est considérée. Enfin une opération d'anti-symétrisation est appliquée. La partie spatiale qui nous intéresse dans ce problème est une fonction d'onde décrivant un électron de la couche 3p. Cette fonction d'onde est une somme d'une partie radiale décrite par une combinaison linéaire de termes du type 2p et 4p. La fonction d'onde pour un électron de la couche 3p s'écrit alors :

$$\langle \vec{r} | \psi \rangle = \varphi(r) Y_l^m(\hat{r}) = Y_l^m(\hat{r}) \sum_i \xi_i^{3/2} c_i r^{n_i-1} \exp(-\xi_i r)$$

les valeurs des coefficients sont données par le tableau suivant :

i	c_i	ξ_i	n_i
1	-0,18072	9,00000	2
2	-0,01234	15,00000	4
3	0,02183	11,96440	4
4	-0,12559	8,79240	4
5	0,10518	6,30110	4
6	0,58041	3,43270	4
7	0,46149	1,94090	4
8	0,02249	1,03090	4

Tableau I.2 : Valeurs des coefficients de la table de Clementi pour décrire l'Argon en couche 3p

Comment procéder pour décrire correctement le problème ?

Dans un premier temps, concentrons nous sur l'état final issu de la double ionisation. L'ion résiduel est donc un ion dont il deux des six électrons de la couche 3p ont été ôtés. Il y a $C_6^2 = 15$ possibilités d'ôter les deux électrons en question, et par conséquent il y a 15 états

finaux pour $\text{Ar}^{++}(3p^{-2})$: 9 correspondent à l'état 3P , 5 à l'état 1D et un à l'état 1S . Ces différentes fonctions sont construites pour être états propres de L^2 et S^2 (cf. Annexe I pour la description de ces états).

L'état initial de l'Argon décrit par l'ensemble des 18 électrons a les moments cinétiques orbitaux et de spin égaux à $L = 0$ et $S = 0$ car c'est un atome à couche complète. Si, après une double ionisation, l'ion résiduel est dans un état caractérisé par (S, m_S, L, m_L) , alors, dans le cadre du modèle à deux électrons actifs, l'état initial est caractérisé par $(S, -m_S, L, -m_L)$. La correspondance entre état final et initial pour les différents cas est donnée par le diagramme suivant établi dans le cas $M_L = -2$ de l'état 1D de l'argon doublement ionisé:

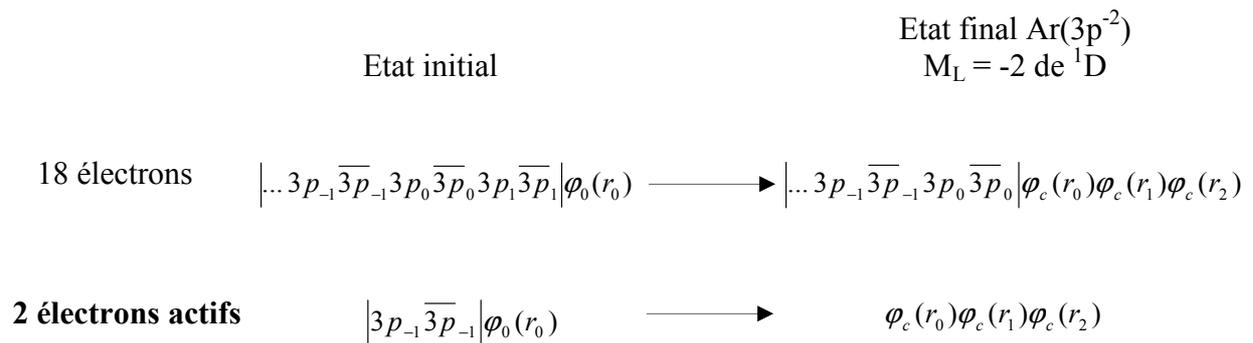


Figure I.2 : Exemple montrant la correspondance entre le modèle où tous les électrons de la cible sont pris en compte et celui à 2 électrons actifs. Cet exemple est pris pour le cas où l'état final est $M_L = -2$ de 1D .

Les deux électrons mis en jeu dans le cas du modèle à 18 électrons ne sont pas les mêmes que ceux impliqués dans le cas à deux électrons actifs. Dans la première situation, ce sont les électrons $m_l = 1$ qui sont éjectés, alors que dans la seconde, l'état initial est décrit par deux électrons $m_l = -1$, d'où le résultat plus général décrit précédemment si la correspondance entre électrons arrachés dans les deux modèles est conservée.

Cette description a été établie dans le cas de l'ionisation double, mais cette approche est applicable aussi dans le cas de la simple ionisation [DHR1995].

2. Etat final

La description de l'état initial est cruciale dans l'étude des mécanismes d'ionisation double. Cependant, la description de l'état final est tout aussi importante et constitue un problème plus délicat, surtout quand il y a plusieurs partenaires en interaction coulombienne. Dans cette partie, nous nous proposons de détailler la fonction d'onde utilisée dans cette thèse

pour décrire l'état final issu d'une ionisation simple ou double et composé respectivement de trois ou quatre corps en interaction coulombienne.

a. Interaction coulombienne dans le continuum

Avant d'aborder l'étude de trois corps en interaction coulombienne, commençons par le cas d'école de deux corps. Prenons l'exemple d'une charge Ze en interaction avec un électron. L'équation de Schrödinger du système s'écrit en unité atomique :

$$\left(\Delta + \frac{2Z}{r} - k^2\right)\psi(\vec{r}) = 0$$

dont la solution, appelée onde coulombienne, est :

$$\psi(\vec{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \Gamma(1-i\eta) e^{-\pi\eta/2} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} {}_1F_1(i\eta, 1, -i(\vec{k}\cdot\vec{r} + kr)) \text{ avec } \eta = -\frac{Z}{k}$$

Dans cette expression, Γ est la fonction Gamma d'Euler et ${}_1F_1$ est la fonction hypergéométrique confluyente [AS1972]. Cette fonction $\psi(\vec{r})$ tend vers une onde plane pour une valeur de Z tendant vers zéro. En effet, si le terme η tend vers zéro, alors la fonction ${}_1F_1$ tend vers 1. Comme le terme η est en inverse de k , si k est suffisamment grand on peut considérer que $\psi(\vec{r})$ se comporte comme une onde plane. Cependant, une onde plane est caractérisée par un module de sa fonction d'onde égal à 1. Il est alors possible d'étudier l'évolution de l'onde coulombienne pour savoir dans quelle mesure cette fonction d'onde peut-être assimilée à une onde plane. Cette fonction d'onde dépendant des trois variables d'espace, l'idée est d'intégrer selon les deux variables correspondant aux angles pour étudier le comportement de la fonction d'onde correspondante. Autrement dit, le terme à calculer est :

$$\bar{\zeta}(r) = \frac{1}{4\pi} \int \psi^*(\vec{r})\psi(\vec{r})d\Omega \quad \text{et} \quad \zeta(r) = (2\pi)^3 \bar{\zeta}(r)$$

Dans le cas d'une onde plane, la quantité ζ est indépendante de r et vaut exactement 1. Cette dernière quantité n'a pas de sens physique car non intégrable en r , mais elle présente un point de comparaison intéressant pour évaluer comment l'onde coulombienne se rapproche de l'onde plane. Nous avons donc fait le calcul de ce terme pour différentes valeurs de k et pour $Z = 2$ (qui est le cas le plus défavorable pour cette étude car le terme η tend moins rapidement vers 0 que dans la cas où $Z = 1$). Les résultats sont présentés sur la *figure I.2*.

Il est aisé de remarquer que pour des valeurs de k de l'ordre de 4 ou plus, le comportement de la fonction d'onde est quasiment le même que celui d'une onde plane. Les remarques faites ici pour $Z = 2$ sont bien sûr valables aussi pour $Z = 1$, dans la mesure d'une conservation du

rapport Z/k . Cette étude pourra alors nous être utile pour savoir si des interactions coulombiennes entre particules sont à prendre en compte pour certaines configurations cinématiques.

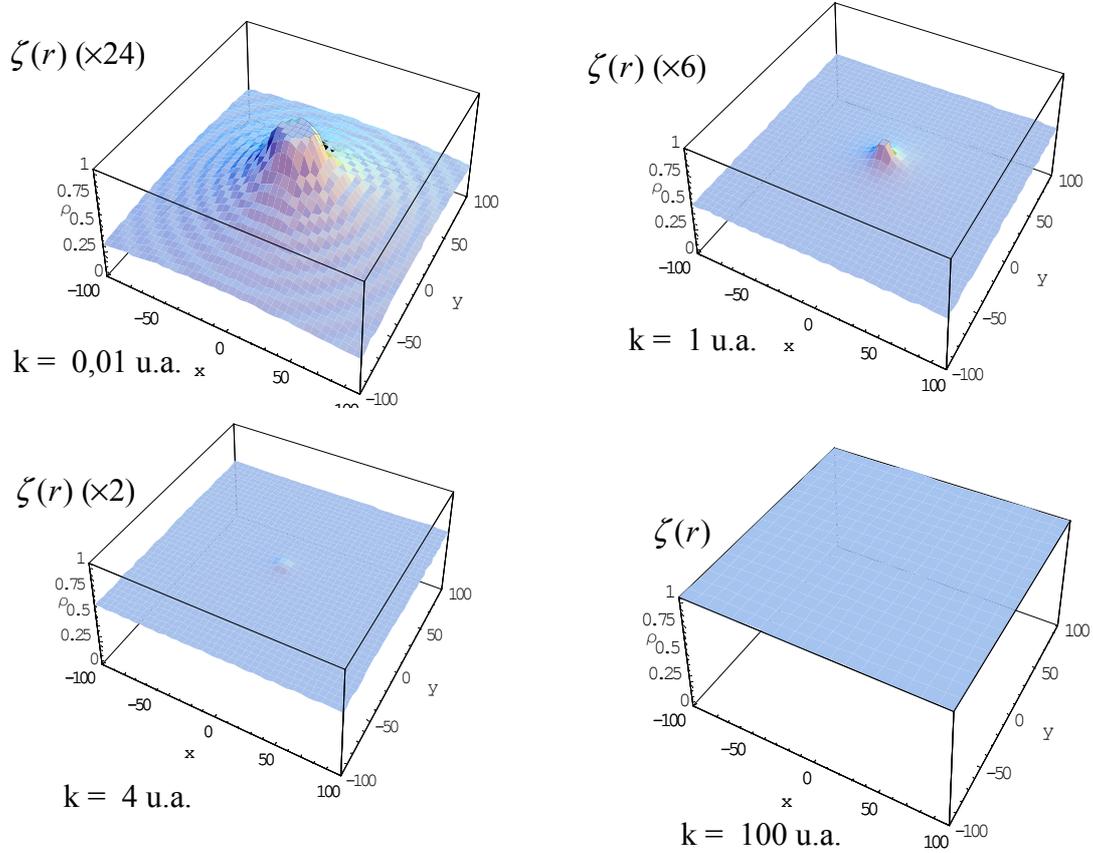


Figure I.2 : Tracé de $\zeta(r)$ pour différentes valeurs de k en u.a. $\zeta(r)$ est dans certains cas multiplié par un coefficient pour faciliter la visualisation des graphiques. La charge du noyau est prise égale à $Z = 2$.

b. Le cas de trois particules en interaction

Après une ionisation simple, l'état final est caractérisé par la présence de trois corps en interaction coulombienne : le noyau chargé positivement et les deux électrons. L'équation de Schrödinger de ce système s'écrit :

$$(\Delta_1 + \Delta_2 + \frac{2Z}{r_1} + \frac{2Z}{r_2} - \frac{2}{r_{12}} - k_1^2 - k_2^2)\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = 0$$

Dans cette expression, 1 et 2 font référence aux deux électrons de l'état final, Z est la charge du noyau et k_i les différentes quantités de mouvement. L'expression de l'Hamiltonien a été obtenue en considérant que le noyau est beaucoup plus lourd que les électrons. Il est à remarquer que si le terme de répulsion coulombienne entre les deux électrons est négligé,

alors l'hamiltonien est simplement la somme de deux termes indépendants. La fonction d'onde est de fait le produit de deux ondes coulombiennes caractérisant l'interaction de chaque électron avec le noyau. Cette propriété doit donc être retrouvée dans la fonction d'onde globale qui reste à déterminer.

Une fonction d'onde qui est souvent utilisée pour décrire le double continuum est celle obtenue par Brauner, Briggs et Klar (dite BBK) [BBK1989]. La procédure de calcul est celle adoptée par Pluvinage [Plu1950]. Pour ce faire, la fonction d'onde est écrite comme étant le produit de trois fonctions d'onde, chacune solution d'une équation de Schrödinger simplifiée. Le résultat est alors :

$$\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \frac{1}{(2\pi)^3} e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1} e^{i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}_2} \Gamma(1 - i\alpha_1) e^{-\frac{1}{2}\pi\alpha_1} \Gamma(1 - i\alpha_2) e^{-\frac{1}{2}\pi\alpha_2} {}_1F_1(i\alpha_1; 1; -i(k_{1r_1} + \vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1))$$

$${}_1F_1(i\alpha_2; 1; -i(k_{2r_2} + \vec{k}_2 \cdot \vec{r}_2)) \times \Gamma(1 - i\alpha_{12}) e^{-\frac{1}{2}\pi\alpha_{12}} {}_1F_1(i\alpha_{12}; 1; -i(k_{12r_{12}} + \vec{k}_{12} \cdot \vec{r}_{12}))$$

Dans cette expression les paramètres s'écrivent : $\alpha_{1,2} = -\frac{Z}{k_{1,2}}$, $\alpha_{12} = \frac{2}{k_{12}}$ et $\vec{k}_{12} = \frac{\vec{k}_2 - \vec{k}_1}{2}$

La première fonction hypergéométrique confluyente est caractéristique de l'interaction des deux électrons de l'état final avec le noyau résiduel, la seconde partie est représentative de l'interaction entre les deux électrons (termes couplés). Il est à remarquer que cette fonction d'onde est orthonormée [Naj1997]. Le terme prenant en compte les interactions entre les deux électrons rend difficile le calcul de l'amplitude de transition. Cependant certaines remarques peuvent être faites. Par exemple, si les deux électrons issus de la collision ont des énergies voisines, deux cas extrêmes se présentent :

- \vec{k}_1 dans le sens de \vec{k}_2 : dans ce cas k_{12} tend vers 0 et la fonction ${}_1F_1$ tend vers 1
- \vec{k}_1 dans le sens de $-\vec{k}_2$: dans ce cas k_{12} tend vers $2k_1$ et la fonction ${}_1F_1$ tend vers 1 si $k_{1,2}$ est suffisamment grand.

Dans les deux cas, le terme d'interaction entre les deux électrons est représenté ici par $\Gamma(1 - i\alpha_{12}) e^{-\frac{1}{2}\pi\alpha_{12}}$ qui ne dépend pas de r_{12} , ce qui rend les calculs beaucoup plus simples sans pour autant perdre l'aspect physique de la répulsion coulombienne entre les deux électrons du continuum. Ce terme est appelé facteur de Gamow. Dans le modèle appelé BBK approximé³, le terme ${}_1F_1$ de l'interaction coulombienne entre les électrons est assimilé au facteur de Gamow.

Le défaut de cette dernière méthode est de ne pas avoir de fonction d'onde normalisée pour l'état final. C'est la raison pour laquelle un autre modèle est parfois adopté. Il consiste à prendre en compte uniquement les interactions entre les deux électrons et le noyau. La charge

³ Noté ABBK de l'acronyme approximated BBK

du noyau après la simple ionisation est alors de 1. La méthode adoptée est de décrire chaque onde coulombienne par une charge effective. La fonction d'onde est donc solution de l'équation de Schrödinger :

$$(\Delta_1 + \Delta_2 + \frac{2Z_1}{r_1} + \frac{2Z_2}{r_2} - k_1^2 - k_2^2)\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = 0. \quad (\text{x } 2)$$

Pour rendre compte de l'interaction coulombienne entre les deux électrons éjectés, la relation suivante doit être satisfaite :

$$\frac{Z_1}{r_1} + \frac{Z_2}{r_2} = \frac{Z}{r_1} + \frac{Z}{r_2} - \frac{1}{2r_{12}}$$

Dans le cadre de l'approximation classique $\vec{r} = \vec{k} \tau$ cette dernière expression s'écrit encore :

$$\frac{Z_1}{k_1} + \frac{Z_2}{k_2} = \frac{Z}{k_1} + \frac{Z}{k_2} - \frac{1}{2k_{12}}$$

La formulation en est alors simplifiée. Cependant, une infinité de choix du couple (Z_1, Z_2) est possible, ce qui rend l'interprétation de ce dernier modèle plus délicate [Rud1968; Pet1961].

c. Cas de la double ionisation

Dans le cas de la double ionisation un modèle équivalent a été adopté. C'est-à-dire que l'interaction entre les électrons issus de la double ionisation et le noyau sont décrits par des ondes coulombiennes alors que l'interaction entre chaque électron est décrite par un facteur de Gamow. Ce modèle sera nommé 3CW et sera développé par la suite.

IV. Mécanismes d'ionisation double

Dans le paragraphe précédent, nous avons montré que la section efficace s'exprime en fonction des éléments de la matrice de diffusion T. Des mécanismes d'ordre 1 et 2, au sens de la série de Born, sont décrits et utilisés pour rendre compte des mécanismes de double ionisation. Ces différents cas sont développés dans ce paragraphe.

1. Shake Off (SO)

Le mécanisme SO est un mécanisme de premier ordre. Il consiste en une interaction unique de l'électron incident avec la cible qui éjecte deux électrons sous l'effet du potentiel V. Si l'atome est constitué de N électrons, V s'écrit de la manière suivante :

$$V = \frac{-Z}{r_0} + \sum_{i=1}^N \frac{1}{r_{0i}}$$

Dans cette expression, Z est la charge du noyau, r_0 est la distance entre l'électron incident et le noyau et r_{0i} est la distance entre l'électron incident et l'électron i de la cible. Ce mécanisme peut être vu de la manière suivante : l'électron incident interagit avec un électron de la cible permettant à celui-ci d'être éjecté de la cible. Du fait de la corrélation⁴ entre deux électrons de la cible, l'éjection d'un électron entraîne l'éjection du second. Une autre manière d'exprimer ceci est de dire que l'ionisation primaire laisse l'ion dans un état où les potentiels n'ont pas eu le « temps » de se relaxer en celui de l'ion résiduel. Le réarrangement se fait alors selon tous les états finaux possibles dont un au moins correspond à la seconde ionisation. Néanmoins, cette manière de présenter ce mécanisme semble indiquer deux étapes indépendantes alors que tout se passe en même temps, c'est la raison pour laquelle l'amplitude de transition s'écrit simplement comme une transition entre l'état initial et final sous l'effet de V , et non comme un produit de deux amplitudes propres à chaque étape du mécanisme.

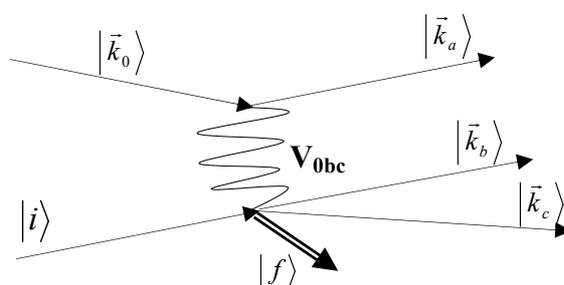


Figure I.4 : Diagramme de Feynman du mécanisme SO. Sur ce schéma, $|i\rangle$ représente l'état initial de l'atome et $|f\rangle$ l'état de l'ion résiduel doublement chargé.

Dans le cas de l'atome d'hélium, l'expression de V se réduit à trois termes. En revanche, dans le cas de l'atome d'argon, qui contient 18 électrons, l'expression de V devient plus complexe du fait même de l'expression de l'état initial. Une première étape consiste alors à considérer l'approximation du cœur gelé. C'est-à-dire que pour une ionisation double en couche externe de Ar ($3p^2$), seuls les 6 électrons de cette couche $3p$ seront considérés pour décrire l'Argon. Certaines études [DHR1995] ont de plus montré qu'en fait seuls les 2 électrons impliqués dans la collision ont une importance dans l'expression de l'amplitude ; c'est désormais l'approximation que nous prendrons en compte. L'expression de la section efficace s'exprime à l'aide de l'amplitude de diffusion f_{SO} :

$$\sigma^{(5)} = (2\pi)^4 \frac{k_a k_b k_c}{k_0} |f^{SO}|^2 \quad \text{où} \quad f^{SO} = -\langle \psi_f | V | \psi_i \rangle \quad (\text{Born I})$$

Dans cette expression, $|\psi_i\rangle$ et $|\psi_f\rangle$ représentent respectivement les états initial et final du système.

⁴ Le mot corrélation a été détaillé dans le paragraphe III. Pour le moment cette corrélation peut-être vue comme un « lien » entre deux électrons de la cible. Ce lien est plus subtil qu'une simple interaction car il résulte de l'interaction coulombienne de l'ensemble des éléments de la cible et par uniquement des interactions entre les électrons dits corrélés.

2. Two Step 1 (TS1)

Un autre mécanisme du premier ordre, mais séquentiel en deux étapes, est le mécanisme TS1. Cette réaction est du premier ordre car l'électron incident n'interagit qu'une seule fois avec la cible, en lui arrachant effectivement un électron, qui lui-même, entre en collision avec un autre électron de la cible. Ce mécanisme se fait bien en deux temps et chaque séquence est représentée par une amplitude de transition, de telle sorte que cette réaction est finalement le produit des amplitudes propres à chaque étape. Lors de la première ionisation, l'ion résiduel est dans n'importe quel état d'excitation. La transition globale est alors la somme des amplitudes de transitions sur tous les états intermédiaires. L'expression de cette amplitude s'écrit :

$$f^{TS1} = -2 \sum_n \int \frac{d\vec{p}}{2\pi^3 (k_0^2 - p^2 - k_a^2 - 2I_n + i\eta)} \langle \psi_f(\vec{k}_b, \vec{k}_c; \vec{r}_b, \vec{r}_c) | V_{bc} | \psi_n^+(\vec{p}; \vec{r}_b, \vec{r}_c) \rangle \times \left\langle \psi_n^+(\vec{p}; \vec{r}_b, \vec{r}_c) \frac{e^{i\vec{k}_a \cdot \vec{r}_0}}{(2\pi)^{3/2}} \middle| V_{0bc} \middle| \psi_i(\vec{r}_b, \vec{r}_c) \frac{e^{i\vec{k}_0 \cdot \vec{r}_0}}{(2\pi)^{3/2}} \right\rangle$$

où $V_{bc} = \frac{1}{r_{bc}}$ et $V_{0bc} = -\frac{2}{r_0} + \frac{1}{r_{0b}} + \frac{1}{r_{0c}}$ sont les potentiels représentant, respectivement, l'interaction entre les deux électrons de la seconde étape, et le potentiel de l'électron incident avec la cible. L'électron incident ainsi que le diffusé sont représentés par des ondes planes. $|\psi_n^+\rangle$ représente le produit des fonctions d'onde décrivant l'ion dans son état excité ainsi que celle de l'électron qui sort de la cible. I_n est l'énergie nécessaire pour arracher un électron à la cible et le laisser dans l'état excité $|\psi_n^+\rangle$. La figure suivante représente le diagramme de Feynman du mécanisme TS1.

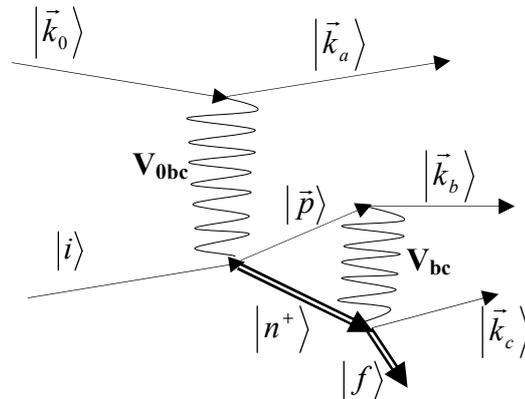


Figure I.5 : Diagramme de Feynman du mécanisme TS1. Sur ce schéma, $|i\rangle$ représente l'état initial de l'atome, $|f\rangle$ l'état de l'ion résiduel doublement chargé, et $|n^+\rangle$ l'état de l'ion intermédiaire dans son état excité n .

Toute la difficulté dans cette procédure réside dans l'impossibilité de décrire complètement tous les états intermédiaires et dans la plupart des cas seuls les états $n = 1$ et $n = 2$ sont pris en compte [Mkh1998].

3. Two Step 2 (TS2)

Un autre mécanisme pris en compte dans les modèles est un mécanisme de second ordre (au sens du développement de Born) où l'électron incident interagit deux fois avec la cible. La première interaction ionise une première fois l'atome, puis un second impact de l'électron incident sur la cible désormais ionique éjecte de nouveau un électron de la cible. Ce mécanisme se décrivant en deux temps, le formalisme vu dans le paragraphe précédent s'applique aussi dans ce cas. De fait, l'amplitude du mécanisme TS2 est la somme sur tous les états intermédiaires, des amplitudes de chaque état ionique lié à la première ionisation. Le diagramme de Feynman de cette réaction est donné par la figure suivante :

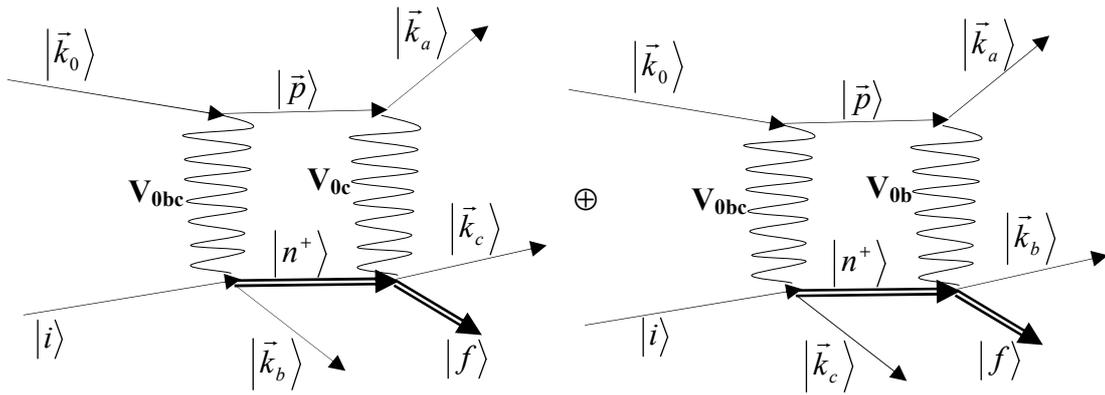


Figure I.6 : Diagramme de Feynman du mécanisme TS2. Sur ce schéma, $|i\rangle$ représente l'état initial de l'atome, $|f\rangle$ l'état de l'ion résiduel doublement chargé, et $|n^+\rangle$ décrit l'état de l'ion intermédiaire dans son état excité n .

L'amplitude de transition de cette réaction est alors donnée par la relation :

$$\begin{aligned}
 f^{TS2} = & -2 \sum_n \int \frac{d\vec{p}}{2\pi^3 (k_0^2 - p^2 - k_b^2 - 2I_n + i\eta)} \left\langle \psi_f(\vec{k}_c; \vec{r}_c) e^{i\vec{k}_c \cdot \vec{r}_0} \left| V_{0b} \right| \psi_n^+(\vec{r}_c) e^{i\vec{p} \cdot \vec{r}_0} \right\rangle \\
 & \times \left\langle \psi_n^+(\vec{k}_b; \vec{r}_b, \vec{r}_c) \frac{e^{i\vec{p} \cdot \vec{r}_0}}{(2\pi)^{3/2}} \left| V_{0bc} \right| \psi_i(\vec{r}_b, \vec{r}_c) \frac{e^{i\vec{k}_0 \cdot \vec{r}_0}}{(2\pi)^{3/2}} \right\rangle \\
 & - 2 \sum_n \int \frac{d\vec{p}}{2\pi^3 (k_0^2 - p^2 - k_c^2 - 2I_n + i\eta)} \left\langle \psi_f(\vec{k}_b; \vec{r}_b) e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_0} \left| V_{0c} \right| \psi_n^+(\vec{r}_b) e^{i\vec{p} \cdot \vec{r}_0} \right\rangle \\
 & \times \left\langle \psi_n^+(\vec{k}_c; \vec{r}_b, \vec{r}_c) \frac{e^{i\vec{p} \cdot \vec{r}_0}}{(2\pi)^{3/2}} \left| V_{0bc} \right| \psi_i(\vec{r}_b, \vec{r}_c) \frac{e^{i\vec{k}_0 \cdot \vec{r}_0}}{(2\pi)^{3/2}} \right\rangle
 \end{aligned}$$

De même que pour la réaction TS1, seuls quelques états intermédiaires sont généralement pris en compte dans le calcul. Un des principaux buts des études de la double ionisation est de savoir, entre autres, quel mécanisme a lieu pour une cinématique donnée. Il est à remarquer que les mécanismes TS1 et TS2 étant séquentiels, leur contribution à la section efficace devrait être moins sensible à la corrélation entre les électrons de la cible.

Dans cette thèse, les calculs effectués concernent l'effet SO ainsi que celui de l'effet Auger (décrit dans le paragraphe suivant). En revanche, les mécanismes TS1 et TS2 qui seront pris en compte dans les calculs de sections efficaces ont été réalisés par l'équipe du Pr Claude Dal Cappello de l'Université de Metz.

4. L'effet Auger

Ce travail de thèse s'est principalement axé sur l'étude de l'effet Auger. Ce mécanisme consiste à ioniser un atome (ou une molécule) en couche interne, laissant un ion résiduel dans un état excité. La lacune ainsi créée est comblée par une recombinaison d'un électron de la couche externe vers cette lacune. L'énergie libérée est utilisée de nouveau par l'atome pour s'auto-ioniser en libérant, de ce fait, un électron appelé électron Auger, d'énergie bien définie. Ce processus est donc un processus séquentiel décrit, pour la première étape, par un processus du type $(e,2e)$ puis, pour la seconde, par une auto-ionisation. Dans cette partie, nous ferons quelques rappels sur les notations spectroscopiques avant d'aborder la description des amplitudes du mécanisme Auger⁵.

a. Notations spectroscopiques

Les notations utilisées en spectroscopie Auger et en optique sont quelque peu différentes. Il est donc utile de les rappeler ici. Premièrement, l'ensemble du formalisme se fait dans le cadre de l'approximation du couplage LS (encore appelée Russel-Saunders). Pour décrire les atomes à plusieurs électrons, les seuls nombres quantiques L et S ne sont pas suffisants. Il est alors nécessaire d'introduire un troisième nombre $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$. Son module J est compris entre les valeurs $|L - S|$ et $|L + S|$. Dans ces notations, les nombres quantiques L et S sont respectivement les modules des opérateurs vectoriels \vec{L} et \vec{S} . Ces opérateurs sont définis par $\vec{S} = \sum_{i=1}^N \vec{s}_i$ et $\vec{L} = \sum_{i=1}^N \vec{l}_i$ où N est le nombre d'électrons de la cible et s_i et l_i les opérateurs agissant sur l'électron i. Pour les notations en terme d'état, on utilise souvent les termes S,P,D,... pour caractériser les nombres $L = 0,1,2,\dots$, et en exposant de L, la multiplicité $2S+1$.

⁵ Dans cette thèse nous nommerons mécanisme Auger l'ensemble ionisation en couche interne puis auto-ionisation. Quant au second processus, il sera appelé transition ou processus Auger qui ne prend donc en compte que la seconde étape du mécanisme Auger.

Par exemple le terme 3P caractérise l'état $L = 1$ et $S = 1$. Ce type de couplage pour décrire les atomes à plusieurs électrons est tout à fait adapté pour des atomes de numéro atomique inférieur à 20.

La notation pour les transitions Auger consiste à donner une lettre pour décrire le nombre quantique principal n et un numéro pour ranger les différents termes par énergie décroissante. D'où le tableau I.1 pour la correspondance entre les notations. Concernant les transitions Auger, on parlera de transitions $KL_{1,2}M_1$ pour décrire le processus où l'ionisation primaire a lieu en couche K, puis les électrons de la couche $L_{1,2}$ comblent la lacune libérant de l'énergie pour arracher des électrons Auger de la couche M_1 .

Nombres quantiques			Equivalent en spectroscopie	Notation pour les Auger
n	l	j		
1	0	1/2	$1s_{1/2}$	K
2	0	1/2	$2s_{1/2}$	L_1
2	1	1/2	$2p_{1/2}$	L_2
2	1	3/2	$2p_{3/2}$	L_3
3	0	1/2	$3s_{1/2}$	M_1
3	1	1/2	$3p_{1/2}$	M_2
3	1	3/2	$3p_{3/2}$	M_3
3	2	3/2	$3d_{3/2}$	M_4

Tableau I.1 : Correspondance entre les notations spectroscopique et Auger

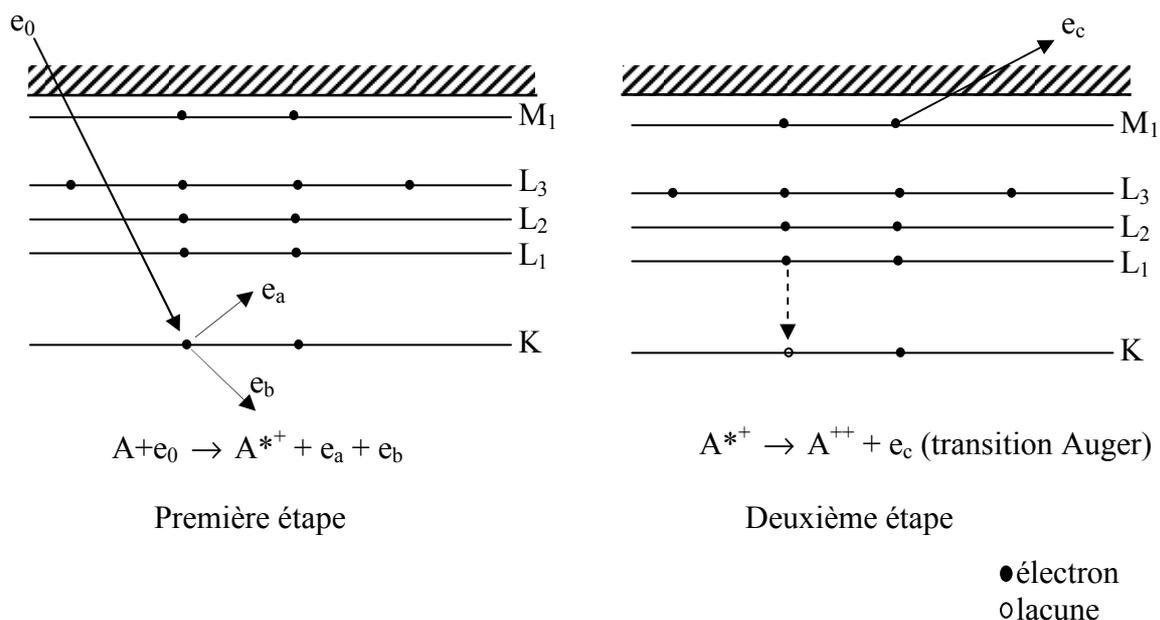


Figure I.7 : Schéma montrant une transition Auger du type KL_1M_1

L'énergie de l'électron Auger est alors la différence entre l'énergie de l'ion doublement chargé et de l'ion intermédiaire, de telle sorte que l'énergie d'un électron Auger est directement reliée à la transition en question.

Dans cette étude, nous nous sommes plus spécifiquement intéressés à la distribution angulaire du mécanisme Auger.

b. Transition Auger

Comme il a été mentionné auparavant, la transition Auger est la transition où un électron de la couche externe comble une lacune en libérant un électron. Les processus Auger auxquels nous nous sommes intéressés sont du type $L_{2,3}M_{2,3}M_{2,3}$ dans l'argon, impliquant dans la transition Auger des électrons de la couche 3p. La transition est représentée par le diagramme de Feynman suivant :

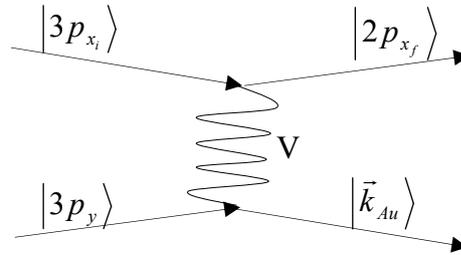


Figure I.8 : Diagramme de Feynman de la transition Auger pour le processus $L_{2,3}M_{2,3}M_{2,3}$

La description de l'état final et de l'état initial nécessite a priori la prise en compte de tous les électrons de l'ion. Par souci de simplification du processus, les états initiaux et finaux sont décrits par des fonctions d'ondes à **un électron actif**. Enfin, il est à remarquer que dans cette transition, un électron est éjecté de la cible. Il est utile néanmoins de préciser ici que la fonction d'onde de l'état initial de la transition Auger est un produit de chacune des fonctions d'onde des électrons de l'argon qui sont impliqués dans la transition Auger. Cette fonction d'onde de l'état initial est donc:

$$\langle \vec{r}_1, \vec{r}_2 | \psi_i \rangle = \langle \vec{r}_1 | 3p_{x_i} \rangle \langle \vec{r}_2 | 3p_y \rangle = g_1(r_1) Y_1^{x_i}(\hat{r}_1) g_2(r_2) Y_1^y(\hat{r}_2)$$

g_1 et g_2 sont des combinaisons linéaires de termes dont les orbitales sont du type 2p et 4p selon les tables de Clementi et Roetti (cf. partie III de ce chapitre). Il en est de même avec l'« état final » 2p de l'argon. Enfin, la description de l'électron Auger peut se faire de différentes manières. Il peut être représenté par une onde plane et dans ce cas l'électron Auger

n'interagit pas avec l'ion résiduel, ou par une fonction d'onde du type coulombienne, qui prend en compte cette interaction. Nous nous proposons alors de détailler le cas où l'électron Auger est décrit par une onde plane puis d'adapter le calcul de ces transitions au cas d'une onde coulombienne.

c. Cas onde plane ; règles de sélection

Dans ce paragraphe, l'étude de la transition Auger⁶ est abordée. Plus spécifiquement, nous allons faire référence à la transition Auger correspondant à une transition d'un électron de la couche 3p vers la couche 2p libérant un électron de la couche 3p. Cette transition Auger est caractérisée par l'amplitude de transition suivante :

$$t = \langle \psi_f | V | \psi_i \rangle = \int \varphi_c^*(\vec{r}_1) 2p^*(\vec{r}_2) \frac{1}{r_{12}} 3p(\vec{r}_1) 3p(\vec{r}_2) d\vec{r}_1 d\vec{r}_2$$

Dans le modèle utilisé ici, seuls les électrons impliqués dans la réaction sont introduits pour décrire l'amplitude de transition : modèle à **2 électrons actifs**. La correspondance en terme d'état entre ce modèle et l'état effectivement étudié est donnée dans le paragraphe III.1.b traitant de la description de l'Ar.

Cette amplitude de transition est caractérisable par les nombres quantiques des deux électrons de l'état initial, de l'électron dans la couche 2p de l'état final, ainsi que par l'impulsion de l'électron dans le continuum. L'amplitude de transition sera alors notée : $t = t_{x,y}^{x_f}(\vec{k}_A)$, où les nombres en indice font référence aux nombres quantiques des deux électrons de la couche 3p, les nombres en exposant à l'électron en couche 2p et \vec{k}_A au vecteur impulsion de l'électron Auger. D'après le modèle de Clementi et Roetti décrit précédemment, les états 3p et 2p de l'Argon sont des produits de termes s'appliquant à la partie radiale et angulaire, soit :

$$\left\langle \vec{r} \left| \begin{matrix} 2 \\ 3 \end{matrix} p(y) \right. \right\rangle = \left(\sum_i c_i r^{n_i} e^{-\xi_i r} \right) Y_1^y(\hat{r})$$

De plus, dans ce paragraphe l'électron Auger est décrit par une **onde plane** dont la fonction d'onde est :

$$\varphi_c(\vec{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} e^{i\vec{k}_A \cdot \vec{r}}$$

⁶ Rappelons la nomenclature adoptée dans la suite de cette thèse : La transition Auger fait référence explicitement au comblement de la lacune en couche interne provoquant l'éjection d'un électron appelé électron Auger. Alors que le mécanisme Auger, quant à lui, fait référence aux étapes d'ionisation en couche interne suivies de la transition Auger.

De manière générale, on peut écrire l'état final et l'état initial par les fonctions non normées suivantes:

$$\begin{aligned}\langle \vec{r}_1, \vec{r}_2 | \psi_f \rangle &= e^{i\vec{k}_A \cdot \vec{r}_2} r_1^{n_1} e^{-\beta_1 r_1} Y_1^{x_f}(\hat{r}_1) \\ \langle \vec{r}_1, \vec{r}_2 | \psi_i \rangle &= r_2^{n_2} e^{-\beta_2 r_2} Y_1^y(\hat{r}_2) r_1^{n_1} e^{-\beta_1 r_1} Y_1^{x_i}(\hat{r}_1)\end{aligned}$$

Les fonctions d'onde décrivant l'état final et initial sont en fait des combinaisons linéaires des deux termes précédents. L'amplitude de transition correspondante à calculer est alors :

$$tg = \int e^{-i\vec{k}_A \cdot \vec{r}_2} r_1^{n_1} e^{-\beta_1 r_1} Y_1^{x_f}(\hat{r}_1) \frac{1}{r_{12}} r_2^{n_2} e^{-\beta_2 r_2} Y_1^y(\hat{r}_2) r_1^{n_1} e^{-\beta_1 r_1} Y_1^{x_i}(\hat{r}_1) d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \quad [\text{FI.14}]$$

Notons que l'expression FI.14 de la transition est un terme générique (tg) qui permettra, par combinaison linéaire, de calculer l'amplitude de transition pour une transition Auger donnée, et il permet de dégager l'essentiel de la physique liée à cette transition. Le terme en $1/r_{12}$ peut se développer selon une base d'harmoniques sphériques d'après la relation de « Lagrange » [Joa1975] :

$$\frac{1}{r_{12}} = \sum_{l,m} \frac{r_{<}^l}{r_{>}^{l+1}} \frac{4\pi}{2l+1} Y_l^{m*}(\hat{r}_1) Y_l^m(\hat{r}_2) \quad \text{où } r_{>} = \max(r_1, r_2), r_{<} = \min(r_1, r_2) \text{ et } -l \leq m \leq l \quad [\text{FI.15}]$$

En introduisant FI.15 dans FI.14, on obtient :

$$\begin{aligned}tg &= \sum_{l,m} \int \frac{r_{<}^l}{r_{>}^{l+1}} r_1^{n_1+n'+2} e^{-(\beta_1+\beta'_1)r_1} r_2^{n_2+2} e^{-\beta_2 r_2} Y_1^{x_f}(\hat{r}_1) Y_1^{x_i}(\hat{r}_1) Y_l^{m*}(\hat{r}_1) dr_1 dr_2 \\ &\quad \times e^{-i\vec{k}_A \cdot \vec{r}_2} Y_l^m(\hat{r}_2) Y_1^y(\hat{r}_2) d\hat{r}_1 d\hat{r}_2\end{aligned} \quad [\text{FI.16}]$$

A ce stade, les intégrales sur les parties radiales et angulaires sont séparées. Deux relations sur les harmoniques sphériques sont alors utiles [Joa1975] :

$$Y_l^{m*}(\hat{r}) = (-1)^m Y_l^{-m}(\hat{r}) \quad \text{et}$$

$$\int Y_{l_1}^{m_1}(\hat{r}) Y_{l_2}^{m_2}(\hat{r}) Y_{l_3}^{m_3}(\hat{r}) d\hat{r} = \sqrt{\frac{(2l_1+1)(2l_2+1)(2l_3+1)}{4\pi}} \begin{pmatrix} l_1 & l_2 & l_3 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_1 & l_2 & l_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix} \quad [\text{FI.17}]$$

Le terme introduit entre parenthèses est le symbole 3j de Wigner qui vérifie certaines propriétés explicitées dans l'annexe I. En particulier, dans l'expression FI.16, il est possible d'appliquer FI.17 sur l'intégrale correspondant aux angles de l'électron 1. D'où la relation suivante :

$$\int Y_l^{-m}(\hat{r}) Y_1^{-x_f}(\hat{r}) Y_1^{x_i}(\hat{r}) d\hat{r} = \sqrt{\frac{9}{4\pi}} \sqrt{2l+1} \begin{pmatrix} 1 & 1 & l \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 1 & l \\ x_i & -x_f & -m \end{pmatrix} \quad [\text{FI.18}]$$

Les propriétés des symboles 3j de Wigner, données dans l'annexe I, permettent de réduire fortement l'ensemble des valeurs de l et de m à utiliser. En particulier, $\begin{pmatrix} 1 & 1 & l \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$ est nul si $l+2$ est impair. De même, ce dernier terme est non nul si $0 \leq l \leq 2$. En résumé, seules les valeurs $l=0$ et $l=2$ n'annulent pas l'intégrale donnée en FI.18. Le 3j $\begin{pmatrix} 1 & 1 & l \\ x_i & -x_f & -m \end{pmatrix}$, est quant à lui non nul si $x_i - x_f - m = 0$ soit $\mathbf{m} = \mathbf{x}_i - \mathbf{x}_f$.

En effectuant les changements de variables :

$$n_1 \leftarrow n_1 + n'_1 + 2 ; n_2 \leftarrow n_2 + 2 ; \beta_1 \leftarrow \beta_1 + \beta'_1$$

dans l'expression FI.17, celle-ci s'écrit :

$$tg = \sum_{l,m} \int_{r'_>}^{r'_<} r_1^{n_1} e^{-\beta_1 r_1} r_2^{n_2} e^{-\beta_2 r_2} (-1)^{x_i - x_f} \sqrt{\frac{9}{4\pi}} \sqrt{2l+1} \begin{pmatrix} 1 & 1 & l \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 1 & l \\ x_i & -x_f & -m \end{pmatrix} dr_1 dr_2 \quad [\text{FI.19}]$$

$$\times e^{-i\vec{k}_A \cdot \vec{r}_2} Y_l^m(\hat{r}_2) Y_1^{x_i}(\hat{r}_2) d\hat{r}_2$$

L'intégration sur la partie angulaire de r_2 n'est pas rendue facile du fait de l'introduction de l'onde plane (terme $e^{-i\vec{k}_A \cdot \vec{r}_2}$). Toutefois, le terme en exponentielle peut aussi se développer sur une base d'harmoniques sphériques d'après la formule :

$$e^{-i\vec{k}_A \cdot \vec{r}_2} = 4\pi \sum_{m',l'} (-i)^{l'} j_{l'}(k_A r_2) Y_{l'}^{m'}(\hat{k}_A) Y_{l'}^{m'*}(\hat{r}_2) \quad [\text{FI.20}]$$

où $j_l(x)$ est la fonction de Bessel sphérique de première espèce. L'introduction de l'expression FI.20 dans le calcul de l'intégration sur la partie angulaire propre à 2, donne la relation suivante :

$$\int Y_l^m(\hat{r}_2)Y_1^y(\hat{r}_2)e^{-i\vec{k}_A \cdot \vec{r}_2} = 4\pi \sum_{m',l'} (-i)^{l'} j_{l'}(k_A r_2) Y_{l'}^{m'}(\hat{k}_A) \int Y_{l'}^{m'*}(\hat{r}_2) Y_l^m(\hat{r}_2) Y_1^y(\hat{r}_2) d\hat{r}_2 \quad [\text{FI.21}]$$

En appliquant FI.20 et FI.18 dans FI.21, celle-ci s'écrit encore :

$$\int Y_l^m(\hat{r}_2)Y_1^y(\hat{r}_2)e^{-i\vec{k}_A \cdot \vec{r}_2} = 4\pi \sum_{m',l'} (-i)^{l'+m'} j_{l'}(k_A r_2) Y_{l'}^{m'}(\hat{k}_A) \times \sqrt{\frac{3(2l+1)(2l'+1)}{4\pi}} \begin{pmatrix} l & l' & 1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l & l' & 1 \\ m & m' & y \end{pmatrix} \quad [\text{FI.22}]$$

Enfin, en introduisant le terme FI.22 dans l'expression de tg, l'amplitude générique s'écrit (en utilisant les propriétés de 3j de Wigner):

$$tg = \sum_{\substack{l \\ |l-1| \leq l' \leq |l+1|}} \sqrt{274\pi} (-1)^{l-x_f+y} (i)^{l'} \begin{pmatrix} 1 & 1 & l \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & l' & l \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 1 & l \\ x_i & x_f & x_f - x_i \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} 1 & l & l' \\ y & x_i - x_f & x_f - x_i - y \end{pmatrix} \sqrt{2l'+1} Y_{l'}^{-x_f+x_i+y}(\hat{k}_A) \times \int_{r_>}^{r_<} r_1^{n_1} r_2^{n_2} e^{-\beta_1 r_1} e^{-\beta_2 r_2} j_{l'}(k_A r_2) dr_1 dr_2 \quad [\text{FI.23}]$$

Notons ${}^l I_{n_1}^{n_2}(\beta_1, \beta_2; k_A) = \int_{r_>}^{r_<} r_1^{n_1} r_2^{n_2} e^{-\beta_1 r_1} e^{-\beta_2 r_2} j_{l'}(k_A r_2) dr_1 dr_2$, cette dernière expression étant

calculée dans l'annexe I. On peut remarquer ici que cette expression est analytique et que de fait, le calcul de l'amplitude de transition est analytique aussi.

$$tg = 4\pi \sqrt{27} \sum_{\substack{l = 0 \text{ ou } 2 \\ |l-1| \leq l' \leq |l+1|}} (-1)^{l-x_f+y} (i)^{l'} \begin{pmatrix} 1 & 1 & l \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & l' & l \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 1 & l \\ x_i & x_f & x_f - x_i \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} 1 & l & l' \\ y & x_i - x_f & x_f - x_i - y \end{pmatrix} \sqrt{2l'+1} Y_{l'}^{-x_f+x_i+y}(\hat{k}_A) {}^l I_{n_1}^{n_2}(\beta_1, \beta_2; k_A) \quad [\text{FI.24}]$$

L'intérêt d'une telle formulation est de montrer que le développement du terme générique est **une combinaison linéaire de deux harmoniques sphériques** correspondant à l'orientation du vecteur \vec{k}_A . En effet, en sommant le terme précédent et en utilisant les valeurs particulières des 3j de Wigner (annexe I), cette dernière relation s'écrit encore :

$$\begin{aligned}
tg = & 4\pi\sqrt{27}i (-1)^{-x_f+y+1} \left\{ \right. \\
& \frac{\sqrt{3}}{3} \begin{pmatrix} 1 & 1 & 0 \\ x_i & -x_f & x_f-x_i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 1 & 0 \\ -x_i+x_f-y & y & -x_f+x_i \end{pmatrix} Y_1^{-x_f+x_i+y}(\hat{k}_A) {}_0I_{n_1}^{m_2}(\beta_1, \beta_2; k_A) \\
& + \frac{2}{\sqrt{30}} \begin{pmatrix} 1 & 1 & 2 \\ x_i & -x_f & x_f-x_i \end{pmatrix} \times \\
& \left[\frac{2}{\sqrt{10}} \begin{pmatrix} 1 & 1 & 2 \\ -x_i+x_f-y & y & -x_f+x_i \end{pmatrix} Y_1^{-x_f+x_i+y}(\hat{k}_A) {}_2I_{n_1}^{m_2}(\beta_1, \beta_2; k_A) \right. \\
& \left. + \frac{3}{\sqrt{15}} \begin{pmatrix} 3 & 1 & 2 \\ -x_i+x_f-y & y & -x_f+x_i \end{pmatrix} Y_3^{-x_f+x_i+y}(\hat{k}_A) {}_2I_{n_1}^{m_2}(\beta_1, \beta_2; k_A) \right] \left. \right\}
\end{aligned} \tag{FI.25}$$

Dans cette formule, la combinaison linéaire entre les deux harmoniques des angles \hat{k}_A apparaît clairement. De plus, les harmoniques mises en jeu dans l'équation FI.25 correspondent aux valeurs de $l = 1$ et 3 . Ces deux harmoniques sphériques ont des distributions angulaires qui sont représentées sur le graphique suivant :

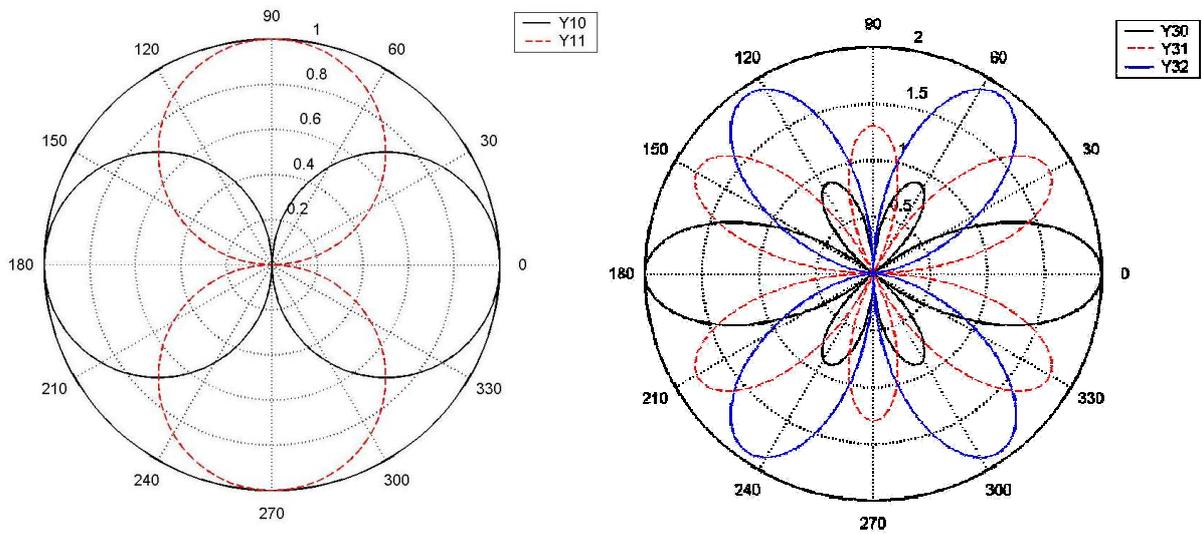


Figure I.7 : Tracé des distributions angulaires des harmoniques sphériques impliquées dans la transition Auger. La figure de gauche représente les distributions pour $l = 1$ et $m_l = 0$ (Y10) et $m_l = \pm 1$ (Y11). La figure de droite représente les distributions pour $l = 3$ et $m_l = 0$ (Y30), $l = 3$ et $m_l = \pm 1$ (Y31) et $l = 3$ et $m_l = \pm 2$ (Y32). Le cas Y33 n'est pas représenté car il correspond à des lobes en $\pm 90^\circ$ et n'apporte pas plus d'informations.

La figure I.7 nous montre que les directions privilégiées pour l'éjection d'un électron Auger se font pour des angles de 150° , 120° , 90° , 60° et 30° dans la gamme angulaire accessible par l'expérience. Cette première analyse est incomplète car en fait la transition Auger est une

combinaison linéaire de ces différentes distributions. Il n'y a guère que pour certaines transitions particulières que cette analyse est exacte.

La décomposition de la fonction d'onde sur une base d'harmoniques sphériques montre que seules certaines valeurs de l sont permises. Ceci peut se retrouver simplement en considérant une étude sur les opérateurs qui, de plus, précisera cette règle de sélection en fonction des états. En effet, supposons que la transition Auger soit caractérisée par un état initial décrit par les nombres quantiques L et M_L (pour les deux électrons en couche $3p$ dans le cas qui nous intéresse mais qui reste valable dans le cas général). Il est alors possible de montrer les relations suivantes :

$$\left[L^2, \frac{1}{r_{12}} \right] = 0 \text{ et } \left[L_z, \frac{1}{r_{12}} \right] = 0 \quad [\text{FI.26}]$$

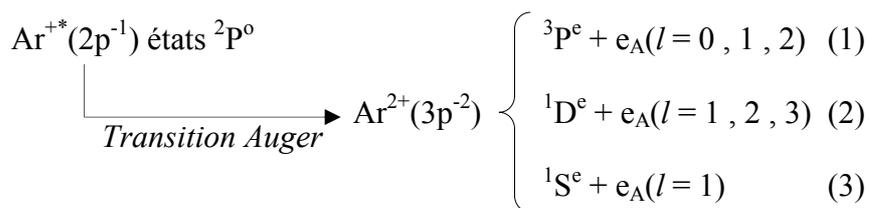
Ce qui signifie que $\frac{1}{r_{12}}$ et L ont une base commune de vecteurs propres. D'où l'expression de l'amplitude de transition :

$$t = \langle \psi_f | \frac{1}{r_{12}} | \psi_i, L, M_L \rangle = \alpha \langle \psi_f | \psi_i, L, M_L \rangle \text{ d'après FI.26}$$

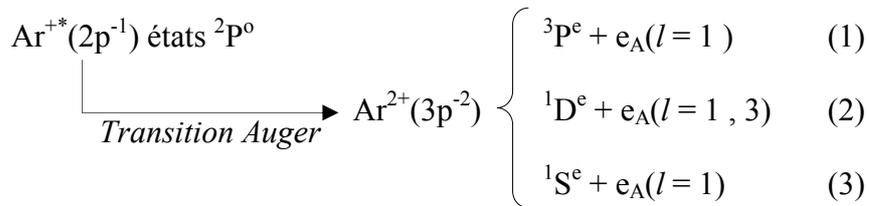
Cette amplitude de transition est non nulle si les nombres quantiques de l'état final sont les mêmes que pour l'état initial. De plus, l'échange des deux électrons ne change rien à l'expression du potentiel coulombien. D'où les règles de sélections générales correspondant à une transition Auger :

$$\Delta S = 0, \Delta M_S = 0, \Delta L = 0, \Delta M_L = 0 \text{ et comme la parité se conserve, } \pi_i \pi_f = +1 \quad [\text{FI.27}]$$

Quelles sont les conséquences physiques de ces règles de sélection dans notre cas des transitions $L_{2,3}M_{2,3}M_{2,3}$? Ces transitions Auger peuvent s'écrire sous la forme (écriture réactionnelle):



L'état initial est caractérisé par $L = 1$ et $S = \frac{1}{2}$ (une lacune en couche 2p) et donc une parité $\pi_i = -1$. La conservation de L nous donne la relation : $L_i = L_f = 1$. L'état final est caractérisé par un ion dans l'état P pour la réaction (1) et un électron Auger de moment cinétique orbital l . La composition de ces deux moments cinétiques orbitaux nous donne l'inégalité : $|l-1| \leq L_f \leq |l+1|$, d'où par conservation : $|l-1| \leq 1 \leq |l+1|$. Clairement, seules les valeurs de $l = 0, 1$ ou 2 satisfont cette inégalité (termes entre parenthèses dans l'écriture réactionnelle). Un raisonnement identique pour les réactions (2) et (3) donne les valeurs de l de l'écriture réactionnelle. Il faut désormais considérer la conservation de la parité. Tous les états finaux de l'ion sont impairs (du fait que les deux électrons proviennent d'une couche p) donc nécessairement, la parité de l'électron Auger doit être impaire. Dans le cas de la réaction (1), ceci signifie que seul $l = 1$ convient. Un raisonnement identique conduit aux valeurs de l suivantes pour l'électron Auger :



On retrouve alors le résultat établi précédemment à savoir que seules les harmoniques sphériques $l = 1$ et 3 décrivent l'électron Auger.

Montrons que ces règles de sélection sont effectivement vérifiées par FI.25 dans le cadre du modèle à deux électrons actifs. Ceci revient à calculer l'amplitude de transition en prenant la fonction d'onde effective. Regardons plus spécifiquement l'état 1S où le terme correspondant à $l = 3$ doit être nul. Cet état est caractérisé par trois termes : deux électrons en $m_l = \pm 1$ et $m_l = 0$. Le terme correspondant à $l = 3$ pour la transition Auger est alors d'après FI.25:

$$(-1)^{-x_f+x_i+y} \begin{pmatrix} 1 & 1 & 2 \\ x_i & -x_f & x_f - x_i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 3 & 1 & 2 \\ -x_i + x_f - y & y & -x_f + x_i \end{pmatrix}$$

avec les couples (y, x_i) suivants : $(0, 0)$ ou $(1, -1)$ ou $(-1, 1)$. La transition pour $m_l = 3$ s'écrit :

$$\begin{aligned}
& \begin{pmatrix} 1 & 1 & 2 \\ 1 & -x_f & x_f - 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 3 & 1 & 2 \\ x_f & -1 & -x_f + 1 \end{pmatrix} && \text{pour le couple } (-1, 1) \\
& + \begin{pmatrix} 1 & 1 & 2 \\ -1 & -x_f & x_f + 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 3 & 1 & 2 \\ x_f & 1 & -x_f - 1 \end{pmatrix} && \text{pour le couple } (1, -1) \\
& - \begin{pmatrix} 1 & 1 & 2 \\ 0 & -x_f & x_f \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 3 & 1 & 2 \\ x_f & 0 & -x_f \end{pmatrix} && \text{pour le couple } (0, 0)
\end{aligned}$$

et la somme de ces trois termes est bien nulle (cf. Annexe I) quelle que soit x_f , corroborant ce qui est énoncé plus haut. Une étude équivalente peut être menée pour les états 3P , avec le même résultat.

Dans l'étude précédente, l'électron Auger a été décrit par une onde plane, de telle sorte que l'interaction de celui-ci avec l'ion résiduel, de charge $Z = 2$, n'est pas introduite. La prise en compte de cette interaction fait l'objet du paragraphe suivant.

d. Cas coulombien

A l'issue de la double ionisation, l'électron interagit avec l'ion résiduel de charge $Z = 2$. La fonction d'onde décrivant l'électron Auger en présence du champ coulombien est donnée par

$$\psi_c(\vec{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \Gamma(1-i\eta) e^{-\pi\eta/2} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} {}_1F_1(i\eta, 1, -i(\vec{k}\cdot\vec{r} + kr)) \quad \eta = -\frac{Z}{k} \quad [\text{Fl.28}]$$

Cette onde coulombienne peut aussi s'écrire en développant son expression dans une base d'harmoniques sphériques [Mes1995]:

$$\psi_c(\vec{r}) = \frac{1}{kr} \sum_{l,m} (2l+1) i^l e^{i\sigma_l} F_l(\eta; kr) Y_l^m(\hat{r}) Y_l^m(\hat{k}) \quad \text{avec } \sigma_l = \text{Arg } \Gamma(l+1+i\eta) \quad [\text{Fl.29}]$$

$$\text{et } F_l(\eta; kr) = c_l e^{ikr} (kr)^{l+1} {}_1F_1(l+1+i\eta, 2l+2, -2ikr) \quad \text{où } c_l = 2^l e^{-\pi\eta/2} \frac{|\Gamma(l+1+i\eta)|}{(2l+1)!}$$

Cette expression est analogue à celle correspondant à l'onde plane à la différence qu'il faut remplacer la fonction de Bessel sphérique de première espèce par :

$$j_l(kr) \leftarrow e^{i\sigma_l} \frac{F_l(\eta; kr)}{kr} \quad \text{d'où le changement } {}_lI_{n_1}^{n_2}(\beta_1, \beta_2; k_A) \leftarrow {}_lI_{n_1}^{n_2}(\beta_1, \beta_2; k_A) \quad [\text{Fl.30}]$$

Les détails concernant le calcul de I_2 sont donnés en annexe I. L'essentiel de la physique n'en est guère changé. En particulier, le raisonnement tenu dans le cas des ondes planes et les

conclusions dressées sur les règles de sélection restent valables. La seule différence réside dans le fait que les combinaisons linéaires entre les harmoniques sphériques sont différentes. Seul le cas où une seule harmonique sphérique intervient dans l'expression de l'amplitude de transition reste identique entre le cas d'une onde plane et coulombienne.

L'étude précédente porte sur la transition Auger uniquement. Cette transition est précédée d'un mécanisme d'ionisation en couche interne du type (e,2e). C'est l'ensemble de ces deux mécanismes qui donne naissance au processus Auger complet.

e. Processus Auger ; interférence de processus

Une transition entre l'état initial $|i\rangle$ et final $|f\rangle$ via une transition Auger s'écrit [Fan1961; TAA1987; Abe1983; SS1997]:

$$t_{fi} = \langle f|V_1|i\rangle + \sum_v \int \frac{\langle f|V_A|\chi_v(\tau)\rangle \langle \chi_v(\tau)|V_2|i\rangle}{E_1 + E_2 + E_S + I^{++} - \varepsilon_v(\tau)} d\tau \quad [\text{FI.31}]$$

Dans l'expression précédente, I^{++} est l'énergie de double ionisation, $|\chi_v(\tau)\rangle$ décrit l'état intermédiaire, E_1 et E_2 sont les énergies des deux électrons dans le continuum et E_S celle du diffusé.

Cette expression est la somme de deux termes : le premier terme correspond à la double ionisation directe (mécanisme SO) ; le second terme est la somme sur tous les états intermédiaires du processus Auger. La somme FI.31 rend compte des **interférences de processus** caractérisant le fait qu'un état initial donné peut engendrer un état final identique en suivant deux voies différentes [New1983]. L'amplitude globale est alors la somme de toutes les amplitudes de chacune des voies. Cette somme est **cohérente** et crée des phénomènes d'interférence entre les processus, d'où le nom.

La transition Auger est caractérisée par une amplitude pour la première ionisation (terme avec le potentiel V_2), et une amplitude pour la transition Auger (terme avec le potentiel V_A). En première approximation, l'énergie $\varepsilon_v(\tau)$ s'écrit $\varepsilon_v(\tau) \approx I_v^+ + E_S + \tau - \frac{1}{2}i\Gamma_v$ [TAA1987] où I_v^+ est l'énergie de simple ionisation amenant à l'état $|\chi_v(\tau)\rangle$ et Γ_v est la durée de vie de ce niveau. De plus, si l'énergie de l'électron incident est assez élevée par rapport à l'énergie de première ionisation (pour ce qui nous concerne, l'ionisation en couche 2p de l'Argon), l'état intermédiaire s'écrit simplement comme le produit des fonctions d'ondes de chaque corpuscule: $|\chi_v(\tau)\rangle = |\psi_v^+\rangle|\tau\rangle$, où $|\psi_v^+\rangle$ prend en compte l'état de l'ion ainsi que l'électron diffusé [VM1994]. De plus, dans la description de l'état final, la fonction d'onde est aussi décrite par un produit des fonctions d'onde des trois électrons. Ceci revient à négliger (ou du

moins à réduire avec une charge effective par exemple) les interactions post-collisionnelles. La fonction d'onde de l'état final s'écrit alors : $|f\rangle = |\vec{k}_1\rangle |\vec{k}_2\rangle |\vec{k}_s\rangle$. En identifiant l'électron 1 comme l'électron éjecté lors de l'ionisation en couche interne, et en notant que V_A ne fait pas intervenir cet électron, l'amplitude correspondant à la recombinaison s'écrit : $\langle f|V_A|\chi_v(\tau)\rangle = \langle \vec{k}_s, \vec{k}_2|V_A|\psi_v^+, \vec{k}_s\rangle \langle \vec{k}_1|\tau\rangle$. Du fait de l'orthonormalisation des fonctions d'onde du continuum, le deuxième terme s'écrit : $\langle \vec{k}_1|\tau\rangle = \delta(\tau - E_1)$. En introduisant cette égalité dans FI.31, celle-ci s'écrit :

$$t_{fi} = \langle f|V_1|i\rangle + \sum_v \frac{\langle f|V_A|\chi_v(E_1)\rangle \langle \chi_v(E_1)|V_2|i\rangle}{E_2 + I^{++} - I_v^+ + \frac{1}{2}i\Gamma_v} \quad [\text{FI.32}]$$

Notons $E_A^v = I_v^+ - I^{++}$ l'énergie nominale de l'électron Auger pour un état intermédiaire v donné. L'électron Auger effectivement détecté aura une énergie E_2 , qui peut ne pas être égale à l'énergie nominale définie ci-dessus. Ceci est dû à l'existence de la durée de vie des niveaux. Cependant la durée de vie de ces transitions est longue par rapport aux processus de simple ionisation. De plus la grande énergie des électrons Auger étudiés, nous permet de faire une hypothèse où les PCI sont négligées. Il est donc justifié de faire l'hypothèse que la durée de vie des niveaux est très grande (de l'ordre de 10^{-13} s) voire infinie. Autrement dit, nous ferons l'hypothèse $\Gamma_v \rightarrow 0$ quelque soit v . D'où la relation :

$$\frac{1}{E_2 - E_A^v + \frac{1}{2}i\Gamma_v} \underset{\Gamma_v \rightarrow 0}{=} -i\pi\delta(E_2 - E_A^v) \quad [\text{FI.33}]$$

Une autre hypothèse de calcul consiste à considérer une énergie moyenne pour les électrons Auger $E_A = \bar{I}_v - I^{++}$ de l'ordre de 205 eV pour les transitions $L_{2,3}M_{2,3}M_{2,3}$. L'égalité FI.33 s'écrit alors $\delta(E_2 - E_A^v) \underset{v}{\approx} \delta(E_2 - E_A)$. L'hypothèse précédente est justifiée par le fait que la résolution en énergie du dispositif expérimental ne permet pas de distinguer les différentes transitions (cf. Chapitre II).

Les conditions expérimentales, en particulier notre résolution en énergie (cf. chapitre II), justifient l'emploi de ces hypothèses simplificatrices. Ces hypothèses restent tout de même assez contraignantes. Par exemple, les auteurs Helenelund et al. [HTG1986] ont pu montrer en étudiant le spectre Auger dans le néon qu'en fonction de l'excès d'énergie, le spectre est modifié. En particulier, le pic de résonance Auger présente un déplacement, qui se fait vers les énergies Auger plus grandes. Ceci peut s'expliquer en imaginant un électron issu de la première ionisation suffisamment lent pour écranter la charge du noyau de telle sorte que l'électron Auger aura de fait plus d'énergie. Huster et al. [HM1982] ont pu déterminer ce

décalage (Δ) en fonction de l'énergie de l'électron éjecté (E) lors de l'ionisation en couche interne ayant la durée de vie Γ : $\Delta = CTE^\alpha$. Helenelund et *al.* ont déterminé une valeur de α égale à -0,54. Ce décalage est dû aux interactions existant après la collision, ce type de phénomène étant appelé Post Collisional Interaction (PCI).

L'expression FI.31, en introduisant FI.33 et les différentes hypothèses précédentes, se réduit alors à :

$$t_{fi} \approx \langle f | V_1 | i \rangle - i\pi \sum_v \langle f | V_A | \chi_v(E_1) \rangle \langle \chi_v(E_1) | V_2 | i \rangle \quad [\text{FI.34}]$$

Afin de bien situer la signification de cette expression, prenons l'exemple d'un état final où deux électrons de la couche 3p sont éjectés avec $m_l = 0$ pour les deux électrons. Les diagrammes correspondant aux deux processus sont donnés par le graphe suivant :

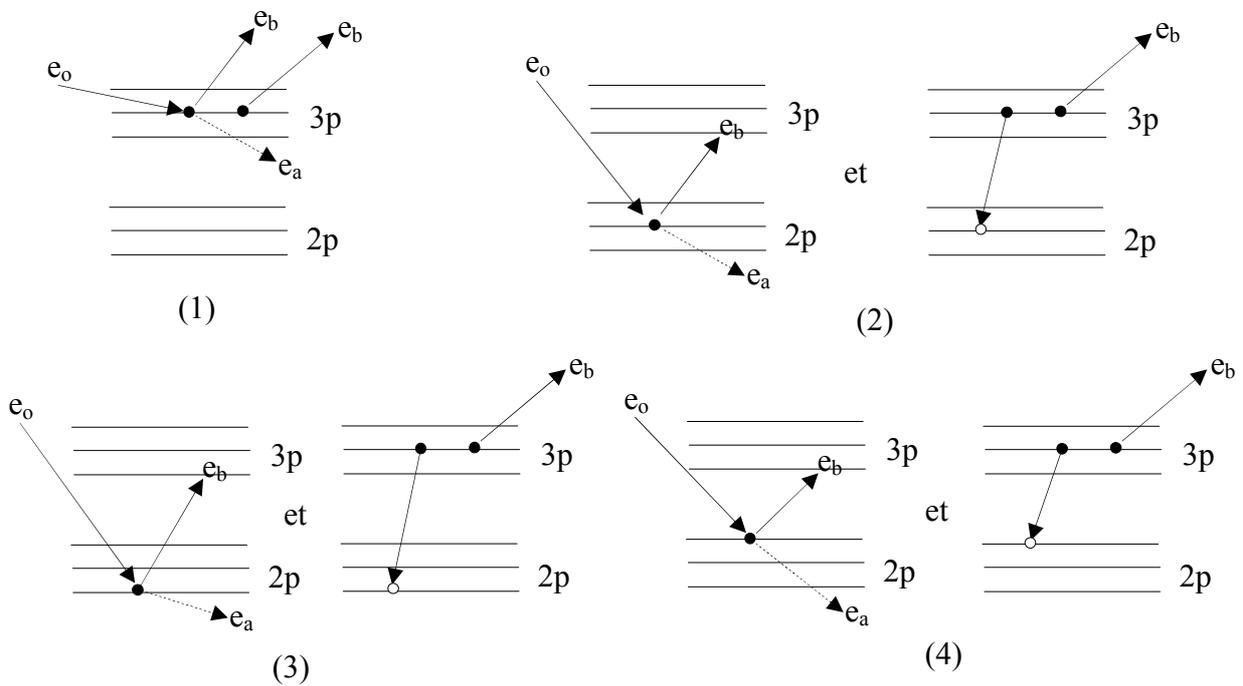


Figure I.10 : Diagramme caractérisant les différents mécanismes conduisant au même état final (configuration) $m_{l1} = 0$ et $m_{l2} = 0$. e_o , e_a , e_b , et e_c font respectivement référence à l'électron incident, diffusé et aux éjectés. (1) est le mécanisme SO. (2) processus Auger comblant la lacune $m_l = 0$, (3) processus Auger comblant la lacune $m_l = -1$ et (4) processus Auger comblant la lacune $m_l = 1$.

L'expression de l'amplitude de transition FI.34 rend compte des différentes voies possibles d'ionisation double pour un état final. Dans le cas de l'ionisation double de l'Argon en couche 3p, il y a 15 états finaux possibles. Pour chaque état final, il faut procéder à la sommation des différentes amplitudes de chaque voie permettant de calculer une section efficace pour un état final donné. Enfin, la section efficace d'ionisation double est la somme des sections efficaces pour chaque état final. D'où l'expression de la section efficace :

$$\sigma = \sum_{\text{tous les } v \text{ états finaux}} \sigma_v \quad \text{où } \sigma_v = \left| t_v^{\text{double ionisation directe}} + \sum_{\text{tous les } \tau \text{ états intermédiaires}} \tau t_v^{\text{Auger}} \right| \quad [\text{FI.35}]$$

Les mécanismes précédents ne prennent pas en compte les états de spin des différents électrons. Il est clair que seules les amplitudes de transitions Auger non nulles sont celles où le spin de l'électron qui comble la lacune et le spin de l'électron ayant été éjecté par les processus (e,2e) sont identiques. De plus, les échanges entre les électrons du continuum ne sont pas du tout inclus dans le modèle. Ce thème est l'objet du paragraphe suivant.

V. Mécanismes d'échange

Jusqu'à présent, les modèles présentés et développés dans cette thèse ont complètement négligé de prendre en compte les états de spin, que ce soit dans l'état final ou dans l'état initial. Schulz [Sch1973] a pris en compte ces états, dans le cas de l'hélium, pour un processus de type SO ; il a également introduit des amplitudes dans la section efficace rendant compte des effets d'échanges des électrons ainsi que de la capture dans le cas de la simple ionisation de l'hélium. Nous nous proposons dans cette partie de reprendre l'étude de Schulz pour l'adapter au cas de l'argon, pour les processus Auger et SO.

1. Cas de He

Le terme « interférence d'échange » fait référence au processus suivant : un électron incident ayant un spin up entre en collision avec la cible d'hélium et échange son spin avec la cible. Ce phénomène peut effectivement se produire car les états propres du système cible+projectile doivent satisfaire un certain nombre de propriétés. Ils doivent être anti-symétriques car composés de trois fermions, mais aussi être états propres de l'opérateur de spin.

Commençons par chercher les états propres de la matrice de spin (S^2). Prenons l'exemple d'un spin up pour l'électron incident⁷. Les états correspondants sont⁸ :

$$u_0 = |++-\rangle \text{ et } u_1 = |+-+\rangle \text{ et } u_2 = |-++\rangle$$

Le vecteur spin s'écrit pour ces trois électrons :

$$\vec{S} = \vec{s}_0 + \vec{s}_1 + \vec{s}_2 \text{ et } \vec{S} \cdot \vec{S} = S^2 = s_0^2 + s_1^2 + s_2^2 + 2\vec{s}_0 \cdot \vec{s}_1 + 2\vec{s}_0 \cdot \vec{s}_2 + 2\vec{s}_1 \cdot \vec{s}_2$$

Dans l'expression précédente, le terme \vec{s}_i fait référence au spin individualisé de l'électron i .

Rappelons que les matrices de Pauli s'écrivent :

⁷ Un spin down ne changera rien au raisonnement et prendre les deux en compte ne ferait qu'alourdir les calculs.

⁸ Les vecteurs de spin sont à lire avec la valeur du spin de l'électron incident en premier suivie de celle des deux électrons de la cible.

$$\sigma_x = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \sigma_y = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} \text{ et } \sigma_z = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$$

De ces expressions, on déduit l'action de l'opérateur S^2 sur les différents vecteurs introduits plus haut. En particulier, on peut écrire :

$$S^2 u_0 = \frac{7}{4} u_0 + u_1 + u_2 \quad \text{de même} \quad S^2 u_1 = \frac{7}{4} u_1 + u_0 + u_2 \quad \text{et} \quad S^2 u_2 = \frac{7}{4} u_2 + u_1 + u_0$$

La matrice S^2 s'écrit :

$$S^2 = \begin{pmatrix} \frac{7}{4} & 1 & 1 \\ 1 & \frac{7}{4} & 1 \\ 1 & 1 & \frac{7}{4} \end{pmatrix} \quad \text{dans la base } B = (u_0, u_1, u_2)$$

Les valeurs propres de cette matrice sont :

$$\lambda_1 = \frac{15}{4} \text{ de multiplicité } 1 \text{ et } \lambda_2 = \frac{3}{4} \text{ de multiplicité } 2. \text{ Il est à noter que ces valeurs propres}$$

sont tout à fait cohérentes, car elles s'expriment bien comme $S(S+1)$ où S est le spin global de l'ensemble des trois particules qui ne peut valoir ici que $1/2$ ou $3/2$. En effet, l'atome d'hélium ayant un spin de 0 ou 1, et l'électron un spin demi entier, la combinaison des deux spins nous donne bien les valeurs de spin explicitées précédemment. On peut donc associer à la valeur propre λ_1 le spin $3/2$ et λ_2 le spin $1/2$. Cherchons à présent les vecteurs propres correspondant à ces valeurs propres. La multiplicité de λ_1 étant simple, le vecteur propre correspondant est unique⁹. L'expression de ce vecteur propre dans la base B est :

$$\chi_3 = \frac{1}{\sqrt{3}} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix}$$

En revanche, la multiplicité de λ_2 est de deux. Donc il est possible de trouver une infinité de combinaisons de vecteurs propres. L'annotation 9 nous permet de réduire l'ensemble de ces vecteurs propres à une solution unique en construisant une base orthonormée. L'expression de ces deux vecteurs est alors :

⁹ Le choix des vecteurs propres est en fait infini. Dans ce cas les vecteurs ne sont pas solutions du problème. En effet, l'ensemble de ces vecteurs solutions physiques doit former une base orthonormée.

$$\chi_2 = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \chi_1 = \frac{1}{\sqrt{6}} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ -2 \end{pmatrix}$$

On peut vérifier que cette nouvelle base est bien une BON¹⁰. L'ensemble des états propres de S^2 doivent aussi être états propres de $S_z = \sum_i s_{iz}$. On montre alors que l'on a les relations suivantes :

$$S_z \chi_3 = \frac{1}{2} \chi_3 \quad \text{d'où } M_s = \frac{1}{2}, \quad S_z \chi_2 = \frac{1}{2} \chi_2 \quad \text{d'où } M_s = \frac{1}{2} \quad \text{et} \quad S_z \chi_1 = \frac{1}{2} \chi_1 \quad \text{d'où } M_s = \frac{1}{2}$$

Ces vecteurs sont donc états propres de S_z avec la même valeur $M_s = \frac{1}{2}$. Ici, nous avons introduit un état u_3 qui contient deux électrons de la cible dont la somme des spins est égale à 1. Ceci n'est pas gênant car les états propres construits le sont pour l'état final. Cependant, lors du calcul des transitions entre état initial et état final, on doit nécessairement trouver 0. L'ensemble de ces états ont été calculés en ne prenant en compte que la partie de spin. Si la partie spatiale est incluse dans la fonction d'onde, les états propres sont alors des déterminants de la forme :

$$w_1 = \frac{1}{\sqrt{6}} \begin{vmatrix} g_0^f(\vec{r}_0)|+\rangle & g_1^f(\vec{r}_0)|+\rangle & g_2^f(\vec{r}_0)|-\rangle \\ g_0^f(\vec{r}_1)|+\rangle & g_1^f(\vec{r}_1)|+\rangle & g_2^f(\vec{r}_1)|-\rangle \\ g_0^f(\vec{r}_2)|+\rangle & g_1^f(\vec{r}_2)|+\rangle & g_2^f(\vec{r}_2)|-\rangle \end{vmatrix}$$

Cet état antisymétrique a été obtenu en appliquant l'opérateur d'antisymétrisation (\mathcal{A}) sur la fonction d'onde : $g_0^f(r_0)g_1^f(r_1)g_2^f(r_2)|++-\rangle$, où $g_i^f(r_j)$ est la fonction d'onde spatiale de la particule i appliquée aux coordonnées de la particule j . Cependant w_1 n'est pas un état propre de l'opérateur S^2 . Qui plus est, il y a aussi les deux déterminants à calculer:

$$w_2 = \frac{1}{\sqrt{6}} \begin{vmatrix} g_0^f(\vec{r}_0)|+\rangle & g_1^f(\vec{r}_0)|-\rangle & g_2^f(\vec{r}_0)|+\rangle \\ g_0^f(\vec{r}_1)|+\rangle & g_1^f(\vec{r}_1)|-\rangle & g_2^f(\vec{r}_1)|+\rangle \\ g_0^f(\vec{r}_2)|+\rangle & g_1^f(\vec{r}_2)|-\rangle & g_2^f(\vec{r}_2)|+\rangle \end{vmatrix} \quad w_3 = \frac{1}{\sqrt{6}} \begin{vmatrix} g_0^f(\vec{r}_0)|-\rangle & g_1^f(\vec{r}_0)|+\rangle & g_2^f(\vec{r}_0)|+\rangle \\ g_0^f(\vec{r}_1)|-\rangle & g_1^f(\vec{r}_1)|+\rangle & g_2^f(\vec{r}_1)|+\rangle \\ g_0^f(\vec{r}_2)|-\rangle & g_1^f(\vec{r}_2)|+\rangle & g_2^f(\vec{r}_2)|+\rangle \end{vmatrix}$$

qui ne sont pas non plus états propres de S^2 . En revanche, l'application de S^2 sur la base $B' = (w_1, w_2, w_3)$ est donnée par la matrice suivante :

¹⁰ Base Othonormée

$$S^2 = \begin{pmatrix} \frac{7}{4} & 1 & 1 \\ 1 & \frac{7}{4} & 1 \\ 1 & 1 & \frac{7}{4} \end{pmatrix} \quad \text{dans la base } B'$$

Le calcul des états propres de cette matrice a déjà été effectué auparavant. Nous les nommerons aussi (χ_1, χ_2, χ_3) avec la même expression que celle utilisée précédemment, mais dans la base B' cette fois-ci. Nous avons ainsi construit les états propres, formant une BON, communs à S^2 et S_z à partir des déterminants de l'état final.

La dernière étape avant de calculer les transitions est de trouver les états propres de l'état initial. Nous allons écrire ces états propres de manière complètement générale en supposant uniquement une symétrie de la fonction d'onde spatiale de l'atome d'hélium. On écrira donc :

$$|\psi_i\rangle = g_0^i(\vec{r}_0)\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)|+-\rangle \text{ dont on extrait } |\psi_i^{As}\rangle = \det(|\psi_i\rangle) = \mathcal{A}|\psi_i\rangle.$$

Il est à noter que par construction (mais le calcul le montre aussi) $S^2|\psi_i^{As}\rangle = \frac{3}{4}|\psi_i^{As}\rangle$ et $S_z|\psi_i^{As}\rangle = \frac{1}{2}|\psi_i^{As}\rangle$, autrement dit $S = 1/2$ et $M_S = 1/2$ pour l'état initial. Le calcul des transitions se fait alors pour les différents états de spin. En particulier le calcul de $\langle \chi_3 | \psi_i^{As} \rangle$ donne un résultat nul ce qui est conforme aux prédictions car, sinon, il y aurait un changement d'état de spin global, ce qui n'est pas possible. Les résultats suivants sont obtenus pour les deux autres kets :

$$\langle \chi_1 | \psi_i^{As} \rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(2f - g - h) \quad \text{et} \quad \langle \chi_2 | \psi_i^{As} \rangle = \sqrt{\frac{3}{2}}(h - g)$$

où les termes suivants ont été introduits :

$$\begin{aligned} f &= g_0^f(\vec{r}_0)g_1^f(\vec{r}_1)g_2^f(\vec{r}_2)Vg_0^i(\vec{r}_0)\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \\ g &= g_0^f(\vec{r}_1)g_1^f(\vec{r}_0)g_2^f(\vec{r}_2)Vg_0^i(\vec{r}_0)\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \\ h &= g_0^f(\vec{r}_2)g_1^f(\vec{r}_1)g_2^f(\vec{r}_0)Vg_0^i(\vec{r}_0)\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \end{aligned}$$

Le terme f est l'amplitude de transition directe, le terme g est l'échange des deux électrons dans le continuum dans les cas (e,2e) et (e,3e), enfin le terme h est l'amplitude de transition avec capture dans le cas (e,2e) et l'échange entre les deux électrons restants du continuum dans le cas (e,3e). La section efficace est alors :

$$\sigma = \left| \langle \chi_1 | \psi_i^{As} \rangle \right|^2 + \left| \langle \chi_2 | \psi_i^{As} \rangle \right|^2 = \frac{1}{2} |2f - g - h|^2 + \frac{3}{2} |h - g|^2 \quad [\text{Fl.36}]$$

L'expression de cette section efficace a été obtenue pour la première fois par Schulz en 1973 par une méthode proche de celle-ci. L'expression de la section efficace ainsi calculée ne s'applique que dans le cas de l'hélium. Il faut donc généraliser cette approche pour l'adapter au cas de l'argon.

2. Cas de Ar

Le modèle développé dans le cas de l'argon pour le processus SO est un modèle à deux électrons actifs. La prise en compte des effets d'échange est identique dans le principe au cas de l'hélium, si ce n'est que cette fois-ci il y a plus d'états qui interviennent. L'expression de l'opérateur S^2 est identique au cas de l'hélium. Cependant il faudra faire intervenir tous les états de spin dont les kets sont donnés par:

$$\begin{array}{llll} |+++ \rangle = u_0 & |+-+ \rangle = u_1 & |--+ \rangle = u_2 & |--+ \rangle = u_3 \\ |++- \rangle = u_4 & |+- - \rangle = u_5 & |-- - \rangle = u_6 & |--- \rangle = u_7 \end{array}$$

L'expression de la matrice de spin dans cette base est alors :

$$S^2 = \begin{pmatrix} \frac{15}{4} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{7}{4} & 1 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & \frac{7}{4} & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 1 & \frac{7}{4} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{7}{4} & 1 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & \frac{7}{4} & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 1 & \frac{7}{4} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{15}{4} \end{pmatrix}$$

Cette matrice est constituée de quatre blocs, dont les deux centraux sont strictement identiques aux deux vus précédemment. Deux états propres supplémentaires ont été introduits : u_0 et u_7 qui correspondent à un état de spin $S = 3/2$. Il est aisé de voir que la projection de spin est $M_S = 3/2$ pour u_0 et $M_S = -3/2$ pour u_7 . On introduit une nouvelle BON qui correspond aux états propres de S^2 . Il faut se rappeler que les états propres finaux doivent aussi être états propres de L^2 , ce qui rend le choix de cette base limité. Toute la question est de savoir comment construire cette nouvelle base. Pour y répondre, l'étape ultérieure est de

décrire complètement l'ensemble des états qui sont anti-symétriques. Cependant, toute combinaison linéaire d'états anti-symétrique est anti-symétrique. Il suffit donc de construire l'ensemble des fonctions d'onde exactement de la même manière que précédemment, pour définir les vecteurs :

$$\begin{aligned}
w_1 &= \frac{1}{\sqrt{6}} \sum_{\sigma} \mathcal{E}(\sigma) g_0(\vec{r}_{\sigma(0)}) g_1(\vec{r}_{\sigma(1)}) g_2(\vec{r}_{\sigma(2)}) |\sigma(+)\sigma(+)\sigma(+)\rangle & w_2 &= \frac{1}{\sqrt{6}} \sum_{\sigma} \mathcal{E}(\sigma) g_0(\vec{r}_{\sigma(0)}) g_1(\vec{r}_{\sigma(1)}) g_2(\vec{r}_{\sigma(2)}) |\sigma(+)\sigma(-)\sigma(+)\rangle \\
w_3 &= \frac{1}{\sqrt{6}} \sum_{\sigma} \mathcal{E}(\sigma) g_0(\vec{r}_{\sigma(0)}) g_1(\vec{r}_{\sigma(1)}) g_2(\vec{r}_{\sigma(2)}) |\sigma(-)\sigma(+)\sigma(+)\rangle & w_4 &= \frac{1}{\sqrt{6}} \sum_{\sigma} \mathcal{E}(\sigma) g_0(\vec{r}_{\sigma(0)}) g_1(\vec{r}_{\sigma(1)}) g_2(\vec{r}_{\sigma(2)}) |\sigma(+)\sigma(+)\sigma(-)\rangle \\
w_5 &= \frac{1}{\sqrt{6}} \sum_{\sigma} \mathcal{E}(\sigma) g_0(\vec{r}_{\sigma(0)}) g_1(\vec{r}_{\sigma(1)}) g_2(\vec{r}_{\sigma(2)}) |\sigma(-)\sigma(-)\sigma(+)\rangle & w_6 &= \frac{1}{\sqrt{6}} \sum_{\sigma} \mathcal{E}(\sigma) g_0(\vec{r}_{\sigma(0)}) g_1(\vec{r}_{\sigma(1)}) g_2(\vec{r}_{\sigma(2)}) |\sigma(+)\sigma(-)\sigma(-)\rangle \\
w_7 &= \frac{1}{\sqrt{6}} \sum_{\sigma} \mathcal{E}(\sigma) g_0(\vec{r}_{\sigma(0)}) g_1(\vec{r}_{\sigma(1)}) g_2(\vec{r}_{\sigma(2)}) |\sigma(-)\sigma(-)\sigma(-)\rangle
\end{aligned}$$

Néanmoins, tous ces états ne sont pas états propres de S^2 . Concernant les états en voie de sortie, la méthode développée pour He est tout à fait applicable. En revanche, pour l'état initial cette démarche est insuffisante car les états doivent être états propres de L^2 . Pour ce faire, la démarche est la suivante : prenons un état propre de L^2 , puis effectuons un produit tensoriel entre cet état et l'état de l'électron incident (avec par exemple le spin up). Appliquons alors l'opérateur d'antisymétrisation, et vérifions si cet état est état propre de S^2 . Prenons deux exemples pour expliciter cette méthode. Soit $^{11}|\varphi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|2p_x 2p_y\rangle - |2p_x \bar{2}p_y\rangle)$, avec x et y valant 0, 1 ou -1. Cet état est état propre de S^2 , et de L^2 pour l'atome d'Argon (à deux électrons actifs). Appliquons à cet état un produit tensoriel avec l'état $|0\rangle = g_0(\vec{r}_0)|+\rangle$, on a alors : $|\psi_i^+\rangle = |\varphi\rangle \otimes |0\rangle$. L'opérateur d'antisymétrisation est simplement celui concernant l'échange des électrons 0;1 et 0;2 car $|\varphi\rangle$ est déjà symétrique. Autrement dit l'opérateur \mathcal{A} s'écrit :

$$\mathcal{A} = \frac{1}{\sqrt{3}} (Id - \sigma_{01} - \sigma_{02})$$

Notons $|\bar{\psi}_i^+\rangle = \mathcal{A}|\psi_i^+\rangle$. Alors $|\bar{\psi}_i^+\rangle$ s'écrit simplement en fonction des (w_i) définis précédemment car $|\bar{\psi}_i^+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (w_1 - w_3)$. Cependant, dans le cas de He, pour le choix de χ_1 et χ_2 , nous avons une certaine liberté. Pour Ar ce n'est pas le cas et l'état χ_1 est donné par :

¹¹ L'ensemble de l'étude est menée pour deux électrons de la couche 2p, mais l'ensemble du raisonnement est tout à fait transposable pour tous les états p, en l'occurrence 3p.

$$\chi_1 = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ -1 \end{pmatrix} \quad \text{dans la base des } (w_i).$$

Rappelons que χ_1 est état propre de S^2 . L'état $|\bar{\psi}_i^+\rangle$ ainsi construit **est état propre** de S^2 . Le même résultat est obtenu pour un état de spin down pour l'électron incident, qui de fait est état propre de S^2 . L'ensemble des kets ainsi construits est donc solution du problème.

Qu'en est-il des états de la forme : $|\varphi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\bar{2p}_x 2p_y\rangle + |2p_x \bar{2p}_y\rangle)$? Si l'opération précédente est appliquée à ce vecteur, on obtient : $|\bar{\psi}_i^+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(w_1 + w_3)$ qui n'est plus état propre de S^2 . En effet, l'opérateur S^2 donne pour cet état :

$$S^2|\bar{\psi}_i^+\rangle = \frac{11}{4} \frac{w_3}{\sqrt{2}} + \frac{11}{4} \frac{w_1}{\sqrt{2}} + \frac{2}{\sqrt{2}} w_2 = \frac{11}{4} |\bar{\psi}_i^+\rangle + \sqrt{2} w_2$$

De plus : $S^2 w_2 = \sqrt{2} |\bar{\psi}_i^+\rangle + \frac{7}{4} w_2$. L'expression de S^2 dans cette nouvelle base est donc :

$$S^2 = \begin{pmatrix} \frac{11}{4} & \sqrt{2} \\ \sqrt{2} & \frac{7}{4} \end{pmatrix} \text{ dont les valeurs propres sont } 15/4 \text{ et } 3/4 \text{ correspondant aux spin } 3/2 \text{ et } 1/2.$$

On peut donc construire un sous espace de vecteurs propres pour cette matrice et l'on obtient alors :

$$|\phi_1\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}}(|\bar{\psi}_i^+\rangle - \sqrt{2} w_2) \text{ pour } S = 1/2 \text{ et } |\phi_2\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}}(\sqrt{2} |\bar{\psi}_i^+\rangle + w_2) \text{ pour } S = 3/2.$$

Ce qui s'écrit encore :

$$|\phi_1\rangle = \frac{1}{\sqrt{6}}(w_1 + w_3 - 2w_2) = \chi_2 \text{ et } |\phi_2\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}}(w_1 + w_3 + w_2) = \chi_3$$

Ces états propres sont exactement ceux trouvés précédemment lors de l'étude des spins purs. Ce dernier résultat valide complètement la méthode adoptée. Il est donc possible de relier l'ensemble des états propres de l'atome d'argon à ceux où l'on introduit l'état de spin de l'électron incident. De même des états de la forme $|\varphi\rangle = |2p_x 2p_y\rangle$ qui ne sont pas états propres, complètent la base ($|\phi_1\rangle, |\phi_2\rangle$) qui vient d'être introduite. En effet, le nombre d'états propres solutions du problème est relié au rang de la matrice.

Un dernier cas à traiter est celui composé de plusieurs déterminants n'ayant pas le même m_l , comme par exemple l'état 1S_0 de l'argon. En effet, l'état propre est alors :

$$\left| ^1S_0 \psi \right\rangle = \left| \overline{2p_1} \overline{2p_{-1}} \right| - \left| \overline{2p_1} \overline{2p_{-1}} \right| - \left| \overline{2p_0} \overline{2p_0} \right|$$

Ici nous n'avons pas pris en compte la norme qui n'intervient pas dans le problème que l'on se pose maintenant. Ce ket s'écrit encore :

$\left| ^1S_0 \psi \right\rangle = v_1 - v_2$ où v_1 et v_2 sont solutions du problème. Du fait que l'ensemble que l'on a défini forme un espace vectoriel, toute combinaison linéaire de ces vecteurs appartient à cet espace, donc $\left| ^1S_0 \psi \right\rangle$ est solution du problème. Le calcul de l'amplitude en est, de plus, simplifié car v_2 est un état qui a été traité dans le cas de He. Nous avons donc défini un ensemble complet d'états propres répondant au problème suivant :

- (1) Les vecteurs sont états propres de L^2 pour les trois électrons
- (2) Les vecteurs sont états propres de S^2 pour les trois électrons
- (3) Les vecteurs sont anti-symétriques

Le calcul de l'ensemble des transitions est long et fastidieux et est explicité dans l'annexe I. Ne seront donnés ici que les résultats et les conséquences physiques de cette prise en compte des échanges. Il nous faut alors introduire les amplitudes suivantes :

$$\begin{aligned} f_{xy} &= g_0^f(\vec{r}_0) g_1^f(\vec{r}_1) g_2^f(\vec{r}_2) (V) g_0^i(\vec{r}_0) g_x^i(\vec{r}_1) g_y^i(\vec{r}_2) \\ f_{xyu} &= g_0^f(\vec{r}_0) g_1^f(\vec{r}_2) g_2^f(\vec{r}_1) (V) g_0^i(\vec{r}_0) g_x^i(\vec{r}_1) g_y^i(\vec{r}_2) \\ g_{xy} &= g_0^f(\vec{r}_1) g_1^f(\vec{r}_0) g_2^f(\vec{r}_2) (V) g_0^i(\vec{r}_0) g_x^i(\vec{r}_1) g_y^i(\vec{r}_2) \\ g_{xyu} &= g_0^f(\vec{r}_2) g_1^f(\vec{r}_0) g_2^f(\vec{r}_1) (V) g_0^i(\vec{r}_0) g_x^i(\vec{r}_1) g_y^i(\vec{r}_2) \\ h_{xy} &= g_0^f(\vec{r}_1) g_1^f(\vec{r}_2) g_2^f(\vec{r}_0) (V) g_0^i(\vec{r}_0) g_x^i(\vec{r}_1) g_y^i(\vec{r}_2) \\ h_{xyu} &= g_0^f(\vec{r}_2) g_1^f(\vec{r}_1) g_2^f(\vec{r}_0) (V) g_0^i(\vec{r}_0) g_x^i(\vec{r}_1) g_y^i(\vec{r}_2) \end{aligned}$$

Les termes f_{xy} font références aux amplitudes directes où x et y correspondent aux valeurs de m_l des deux électrons de la cible. Le terme f_{xyu} quant à lui se rapporte au cas d'une amplitude directe où les deux électrons de la cible se sont échangés après la collision. Il est à remarquer que dans le cas du mécanisme SO ces deux termes sont symétriques si $x = y$, car V est symétrique lui aussi. Ce terme est noté f_x . Enfin le terme g est l'échange entre l'électron

incident et un électron de la cible. Quant à h , il correspond à l'échange entre l'électron incident et l'autre électron de la cible. Le calcul donne :

- **Etat 1S_0**

En notant :

$$t_1 = \frac{1}{\sqrt{6}}(-2f_{1-1} - 2f_{1-1u} + g_{1-1} + g_{1-1u} + h_{1-1} + h_{1-1u})$$

$$t_5 = \frac{1}{\sqrt{6}}(-2f_0 + h_0 + g_0) \quad t_2 = \frac{1}{\sqrt{2}}(h_{1-1} + h_{1-1u} - g_{1-1} - g_{1-1u}) \quad t_6 = \frac{1}{\sqrt{2}}(h_0 - g_0)$$

La section efficace est alors : $\sigma^{^1S_0} = |t_1 - t_5|^2 + |t_2 - t_6|^2$

- **Etat $^1D_0 M_L = 0$**

Avec les notation précédentes

$$\sigma^{^1D_0(0)} = \frac{1}{2}(|t_1 + 2t_5|^2 + |t_2 + 2t_6|^2)$$

- **Etat $^1D_0 M_L = -2$**

$$t_1 = 2f_{-1-1} - g_{-1-1} - h_{-1-1} \quad t_2 = g_{-1-1} - h_{-1-1} \quad \sigma^{^1D_0(-2)} = \frac{1}{2}|t_1|^2 + \frac{3}{2}|t_2|^2$$

- **Etat $^1D_0 M_L = -1$**

$$t_1 = \frac{1}{2}(-2f_{0-1} - 2f_{0-1u} + g_{0-1} + g_{0-1u} + h_{0-1} + h_{0-1u}) \quad t_2 = \sqrt{\frac{3}{4}}(h_{0-1} + h_{0-1u} - g_{0-1} - g_{0-1u})$$

$$\sigma^{^1D_0(-1)} = |t_1|^2 + |t_2|^2$$

- **Etat $^1D_0 M_L = 1$**

$$t_1 = (-2f_{10} - 2f_{10u} + g_{10} + g_{10u} + h_{10} + h_{10u}) \quad t_2 = (h_{10} + h_{10u} - g_{10} - g_{10u})$$

$$\sigma^{^1D_0(1)} = |t_1|^2 + |t_2|^2$$

- **Etat $^1D_0 M_L = 2$**

$$t_1 = 2f_{11} - g_{11} - h_{11} \quad t_2 = g_{11} - h_{11} \quad \sigma^{^1D_0(2)} = \frac{1}{2}|t_1|^2 + \frac{3}{2}|t_2|^2$$

La section efficace est :

$$\sigma^{^1D_0} = \sum_{M_L=-2}^2 \sigma^{^1D_0(M_L)}$$

- **Etat $^3P M_L = -1$**

- $M_S = 1$

$$t_1 = f_{0-1} - f_{0-1u} - g_{0-1} + g_{0-1u} + h_{0-1} - h_{0-1u} \quad t_2 = f_{0-1} - f_{0-1u} - g_{0-1} + g_{0-1u} + h_{0-1} - h_{0-1u}$$

$$\sigma^{3P(-1)(1)} = |t_1|^2$$

- $M_S = 0$

$$t_1 = \sqrt{\frac{3}{4}}(g_{0-1} - g_{0-1u} + h_{0-1} - h_{0-1u}) \quad t_2 = \frac{1}{2}(2f_{0-1} - 2f_{0-1u} - g_{0-1} + g_{0-1u} - h_{0-1} + h_{0-1u})$$

$$\sigma^{3P(-1)(0)} = |t_1|^2 + |t_2|^2$$

- $M_S = -1$

$$\sigma^{3P(-1)(-1)} = \sigma^{3P(-1)(1)}$$

- **Etat ${}^3P M_L = 0$**

- $M_S = 1$

$$t_1 = f_{1-1} - f_{1-1u} - g_{1-1} + g_{1-1u} + h_{1-1} - h_{1-1u} \quad t_2 = f_{1-1} - f_{1-1u} - g_{1-1} + g_{1-1u} + h_{1-1} - h_{1-1u}$$

$$\sigma^{3P(0)(1)} = |t_1|^2$$

- $M_S = 0$

$$t_1 = \sqrt{\frac{3}{4}}(g_{1-1} - g_{1-1u} + h_{1-1} - h_{1-1u}) \quad t_2 = \frac{1}{2}(2f_{1-1} - 2f_{1-1u} + g_{1-1} - g_{1-1u} - h_{1-1} + h_{1-1u})$$

$$\sigma^{3P(0)(0)} = |t_1|^2 + |t_2|^2$$

- $M_S = -1$

$$\sigma^{3P(0)(-1)} = \sigma^{3P(0)(1)}$$

- **Etat ${}^3P M_L = 1$**

- $M_S = 1$

$$t_1 = f_{10} - f_{10u} + g_{10} - g_{10u} + h_{10} - h_{10u} \quad t_2 = f_{10} - f_{10u} - g_{10} + g_{10u} + h_{10} - h_{10u}$$

$$\sigma^{3P(1)(1)} = |t_1|^2$$

- $M_S = 0$

$$t_1 = \sqrt{\frac{3}{4}}(g_{10} - g_{10u} + h_{10} - h_{10u}) \quad t_2 = \frac{1}{2}(2f_{10} - 2f_{10u} + g_{10} - g_{10u} - h_{10} + h_{10u})$$

$$\sigma^{3P(1)(0)} = |t_1|^2 + |t_2|^2$$

- $M_S = -1$

$$\sigma^{3P(1)(-1)} = \sigma^{3P(1)(1)}$$

La section efficace est :
$$\sigma^{3P} = \sum_{M_S=-1}^1 \sum_{M_L=-1}^1 \sigma^{3P(M_L)(M_S)}$$

La section efficace globale est la somme de ces différents termes. Les propriétés physiques sont alors¹² :

- Une section efficace nulle si les trois électrons issus de la double ionisation ont la même énergie et la même direction.
- Une section efficace, pour chacun des états, qui doit être symétrique par échange des rôles des électrons.
- Dans le cadre de la première approximation de Born et si les électrons sont décrits par des ondes planes, une symétrie des termes f est imposée par rapport à l'axe $\vec{K} = \vec{k}_0 - \vec{k}_s$. De même, une symétrie des termes g est imposée par rapport à l'axe $\vec{K} = \vec{k}_0 - \vec{k}_b$ et une symétrie des termes h est imposée par rapport à l'axe $\vec{K} = \vec{k}_0 - \vec{k}_c$.
- On remarquera aussi que dans le calcul des amplitudes de transitions, la structure des fonctions d'onde est conservée. Par exemple l'état 1S_0 est caractérisé par la somme de deux termes. L'un correspond à deux m_l égaux à 0 et l'autre à une combinaison linéaire des m_l égaux à 1 et -1. Cette combinaison linéaire se retrouve dans l'écriture des sections. Par exemple, le lien de linéarité entre les états $m_l = 1$ et -1 et $m_l = 0$ se retrouve sur les amplitudes t_1, t_2 et t_5, t_6 .
- Enfin, si les termes en u sont pris égaux à 0 et si on identifie les y aux x tous égaux à 0, on doit retrouver l'expression de la section efficace avec échange dans le cas de l'hélium, c'est bien le cas. Qu'en est-il pour l'effet Auger ?

Le problème est plus complexe. Il faudrait introduire dans le calcul, l'électron faisant la transition et qui reste dans la cible. De fait, la base vue précédemment doit s'étendre à **90 états**. Le calcul est rendu trop long (en tout cas pour une thèse). Une méthode intermédiaire a donc été adoptée. Elle consiste à utiliser les différents termes de transition calculés précédemment (avec certaines précautions qui sont explicitées par la suite) et à sommer de manière **cohérente**, pour un état final et initial donnés, sur les différentes contributions des états intermédiaires sans prendre en compte l'état de spin de cet électron qui, de toute manière, doit être le même que celui de la lacune. Ceci revient en fait à **négliger les termes de capture** dans le cas où l'on aurait fait le calcul complet avec les quatre électrons. Autrement dit, cette méthode est justifiée dans ce cadre. D'ailleurs, on peut retrouver ce résultat dans le cas de l'Hélium. En effet, si le terme de capture est négligé ($h = 0$) dans l'expression de la section efficace globale donnée en FI.36, l'expression doit s'identifier au cas de l'Hydrogène. FI.36 s'écrit alors :

¹² Bien évidemment, ces propriétés ont été vérifiées dans le programme qui calcule ces sections.

$$\sigma = 2|f|^2 + 2|g|^2 - (f^*g + fg^*)$$

qui est le double de ce que l'on trouve dans le cas du calcul sur l'hydrogène atomique [Joa1975]. Ceci s'explique par le fait que l'on a pris en compte deux électrons pour He et un seul pour H.

Revenons au cas de la transition Auger, certaines précautions sont à prendre. En effet, nous avons précisé que les termes où $x = y$ sont insensibles à l'échange des particules 1 et 2 du fait que le potentiel V est symétrique par rapport à cet échange dans le cas du mécanisme SO. Dans le cas du mécanisme Auger, l'écriture de l'amplitude de transition est un produit de deux termes tels qu'aucun ne reste identique à lui-même si l'on échange le rôle des deux particules initialement dans la cible. L'écriture des amplitudes de transitions est alors modifiée (cf. Annexe I). Enfin, pour chaque terme f , g et h il suffit de faire la somme **cohérente** entre les mécanismes SO et Auger.

VI. Orthogonalité entre état final et initial

L'hamiltonien du système pour l'état final et l'état initial est le même. Qui plus est, l'hamiltonien étant un opérateur hermitique, deux états propres correspondant à deux valeurs propres différentes sont orthogonaux entre eux. Dans notre cas, ceci signifie que les états finaux et initiaux sont orthogonaux. Appliquons ce résultat au cas du mécanisme (e,2e) à deux ondes coulombiennes qui n'a jamais été abordé jusqu'ici. Si l'électron est décrit par une onde coulombienne et l'électron diffusé par une onde plane, ce modèle est appelé Orthogonal Coulomb Wave (OCW).

1. Modèle OCW et introduction de la charge effective

L'idée est d'introduire un ket qui est orthogonal à l'état initial mais basé sur l'état final. Une procédure, dite de Schmidt, permet de construire un tel vecteur. Néanmoins, nous avons choisit de présenter une autre approche. Soient \vec{u} et \vec{v} deux vecteurs qui ne sont pas orthogonaux, comment procéder pour rendre \vec{v} orthogonal à \vec{u} ? Le vecteur \vec{v} peut toujours s'écrire comme la somme d'une partie parallèle et perpendiculaire à un vecteur quelconque (prenons par exemple \vec{u}) d'où : $\vec{v} = \vec{v}^{\parallel} + \vec{v}^{\perp}$. Et nous cherchons \vec{v}^{\perp} , d'où $\vec{v}^{\perp} = \vec{v} - \vec{v}^{\parallel}$. Notons $\vec{u}\vec{u}^{\dagger}P$ l'opérateur de projection de tout vecteur sur le vecteur \vec{u} . \vec{v}^{\parallel} s'écrit : $\vec{v}^{\parallel} = \vec{u}\vec{u}^{\dagger}P\vec{v}$ donc $\vec{v}^{\perp} = \vec{v} - \vec{v}^{\parallel} = \vec{v} - \vec{u}\vec{u}^{\dagger}P\vec{v} = (1 - \vec{u}\vec{u}^{\dagger}P)\vec{v}$. Donc pour trouver \vec{v}^{\perp} il suffit d'appliquer l'opérateur $(1 - \vec{u}\vec{u}^{\dagger}P)$

à \vec{v} . En transposant ceci à notre problème, on identifie \vec{u} à $|\psi_i\rangle$ et \vec{v} à $|\psi_f\rangle$. L'opérateur $\vec{u}P$ s'écrit donc : $|\psi_i\rangle P = |\psi_i\rangle\langle\psi_i|$ car $|\psi_i\rangle$ est normalisé. D'où la relation entre $|\psi_f^\perp\rangle$ et $|\psi_f\rangle$:

$$|\psi_f^\perp\rangle = (1 - |\psi_i\rangle\langle\psi_i|)|\psi_f\rangle = |\psi_f\rangle - |\psi_i\rangle\langle\psi_i|\psi_f\rangle = |\psi_f\rangle - \langle\psi_i|\psi_f\rangle|\psi_i\rangle \quad [\text{Fl.37}]$$

Le calcul de la transition pour cet état orthogonalisé s'écrit alors :

$$t^\perp = \langle\psi_f^\perp|V|\psi_i\rangle = \langle\psi_f|V|\psi_i\rangle - \langle\psi_f|\psi_i\rangle\langle\psi_i|V|\psi_i\rangle = \langle\psi_f|(V - \langle\psi_i|V|\psi_i\rangle)|\psi_i\rangle$$

Il suffit de calculer le terme $\langle\psi_i|V|\psi_i\rangle$. Prenons le cas d'une simple ionisation, le potentiel V s'écrit : $-\frac{1}{r_0} + \frac{1}{r_{01}}$. Nous sommes donc amené à calculer un terme du type :

$\int e^{-i\vec{k}_0\vec{r}_0} e^{i\vec{k}_0\vec{r}_0} \frac{d\vec{r}_0}{r_0}$, qui, clairement, diverge. Pour pallier ce problème, l'idée est d'intégrer sur \vec{r}_0 l'expression de l'amplitude de transition, dans un premier temps. En utilisant la transformation de Bethe [Bet1930] :

$$\int \frac{e^{i\vec{k}\vec{r}_0}}{r_0} d\vec{r}_0 = 4\pi \frac{e^{i\vec{k}\vec{r}_1}}{K^2} \quad \text{l'amplitude s'écrit : } t = \langle\psi_f|-Z + e^{i\vec{k}\vec{r}_1} + e^{i\vec{k}\vec{r}_2}|\psi_i\rangle \quad \text{avec } |\psi_f\rangle$$

décrivant l'électron éjecté ainsi que l'électron resté dans la cible, et $|\psi_i\rangle$ qui décrit les deux électrons dans la cible. C'est sur le ket $|\psi_f\rangle$ que l'on applique la procédure d'orthogonalisation, soit : $t^\perp = \langle\psi_f^\perp|-Z + e^{i\vec{k}\vec{r}_1} + e^{i\vec{k}\vec{r}_2}|\psi_i\rangle = \langle\psi_f^\perp|e^{i\vec{k}\vec{r}_1} + e^{i\vec{k}\vec{r}_2}|\psi_i\rangle$. L'amplitude s'écrit donc :

$$t^\perp = \langle\psi_f^\perp|e^{i\vec{k}\vec{r}_1} + e^{i\vec{k}\vec{r}_2}|\psi_i\rangle = \langle\psi_f|e^{i\vec{k}\vec{r}_1} + e^{i\vec{k}\vec{r}_2} - \langle\psi_i|V|\psi_i\rangle|\psi_i\rangle$$

Ceci revient à remplacer la contribution de la charge nucléaire $Z = 2$ par une charge effective :

$$\mathbf{Z}_{\text{eff}} = \langle\psi_i|V|\psi_i\rangle \quad [\text{Fl.38}]$$

dans l'expression « classique » de cette transition.

Qu'en est-il du cas où l'électron diffusé est décrit par une onde coulombienne ?

2. Cas de deux ondes coulombiennes pour (e,2e)

Le fait de décrire l'électron diffusé par une onde coulombienne change radicalement le problème. En effet, l'intégration sur \vec{r}_0 est alors convergente. Si on réécrit l'amplitude de transition dans le cas coulombien et si on intègre sur \vec{r}_0 , on obtient :

$$t = \langle \psi_f | -\frac{Z}{r_0} + \frac{1}{r_{01}} + \frac{1}{r_{02}} | \psi_i \rangle = \langle \psi_f | -Zg + f(r_1) + f(r_2) | \psi_i \rangle \quad [\text{FI.39}]$$

$$\text{avec } g = \int \varphi_c^*(\vec{r}_0) e^{i\vec{k}_0 \cdot \vec{r}_0} \frac{d\vec{r}_0}{r_0}, \quad f(r_1) = \int \varphi_c^*(\vec{r}_0) e^{i\vec{k}_0 \cdot \vec{r}_0} \frac{d\vec{r}_0}{r_{01}} \quad \text{et} \quad f(r_2) = \int \varphi_c^*(\vec{r}_0) e^{i\vec{k}_0 \cdot \vec{r}_0} \frac{d\vec{r}_0}{r_{02}}$$

Dans le cas où la fonction d'onde de l'état final est orthogonale à l'état initial l'amplitude de transition s'écrit :

$$\begin{aligned} t^\perp &= \langle \psi_f^\perp | -Zg + f(r_1) + f(r_2) | \psi_i \rangle = \langle \psi_f^\perp | f(r_1) + f(r_2) | \psi_i \rangle \\ &= \langle \psi_f | f(r_1) + f(r_2) | \psi_i \rangle - \langle \psi_f | \psi_i \rangle \langle \psi_i | f(r_1) + f(r_2) | \psi_i \rangle \\ &= \langle \psi_f | (f(r_1) + f(r_2) - \langle \psi_i | f(r_1) + f(r_2) | \psi_i \rangle) | \psi_i \rangle \end{aligned}$$

Cette expression est strictement identique à celle de FI.39 si l'on substitue dans l'équation précédente $\langle \psi_i | f(r_1) + f(r_2) | \psi_i \rangle$ par $Z_{eff} g$, autrement dit si on introduit la charge effective dans le cas coulombien :

$$Z_{eff}^c = \frac{\langle \psi_i | f(r_1) + f(r_2) | \psi_i \rangle}{g} \quad [\text{FI.40}]$$

Dans le cas de la double ionisation l'expression de la charge effective est strictement identique. La seule différence intervient dans la description de l'état final et donc aucunement dans l'expression de Z_{eff}^c . Il n'y a guère que dans le cas de l'ionisation simple, en décrivant le processus par un modèle à un électron actif, que les expressions diffèrent. Il faut alors supprimer un des f de l'expression FI.40.

Les résultats concernant ces modèles sont donnés dans le chapitre III.

Références :

- [Abe1983] – T Aberg, in : Inner-Shell and X-Ray Physics of Atoms and Solids, edited by Derk J. Fabian, Hans Klienpoppen and Lewis. p. 251, 1983.
- [AMD2004] – L.U. Ancarani, T. Montagnese and C. Dal Cappello, *Phys. Rev. A.*, **70**, 12711, 2004.
- [AS1972] – Abramowitz M and Stegun I A, “Handbook of Mathematical Functions”, (New York : Dover, 1972).
- [BBK1989] – M Brauner, J S Briggs and H Klar, *J. Phys. B.*, **22** (1989), 2265-2287.
- [Bet1930] – H. Bethe, *Ann. Physik*, **5**, 325, 1930.
- [Bor1926] – M. Born, *Zeist. f. Physik*, **38**, 803, 1926.
- [BS1992] – I. Bray and A.T. Stelbovics, *Phys. Rev. A.*, **46**, 6995, 1992.
- [CR1974] – E. Clementi and C. Roetti, *At. Data Nucl. Data Tables* **14**, 177, 1974.
- [Dor2003] – A. Dorn *et al.*, *Phys. Rev. A*, **68**, 12715, 2003.
- [DHR1995] – C. Dal Cappello, H. Hda and A.C. Roy, *Phys. Rev. A*, **51**, 3735, 1995.
- [Dra1999] – G.W.F. Drake, *Physica Scripta*, T83:83, 1999.
- [EHJ1972] – H. Ehrhardt, K.H. Hesselbacher, K. Jung, K. Willmann, *Case Studies in Atomic Physics*, **2**, 159 (North-Holland Publ. Comp. Amsterdam, 1972).
- [Fan1961] – U. Fano, *Phys. Rev.*, Vol. 124, 1866, 1961.
- [GG1953] – M. Gell-Mann and L. Godlberger, *Phys. Rev.*, 91, p. 398, 1953
- [HM1982] – R Huster and W Mehlhorn, 1982, *Z. Phys. A* **307** 67-73.
- [HTG1986] – K Helenelund, KL Tan and U Gelius, *J. Phys. B.*, **19**, 2659-2666, 1986
- [Joa1975] – C.J. Joachain, “Quantum Collision Theory”. p. 541 and p. appendix C, (North-Holland Publ. Comp., Amsterdam, 1975).
- [LCD2005] – A. Lahmam-Bennani, F. Catoire, A. Duguet and C. Dal Cappello, *Phys. Rev. A*, **71**, 26701, 2005.
- [LDD2003] – A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, C. Dal Cappello, H. Nebdi and B. Piraux, *Phys. Rev. A*, **67**, 10701 2003.
- [MBR2004] – CW McCurdy, M Baertschy and T Rescigno, (Topical review), *J. Phys. B.*, **37** (2004), R137-R187.
- [McG1997] – J.H. McGuire, “Introduction to Dynamic Correlation in Atomic Collisions”, Cambridge University Press, 1997.
- [Mes1995] – A. Messiah, “Mécanique Quantique”, Tome 1, Edition Dunod, 1995.
- [Mkh1998] – R. Mkhater, Thèse de doctorat, Université de Metz, 1998.
- [Mon2006] – Thèse de doctorat, Université de Metz, 2006.
- [Naj1997] – B. Najjari, Thèse de doctorat, Université de Metz, 1997.
- [New1983] – “The quantum theory of nonrelativistic collisions”, Robert E. Krieger Publishing Company, 1983.

- [PDJ1993] – Y. Popov, C. Dal Cappello, B. Joulakian and N.M. Kuzmina, *J. Phys. B*, **27**, 1599, 1993.
- [Pet1961] – R.K. Peterkop, *Opt. Spectr.*, **13**, 1220, 1961.
- [Pet1997] – R.K. Peterkop, « Theory of Ionization of Atoms by Electron Impact”. (Colorado Ass. Univ. Press, Boulder, 1977).
- [Pir1983] – B. Piraux, Dissertation doctorale, Université Catholique de Louvain, 1983.
- [Plu1950] – P. Pluvinage, 1950, *Ann. Phys., Paris* **5** 145
- [RBI1999] – T.N. Rescigno, M Baertschy, W.A. Isaacs and C. W. MacCurdy, *Science*, **286**, 5449, p. 2474-2479, 1999.
- [RS1964] – M.R.H. Rudge, M.J. Seaton, *Proc. Phys. Soc.*, **83**, 680, 1964.
- [Rud1968] – M.R.H. Rudge, *Rev. Mod. Phys.*, **40**, 564, 1968.
- [Sch1973] – M Schulz, *J. Phys. B.*, **6**, 2580-2599, 1973.
- [SPM1960] – J N Silverman, O Platas and F A Matsen, *J. Chem. Phys.* **32** : 1402 (1960)
- [Sla1960] – J.C. Slater, “Quantum Theory of Atomic Structure”, Vol. 1, McGraw-Hill Book Company, 1960.
- [SS1997] – S A Sheinerman and V Schmidt, *J. Phys. B.*, **30**, 1677-1690, 1997.
- [TAA1987] – J. Tulkki, G B Armen, T Aberg, B Crasemann, M H Chen, *Z. Phys. D*, **5**, 241-252, 1987.
- [Twe1992] – R. Tweed, *Z. Phys. D*, **23**, 109, 1992.
- [VM1994] – L Végh and J H Macek, *PRA*, **50**, Number 5, p.4031-4035, 1994.
- [ZWW1992] – X. Zhang, C. T. Whelan, H.R.J. Walters, R. J. Allan, P. Bickert, W. Hink and S. Schönberger, *J. Phys. B*, **25**, 4325, 1992.

CHAPITRE II :

DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Sommaire

I. Introduction	66
II. Description du dispositif expérimental.....	70
1. Enceinte à vide	70
2. Canon à électrons	70
3. Piège à électrons.....	72
4. Source de gaz	73
III. Analyseur à double tore	74
1. Cas du tore simple	74
2. Détecteur sensible en position (DSP).....	77
a. MCP	77
b. Anode résistive	78
c. Vue d'ensemble du DSP	79
IV. Conception et réalisation de l'acquisition par interruption	80
1. Réalisation du circuit; test du protocole de communication	80
2. Acquisition du type Position	84
a. Acquisition des données.....	84
b. Traitement des données.....	85
c. Détermination de l'incertitude	87
3. Acquisition du type (e,2e)	89
4. Acquisition du type (e,3e).....	93
5. Acquisition du type (e,(3-1)e)	99
V. Mise au point du nouveau tore pour les électrons diffusés.....	101
1- Description de l'analyseur.....	101
2- Les effets de bord	103
3- Alimentation des électrodes et du détecteur.....	105
4- Calibrage en énergie	109
5- Calibrage angulaire	111
a. Résolution angulaire due au logiciel	111
b. Résolution angulaire de l'analyseur a	114
c. Simulation de la trajectoire des électrons dans le tore A	117
VI. Caractérisation des analyseurs B et C	121
1. Résolutions en énergie	121
2. Spectre Auger.....	122
3. Distributions angulaires.....	123

Aucune expérience ne prouve que les théories soient justes, mais une seule peut en montrer les limites.

A. Einstein

I. Introduction

L'étude expérimentale fine des mécanismes d'ionisation a été rendue possible grâce au développement des techniques de détection. Les premières mesures de section efficace triplement différentielle (SETD), effectuées par Ehrhardt et al. en 1969 [EST1969], ont été réalisées par un dispositif assez simple dans sa conception, le dispositif était constitué de deux analyseurs sphériques qui détectaient chacun un électron issu de la simple ionisation, à énergie donnée et à angle fixe. Pour mesurer la section efficace en fonction de l'angle de l'électron éjecté, il fallait alors déplacer l'analyseur correspondant. Ces deux électrons sont détectés en coïncidence permettant ainsi de s'assurer qu'ils sont effectivement issus de la même collision; c'est ce que l'on appelle une mesure (e,2e). Cette technique de détection sera détaillée dans la suite de ce chapitre. Ces expériences ont montré une plus forte sensibilité de la SETD vis-à-vis de la fonction d'onde décrivant la cible [GI1965] que la section totale, d'où l'intérêt d'une telle mesure.

Les développements récents des techniques expérimentales, ont permis de mesurer des sections quintuplement différentielles (SEQD) [Dup1991] correspondant à une double ionisation. Cette mesure, appelée (e,3e), permet une détection, en coïncidence, des trois électrons issus de l'ionisation double. Jusqu'en 1996 [Dup1993], le dispositif expérimental, utilisé par le groupe (e,3e) d'Orsay, était constitué de deux analyseurs sphériques pour chacun des électrons éjectés et d'un analyseur cylindrique pour la détection de l'électron diffusé. Durant sa thèse de doctorat, Brahim El Marji [Elm1996] a développé deux nouveaux analyseurs multi-angle identiques, pour chacun des électrons éjectés. Ces analyseurs sont de type toroïdal ; leur propriété principale est de former une image des électrons issus du volume de collision pour une énergie donnée, en préservant la distribution angulaire de ces électrons. Ce type d'analyseur sera décrit en détail dans la suite de ce chapitre. L'analyseur cylindrique a été conservé pour détecter l'électron diffusé à angle fixe, mais n'est plus guère utilisé.

D'autres dispositifs ont été élaborés pour l'analyse et l'étude de la simple ou de la double ionisation. Dans ce paragraphe, nous nous contenterons de la description succincte de trois dispositifs existants afin de montrer leurs limites et leurs avantages. Il est à noter que tous ces dispositifs peuvent être mis en œuvre soit pour un projectile électronique soit photonique.

Le premier appareillage est appelé « réaction microscope » [UMD2003]. Il est constitué de deux tubes entre lesquels est appliqué un champ électrique, chacun de ces tubes mesurant les temps de vol pour les ions et les électrons. Ces tubes sont couplés à des détecteurs à lignes à retard. L'intérêt d'un tel dispositif est de collecter l'ensemble des particules sur la quasi-totalité des 4π sr d'angle solide. En revanche, la détection est limitée à la mesure des électrons de faibles énergies, typiquement inférieures à 5 eV avec une résolution de l'ordre du meV pour ces particules. Les ions sont détectés avec une énergie de l'ordre du meV avec une

résolution du μeV . Cet appareillage n'est donc pas adapté à la mesure des électrons rapides comme les électrons Auger.

Un dispositif permettant une analyse d'électrons rapide a été développé par Ford *et al.* [FDC1995]. Cet appareil est constitué de trois analyseurs hémisphériques dont deux analysent des électrons sur 360° et le troisième détecte un électron à angle fixe. Les deux analyseurs à symétrie de révolution, sont couplés à quatre détecteurs définissant chacun un angle solide d'analyse de $0,04$ sr. Cette géométrie permet de mesurer des électrons de grandes énergies qui ne sont pas nécessairement contenus dans le plan de diffusion.

Le troisième dispositif est celui réalisé par le groupe d'Avaldi [BCA2004]. Ce dernier, est composé de 10 analyseurs hémisphériques mono-canal contenus dans un plan. Cet ensemble est lui-même constitué de deux sous-ensembles composés pour l'un de sept analyseurs et l'autre de trois. L'ensemble du dispositif est adapté pour une mesure de deux électrons en coïncidence, contrairement aux appareillages définis précédemment qui peuvent détecter jusqu'à trois électrons en coïncidences. La résolution énergétique des analyseurs est de l'ordre de 3% de l'énergie de passage et permettent de détecter des électrons avec une résolution angulaire de $\pm 3^\circ$.

Le dispositif du groupe où à été effectué ce travail de thèse, est quant à lui limité à une géométrie coplanaire mais cet appareil peut détecter des électrons aussi bien lents que rapides. La description du dispositif sous sa forme actuelle fait l'objet du paragraphe suivant.

Une partie de ce travail de thèse a consisté à mettre en œuvre un nouvel analyseur toroïdal pour la détection multi-angle de l'électron diffusé. La mise au point de cet analyseur a nécessité le développement d'une nouvelle électronique d'acquisition ainsi que de l'ensemble des programmes s'y afférant.

Dans ce chapitre, nous nous proposons de décrire les différents analyseurs utilisés dans les expériences. Ensuite, une description de la technique d'acquisition sera donnée ainsi que les différents programmes associés.

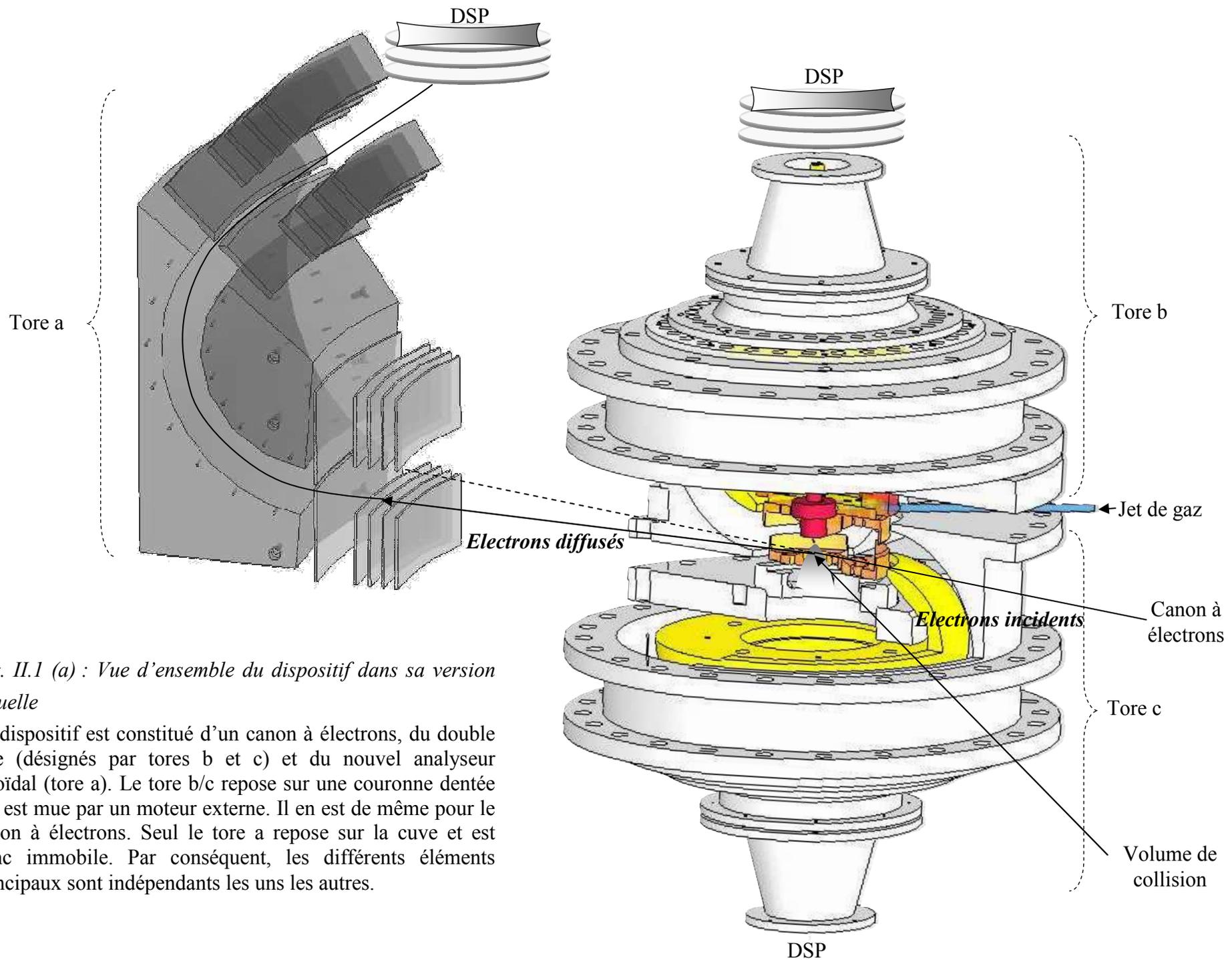


Fig. II.1 (a) : Vue d'ensemble du dispositif dans sa version actuelle

Le dispositif est constitué d'un canon à électrons, du double tore (désignés par tores b et c) et du nouvel analyseur toroïdal (tore a). Le tore b/c repose sur une couronne dentée qui est mue par un moteur externe. Il en est de même pour le canon à électrons. Seul le tore a repose sur la cuve et est donc immobile. Par conséquent, les différents éléments principaux sont indépendants les uns les autres.

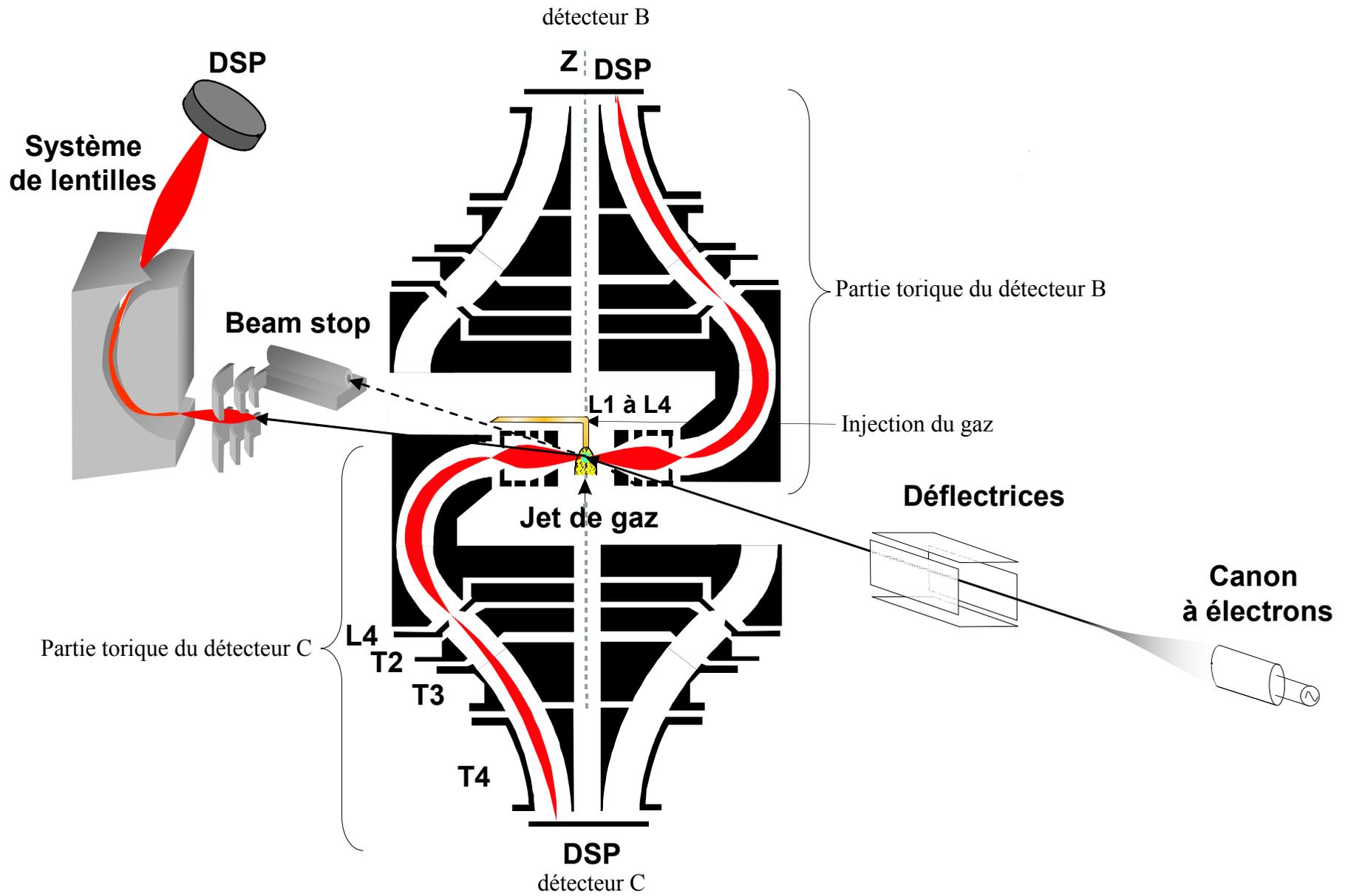


Fig. II.1 (b) : Vue schématique de l'ensemble du dispositif

II. Description du dispositif expérimental

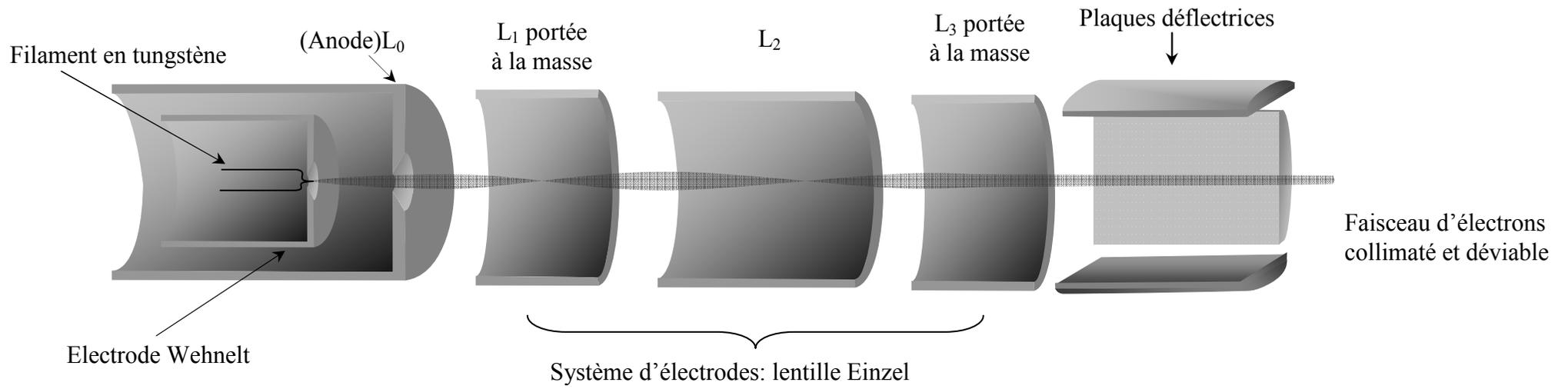
La collision des différents partenaires est obtenue par la technique des faisceaux croisés. Un jet de gaz croise perpendiculairement un faisceau d'électrons produit par un canon. Les fragments issus de la collision (des électrons en ce qui nous concerne) sont ensuite détectés et analysés. L'ensemble des éléments sont réunis sur le schéma de la *figure II.1 (a)* et seront détaillés dans cette partie.

1. Enceinte à vide

L'enceinte principale est un cylindre de ~ 100 cm de haut et de ~ 120 cm de diamètre. L'ensemble est maintenu sous vide secondaire grâce à deux pompes à diffusion d'huile couplées à des pompes primaires à palettes. Ces pompes nous assurent un vide résiduel de l'ordre de 10^{-6} Torr et une pression de travail (en présence du gaz à étudier) de l'ordre de 3 à $6 \cdot 10^{-5}$ Torr. La précision de la mesure des angles des différents électrons analysés nécessite l'absence de toute perturbation extérieure, en particulier le champ magnétique. C'est la raison pour laquelle l'ensemble du dispositif est entouré d'un matériau à forte perméabilité magnétique (appelé μ -métal) qui force les lignes de champ magnétique à entourer la cuve et non à y pénétrer. Ce dispositif est l'équivalent de la cage de Faraday du point de vue magnétique. De plus, autour du dispositif un ensemble de trois paires de bobines, en configuration Helmholtz, ont été placées orthogonales deux à deux. Ainsi, en modifiant le courant dans chacune des paires, il est possible d'ajuster le champ magnétique dans l'enceinte selon les trois axes e_x , e_y et e_z (qui forment un trièdre) définis par l'entraxe de chaque paire. Ce champ magnétique est alors ajusté pour avoir un champ quasi-nul dans l'ensemble du plan de collision, ce qui est effectivement le cas, avec un champ résiduel inférieur à 20 mG.

2. Canon à électrons

Le faisceau d'électrons est produit par un canon qui a été conçu par Ilham Taouil [Tao2000]. Au cours de sa thèse de doctorat, Ilham a réalisé un canon [cf. figure II.2] dont la caractéristique principale est de produire un faisceau d'électrons aussi bien collimaté que possible pour une gamme d'énergie allant de 500 à 2000 eV. Cette focalisation est nécessaire afin de définir un volume de collision aussi petit que possible. Le canon est constitué d'un filament de tungstène chauffé par effet Joule.



Le microscope étourdit
l'ignorant il ne l'instruit
pas.

Alain

Fig. II.2 : Schéma du canon à électrons

Les électrons émis sont extraits à l'aide d'un élément métallique porté à un potentiel négatif par rapport au filament, appelé électrode Wehnelt. Le rôle de cette électrode est aussi de focaliser en partie le faisceau d'électrons. A la suite de cet élément, est disposé un jeu de trois électrodes cylindriques assurant l'action focalisatrice. Ces trois éléments forment une lentille appelée lentille Einzel [TLR1985, Boe1989, LR1985]. En particulier, l'électrode L_2 est portée à un potentiel négatif créant entre L_1 et L_2 une zone de freinage qui a pour principale propriété de focaliser le faisceau d'électrons. En sortie du canon sont disposées quatre électrodes planes et orthogonales deux à deux. Cet ensemble sert à dévier le faisceau.

Toute la difficulté de ce dispositif est de focaliser un faisceau d'électrons d'énergie relativement faible, au niveau du jet de gaz qui est à une distance de ~ 60 cm du filament. Une étude approfondie de ce canon a été donnée par I. Taouil [Tao2000]. L'essentiel est que pour passer d'une énergie à une autre une règle de proportionnalité sur les potentiels mis en jeu nous donne l'ordre de grandeur de la nouvelle valeur de chacun d'entre eux. Il suffit alors d'explorer finement autour de ces valeurs pour optimiser le faisceau. En sortie du double tore, un dispositif appelé piège à électrons ou Beam Stop (BS) joue différents rôles qui seront précisés dans la partie suivante. Il sert, entre autres, à mesurer la taille du faisceau électronique à la sortie du tore b/c. La taille de ce faisceau atteint difficilement (mais avec persévérance !) un diamètre de l'ordre du millimètre au niveau du BS qui est situé à 30 cm du volume de collision pour une énergie de l'ordre de 600 eV. Les valeurs typiques de courants mesurés sont de l'ordre du nA.

3. Piège à électrons

Avant le début de cette thèse, le piège à électrons (appelé aussi beam stop : BS) était disposé à l'opposé du canon à électrons, sur la même couronne. A cette même place se situe désormais le nouvel analyseur. De fait, le piège a dû être fixé sur le tore b/c au niveau de la fente de sortie, à hauteur du plan défini par le canon à électrons et la fente d'entrée du tore a.

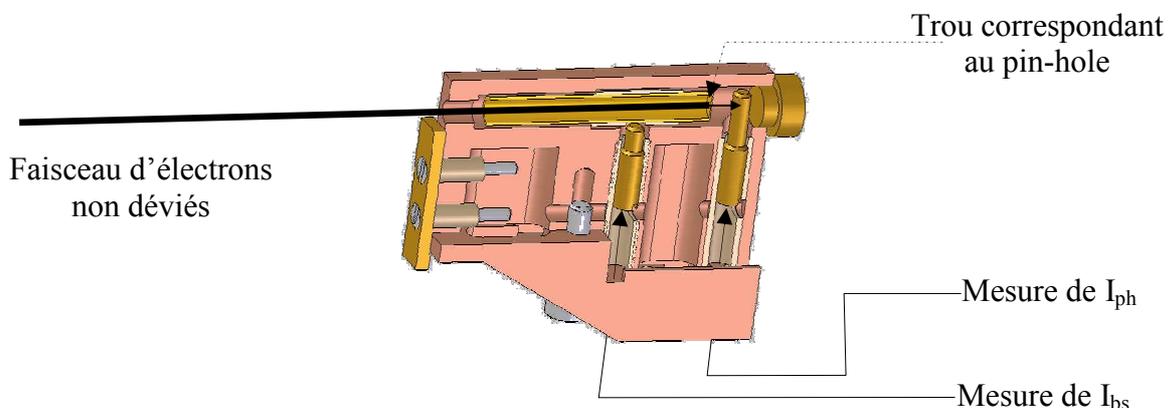


Fig. II.3 : Schéma du piège à électrons

Le nouveau BS est un cylindre creux, fermé en sortie, isolé électriquement, qui collecte le courant d'électrons n'ayant pas interagi avec la cible (cf. *figure II.3*) (ce qui représente la grande majorité des électrons), ainsi que les électrons secondaires produits afin qu'ils ne perturbent pas les mesures. Le grand rapport longueur du cylindre (35 mm) sur son diamètre intérieur d'entrée (4 mm) permet de minimiser la rétrodiffusion (backscattering) d'électrons de haute énergie produits sur les parois du fond. De plus, pour minimiser la production d'électrons secondaires de basse énergie (généralement ≤ 10 eV), une tension de l'ordre de +20 V est appliquée sur la face interne du BS. Le rôle de cette tension est d'autant plus crucial qu'actuellement le BS est plus proche du tore b/c qu'auparavant. Sur la face interne du BS est percé un trou de 0,1 mm de diamètre. En face de celui-ci, une tige métallique isolée électriquement mesure le courant passant au travers de ce trou. Ce courant, appelé I_{ph} pour « pin hole » est, dans les meilleures conditions, de l'ordre de 1 à 0,5 % de celui du BS.

La distribution spatiale de l'intensité du faisceau d'électrons est du type gaussien. En fait, le BS permet de donner une image en 2D de cette distribution. En effet, si l'on suppose que le trou du ph est positionné en x et y par rapport au maximum d'intensité, le courant collecté I_{ph} est alors la valeur de l'intensité du faisceau d'électron en ce point. De plus, les déflectrices en sortie du canon à électrons permettent de dévier le faisceau, autrement dit, relativement au faisceau, de faire varier x et y . Il est donc possible de tracer $I(x,y)$ et d'avoir la distribution spatiale de l'intensité du faisceau d'électrons au niveau du BS. Un bon faisceau est alors un faisceau fin (~ 1 mm de diamètre) et symétrique.

4. Source de gaz

Le jet de gaz est de type effusif. Il est obtenu par l'intermédiaire d'un capillaire métallique (appelé buse) de 0,2 mm de diamètre intérieur et de 8 mm de long (cf. *figure I.1.b*). Cette buse est mobile le long de l'axe z qui est l'axe perpendiculaire à la direction donnée par le faisceau d'électrons. Une vanne à pointeau, accessible de l'extérieur, permet de régler la pression d'admission qui est de l'ordre de 5 à 10 T. La buse est isolée électriquement et permet de mesurer le courant collecté. Toute valeur trop grande de ce courant signifie que le faisceau d'électrons touche la buse, produisant des électrons secondaires qui viennent perturber les mesures. Un « bon » réglage consiste à placer le faisceau d'électrons à environ 1 mm en dessous de la buse pour éviter toute diffusion. Un faisceau déplacé trop bas, car dans ce cas la densité de gaz, à l'intersection des deux jets, n'est pas suffisante pour avoir une bonne localisation du volume de collision défini par le volume d'intersection du jet de gaz et du faisceau d'électrons et un bon taux de comptage sur les détecteurs. La méconnaissance de la forme volumique du faisceau en cet endroit ne nous permet pas de quantifier précisément le volume de collision. Néanmoins, on peut l'estimer comme étant de l'ordre du mm^3 . La densité de gaz dans le volume de collision est de l'ordre de 10^{12} atomes/ cm^3 .

III. Analyseur à double tore

Les principaux éléments du dispositif expérimental sont le double analyseur toroïdal et le nouvel analyseur.

De manière générale, un analyseur toroïdal simple est constitué de deux secteurs toriques portés à des potentiels différents. Le champ électrique qui en résulte ne laisse passer que les électrons qui ont une énergie spécifique. Il permet en particulier de former une image fidèle de la distribution angulaire des électrons émergeant du volume de collision dont les vecteurs vitesses sont contenus dans le plan de collision (cf. *figure II.4*). L'angle d'éjection des électrons analysés peut-être compris entre 0 et 360°. La physique des processus est alors limitée aux cas où les énergies des électrons détectés sont identiques.

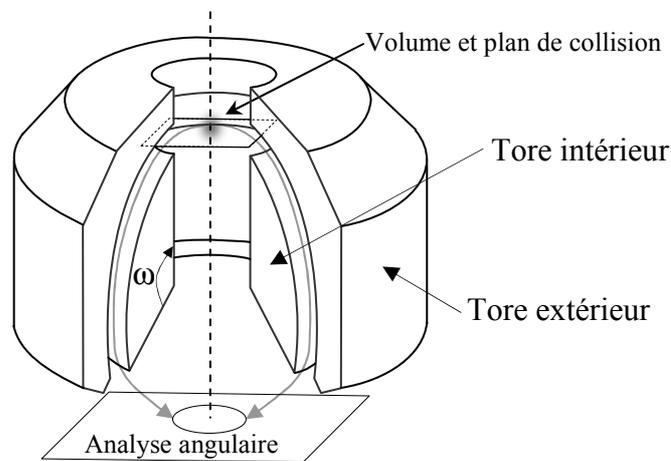


Fig. II.4 : Schéma d'un analyseur toroïdal

L'idée qui a été adoptée par l'équipe en 1996 [Elm1996], a été de scinder cet analyseur en deux. Cela permet d'avoir un analyseur pour chaque demi-plan (à droite et à gauche de la direction incidente) mais cette fois-ci la paramétrisation de chaque tore est différente, ce qui permet une détection d'électrons avec des énergies différentes pour chaque demi-tore. Dans la suite de ce chapitre est développée une analyse qui permet, dans un premier temps, de déterminer les différents paramètres utiles des analyseurs toroïdaux, et dans un second temps de décrire le détecteur sensible en position.

1. Cas du tore simple

Les deux paramètres principaux de l'analyseur toroïdal sont le rayon principal, noté a , définissant la symétrie cylindrique autour de l'axe Oz , le rayon moyen b (symétrie de révolution de centre O) et le secteur angulaire ω . La *figure II.5* représente ces paramètres. Une étude complète de ce type d'analyseur a été faite par différents auteurs [Boe1989, LR1985,

TLR1985]. Nous nous proposons ici de reprendre cette étude, sous une autre forme, afin de retrouver les principales caractéristiques énergétiques en fonction des paramètres principaux.

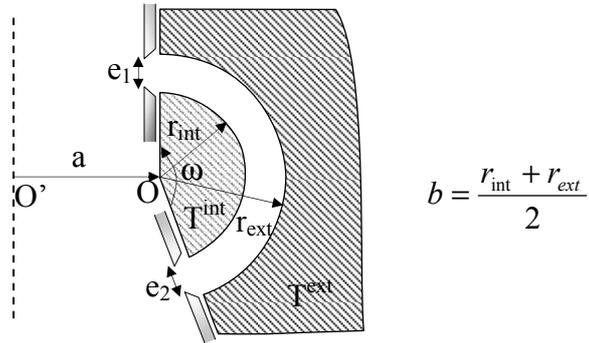


Fig. II.5 : Définition des paramètres principaux du tore; coupe dans le plan radial

Entre les électrodes toriques intérieure et extérieure, respectivement désignées par T_{int} et T_{ext} le champ électrique est, pour des raisons de symétrie, selon la direction radiale définie par le centre O de la figure II.6.

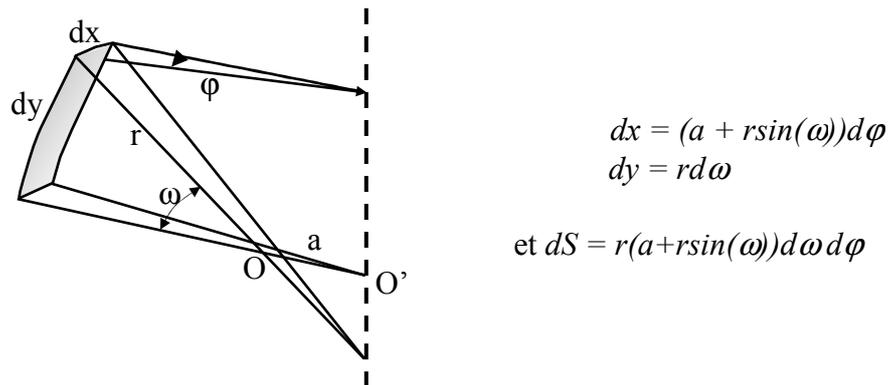


Fig. II.6 : Élément de surface pour la géométrie torique

De plus, vue la géométrie de ce tore et en négligeant les effets de bords, le champ ne dépend pas des angles ϕ et ω . Cette hypothèse est restrictive mais reste valable dans une certaine mesure [TLR1985]. Grâce à ces symétries, le théorème de Gauss s'écrit :

$$\oiint \vec{E} \cdot d\vec{S} = \iint E_r(r) dS = \frac{Q_{int}}{\epsilon_0}$$

L'élément de surface décrit par le champ électrique s'écrit :

$$dS = r(a + r \sin(\omega)) d\phi d\omega$$

d'où en intégrant :

$$\iint E_r(r) r(a + r \sin(\omega)) d\phi d\omega = 2\pi E_r(r) r(a\pi + 2r) = \frac{Q_{int}}{\epsilon_0} \quad \text{soit} \quad E_r(r) = \frac{Q_{int}}{2\pi\epsilon_0} \frac{1}{r(a\pi + 2r)}$$

Notons $E_0 = \frac{Q_{int}}{2\pi\epsilon_0}$, le champ électrique et le potentiel s'écrivent alors:

$$E_r(r) = E_0 \frac{1}{r(a\pi + 2r)} \Rightarrow V(r) = -\frac{E_0}{a\pi} \ln\left(\frac{r}{2r + a\pi}\right) + K \quad \text{car } \vec{E} = -\overrightarrow{\text{grad}}(V)$$

K et E_0 sont des constantes à déterminer.

Si un potentiel nul est imposé pour $r = b = \frac{r_{\text{int}} + r_{\text{ext}}}{2}$ (le rayon moyen), alors K est donné par l'expression suivante:

$$K = \frac{E_0}{a\pi} \ln\left(\frac{b}{2b + a\pi}\right) \quad \text{de fait} \quad V(r) = \frac{E_0}{a\pi} \ln\left(\frac{b(2r + a\pi)}{r(2b + a\pi)}\right)$$

Le rapport des champs électriques en r quelconque et en $r = b$ nous donne :

$$\frac{E_b}{E_r} = \frac{r(a\pi + 2r)}{b(a\pi + 2b)} \quad \text{d'où} \quad E_0 = bE_b(a\pi + 2b) \quad \text{soit} \quad E_r(r) = bE_b(a\pi + 2b) \frac{1}{r(a + 2r)}$$

Les électrons qui ont l'énergie équivalente à l'énergie de passage $E_p = eV_p$ sont ceux qui ont une trajectoire correspondant à l'équipotentielle $V = 0$, soit $r = b$. De ce fait, il est possible de relier la valeur du champ E_b à V_p . Il suffit en effet d'écrire que l'énergie cinétique est :

$\frac{1}{2}mv^2 = eV_p$ et que selon l'équation de Newton dans le repère de Frénet :

$$\vec{F} = -e\vec{E} = -\frac{mv^2}{r}\vec{u}_r \Rightarrow eE_r(b) = \frac{mv^2}{b} = eE_b = \frac{2eV_p}{b} \quad \text{soit} \quad E_b = \frac{2V_p}{b}$$

L'expression générale du potentiel s'écrit alors :

$$V(r) = \frac{2V_p(a\pi + 2b)}{a\pi} \ln\left(\frac{b(2r + a\pi)}{r(2b + a\pi)}\right) \quad \text{[FII.1]}$$

Cette expression permet donc de calculer les potentiels à appliquer sur les tores intérieur et extérieur pour une énergie de passage et une géométrie données.

La résolution radiale correspond en fait à la résolution en énergie. Un point important concernant la géométrie torique, est qu'une image ponctuelle en entrée de cet analyseur doit redonner une image ponctuelle en sortie. Une analyse précise de l'image formée par un tel dispositif est faite par Toffoletto et al. [TLR1985]. L'essentiel étant que le paramètre sans dimension c , donné par $c = \frac{a}{b}$, vérifie la relation :

$$\sin(p\omega) = 0 \quad \text{avec} \quad p = \sqrt{\frac{2(c\pi + 1)}{c\pi + 2}} \quad \text{[FII.2]}$$

Une certaine valeur de a et b fixera alors ω par la relation FII.2. Les différents cas peuvent alors être obtenus par cette relation. Par exemple si $\omega = \pi$, alors $p = 1$ et $c = 0$, ce qui correspond au cas où $a = 0$, soit un analyseur hémisphérique. De même, pour un analyseur

cylindrique, $a \rightarrow \infty$, soit $c \rightarrow \infty$, donc $p = \sqrt{2}$ donnant alors l'angle bien connu $\omega = 127^\circ$. L'étude précédente est en fait généralisable à toutes les configurations d'analyseur. Les paramètres a, b et ω une fois fixés, la résolution en énergie est alors calculée [Roy1990] :

$$\frac{\Delta E}{E} = \frac{e_1 + e_2}{Db} + K\alpha^2 \quad [\text{FII.3}]$$

Dans cette expression $e_{1,2}$ correspondent à l'ouverture azimutale des fentes d'entrée et de sortie de l'analyseur (cf. *figure II.5*), b est le rayon moyen qui a déjà été défini. K est une constante dépendant de la nature du tore. Par exemple, pour un analyseur cylindrique $K = 0,7$ et pour un hémisphérique $K = 0,5$. Dans le cas toroïdal, qui est un cas intermédiaire, K sera choisi égal à $0,6$. Le paramètre D est la dispersion en énergie [Wol1967] donnée par la relation :

$$D = \frac{1 - \cos(\omega p)}{p^2} \quad [\text{FII.4}]$$

Ce qui nous donne une valeur de D égale à 1 pour un analyseur cylindrique et égale à 2 pour un hémisphérique. Les différents paramètres du nouvel analyseur toroïdal seront explicités dans la partie IV de ce chapitre.

Une fois les électrons sélectionnés en énergie, et le comportement angulaire de ces électrons projeté sur un plan qui contient un détecteur, il ne reste plus qu'à préciser l'électronique d'acquisition qui permet de transformer cette image en information utile, à savoir le temps et les coordonnées de chaque impact. C'est le rôle du détecteur sensible en position (DSP).

2. Détecteur sensible en position (DSP)

Le détecteur sensible en position tel qu'il est utilisé dans le groupe, est constitué de deux parties principales. Une première partie permet, à chaque impact d'électrons, de produire un signal et de l'amplifier en utilisant des Galettes à Micro-Canaux (MCP pour l'acronyme Multi-Channel Plate), une seconde transforme ce flux en information position par une anode résistive.

c. MCP

Le MCP est un cylindre plat d'épaisseur environ 1 mm et de diamètre utile 42 mm. Cette surface est percée de part en part par des canaux qui font un angle de 8° avec la normale à la surface et de diamètre $12,5 \mu\text{m}$ pour les galettes qui nous intéressent. La face interne de ces canaux est recouverte d'un matériau à fort rendement quantique secondaire. C'est-à-dire qu'un électron incident produira plusieurs électrons après un choc sur cette paroi. Ces électrons

pourront ensuite effectuer la même opération d'amplification. Une avalanche électronique est ainsi obtenue, amplifiant le signal d'entrée de la galette. Une tension est appliquée entre la face d'entrée et de sortie pour permettre une accélération des électrons secondaires leur donnant suffisamment d'énergie pour qu'ils puissent arracher des électrons à la paroi.

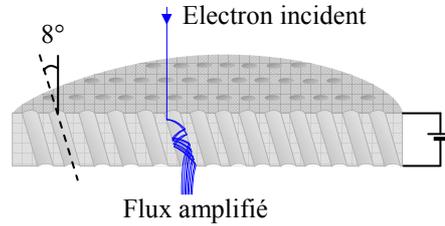


Fig. II.7 : Vue en coupe d'un MCP

Chaque détecteur est constitué par un assemblage de trois de ces galettes. Le gain obtenu est alors de l'ordre de 10^7 . Ce flux d'électrons arrive enfin sur l'anode résistive, qui va permettre d'en mesurer la position.

d. Anode résistive

L'anode résistive est un élément résistif à bord en arc de cercle [LC1979]. Cette structure particulière permet alors de distribuer linéairement en chaque coin une portion de la charge injectée en un point quelconque de la surface de l'anode. La mesure de la charge en chacun de ces coins détermine la position de l'impact du flux.

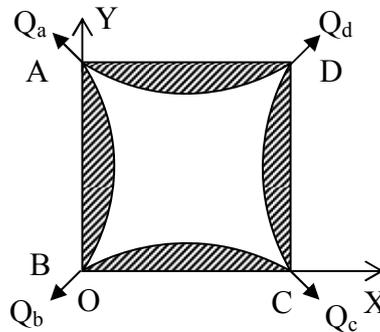


Fig. II.8 : Schéma d'une anode résistive

En effet si Q est la charge totale collectée, alors il existe une relation de linéarité entre la position (X, Y) de l'impact et la valeur des charges Q_i mesurées en chacun des coins. Ces relations sont:

$$X = \frac{1}{Q} \sum_{i=a,b,c,d} \alpha_i Q_i ; Y = \frac{1}{Q} \sum_{i=a,b,c,d} \beta_i Q_i \quad \text{avec bien sûr } Q = \sum_i Q_i$$

Il ne reste plus qu'à déterminer les différents coefficients α_i et β_i . Ces valeurs sont fixes quelle que soit la position de l'impact. Imaginons alors que l'impact ait lieu en A. La coordonnée

correspondante est $X = 0$ et $Y = 1$, donc $Q = Q_a$ et $\alpha_a = 0$ puis $\beta_a = 1$. Un même raisonnement en chacun des coins nous permet d'écrire la position sous la forme suivante :

$$X = \frac{Q_c + Q_d}{Q_a + Q_b + Q_c + Q_d}$$

$$Y = \frac{Q_a + Q_d}{Q_a + Q_b + Q_c + Q_d}$$

Chacune de ces quatre charges Q_a , Q_b , Q_c et Q_d est collectée à l'aide d'une capacité couplée à une résistance en parallèle. Ce signal est transformé en une impulsion dont l'amplitude est proportionnelle à la charge. Enfin, un système électronique transforme ce signal analogique en signal numérique. Ce point sera précisé dans la partie IV.

e. Vue d'ensemble du DSP

Le DSP est au final constitué de trois galettes à micro-canaux, pour amplifier le signal, et d'une anode résistive. Aux extrémités de l'anode résistive, un circuit est utilisé pour récupérer la valeur de la charge en chacun des coins. La capacité mise en série permet aussi de découpler ce signal de la partie haute tension à laquelle est portée l'anode résistive. La haute tension appliquée à l'ensemble du détecteur (V_{HT} entre 2500 et 3000 V), est répartie sur les trois galettes grâce à un pont diviseur. En sortie de la dernière galette, le signal temps est une impulsion de largeur de 5 ns à la base, avec un front de 1,5 ns typiquement, converti en signal NIM.

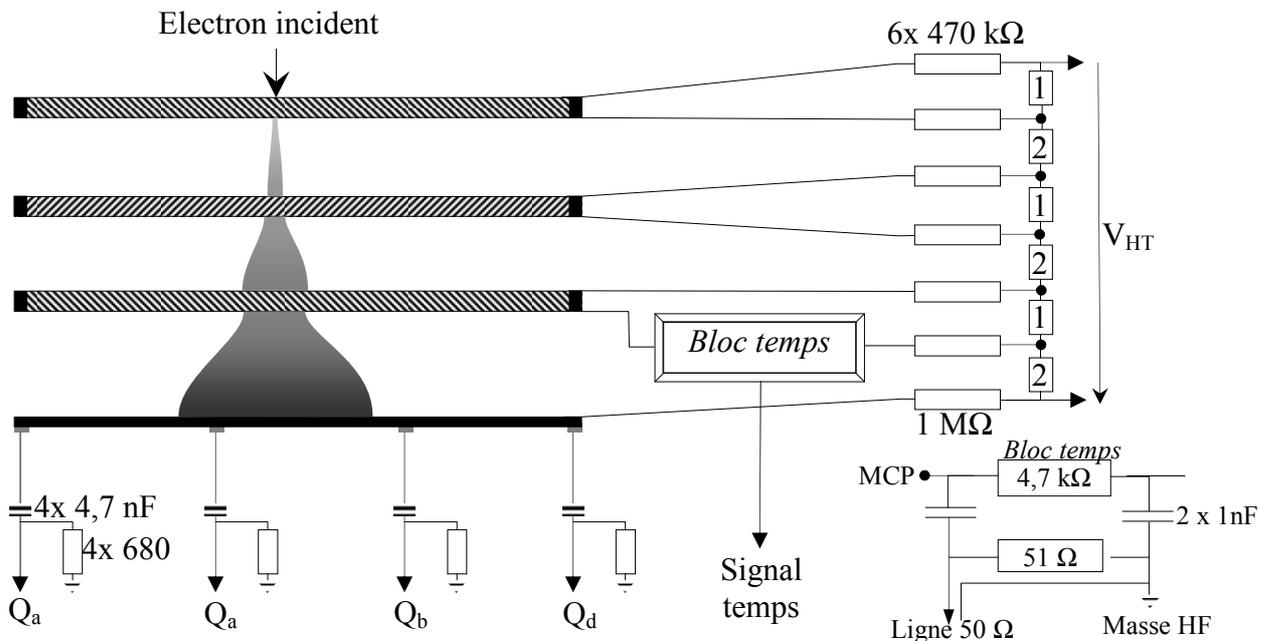


Fig. II.9 : Schéma du DSP (n'est pas à l'échelle) ; 1 est une résistance de 875 kΩ et correspond à une résistance entre la face intérieure et extérieure d'une galette ; 2 est une résistance de 200 kΩ qui correspond à une résistance entre deux galettes.

L'ensemble de ces signaux sont envoyés vers un dispositif électronique, appelé cube de corrélation, qui fait office de passerelle entre ces signaux et l'ordinateur. Il sert, entre autres, à numériser les signaux et à positionner sur le port les données à enregistrer suivant l'expérience à effectuer.

IV. Conception et réalisation de l'acquisition par interruption

Jusqu'à présent, l'acquisition des données se faisait par une procédure appelée « chien de garde ». L'ordinateur scrute un bit (appelé BitT) pour en analyser l'état. Si ce bit est à 1 c'est qu'un événement est positionné et prêt à être lu. Consécutivement, un protocole de communication s'établit entre l'ordinateur et le cube de corrélation permettant de transférer les données du cube de corrélation vers l'ordinateur. Une carte électronique sur bus ISA (Instruction Set Architecture, qui n'est plus actuellement sur le marché sauf sur demande !) a été réalisée spécialement dans cette optique. De ce fait, il est difficile de changer d'ordinateur (qui jusqu'à présent était un pentium III ...). De plus, une fois que l'acquisition est lancée, le processeur ne sera dédié qu'à cette tâche.

Ce sont ces principales problématiques qui nous ont conduit à réaliser une carte d'acquisition fonctionnant par interruption et qui soit sur un port d'actualité, à savoir un port PCI (Peripheral Component Interconnect). L'ensemble des programmes d'acquisition a été écrit pour ce nouveau mode d'acquisition, d'autant plus que l'introduction du nouvel analyseur a nécessité la réécriture de l'ensemble de ceux-ci. Ces programmes sont réalisés sous C++ Builder(6), alors qu'auparavant ils étaient écrits sous Pascal. Ce langage de programmation offre des possibilités de traitement ainsi que d'affichage plus évoluées que le langage Pascal. De plus, une gestion multitâche est désormais possible.

Il est important de rappeler ici que pour chaque programme d'acquisition, il est nécessaire de réaliser un (voire dans certains cas plus d'un) programme d'exploitation. Nous nous proposons, dans cette partie, de décrire très succinctement ce nouveau mode d'acquisition et de donner les points essentiels des programmes d'exploitation, correspondants aux différents modes d'acquisition qui sont appelés: Position, (e,2e) et (e,3e)¹³.

1. Réalisation du circuit; test du protocole de communication

La carte d'acquisition est une carte PCI de marque Kolter. Toute la difficulté ici réside en l'interfaçage de cette carte pour qu'elle puisse répondre à nos attentes. En l'occurrence, cette carte n'a pas d'interruption accessible par l'utilisateur. C'est la raison pour laquelle la

¹³ Ces différentes nomenclatures font référence respectivement aux mesures sans coïncidence, avec coïncidence entre deux partenaires et enfin avec trois partenaires.

commande de l'interruption se fait via l'interruption 7 de l'ordinateur. Cette interruption correspond en fait à l'interruption du port parallèle de l'ordinateur (qui est commun à tout ordinateur tant que ce type de port perdurera). Ce circuit d'interfaçage est donné par la *figure II.10*. Il est constitué de plusieurs blocs dont nous allons préciser la fonction.

- Le bloc 1 :

C'est le bloc principal, il gère les signaux entre la carte PCI et les signaux de contrôle du cube de corrélation. C'est un composant programmable du type GAL (Generic Array Logic) dont les sorties (F) sont reliées aux entrées (I) par une équation logique, de type conditionnelle.

- Le bloc 2 :

Ce bloc permet le contrôle du bit appelé RCube correspondant à l'état de la lecture.

- Le bloc 3 :

Il correspond au contrôle des données à proprement parler (données qui sont codées sur 12 bits). Les 4 bits de poids fort des 16 bits disponibles sur le port qui ne correspondent pas à des données sont en fait des bits de contrôles. Le bloc 3 joue le rôle de buffer entre le cube et la carte.

- Le bloc 4 :

Ce bloc a deux fonctions : d'une part donner accès à l'état du bitT qui est le bit d'interruption, et d'autre part, gérer le bit appelé RDin du cube de corrélation.

- Le bloc 5 :

Le dernier bloc correspond à la gestion du bit INIT qui initialise certaines bascules du cube de corrélation à chaque début de programme.

L'acquisition des données se fait à l'aide d'un programme temps réel appelé RTSS (produit Venturcom). En fait, c'est une bibliothèque de fonctions qui nous permet d'avoir accès à la carte PCI. L'avantage d'une carte PCI est que l'ensemble des fonctions qui nous permettent d'avoir accès aux registres est référencé par rapport à l'adresse de base de la carte. Cette adresse est allouée par l'ordinateur au moment où celui-ci est allumé (et peut changer suivant la configuration matérielle). Une première étape a été de récupérer cette adresse de base puis de générer une interruption pour voir si celle-ci est prise en compte et de voir les limites de cette acquisition. La prise en compte de cette interruption, se fait sur le front montant. Ce programme de base a été réalisé intégralement sur Visual C++ car il ne nécessite pas d'afficher des figures complexes. Une des problématiques liée à l'IRQ 7 est que son

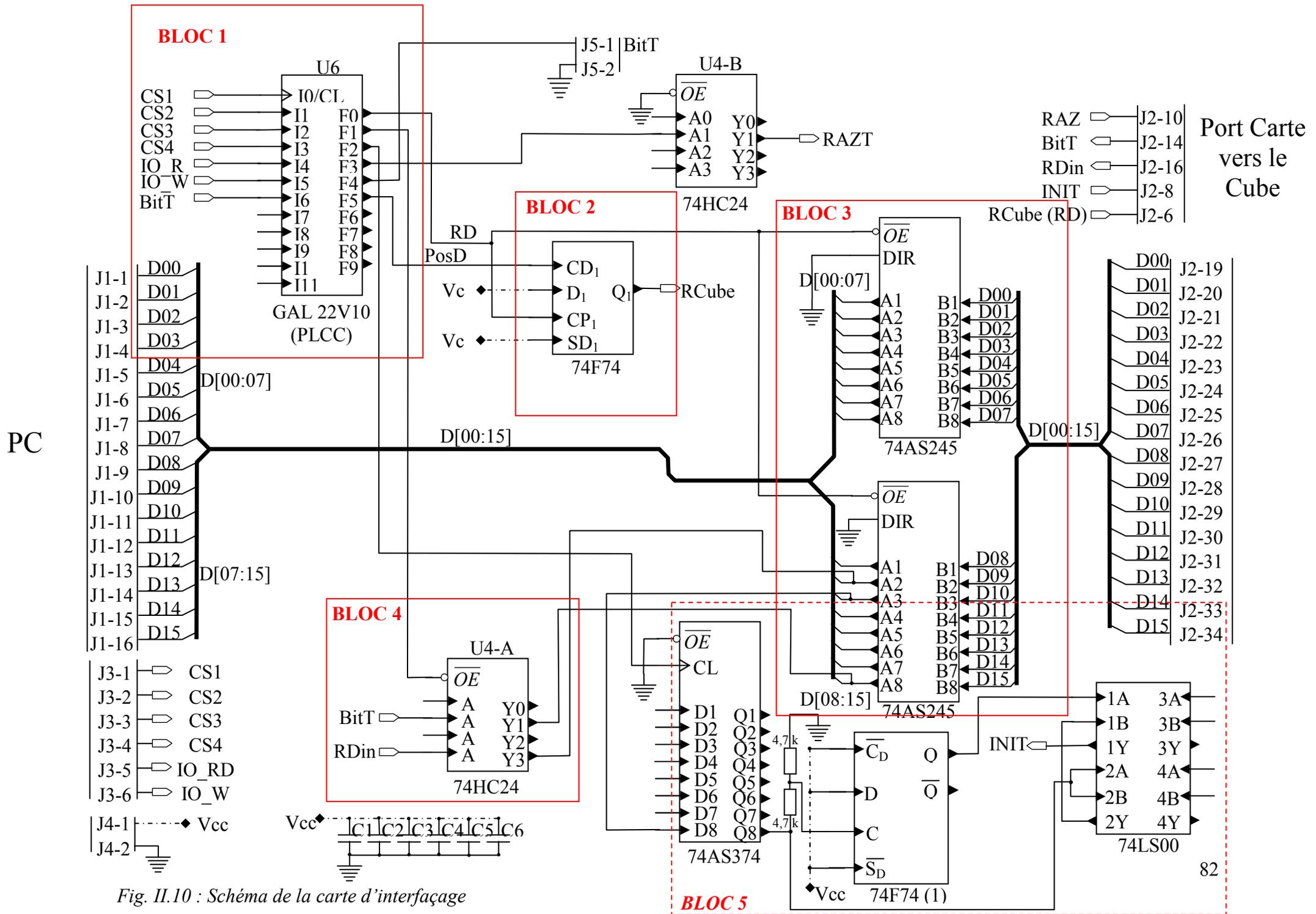


Fig. II.10 : Schéma de la carte d'interface

utilisation dépend fortement de la configuration matérielle. Plus spécifiquement, il a fallu dans notre cas modifier le BIOS pour avoir effectivement accès à cette interruption. Une fois ce problème corrigé, nous avons pu utiliser cette version de base du programme pour poursuivre le développement de la carte. L'ensemble des circuits réalisés et des avancées qui ont été faites ne seront pas détaillés ici (même si cette partie représente en fait la plus longue partie de ce travail, chronologiquement parlant).

Un premier programme reprend l'intégralité du protocole de communication entre l'ordinateur et le cube de corrélation. Il est appelé « ESSEQ ». Le programme sous cette version ne fait qu'afficher la valeur lue par le cube de corrélation. Il ne permet pas encore de faire l'affichage des points d'impact. Néanmoins, il permet de voir la fréquence maximale pour ne pas perdre d'événements par temps mort, ainsi que la lecture de la valeur des charges. La lecture des différentes données est correcte avec une précision de l'ordre de 0,4% pour les charges. Parmi tous les tests possibles et imaginables, nous ne détaillerons que le plus complet de tous les cas, celui où l'on lit toutes les charges susceptibles d'être lues, soient 14 données. Voici le chronogramme correspondant :

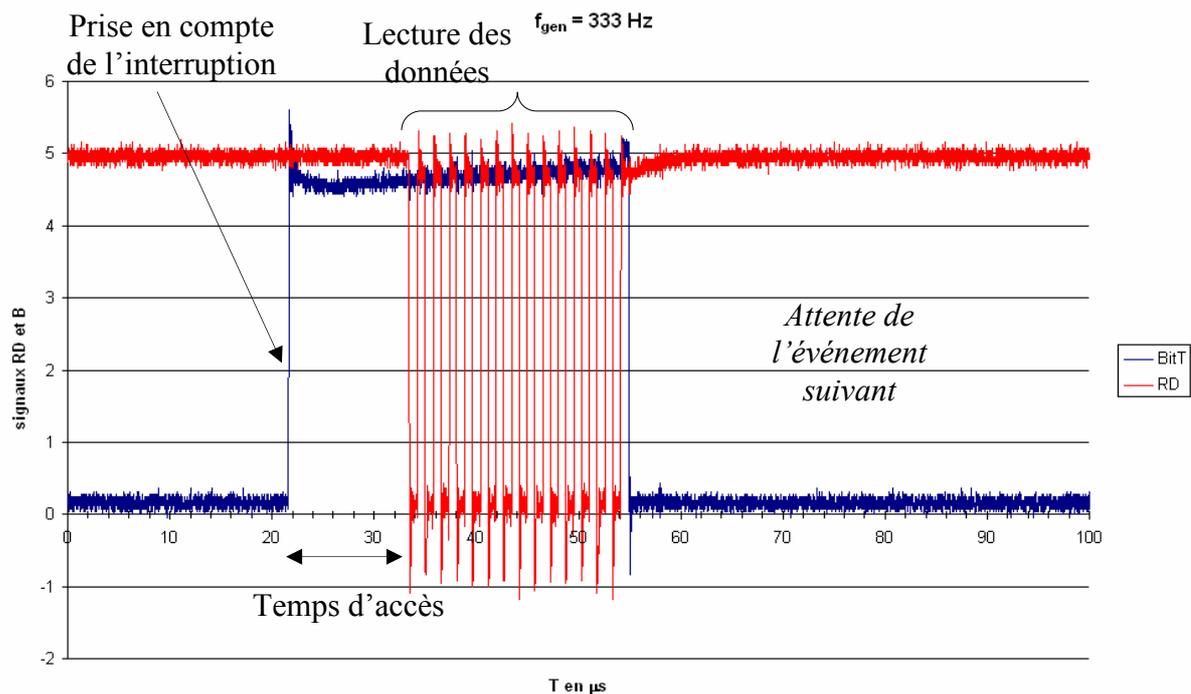


Fig. II.11 : Chronogramme pour une fréquence du générateur de 333Hz

Le graphique précédent montre un exemple de séquence où l'acquisition d'un événement correspondant à 14 données est faite. Un temps d'accès de 10 µs est observé. Ce temps correspond à la durée entre le moment où l'interruption est prise en compte et la lecture effective d'une donnée. Ce signal a été obtenu en utilisant un générateur qui simule le comportement du DSP avec quatre charges identiques. La lecture des données disponibles sur le port s'effectue lorsque le bit RD (Read) est à 0.

Une fois que toutes les données sont lues, un bit de contrôle de fin de chaîne du cube de corrélation remet le BitT à 0 pour recommencer cette opération. La largeur du BitT détermine alors la fréquence maximale d'utilisation, qui est ici de l'ordre de $f_{\max} = 1/(30 \text{ ms}) = 30 \text{ kHz}$.

Il est utile de rappeler ici que cette mesure est censée correspondre à une mesure du type (e,3e). Dans ce cas, le taux de coïncidences fortuites est de l'ordre de 0,1 à 1 Hz. Un point fondamental est alors à vérifier: voir si deux interruptions consécutives pour des temps inférieurs à 30 ms ne génèrent pas de conflit.

Dans le programme « ESSEQ » nous avons créé une fonction qui rend actif ou non l'interruption 7. De fait, tant que l'acquisition des données n'est pas terminée nous n'autorisons pas la prise en compte de cette interruption. Un fonctionnement correct est alors observé même pour une fréquence plus grande que f_{\max} . Dans ce cas, la fréquence d'acquisition est de f_{\max} et des coups sont perdus.

L'étape suivante consiste à reprendre ce programme pour permettre d'afficher les points et tous les paramètres utiles lors de cette acquisition. C'est le rôle du programme Position.

2. Acquisition du type Position

a. Acquisition des données

Ce programme permet d'afficher le nombre d'événements reçus par le détecteur en un point donné sans coïncidences. Le signal temps est récupéré uniquement pour générer l'interruption. Une image du type de celle tracée sur la *figure II.12* est obtenue sur le détecteur b ou c.

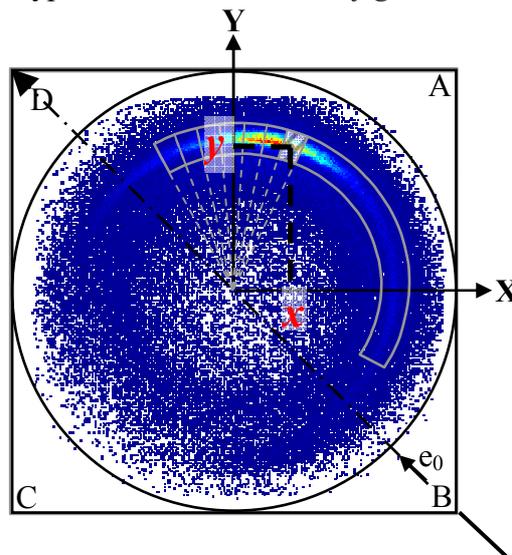


Fig. II.12 : Image obtenue par le nouveau système d'acquisition

Le programme d'acquisition récupère les coordonnées (x,y) pour un détecteur et les stocke en mémoire sous forme binaire. En même temps, il affiche à l'écran en temps réel et par une méthode FIFO (First In First Out) les différents événements successifs. La méthode FIFO consiste à remplir une mémoire de taille fixée avant l'acquisition, par exemple N événements. Tant que cette mémoire n'est pas pleine, l'acquisition se fait normalement. Au N+1^{ième} événement, le programme remplace alors dans la mémoire et à l'affichage l'événement 1. L'ensemble de cette procédure s'effectue à l'aide de deux routines (appelées Thread¹⁴) qui se font appel l'une l'autre. Un premier Thread est lancé par le programme Position lui-même et s'occupe de toute la partie API. Un autre Thread, qui s'occupe de la gestion de la carte (Thread Temps Réel : TTR), est lancé dans le programme position. Ce programme est du type RTSS. L'avantage d'une telle procédure est que le Thread RTSS, correspondant à la gestion de la carte, est prioritaire sur tout autre Thread lorsque la main lui est donnée. En effet, chaque Thread n'a la main que toutes les 20 ms (temps imposé par le système d'exploitation qui s'avère être Windows 2000 dans notre cas). Une mémoire partagée permet alors de faire le lien entre chaque Thread. Quand par exemple une zone mémoire de N événements est allouée pour cette zone partagée, elle est lue toutes les 20 ms par l'autre Thread qui en récupère alors les données pour ensuite les afficher. Dans le cas du programme Position, seules les coordonnées correspondant à l'impact sont nécessaires, car il n'y a pas de coïncidence.

Le temps pour récupérer les N événements est aussi mesuré et comptabilisé par le TTR. De fait, il est possible d'afficher en temps réel la fréquence d'acquisition. Une fois que le nombre d'événements désiré est acquis, ils sont enregistrés dans un fichier sous forme de coordonnées (x,y) correspondant à la position de l'impact. Ce calcul se fait à partir de la formule reliant les charges mesurées aux coordonnées. Il ne reste plus qu'à traiter les données.

b. Traitement des données

Un programme de traitement des données a été élaboré et réalisé. Ce programme affiche les images et permet de déterminer les paramètres nécessaires à cette exploitation. Les images obtenues pour le tore b/c sont du type de celle de la *figure II.12*. La distribution angulaire obtenue dans le plan d'analyse est en forme d'arc de cercle appelé croissant. Pour tracer cette distribution angulaire, il faut déterminer le rayon de courbure de ce croissant, le rayon inférieur (R_{\min}) et supérieur (R_{\max}) qui définissent la tranche δR de la couronne à analyser. Ce croissant est ensuite découpé en tranches (ou secteurs) correspondant à un angle θ donné de

¹⁴ Depuis Windows 1995, un programme peut lancer plusieurs fonctions qui s'exécutent en parallèle. Chacune de ces fonctions s'appelle « unité de traitement » (Thread en anglais). Cependant même quand un Thread n'est pas lancé, il y en a déjà un en cours d'exécution. En effet WinMain démarre en premier le Thread du programme. A ce stade la vraie difficulté est de synchroniser tous les Threads créés.

largeur angulaire $\delta\theta$ et le nombre d'événements contenus dans chaque tranche est comptabilisé (cf. *figure II.13*).

Le choix de R_{\min} et R_{\max} se faisait jusqu'à présent de la manière suivante: un centre O est défini et un tracé des cercles correspondant aux rayons inférieur et supérieur permet de juger visuellement de la qualité de ce choix. Par un processus itératif, R_{\min} , R_{\max} et O sont ainsi définis. Ce processus nécessitait en moyenne une dizaine d'itérations et restait fastidieux.

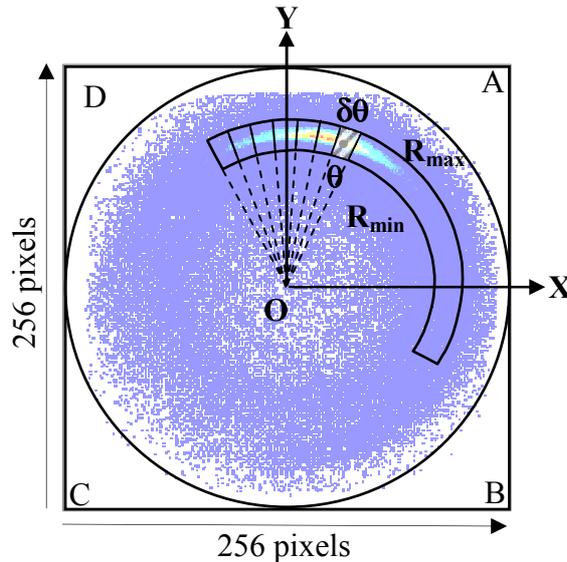


Fig. II.13 : Définition des paramètres utiles pour l'exploitation

L'innovation, que nous avons introduite, consiste à réaliser un processus qui puisse donner ces paramètres en une seule opération, ceci d'autant plus que les couronnes sont bien définies sur l'image. Il est en particulier facile de tracer « à la main » un cercle qui passerait sur cette couronne. En effet, de manière générale si un jeu de trois points est défini, disons M_1 , M_2 et M_3 , en traçant la médiatrice de chaque couple, l'intersection de celles-ci nous donne le centre (C) du cercle passant par ces trois points. Dans la version actuelle du programme, le choix des points M_1 , M_2 et M_3 est fait par l'utilisateur.

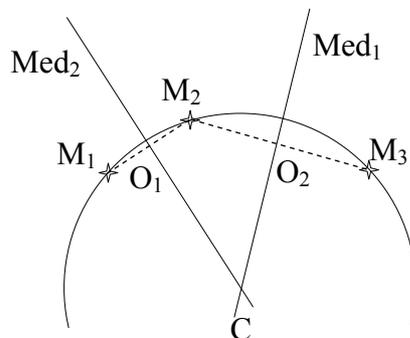


Fig. II.14 : Détermination du centre d'un cercle passant par trois points

La détermination de l'équation de la médiatrice Med_1 se fait de la manière suivante : Soit le segment (M_1M_2) dont les points ont pour coordonnées $M_1(x_1, y_1)$ et $M_2(x_2, y_2)$ et O_1 le point milieu du segment (M_1M_2) , alors le lieu géométrique du point $M(x, y)$ appartenant à Med_1 et tel que l'équation suivante est vérifiée :

$$\overrightarrow{MO_1} \cdot \overrightarrow{O_1M_2} = 0 \text{ soit encore } \left(-x + \frac{x_1 + x_2}{2}\right)\left(\frac{x_2 - x_1}{2}\right) + \left(-y + \frac{y_1 + y_2}{2}\right)\left(\frac{y_2 - y_1}{2}\right) = 0$$

d'où l'équation donnant Med_1 :

$$x\left(\frac{x_2 - x_1}{2}\right) + y\left(\frac{y_2 - y_1}{2}\right) = \frac{(x_2 + x_1)(x_2 - x_1)}{4} + \frac{(y_2 + y_1)(y_2 - y_1)}{4}$$

Il en est de même pour Med_2 . L'intersection de ces deux droites est donnée par la solution du système suivant :

$$M_{123}X = B_{123} \text{ avec } M_{123} = \begin{pmatrix} \frac{x_2 - x_1}{2} & \frac{y_2 - y_1}{2} \\ \frac{x_3 - x_2}{2} & \frac{y_3 - y_2}{2} \end{pmatrix}, X = \begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix}$$

$$\text{et } B_{123} = \begin{pmatrix} \frac{(x_2 + x_1)(x_2 - x_1)}{4} + \frac{(y_2 + y_1)(y_2 - y_1)}{4} \\ \frac{(x_3 + x_2)(x_3 - x_2)}{4} + \frac{(y_3 + y_2)(y_3 - y_2)}{4} \end{pmatrix}$$

Le vecteur X donnant les coordonnées du centre est obtenu en calculant $X = M_{123}^{-1}B_{123}$. L'inverse de la matrice M_{123} n'a de sens que si son déterminant n'est pas nul, autrement dit si les trois points M_1 , M_2 et M_3 ne sont pas alignés. Si le choix de ces points est correct, ce sera effectivement le cas. Globalement, à l'aide de trois clics de souris, les positions des points M_1 , M_2 et M_3 sont obtenues, ainsi que la détermination du centre (C). Le rayon du cercle est alors la distance entre l'un de ces points et C. Les valeurs de R_{\min} et R_{\max} sont définies par +/- 10% de la valeur du rayon principal. Tous ces paramètres sont ajustables après calcul, laissant ainsi à l'utilisateur son libre arbitre.

Le dernier point à expliciter est la détermination des angles. La méthode de détermination des rayons ne nous permet pas de savoir, a priori, la valeur de l'angle pour un point d'impact donné, car il est défini à une constante près. Cette constante est fixée de telle sorte que l'angle 0 soit dans la direction e_0 de la *figure II.12*. Cette opération est donnée par une rotation convenable de l'image.

c. Détermination de l'incertitude

Cette partie sera consacrée à l'étude des propriétés statistiques liées aux mesures sans coïncidence. Pour cela, on utilise le théorème central qui stipule que pour un ensemble de points, appelé échantillon, contenant un nombre d'éléments assez grand, alors la distribution

est du type Gaussienne [Pto1999]. L'expression de la densité de probabilité d'une telle distribution est :

$$f(x) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(x-\mu)^2}{2\sigma^2}} \quad [\text{FII.5}]$$

où σ et μ sont respectivement l'écart type et la valeur moyenne de la distribution. En effet, la valeur moyenne de l'ensemble des x est donnée par :

$$\langle x \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} xf(x)dx = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{x}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(x-\mu)^2}{2\sigma^2}} dx \stackrel{X=\frac{x-\mu}{\sqrt{2}\sigma}}{=} \frac{\mu}{\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-X^2} dX = \mu$$

L'écart type σ rend compte de la dispersion quadratique de la distribution par rapport à sa valeur moyenne. L'essentiel des propriétés se référant aux distributions gaussiennes sont résumées dans l'annexe II. Le lien entre l'écart type σ et la valeur moyenne μ est donné par la relation suivante [GI1965]:

$$\sigma = \sqrt{\mu} \quad [\text{FII.6}]$$

Dans notre cas, soit N est le nombre d'événements contenus dans un secteur donné correspondant à un angle θ , l'écart quadratique associé à N est alors : \sqrt{N} .

Enfin, il est possible de relier l'écart type à la largeur de la Gaussienne. En effet si l'on note $f_N(0) = f^0$, la largeur à mi hauteur se trouve être la valeur de x qui donne $f_N(x) = \frac{f^0}{2}$.

Soit encore :

$$\frac{f^0}{2} = \frac{1}{2\sigma\sqrt{2\pi}} = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{x^2}{2\sigma^2}} \text{ d'où } x = \sqrt{2\ln(2)}\sigma \quad [\text{FII.7}]$$

Dans l'expression précédente le terme μ a été omis car il ne fait que décaler les valeurs de cette même quantité et n'intervient donc pas dans la détermination de la largeur. D'où la valeur de la largeur totale à mi hauteur : $\Delta x_{1/2} = 2\sqrt{2\ln(2)}\sigma$. Ce terme est proportionnel à \sqrt{N} . Une propriété intéressante de ces Gaussiennes est alors que le produit de leur hauteur par leur largeur est une constante.

Enfin une dernière grandeur fondamentale est l'incertitude relative. En effet, l'écart type pour un nombre d'événements N , est \sqrt{N} . Autrement dit, plus le nombre N est grand plus son écart type l'est aussi. Cependant cette variation n'est pas la même que celle de μ ; pour rendre compte de cela, le concept d'incertitude relative est introduit. Elle est donnée par la relation :

$$\sigma_r = \frac{\sigma}{\mu} = \frac{1}{\sqrt{N}} \quad [\text{FII.8}]$$

Cette grandeur diminue quand N augmente. Un point important est à noter : dire que l'on mesure N à +/- σ signifie que la valeur de N n'a que 68% de probabilité d'être effectivement dans cet intervalle (cf. annexe I). Les grandeurs statistiques introduites précédemment restent applicables au cas de la coïncidence. Nous verrons au paragraphe suivant, un cas spécifique. Par souci de simplification, dans la suite du texte, σ_r sera noté σ .

3. Acquisition du type (e,2e)

Le programme Position ne prend pas en compte les coïncidences. C'est le rôle du programme (e,2e). Les événements en question sont des coïncidences entre les électrons éjecté et diffusé. En notant E^+ l'énergie de simple ionisation de la cible, E_a l'énergie de l'électron diffusé (par convention le plus rapide des deux), E_b l'énergie de l'électron éjecté (le plus lent) et E_0 l'énergie de l'électron incident, alors la conservation de l'énergie s'écrit :

$$E_0 = E_a + E_b + E^+$$

L'intérêt de la mesure en coïncidence des électrons diffusés et éjectés est de s'assurer que ces électrons sont issus de la même collision. En fait, les électrons diffusé et éjecté mettent chacun un certain temps avant d'être détecté (temps de vol). Notons ces temps t_a et t_b respectivement. Deux propriétés sont alors à noter, $t_a < t_b$ et le décalage temporel doit toujours être le même soit $t_{ab} = t_b - t_a = t_d = \text{constante}$. Il suffirait alors de déclencher un compteur qui ne prend en compte que les événements arrivant dans la fenêtre de temps $t_d \pm \delta t$, le terme δt rendant compte de la précision de la mesure du temps liée à l'électronique. En réalité le terme t_d n'est pas constant. Ceci est dû en partie au fait que le volume de collision n'est pas ponctuel. Il y aura une certaine dispersion du pic théorique. De plus le terme δt intervient aussi dans cette dispersion même s'il est négligeable ici. La dispersion en énergie dans le tore, introduit également un élargissement du pic. De fait, le spectre de coïncidence ne se résume pas à un simple pic comme on aurait pu le prédire.

La procédure de mesure en coïncidence consiste alors à mesurer les intervalles de temps qui séparent la détection d'un électron rapide (a) d'un électron lent (b), dans une fenêtre de temps valant au maximum 300 ns. Du point de vue électronique, le premier signal appelé START, déclenche un TAC¹⁵. Une fois le second signal détecté, correspondant au STOP, le TAC délivre une tension qui est numérisée.

¹⁵ Acronyme de Time to Amplitude Converter. C'est un dispositif électronique qui se déclenche sur un signal START et initie une rampe de tension. Un second signal correspondant au STOP arrête la rampe de tension. Le TAC délivre alors un signal impulsionnel d'une durée de 5 ms et d'amplitude proportionnelle au temps écoulé. Ce coefficient est donné par les constructeurs.

Deux cas peuvent se produire :

- Le cas attendu où le STOP a lieu effectivement dans la fenêtre des 300 ns, alors les charges mesurées aux quatre coins de l'anode correspondant au START, les quatre charges correspondant au STOP ainsi que le temps T sont numérisés et enregistrés sur l'ordinateur.
- Un second correspondant au cas où les 300 ns se sont écoulées sans qu'il y ait eu de STOP, alors le cube de corrélation réinitialise les bascules et répète l'opération, sans enregistrement.

Un exemple de spectre de coïncidence est donné par la *figure II.15*. Il correspond au nombre d'événements enregistrés pour un temps compris en 0 et 300 ns.

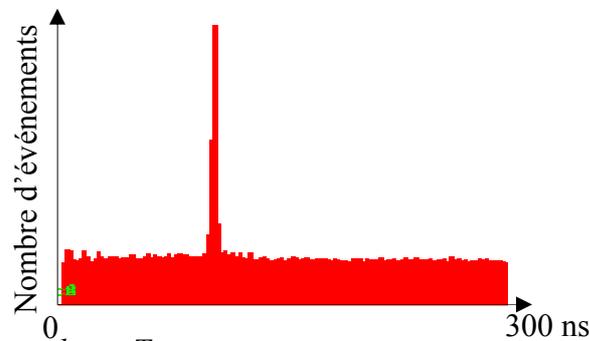


Fig. II.15 : Spectre de coïncidence T_{ab}

La représentation est faite en échantillonnant la fenêtre de 300 ns sur 1024 canaux (soit 0,3 ns par canal). Le spectre est composé de trois parties. Une première est le pic central qui comporte n canaux. De part et d'autre de ce pic apparaissent deux blocs correspondant aux coïncidences fausses (ou fortuites) entre deux électrons (diffusé et éjecté) qui ne sont pas corrélés entre eux. Chaque portion couvre respectivement N_1 et N_2 canaux. Le schéma de la figure II.16 représente les différentes contributions.

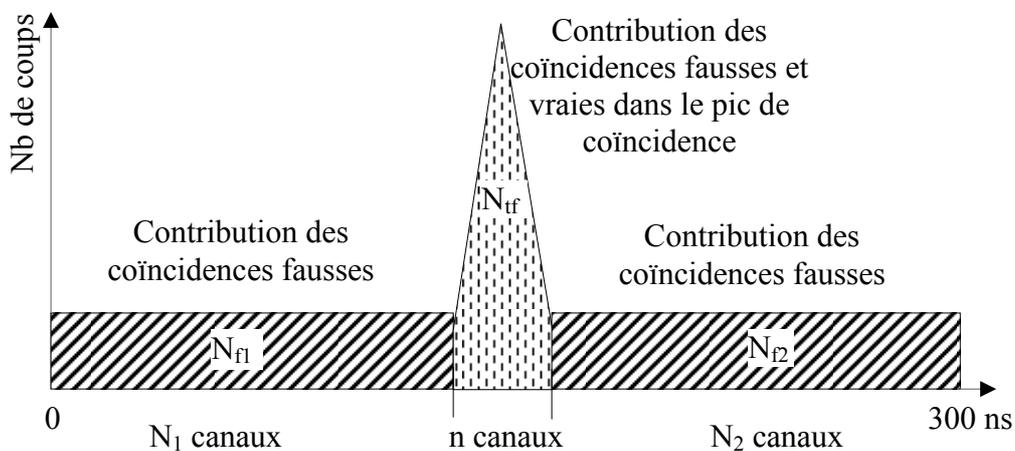


Fig. II.16 : Spectre de double coïncidence

Le pic de coïncidence est en fait constitué de la contribution des coïncidences fausses ainsi que des vraies. Il faut alors extraire du pic de coïncidences, les vrais événements. Le graphe précédent montre une contribution constante du nombre de coïncidences fausses en fonction du nombre de canaux. Cette contribution peut-être définie à l'aide du nombre de coïncidences fausses par canal grâce aux relations suivantes :

$$N_f = N_{f1} + N_{f2}$$

$$r_f = \frac{N_f}{N_1 + N_2} \quad \text{[FII.9]}$$

N_f représente le nombre total de coïncidences fausses hors du pic, et r_f le nombre de coïncidences fausses par canal toujours hors du pic. Connaissant r_f , et en multipliant ce nombre par le nombre n de canaux contenus dans le pic, il est possible de remonter au nombre de coïncidences fausses contenues dans le pic. En retranchant cette valeur du nombre de coïncidences totales dans le pic, on obtient le nombre de coïncidences vraies (noté N_t) qui contient l'information physique. D'où la relation :

$$N_t = N_{tf} - r_f n = N_{tf} - r N_f \text{ où } r = \frac{n}{N} \quad \text{et} \quad N = N_1 + N_2 \quad \text{[FII.10]}$$

Dans cette dernière relation, N_{tf} est le nombre de coïncidences totales dans le pic, n est le nombre de canaux dans le pic (cf. *figure II.16*).

Il reste alors à estimer l'incertitude sur cette mesure. En introduisant le terme N_f' donné par $N_f' = r N_f$, la relation FII.10 s'écrit :

$$N_t = N_{tf} - N_f'$$

$$\text{d'où l'écart quadratique moyen : } (\Delta N_t)^2 = (\Delta N_{tf})^2 + (\Delta N_f')^2$$

Ce qui s'écrit encore $(\Delta N_t)^2 = (\Delta N_{tf})^2 + r^2 (\Delta N_f)^2$ soit $\sigma_t^2 = \sigma_{tf}^2 + r^2 \sigma_f^2$. Les nombres de coïncidences mis en jeu ici sont suffisamment grands pour que le théorème central limite puisse s'appliquer. Le résultat qui permet d'obtenir N_t est en fait un produit de convolution des contributions statistiques de N_{tf} et de N_f . Le produit de convolution de deux gaussiennes est une gaussienne dont l'écart quadratique est la racine carrée de la somme des carrés de chacun des écarts types des deux contributions. De fait, en utilisant FII.6, σ_t s'écrit :

$$\sigma_t^2 = N_{tf} + r^2 N_f$$

L'incertitude statistique relative définie en FII.8 est alors :

$$\sigma^2 = \frac{N_{tf} + r^2 N_f}{N_t^2} \quad \text{[FII.11]}$$

Un pic de coïncidence qualifié de satisfaisant est en fait un pic haut par rapport au bruit, défini dans les deux ailes, et étroit. Le SNR¹⁶ ainsi que σ doivent être optimisés pour répondre à ces critères, c'est à dire un SNR aussi grand que possible alors que σ doit être aussi petit que

¹⁶ Acronyme de Signal to Noise Ratio pour rapport signal sur bruit

possible. Seuls les deux paramètres, temps d'accumulation T et courant du faisceau d'électrons i ¹⁷⁻¹⁸ sont facilement accessibles à l'expérimentateur et permettent d'influencer le SNR et σ . En particulier les termes N_t et N_f s'écrivent :

$$N_t = Tf_t \quad \text{et} \quad N_f = Tf_a f_b N \tau \approx Tf_a f_b 300.10^{-9}$$

avec $N = N_1 + N_2$, τ le temps correspondant à un canal du spectre. f_t , f_a , f_b sont respectivement les fréquences de coïncidences vraies, et non coïncidentes vues par les détecteurs a et b . Chacune de ces fréquences est proportionnelle au courant i et à la section efficace du processus correspondant, d'où :

$$f_t = K_t i = k_t \sigma_{ab} i \quad f_a = K_a i = k_a \sigma_a i \quad f_b = K_b i = k_b \sigma_b i$$

Ceci permet de réécrire FII.11 sous la forme :

$$\sigma^2 = \frac{N_t + rN_f + r^2 N_f}{K_t^2 i^2 T^2} = \frac{K_t i T + r(1+r)TN \tau K_a K_b i^2}{K_t^2 i^2 T^2} = \frac{1}{K_t i T} + r(1+r) \frac{N \tau K_a K_b}{T} \quad [\text{FII.12}]$$

Alors que le SNR est de la forme :

$$\text{SNR} = \frac{N_t}{N_f} = \frac{K_t i T}{TN \tau K_a K_b i^2} = \frac{K_t}{N \tau K_a K_b i} \quad [\text{FII.13}]$$

La formule FII.12 indique une décroissance de σ^2 de manière inverse au courant pour une durée d'expérience donnée T . Pour i très grand, la valeur de σ tend finalement vers une limite donnée par T . Le SNR quant à lui est inversement proportionnel à i . Il faut donc adopter un compromis entre durée d'expérience et courant. Pour (e,2e), un courant i est fixé afin d'avoir un SNR visuellement satisfaisant et la durée de l'expérience est alors adaptée.

Le spectre de temps discuté ci-dessus est le spectre global correspondant au fichier à exploiter. Ce fichier contient en fait, pour chaque événement, un temps et deux positions correspondant aux points d'impact sur chacun des détecteurs. Un traitement angulaire est alors appliqué comme indiqué dans le paragraphe précédent dans le cas non coïncident. Les angles sont ainsi définis pour chaque détecteur. La procédure d'extraction des paramètres angulaires du tore (a) sera précisée dans la partie III de ce chapitre. Une exploitation du type

¹⁷ En fait le terme i est un produit du courant électronique i et de la densité de gaz n

¹⁸ On peut aussi, mais plus difficilement, améliorer le SNR en réduisant le nombre de canaux n couverts par le pic, c'est-à-dire en minimisant les fluctuations des temps de vol des électrons diffusés et éjectés, par exemple en réduisant au maximum le volume de collision.

(e,2e) consiste alors à tracer, pour chaque couple de portion d'angle (θ_a, θ_b) , le spectre de coïncidence, les canaux définissant chaque région ayant été définis au préalable grâce au spectre global. De ce spectre sont extraits les deux paramètres N_t et σ de la même manière que précédemment. L'opération est itérée pour tous les couples (θ_a, θ_b) . La section efficace est alors proportionnelle à $N_t(\theta_a, \theta_b)$. Cette procédure permet ainsi une mesure de la section efficace en fonction des angles θ_a et θ_b .

4. Acquisition du type (e,3e)

Fondamentalement, une acquisition du type (e,3e) n'est pas très différente d'un (e,2e). Il suffit de détecter trois particules en coïncidence au lieu de deux. Le synoptique de l'électronique associée est donné par la *figure II.17*. L'électron rapide sera noté a et les deux plus lents seront b et c. Deux TAC sont utilisés pour mesurer le temps qui sépare les coïncidences ab et ac. Chacun des temps est nommé respectivement T_{ab} et T_{ac} . Plusieurs cas peuvent alors se présenter :

- Aucun des TAC n'est déclenché dans l'intervalle des 300 ns propre à chaque TAC, dans ce cas le séquenceur est remis à 0.
- Un des TAC est déclenché, par exemple le TAC correspondant à l'électron b. Le Temps (T_{ab}) est récupéré et un signal est positionné à 1 sur une porte ET (seul élément différent par rapport au cas e2e). Si aucun événement n'est détecté sur la voie correspondant à l'électron c, le séquenceur réinitialise la procédure. En revanche, si un autre événement arrive sur c dans la fenêtre des 300 ns, alors il est pris en compte et positionne l'autre signal de la porte ET. Ces deux signaux étant à 1, la sortie envoie sur le cube de corrélation un signal qui permet d'initier la séquence d'acquisition des différents signaux vers l'ordinateur.

Un événement correspond alors à la prise de temps de chacun des temps T_{ab} et T_{ac} , ainsi que la prise en compte des quatre charges de chaque détecteur, a, b, c soit 12 charges. Le programme d'acquisition transforme ces charges en information position par la relation donnée par les charges de l'anode résistive. Un événement au sens de l'exploitation est finalement composé de deux temps et de trois positions (x_a, y_a) , (x_b, y_b) et (x_c, y_c) .

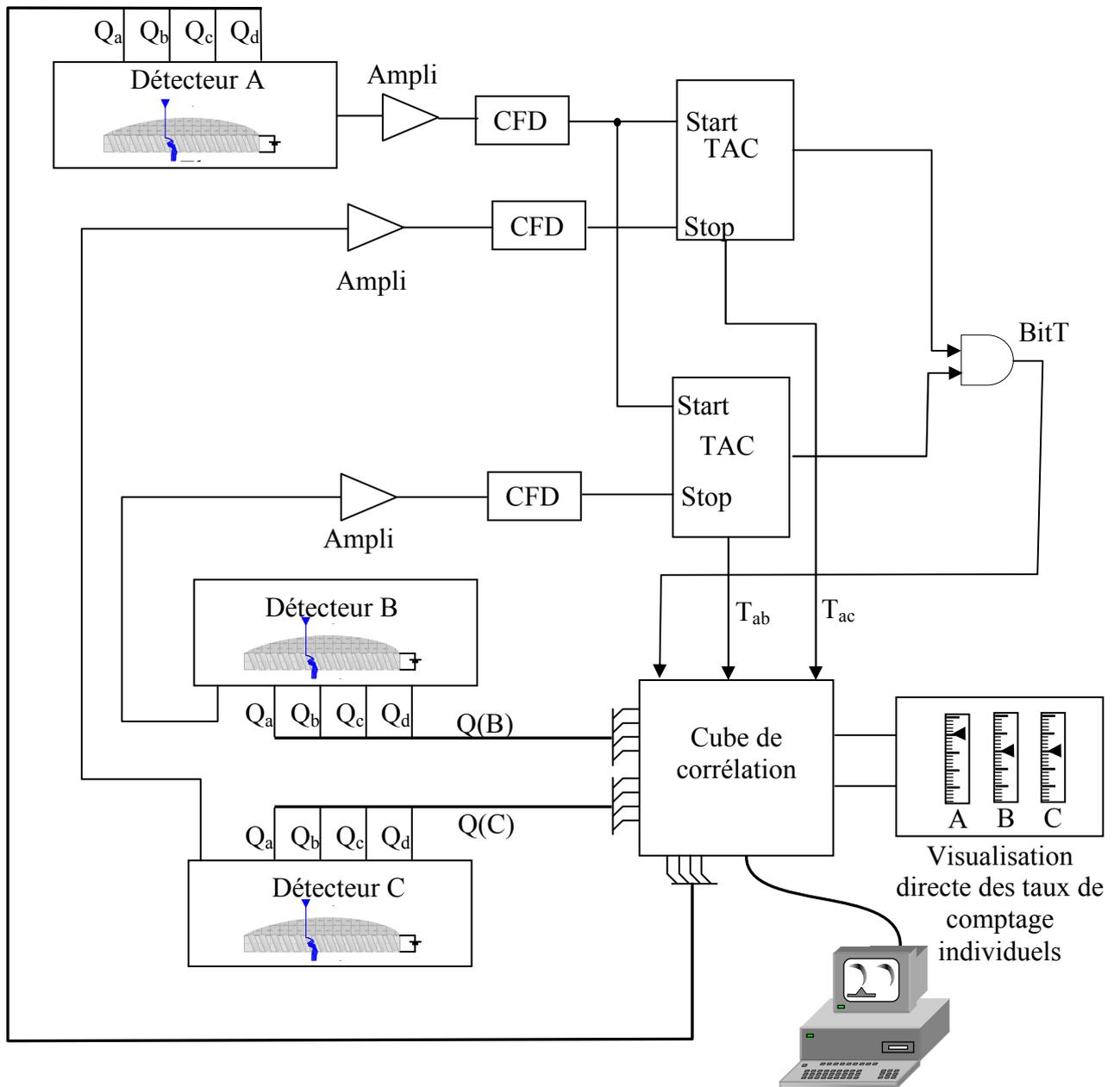


Fig. II.17 : Synoptique de l'électronique d'acquisition de triple coïncidence

Le programme d'exploitation trace le nombre d'événements obtenus pour des temps T_{ab} et T_{ac} donnés : c'est le spectre de triple coïncidence. Un exemple de ce type de spectre est donné par la *figure II.18*.

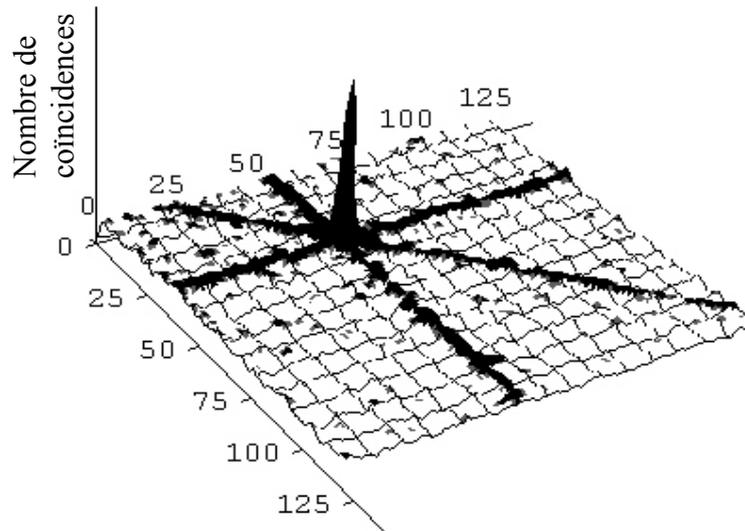
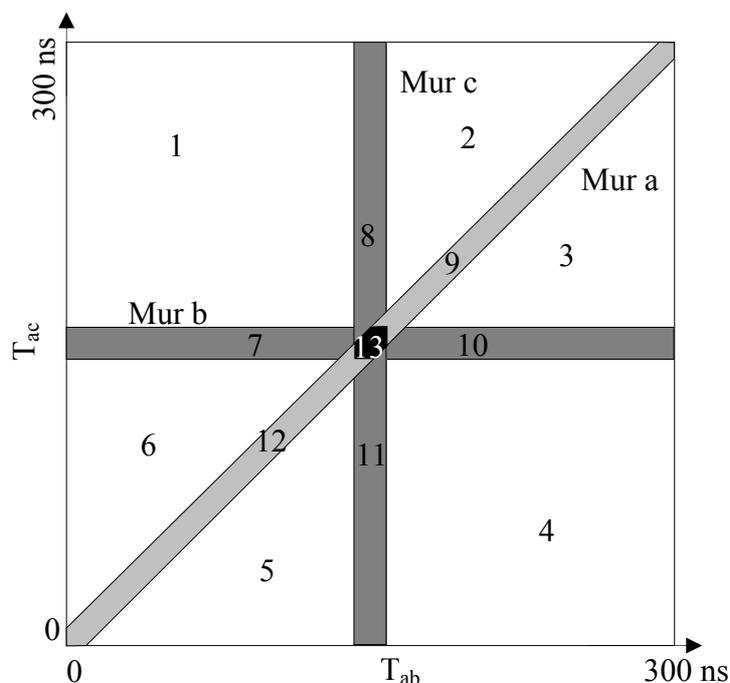


Fig. II.18 : Exemple de spectre de triple coïncidence

Cette figure montre différentes zones bien distinctes. Ces zones sont au nombre de 13 et représentées schématiquement sur la *figure II.19*.



Différentes notations :

- n_a : nombre de canaux du mur a i.e. zones 9 et 12
- n_b : nombre de canaux du mur b i.e. zones 7 et 10
- n_c : nombre de canaux du mur c i.e. zones 8 et 11
- n_u : nombre de canaux du bruit uniforme i.e. zones 1 à 6
- n : nombre de canaux dans le pic zone 13
- N_a : nombre d'événements dans le mur a
- N_b : nombre d'événements dans le mur b
- N_c : nombre d'événements dans le mur c
- N_u : nombre d'événements dans le bruit uniforme
- N_{tf} : nombre d'événements contenus dans le pic de coïncidence

Fig. II.19 : Schéma représentant les différentes zones du spectre de triple coïncidence

Le pic de triple coïncidence correspond à la zone 13 de la *figure II.19*. Il est constitué des coïncidences vraies ainsi que des coïncidences fortuites. Les coïncidences fortuites contenues dans ce pic sont de nature différente. En effet, et à titre d'exemple une vraie coïncidence ab peut effectivement avoir lieu, correspondant à un temps T_{ab} fixe, pour une valeur aléatoire entre 0 et 300 ns pour le temps T_{ac} . Dans ce cas les deux électrons ab sont corrélés sans que le c le soit effectivement. Ce type de coïncidence est appelé coïncidence (e,(3-1)e) partielle. A la différence d'une mesure (e,(3-1)e) (qui sera détaillée dans la partie suivante) où deux électrons sur trois sont détectés, la coïncidence (e,(3-1)e) partielle impose au troisième électron d'être dans la fenêtre de temps telle que T_{ac} soit entre 0 et 300 ns. Ces coïncidences pseudo corrélées forment sur le spectre ce qui est appelé un « mur ». En particulier, dans notre exemple ci-dessus, on parle du mur c car il correspond à l'électron c non mesuré. Ce mur est composé des zones 8 et 11. De même on peut former le mur b, où cette fois-ci les deux électrons ac sont corrélés mais pas le b (ce sont les zones 7 et 10). Enfin le dernier cas correspond à la détection des deux électrons éjectés, ces deux électrons étant corrélés, sans que l'électron a le soit. C'est le mur a (formé des zones 12 et 9). L'intersection de toutes ces zones correspond à une détection en coïncidence triple des trois électrons, c'est le pic de coïncidence.

Une dernière partie du spectre est composée de coïncidences purement accidentelles et se compose des zones 1 à 6. De la même manière que dans le cas (e,2e), il faut soustraire dans le pic de coïncidence, les différentes contributions fortuites pour obtenir le signal vrai. La notion de canal est ici un peu ambiguë car il est en fait à deux dimensions. Désormais, la notion de canal sera associée au nombre de pixels dans une zone donnée. Notons ainsi n_j , avec $j = a, b$ ou c , le nombre de canaux contenus dans le mur j et N_j le nombre d'événements. De même, notons n_u et N_u respectivement, le nombre de canaux et d'événements dans le bruit uniforme. Les notations sont rappelées dans la *figure II.19*. Il ne faut pas perdre de vue que dans les murs, la contribution du bruit uniforme est déjà prise en compte. Il faut alors au préalable soustraire cette contribution dans chacun des murs, de la même manière qu'en (e,2e). Finalement, chaque mur contient N_j' événements fortuits où deux électrons sur trois sont corrélés. N_j' et N_j sont alors reliés par la relation :

$$N_j' = N_j - \frac{n_j}{n_u} N_u \quad [\text{FII.14}]$$

Enfin notons N_{tf} le nombre d'événements contenus dans le pic de coïncidence. Pour obtenir le nombre d'événements vrais dans le pic, il faut soustraire à N_{tf} les contributions effectives de chaque mur ainsi que la contribution du bruit continu. D'où la relation :

$$N_t = N_{tf} - \sum_{j=a,b,c} \frac{n}{n_j} N_j' - \frac{n}{n_u} N_u = N_{tf} - \sum_{j=a,b,c} \frac{n}{n_j} \left(N_j - \frac{n_j}{n_u} N_u \right) - \frac{n}{n_u} N_u \quad [\text{FII.15}]$$

Cette expression peut s'écrire sous une autre forme plus facile à utiliser dans le calcul de la déviation standard.

$$N_t = N_{gf} - \sum_{j=a,b,c} \left(\frac{n}{n_j} N_j - \frac{n}{n_u} N_u \right) - \frac{n}{n_u} N_u = N_{gf} - \sum_{j=a,b,c} \frac{n}{n_j} N_j + 2 \frac{n}{n_u} N_u$$

Ou, en notant $r_j = \frac{n}{n_j}$ pour $j = a, b, c$ ou u :

$$N_t = N_{gf} - \sum_{j=a,b,c} r_j N_j + 2r_u N_u \quad [\text{FII.16}]$$

Cette expression traduit bien le fait que les contributions des murs sont soustraites du pic de coïncidence auquel il faut ajouter deux fois la contribution du bruit uniforme car elle est comptée deux fois dans les murs.

L'incertitude statistique relative est alors la somme quadratique de chacune des contributions d'où :

$$\sigma^2 = \frac{N_{gf} + \sum_{j=a,b,c} r_j^2 N_j + 2r_u^2 N_u}{N_t^2} \quad [\text{FII.17}]$$

En utilisant FII.16 la relation FII.17 devient :

$$\sigma^2 = \frac{N_t + \sum_{j=a,b,c} r_j N_j - 2r_u N_u + \sum_{j=a,b,c} r_j^2 N_j + 2r_u^2 N_u}{N_t^2} = \frac{N_t + \sum_{j=a,b,c} r_j (1 + r_j) N_j + 2r_u (r_u - 1) N_u}{N_t^2}$$

De la même manière que pour (e,2e), les différentes contributions en fonction de i , du temps T d'accumulation, et des sections efficaces correspondantes s'écrivent :

$$\begin{aligned} N_t &= Tk_t \sigma_{abc} i = TK_t i \\ N_u &= Tk_u \sigma_a i \sigma_b i \sigma_c i = TK_u i^3 = Tf_a \mathcal{F}_b \mathcal{F}_c \\ N_j &= Tk_j \sigma_j i \overline{\sigma_j} i + Tk_j^u \sigma_a i \sigma_b i \sigma_c i = TK_j i^2 + TK_j^u i^3 \end{aligned} \quad [\text{FII.18}]$$

Les différents termes k_t , k_u , k_j , et k_j^u dépendent des conditions expérimentales telles que la contribution de la densité de gaz ainsi que du courant i (cf. (e,2e)). σ_j est la section efficace de production d'un électron d'énergie E_j sous l'angle solide d'acceptance de l'analyseur. Ce terme est en fait proportionnel à f_j . Le terme $\overline{\sigma_j}$ est la section efficace de production des deux électrons, corrélés entre eux, autre que j . Enfin, σ_{abc} est la section efficace six fois différentielle du processus (e,3e) que l'on cherche à mesurer.

La relation permettant d'obtenir l'incertitude relative peut encore s'écrire, en utilisant FII.18, sous la forme :

$$\sigma^2 T = \frac{1}{K_t i} + \sum_j r_j (1+r_j) \frac{K_j}{K_t^2} + \left[\sum_j r_j (1+r_j) \frac{K_j^u}{K_t^2} + 2r_u (r_u - 1) \frac{K_u}{K_t^2} \right] i \quad [\text{FII.19}]$$

Les deux premiers termes de cette expression sont comparables au cas (e,2e). A ces deux termes vient s'ajouter un troisième proportionnel au courant i^{19} . Il est clair que pour un courant élevé, ce terme devient prépondérant. De même pour un courant très faible, le premier terme l'emportera sur tous les autres. Reste à savoir si la contribution du terme associé à i est positive ou négative.

Notons ρ la valeur du coefficient entre crochets. La question est de savoir si ρ est positif ou non. Rappelons que r_u est le rapport entre le nombre de canaux contenus dans le pic (n) et le nombre de canaux contenus dans le bruit uniforme (N_u). Il est clair que $n \ll N_u$ (autrement dit $r_u \ll 1$). Dans l'expression de ρ , le terme qui fait intervenir r_u est $r_u(1-r_u)$ qui est négatif ! Néanmoins, physiquement parlant, le coefficient ρ doit être positif car il est du même signe que l'erreur au carré. Une première remarque concerne le coefficient K_j^u qui est relié à K_u . En effet le terme $TK_j^u i^3$ rend compte du nombre d'événements dû au bruit uniforme dans le mur j . Puisque le bruit uniforme (comme son nom l'indique) a un nombre d'événements par canal identique sur toute la grille du spectre, sa contribution dans le mur j est simplement proportionnelle au nombre de canaux qui y est contenu. Autrement dit :

$$TK_j^u = n_j \frac{N_u}{n_u} \text{ soit } TK_j^u i^3 = n_j \frac{TK_u i^3}{n_u} \text{ d'où } K_j^u = \frac{n_j}{n_u} K_u \quad [\text{FII.20}]$$

En reportant FII.20 dans FII.19, l'expression de l'incertitude relative s'écrit :

$$\sigma^2 T = \frac{1}{K_t i} + \sum_j r_j (1+r_j) \frac{K_j}{K_t^2} + \left[\sum_j r_j (1+r_j) \frac{n_j}{n_u} K_u + 2r_u (r_u - 1) K_u \right] \frac{i}{K_t^2}$$

En utilisant la relation : $\frac{n_j}{n_u} = \frac{r_u}{r_j}$ on obtient :

$$\sigma^2 T = \frac{1}{K_t i} + \sum_j r_j (1+r_j) \frac{K_j}{K_t^2} + \frac{K_u}{K_t^2} \left[r_u (2r_u + 1 + \sum_{j=a,b,c} r_j) \right] i \quad [\text{FII.21}]$$

Le terme cherché est bien positif comme escompté. Les contributions de chaque terme montrent alors l'existence d'un courant optimum qui minimise l'incertitude relative. Contrairement au cas (e,2e) où l'incertitude relative décroît et tend vers une limite inférieure quand i croît, imposant un compromis entre le SNR et l'erreur relative. Le cas (e,3e), présente

¹⁹ Il est à rappeler ici que le terme courant est à prendre au sens large et qu'il est en réalité la contribution de la densité de gaz et du courant d'électrons. Dire que i augmente revient à dire que le courant est augmenté ou que la densité de gaz est augmentée ou encore les deux.

une valeur spécifique du courant qui minimise l'incertitude relative pour des conditions expérimentales données. La *figure II.20* illustre ce point.

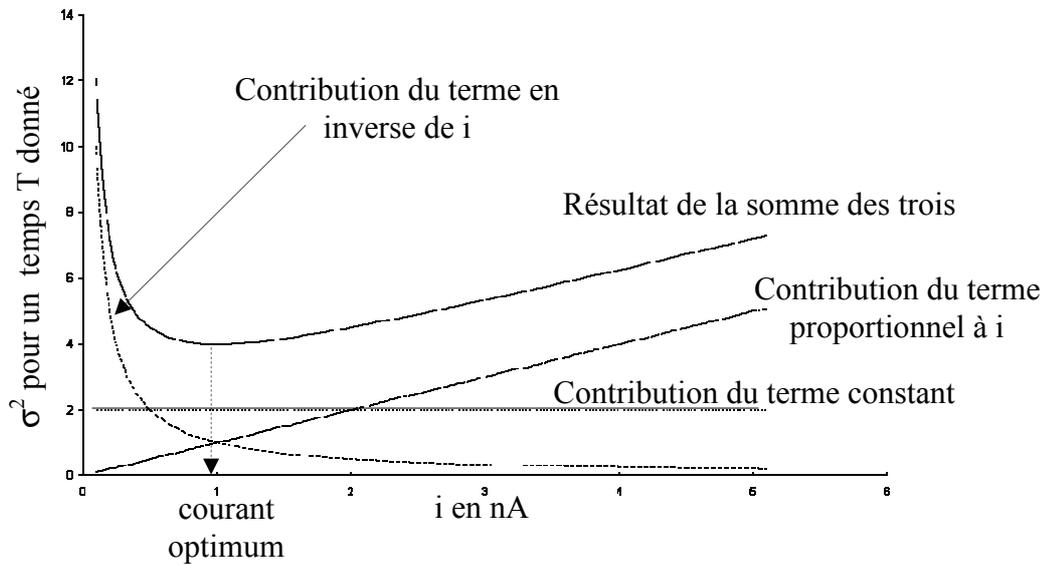


Fig. II.20 : Tracé de la déviation standard relative en fonction du courant i

Le programme d'exploitation (e,3e) détermine directement le rapport $i_{\text{optimisé}}/i_{\text{utilisé}}$.

5. Acquisition du type (e,(3-1)e)

Un autre type de mesure possible est ce qui est appelé une mesure (e,(3-1)e). Elle correspond à la détection de deux électrons sur trois issus de la double ionisation. Rappelons que les énergies de ces trois électrons sont reliées par l'équation de conservation de l'énergie. De ce fait, la détection de deux électrons sur trois est délicate. Les analyseurs détectent des électrons d'une certaine énergie. Si un de ces analyseurs est mal réglé, disons l'analyseur a, alors la différence d'énergie δE_a , due à ce dérèglement, se répercutera sur l'électron qui n'est pas observé, d'où δE_c . Par exemple, si le couple (e_a, e_b) est observé, l'équation de conservation de l'énergie s'écrit alors $E_c = E_0 - E_a - E_b - E^{++}$. Rappelons qu'ici E_c est une inconnue. Il est clair alors que $\delta E_c = \delta E_a + \delta E_b$.

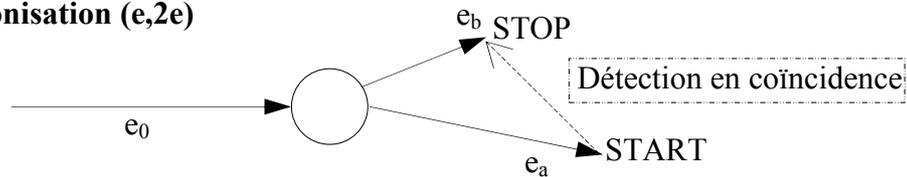
Les couples possibles sont : (e_a, e_b) ou (e_a, e_c) et (e_b, e_c) . Les deux premières mesures sont dites de première espèce, quand à la troisième, elle est dite de seconde espèce. Dans les deux premiers cas, le START du TAC est naturellement donné par l'électron le plus rapide. En revanche, dans le dernier cas, en terme de déclenchement du TAC une subtilité apparaît. Imaginons en effet que les deux électrons e_b et e_c aient la même énergie, alors ils auront exactement²⁰ les mêmes temps de vol. Le pic de coïncidence doit apparaître autour de l'instant $t = 0$. Clairement ceci implique une perte d'informations et un « gaspillage » de la

²⁰ Dans la mesure où la mécanique des deux tores et l'électronique associée sont identiques

fenêtre temporelle. L'idée est alors d'utiliser une ligne à retard²¹ entre les deux voies, ce qui résulte en un déplacement du pic correspondant au temps ajouté. En fait, cette ligne à retard est introduite dans tous les cas, mais son rôle est crucial dans celui qui vient d'être cité.

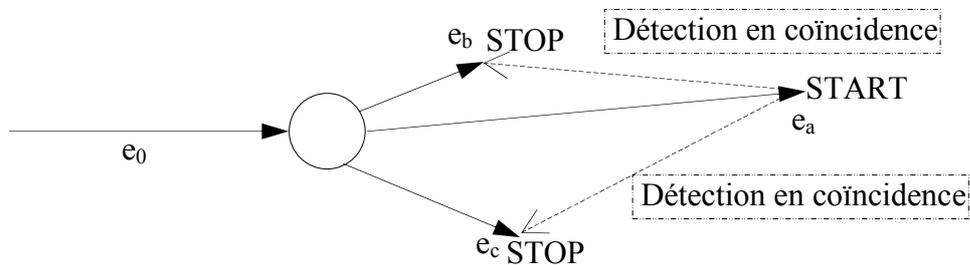
L'ensemble des mesures en coïncidence qui peuvent être réalisées avec ce dispositif, est résumé sur la figure suivante.

Cas de la simple ionisation (e,2e)



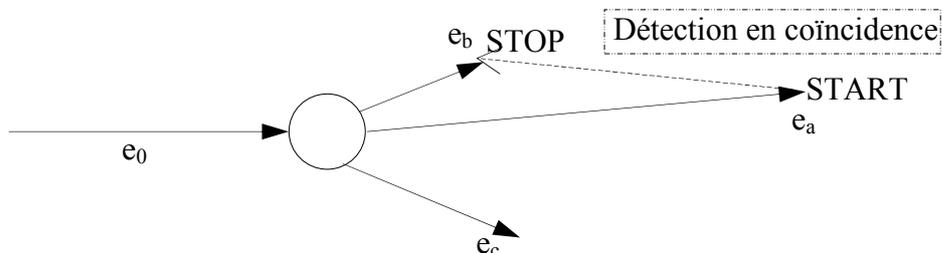
Cas de la double ionisation

- Coïncidence triple (e,3e)



- Coïncidence double (e,(3-1)e)

- Première espèce : coïncidence ab ou ac



- Seconde espèce : coïncidence bc ou cb

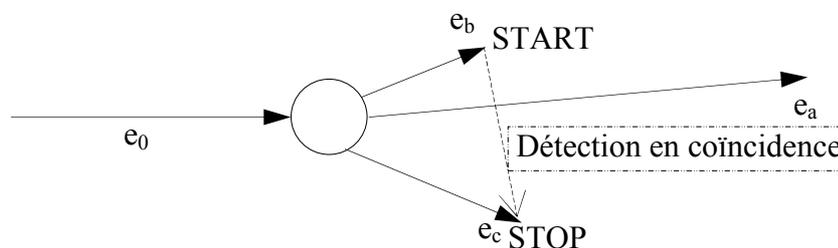


Fig. II.21 : Résumé des différents cas de mesure en coïncidence

²¹ Une ligne à retard est un câble coaxial dont l'âme est faite d'un composé qui change la vitesse de l'onde. Si une telle ligne est ajoutée à une des voies, un retard est introduit, proportionnel à la longueur du câble. Il s'agit donc d'ajouter cette ligne sur le signal STOP.

V. Mise au point du nouveau tore pour les électrons diffusés

Dans cette partie, sont présentées les caractéristiques du nouvel analyseur toroïdal pour les électrons diffusés. Dans un premier temps sont décrits les paramètres de cet analyseur pour ensuite analyser les problèmes rencontrés lors de sa mise au point et les solutions proposées. Enfin la détermination des résolutions angulaires et énergétiques est abordée.

1- Description de l'analyseur

L'analyseur pour les électrons diffusés est à géométrie toroïdale construit sur le même principe que le double analyseur déjà existant, à la différence que celui-ci doit être adapté aux hautes énergies. D'après la *figure II.1*, ce tore est à la sortie du double tore pour être dans la direction des électrons diffusés. Par construction mécanique, il a une ouverture angulaire utile de 30° et il est composé de quatre parties principales [cf. *figure II.22*]. Un ensemble de lentilles d'entrée de forme toroïdale, permet de focaliser le faisceau d'électrons diffusés en entrée de la partie effectivement torique. La deuxième partie est composée de deux électrodes qui sélectionnent en énergie les électrons. Pour les raisons qui ont été abordées dans la partie II de ce chapitre, l'angle formé par les électrodes T_{int} et T_{ext} est de 135° . L'ensemble est monté sur un support qui permet de le manoeuvrer selon deux degrés de liberté. Un premier correspond à une translation du tore dans la direction z donnée par la direction du jet de gaz. Un second correspond à une rotation autour de l'axe donné par la fente d'entrée du tore. Ces deux mouvements sont commandés, depuis l'extérieur, grâce à un dispositif mécanique conçu, comme l'ensemble de cet analyseur A, par Angel Abadia ingénieur mécanicien. L'ensemble du dispositif (détecteur compris) a une hauteur de 50 cm. Vu l'espace disponible, il a fallu trouver un compromis pour l'insérer dans la cuve : la partie supérieure du dispositif est à 2-3 mm seulement du couvercle de la cuve. Les électrons après focalisation par les lentilles, suivent une trajectoire conique comme le montre la *Fig. II.23*. Ce qui fait que si l'on désire récupérer tous les électrons diffusés sur l'ensemble du domaine angulaire de 30° , il faudrait placer le détecteur en dehors de la cuve. La position adoptée (imposée par la cuve) coupe donc une partie du flux émergent. D'un angle de collection originel de 30° , on est passé finalement à 20° . En fait, cette réduction de l'angle effectif de collection sera nécessaire pour des raisons qui seront abordées dans la section 2.

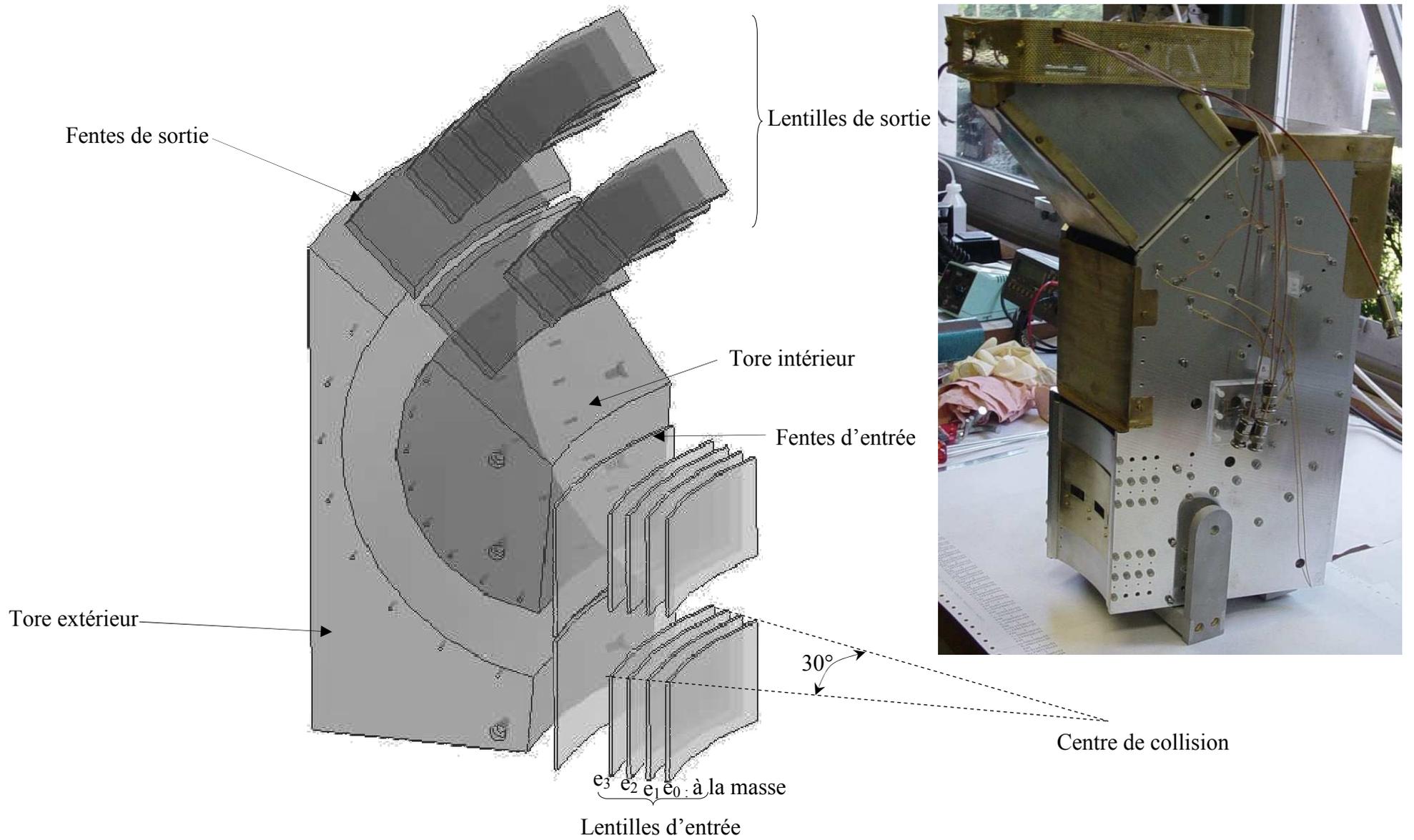


Fig. II.22 : Vue générale du nouvel analyseur toroïdal.

En plus de la zone perdue par troncature du flux, vient s'ajouter une zone morte correspondant à l'ombre portée par la présence du BS qui est dans l'axe des électrons diffusés soit environ une gamme allant de $-1,5^\circ$ à $1,5^\circ$.

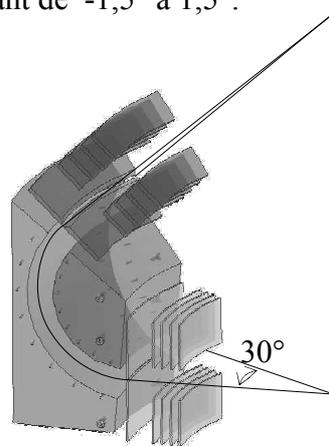


Fig. II.23 : Trajectoire des électrons dans le tore. Un point sur l'axe du « jet de gaz » se refocalise en un point sur ce même axe

2- Les effets de bord

Les électrodes en entrée et en sortie sont portées à des potentiels pouvant atteindre des différences de l'ordre de 1000 V. Ces électrodes sont maintenues par une plaque qui ferme complètement l'analyseur. Afin d'éviter les court-circuit, la plaque de maintien était censée être recouverte d'une fine couche de germanium, afin d'appliquer un potentiel variant continûment entre les électrodes. Cependant, cette plaque n'a pas été réalisée à mon arrivée ; une solution intermédiaire a donc été adoptée. L'idée est d'imposer le potentiel de chacune des électrodes jusqu'à une distance moitié de l'espace entre les deux électrodes. La figure II.24 schématise la solution adoptée. Les électrodes ainsi ajoutées seront nommées armatures.

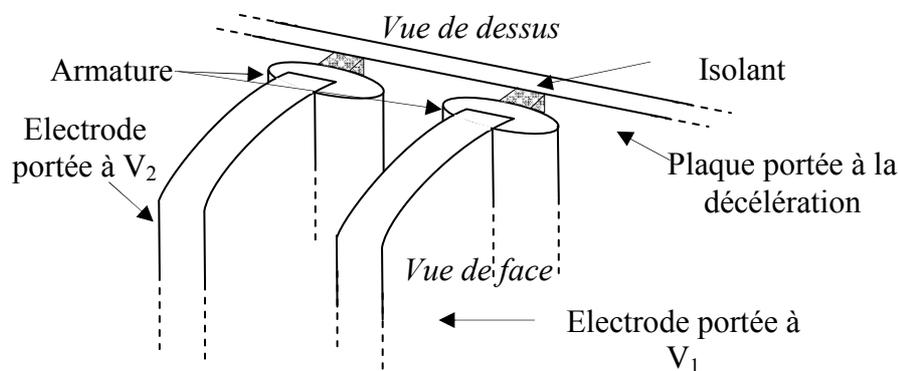


Fig. II.24 : Vue schématique des électrodes et de ses armatures

Une telle configuration s'accompagne nécessairement d'une perturbation du potentiel entre les deux armatures. Nous nous proposons de quantifier ces effets dans le cas le plus sensible c'est-à-dire pour les électrodes e_0 et e_1 de la *figure II.22*. Dans cette configuration, la première électrode est à la masse tandis que la seconde est à -1000 V . La tension de décélération est de l'ordre de -400 V . Un tracé des équipotentielles vues de dessus est représenté sur la *figure II.25*.

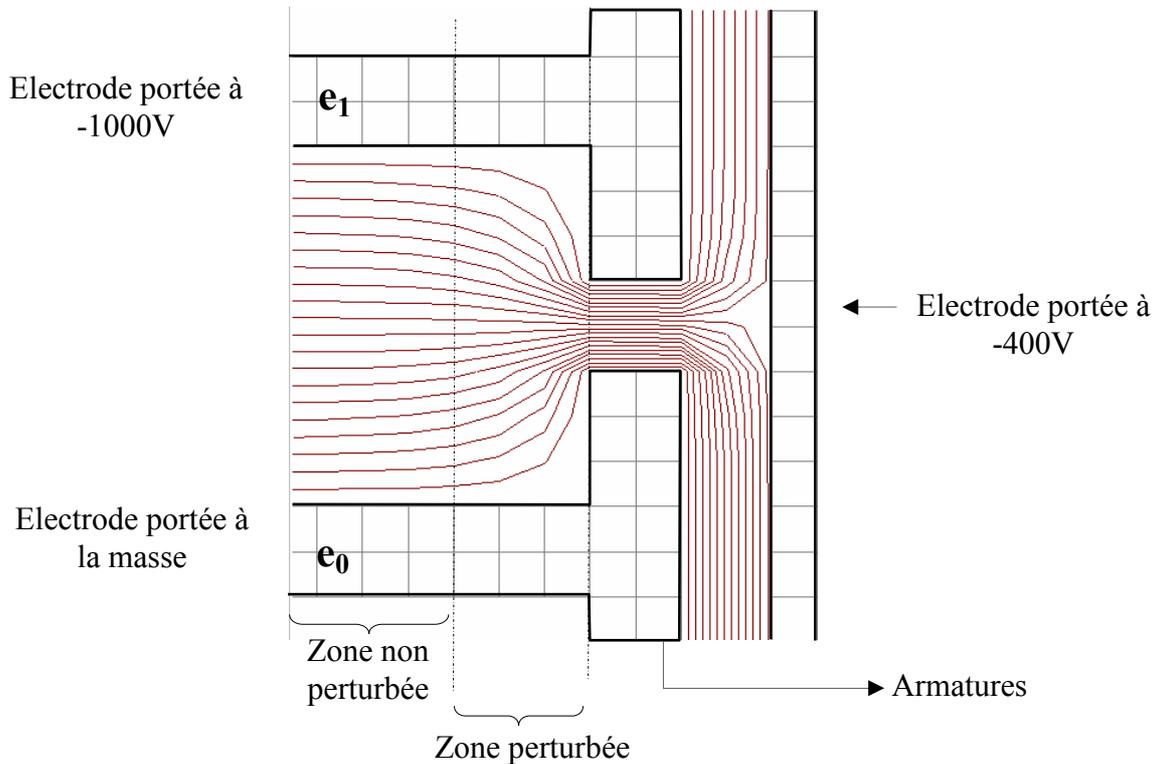


Fig. II.25 : Tracé des équipotentielles dans la configuration où l'espace entre les électrodes est de 8 mm , l'espace entre les armatures est de 2 mm . La différence de potentiel est de 1000 V et la décélération de -400 V , avec la première électrode à la masse. Un carré représente 1 mm et une équipotentielle 50 V .

La zone perturbée représente 3 mm ($\times 2$) sur les 140 mm que représente la longueur totale de l'électrode. Autrement dit seulement $4,3\%$ de la zone utile est affectée. Par contre, une étude de la vue de face s'avère plus critique. En effet, une simulation nous donne le résultat de la *figure II.26*. Une première remarque est que le potentiel de la première électrode est imposé sur tout le pourtour de l'entrée à cause des armatures. De fait, cette configuration est nécessairement éloignée du cas idéal qui consiste en des équipotentielles linéaires dans l'espace intra électrode et sur les bords (cf. *figure II.26*). Néanmoins, la zone affectée par cette perturbation n'est que de 25% . La zone utile se réduit à 75% de la zone effective qui représente 30° . En d'autres termes, la zone utile de notre analyseur est de $22,5^\circ$. Ce qui est bien en accord avec le fait que le détecteur ne collecte qu'en partie le flux émergent sur environ 20° .

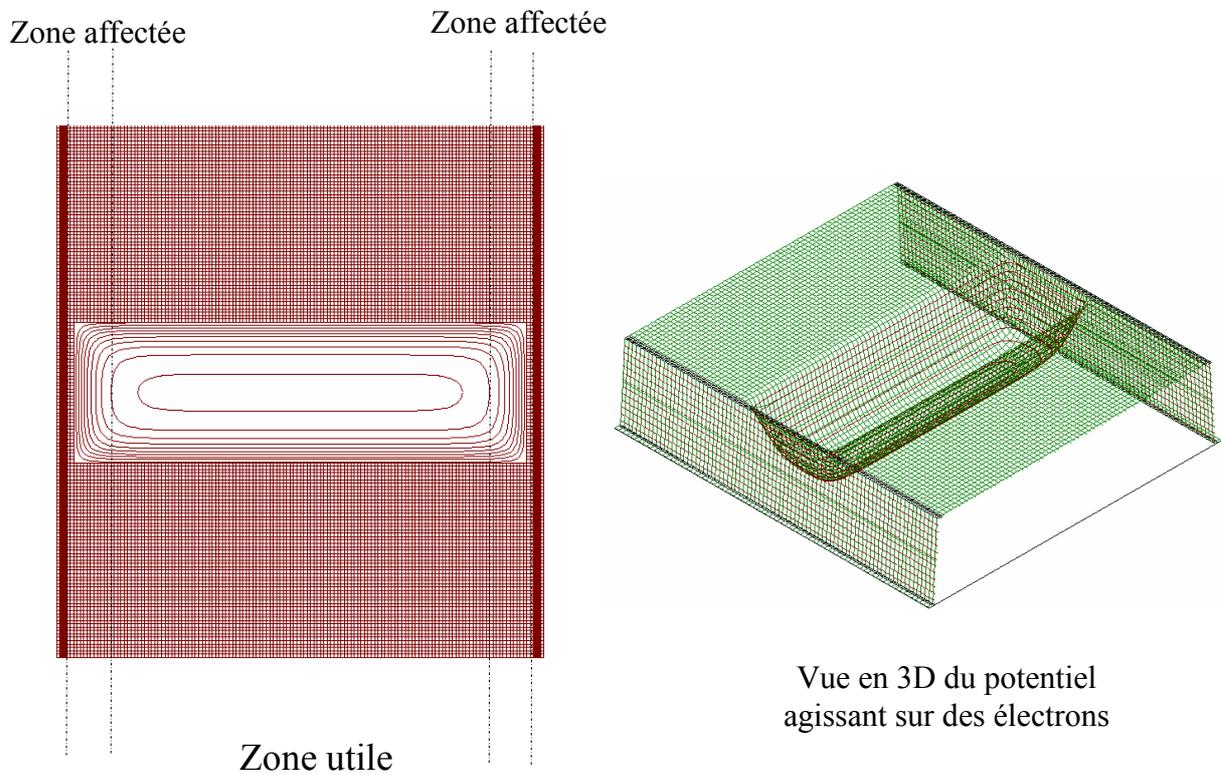


Fig. II.26 : Même légende que Fig. II.23. A gauche, la vue de face et à droite la vue en terme de potentiel vu par les électrons en entrant dans le tore a.

Dans les expériences préliminaires, une plaque percée de deux fentes à $+3^\circ$ et -3° est placée en entrée de l'analyseur, et ne fait en aucun cas intervenir ces effets de bord. Notre simulation de potentiels ci-dessus montre que ces effets devraient rester faibles dans le domaine actuellement utile de $\pm 10^\circ$. En revanche pour des expériences à venir qui se feraient en fente large sur l'ensemble des 30° couvert par le tore A, il sera nécessaire de tenir compte de ces effets de bord. La meilleure solution reste néanmoins l'utilisation d'une plaque semi-conductrice qui permet une variation adéquate du potentiel sur les bords du tore.

3- Alimentation des électrodes et du détecteur

Le tore b/c est alimenté par des générateurs de tension qui délivrent directement sur chaque électrode la tension désirée. En fait une alimentation générale délivre une tension de l'ordre de la centaine de volts ; celle-ci est appliquée à des potentiomètres permettant d'ajuster cette valeur à la tension désirée. Un changement de l'énergie d'analyse $E_{b/c}$ nécessite donc un changement de tous les potentiels. Toutefois, une certaine logique est à appliquer. Le changement de potentiel se fait de telle sorte que la différence de potentiel entre les électrodes intérieures et extérieures est conservée. Seule la valeur moyenne du potentiel est modifiée (qui est représentative de l'énergie de passage).

Le nouveau tore A est par contre alimenté de telle sorte que tous les potentiels sont ajoutés à un potentiel flottant correspondant à la tension de décélération. Il est donc nécessaire d'adapter en impédance les différents générateurs de tension pour chaque électrode.

De même, en ce qui concerne l'alimentation des galettes, certaines précautions sont à prendre. Un premier essai des galettes peut se faire en utilisant la jauge à ionisation comme source d'électrons uniforme : dans notre configuration, la charge D est la plus proche de cette jauge, donc si un des coins de l'image doit être plus intense que les autres c'est bien celui-ci. Un premier essai a donné l'image suivante :

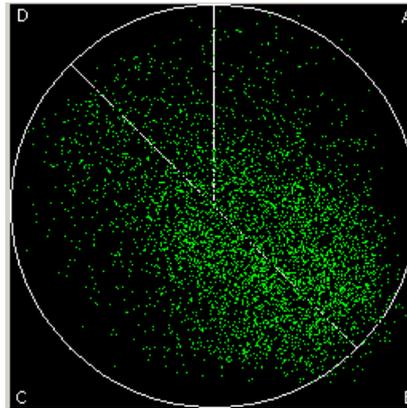


Fig. II.27 : Image obtenue sur le détecteur A en utilisant la jauge de pression (jauge à filament) pour caractériser la réponse du détecteur. Le coin D est le plus proche de la jauge.

Le résultat attendu est une tâche uniforme ou tout au plus une tâche un peu plus intense dans le coin D. Ce qui est observé c'est une tâche plutôt décalée vers le coin B et, qui plus est, assez large. Une acquisition du signal en sortie de l'ampli-filtre correspondant à la charge Q_B donne le résultat suivant :

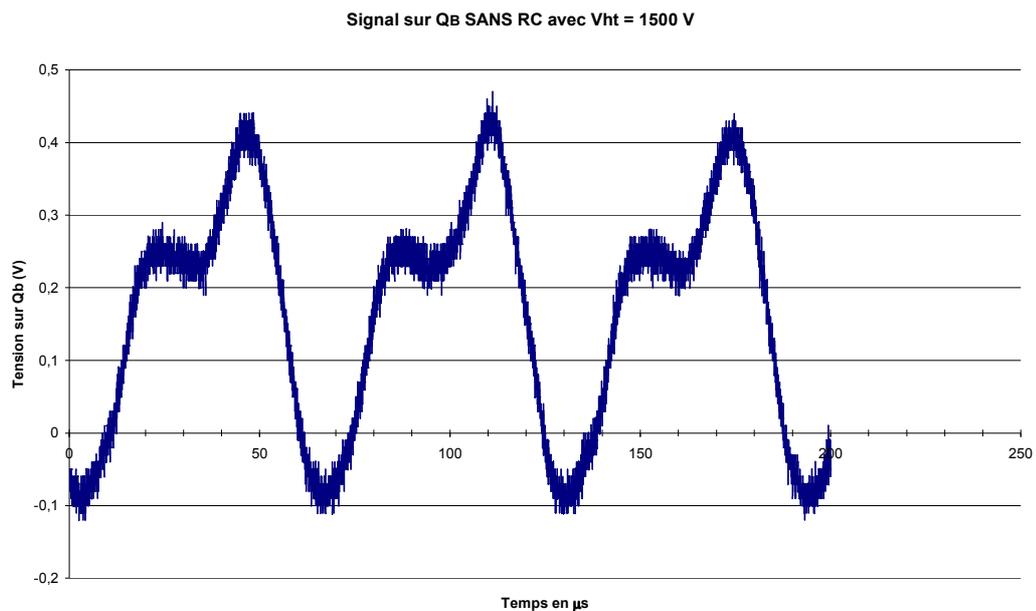


Fig. II.28 : Forme du signal obtenu sur l'extrémité Q_B de l'anode résistive. La haute tension appliquée aux galettes MCP est de 1500V.

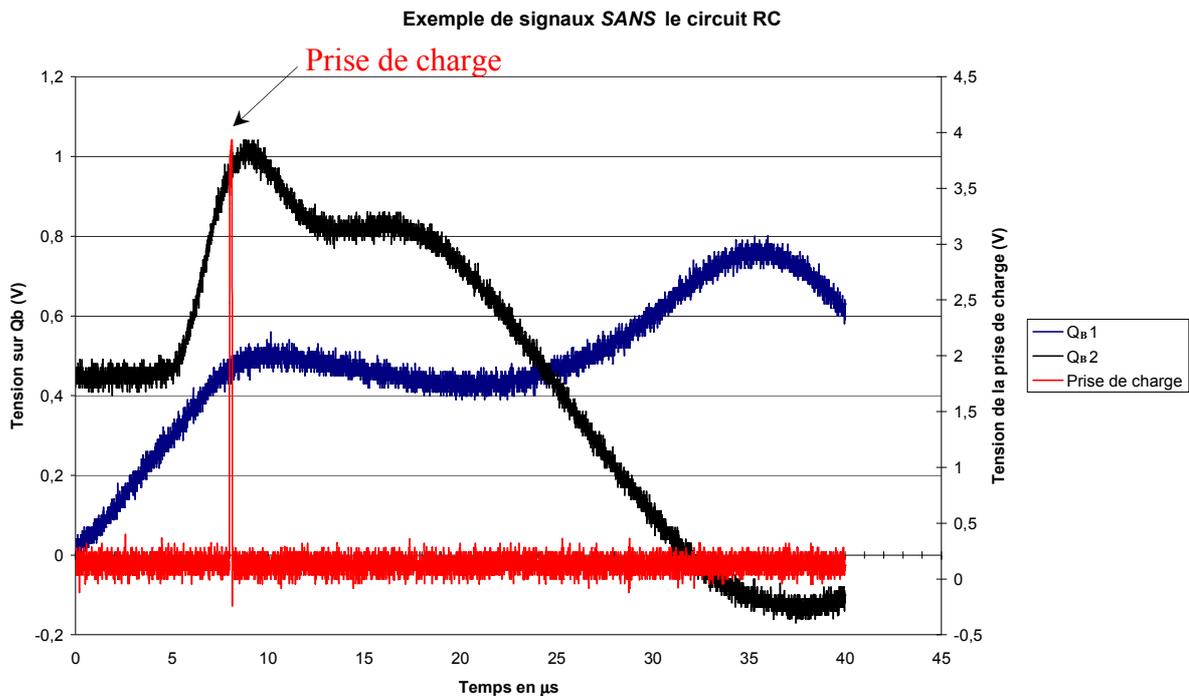


Fig. II.29 : Tracé des signaux lors de l'acquisition de la charge Q_B . Les courbes bleue et noire montrent deux exemples de signaux pour Q_B correspondant à des acquisitions différentes. La courbe rouge est le signal de prise de charge : la valeur de Q_B effectivement prise est celle correspondant au moment où la courbe rouge est à son maximum.

Le signal ainsi obtenu sur la voie B n'est pas du tout conforme au signal attendu, d'autant plus que sur les autres voies, il n'y a pas de déformation du signal. La figure II.29 donne un exemple de prise de charge correspondant à un tel signal. Une première analyse montre un signal périodique de fréquence de l'ordre de 15kHz, qui, en aucun cas, n'aurait dû être présent. En fait, après analyse minutieuse et les remarques judicieuses de Michel Lecas, ingénieur électronicien, cette fréquence correspond à la fréquence d'alimentation à découpage de l'alimentation continue qui délivre la haute tension aux galettes. Cette alimentation est censée délivrer une tension continue, mais par construction il reste toujours une petite composante oscillatoire autour de la valeur continue désirée. Ces oscillations ont une amplitude théorique bien plus petite que le pour mille de la tension désirée. De plus dans notre cas, le circuit en sortie de cette alimentation amplifie justement cette fréquence. Il a donc fallu corriger cet effet en ajoutant un circuit qui filtre cette fréquence avant d'injecter le signal sur les galettes MCP. Un circuit du type RC a finalement été adopté avec une valeur de résistance de $R = 150 \text{ k}\Omega$ et une capacité de $C = 4,5 \text{ nF}$. Ce circuit est un filtre passe-bas filtrant toutes les fréquences supérieures à la fréquence de coupure $f_c = 235 \text{ Hz}$. En particulier pour $f = 15\text{kHz}$ le filtre atténue le signal de -36 dB. En ajoutant ce circuit RC, le signal obtenu est le suivant :

Exemple de signaux avec le circuit RC

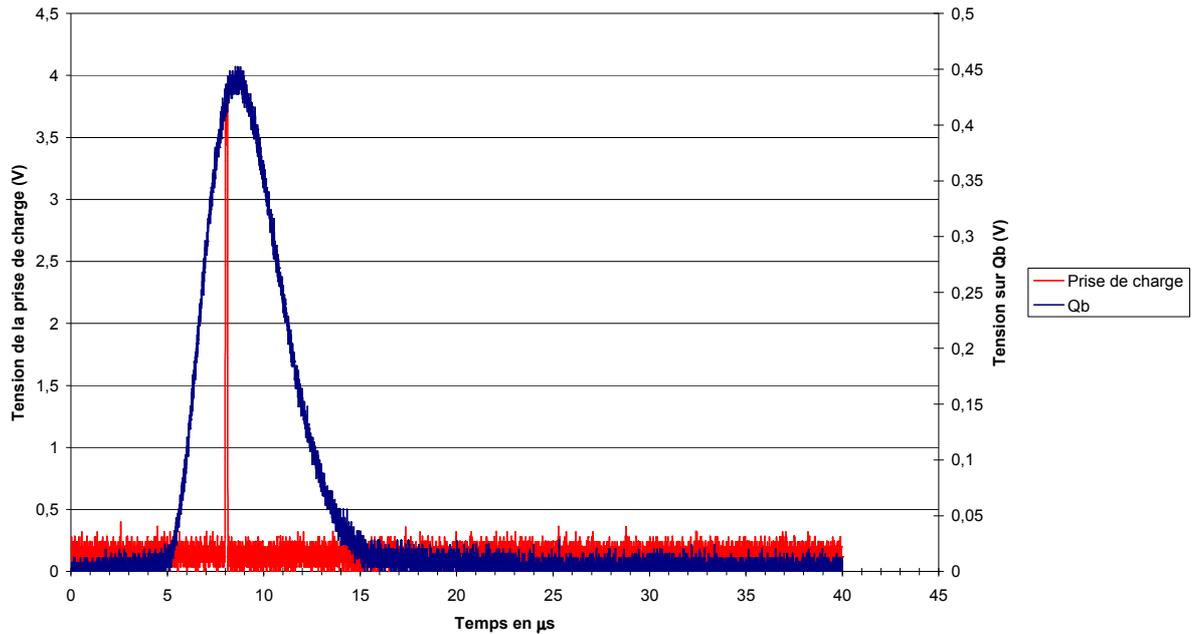


Fig. II.30 : Tracé des signaux lors de l'acquisition de la charge Q_B avec le circuit de filtrage.

La correction apportée permet de corriger les effets d'amplification du signal résiduel. L'image obtenue sur le détecteur a dans les conditions décrites précédemment est la suivante :

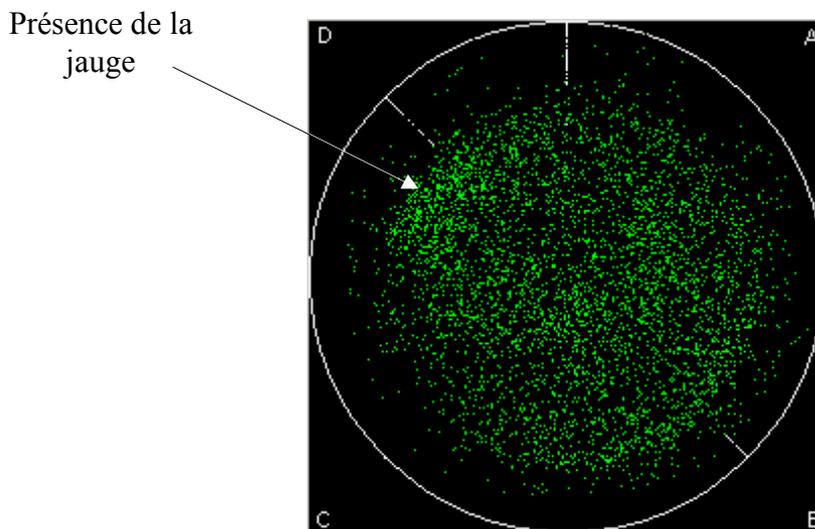


Fig. II.31 : Image obtenue sur le détecteur a pour une haute tension de 2400V. L'image n'est pas totalement uniforme et présente plus spécifiquement un maximum d'intensité à proximité de D, extrémité la plus proche de la jauge à filament.

Sur les autres voies, le signal de prise de charge est conforme à celui obtenu pour la charge B qui est désormais conforme aux attentes. L'absence de déformation du signal sur les autres charges avant même d'effectuer cette correction, s'explique par le fait que la haute tension

appliquée sur l'anode résistive se fait sur la voie B, et le pont diviseur qui existe entre les différentes voies atténue fortement la présence de ces oscillations. Ces corrections, et bien d'autres qu'il est inutile de détailler, nous assurent un bon fonctionnement de ce détecteur.

4- Calibrage en énergie

Le bon fonctionnement du détecteur indépendamment de celui du tore (a) étant fait, il reste à prouver la bonne réponse en énergie de ce tore. Une première analyse consiste à faire une étude énergétique du pic de diffusion élastique. A cet effet, le canon à électrons est réglé pour une énergie de 500 eV, l'énergie d'analyse du tore. Les électrodes du tore sont portées aux potentiels correspondant à la formule FII.1. Sachant que $r_{\text{int}} = 90\text{mm}$, $r_{\text{ext}} = 130\text{mm}$ et que l'énergie de passage choisie est de 120eV, les potentiels à appliquer sont $V_{\text{int}} = V(r_{\text{int}}) = 49,1\text{V}$ et $V_{\text{ext}} = V(r_{\text{ext}}) = -39,3\text{ V}$. L'énergie d'analyse est de 500 eV, une tension décélétratrice de 380 V est donc à appliquer en addition à toutes les électrodes, en particulier, aux potentiels V_{int} et V_{ext} . La mesure du pic élastique consiste à faire varier la tension de décélération autour de sa valeur nominale 380 V. La courbe mesurée est une gaussienne centrée autour de cette valeur nominale et de largeur à mi-hauteur $\sim 5\text{ eV}$. La résolution énergétique du tore est donc de $\sim 5\text{ eV}$ et comprend la réponse propre de l'appareil convoluée à la taille du volume de collision. Une application numérique de FII.3, ne tenant compte que des paramètres géométriques, conduit à une résolution relative « théorique » de 3,3% soit une résolution énergétique de 4 eV.

Cette mesure est complétée par une mesure du pic inélastique *via* un processus du type (e,2e). Dans ce cas, l'ionisation simple de He est étudiée pour une énergie des électrons éjectés de 205 eV, ces électrons étant analysés par le double tore b/c. Sachant que l'énergie de simple ionisation de He est de 24,6 eV, l'énergie des électrons incidents est de 729 eV. Après quelques essais infructueux (plus longs à faire qu'à écrire !), le signal donné par le tore a a été optimisé en focalisant les électrons qui le traversent, et un pic de coïncidence double a été obtenu. Ce qui est appelé spectre énergétique (e,2e) est en fait le tracé du taux de coïncidences vraies en fonction de l'énergie des électrons diffusés (ou incidents) en intégrant sur tous les domaines accessibles pour chacun de ces tores. La courbe obtenue est celle de la *figure II.32*. C'est une gaussienne de valeur centrale 380 V et de largeur à mi-hauteur de $\Delta E = 6\text{ eV}$. La valeur centrale est la tension à appliquer pour analyser des électrons diffusés de 500 eV (par conservation de l'énergie). Quand à la valeur de la largeur, elle est le résultat de la convolution des réponses énergétiques des deux tores (tore a et tore b/c) et de la dispersion en énergie du faisceau incident qui est négligeable ($\sim 0,5$ à 1 eV). Rappelons que le produit de convolution entre deux gaussiennes est une gaussienne dont la largeur est la racine carrée de la somme du carré de chacune des résolutions. Dans notre cas, si ΔE est la résolution obtenue par la méthode précédente, et ΔE_a et $\Delta E_{b/c}$ les résolutions de chaque analyseur alors :

$$\Delta E^2 = \Delta E_a^2 + \Delta E_{b/c}^2 \quad [\text{FII.21}]$$

La résolution de l'analyseur torique b/c à 205eV est de $\Delta E_{b/c} = 3,3\text{eV}^{22}$. En appliquant FII.21 la résolution de l'analyseur (a) est : $\Delta E_a = 5\text{eV}$, dans les conditions de cette mesure.

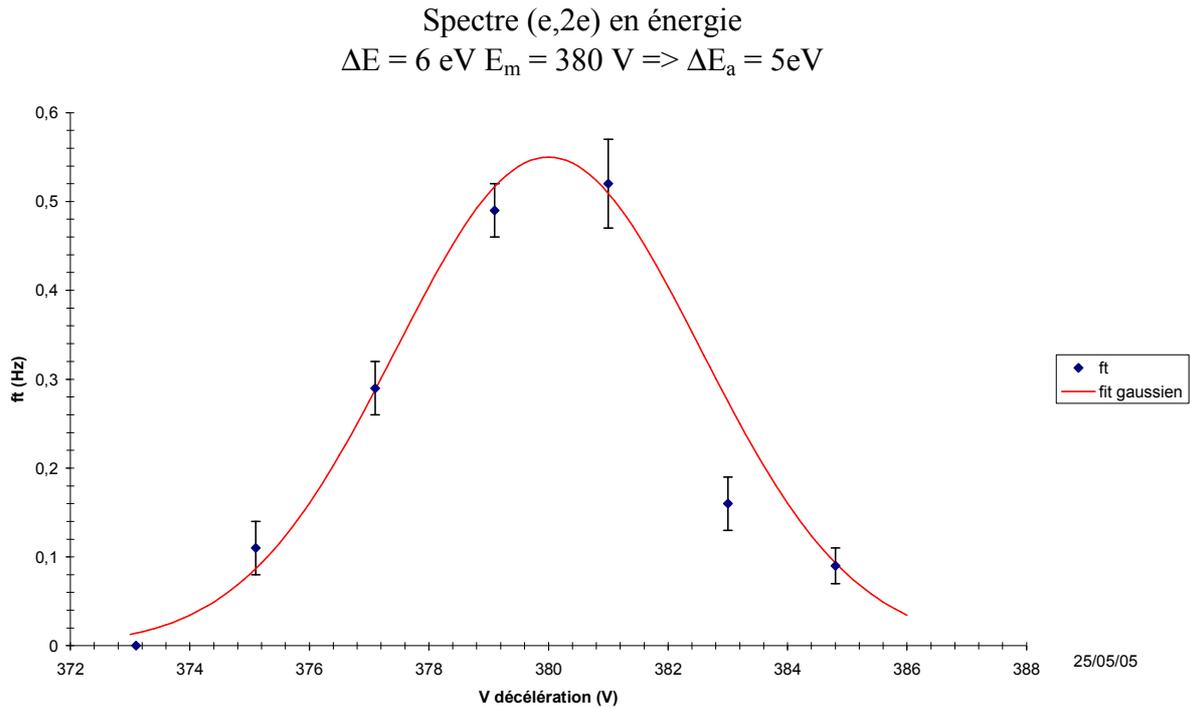


Fig. II.32 : Tracé du taux de coïncidences vraies en fonction de la tension de décélération appliquée à l'ensemble des électrodes du nouvel analyseur. Sachant que l'énergie de passage est de 120eV, la relation entre l'énergie analysée E_a et la tension de décélération est : $E_a = |V_{dec}| + 120$. En fait, V_{dec} est négative d'où son nom.

La résolution de ce nouvel analyseur est satisfaisante pour obtenir un signal mesurable pour des processus (e,2e) et (e,3e). Qui plus est, la valeur centrale de la gaussienne est exactement la valeur escomptée.

²² Cette valeur est obtenue par une procédure identique à celle adoptée ici. Elle sera précisée dans la suite de ce chapitre.

5- Calibrage angulaire

Le dernier paramètre à déterminer est la résolution angulaire du nouvel analyseur. Pour ce faire, une plaque percée de quatre fentes aux angles de -9° , -3° , 3° et 9° est placée à l'entrée de l'analyseur. La largeur de chacune des fentes correspond à une largeur angulaire de $0,3^\circ$ (soit 1 mm). La résolution angulaire mesurée de l'analyseur sera la convolution d'une gaussienne de largeur $0,3^\circ$ et d'une gaussienne correspondant à la réponse propre de l'analyseur.

A la différence des images obtenues sur les détecteurs b et c, celle du détecteur a forme un arc de cercle avec un grand rayon de courbure. Seule une fraction des électrons diffusés dans le domaine angulaire (-10° , $+10^\circ$), cf. précédemment, est projetée sur ce détecteur. La détermination des paramètres angulaires est consécutivement plus difficile. De même, le choix de l'angle 0 est assez délicat, mais il ne représente qu'un décalage angulaire une fois tous les angles déterminés.

a. Résolution angulaire due au logiciel

Par construction, la rayon de courbure de l'image sur le détecteur (a) est bien plus grand que celui des images formées sur les détecteurs b et c. Par conséquent la résolution en angle est fortement liée au choix du « troisième » point qui détermine la position du centre selon la méthode exposée dans le paragraphe II.2.c. Explicitons ces remarques sur des exemples concrets. Prenons deux points M_1 et M_2 et montrons comment le choix du troisième point T influence la détermination du centre du cercle passant par ces trois points. Pour ce faire, choisissons le centre du repère de travail au point milieu du segment M_1M_2 . Les coordonnées des différents points introduits sont données par la figure suivante :

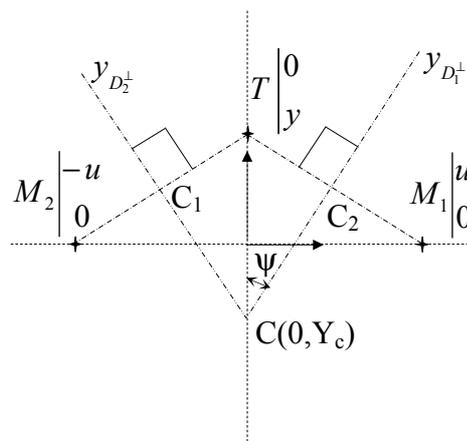


Fig. II.33 : Définition des paramètres utiles à la détermination des résolutions dans le cas des détecteurs a et b. Seule y est une variable, les autres termes sont des paramètres ou des fonctions de y .

Les droites D_1^\perp et D_2^\perp sont définies respectivement par les équations suivantes :

$$\overrightarrow{MC_1} \cdot \overrightarrow{C_1T} = 0 \text{ pour } D_1^\perp \text{ et } \overrightarrow{MC_2} \cdot \overrightarrow{C_2T} = 0 \text{ pour } D_2^\perp \quad [\text{FII.22}]$$

Ces deux droites coupent l'axe $x = 0$ au point correspondant au centre du cercle passant par les trois points M_1, M_2 et T . Les coordonnées du centre du cercle sont données par :

$$\begin{cases} X_c = 0 \\ Y_c = -\frac{u^2}{2y} + \frac{y}{2} = \frac{y}{2} \left(1 - \frac{u^2}{y^2}\right) \end{cases} \quad [\text{F11.23}]$$

Rappelons que seule y varie, u étant une valeur donnée. Déterminons alors les incertitudes sur la position du centre Y_c notée dY_c , ainsi que celle sur l'angle, $d\psi$. D'où les relations :

$$\begin{aligned} dY_c &= \left(1 + \frac{u^2}{y^2}\right) \frac{dy}{2} \\ \tan(\psi) &= \frac{y}{u} \text{ d'où } d\psi = u \left(\frac{1}{y^2 + u^2}\right) dy \end{aligned} \quad [\text{F11.24}]$$

Il est intuitif de penser que l'incertitude sur la détermination de l'angle est d'autant plus petite que le centre du cercle est éloigné. En effet, si le rayon de courbure est grand, l'écart angulaire correspondant à la position du point M est petit donc son incertitude est petite. Cette analyse ne tient pas compte du fait que plus le point T est proche de O , plus le rayon de courbure est grand et que l'incertitude sur ce point est grande. Il faut alors introduire ce dernier point dans l'analyse globale. Une première approche donne la dépendance de $d\psi$ en fonction de y , $d\psi = \frac{u}{y^2} dy$ pour y grand devant u et $d\psi = \frac{1}{u} dy$ pour y petit devant u , ce qui signifie que plus y est grand, plus l'incertitude est petite.

Effectuons une comparaison entre les cas correspondant au détecteur b/c et a caractérisant le paragraphe précédent. Prenons un point M_1 écarté de 50 pixels du point O . Rappelons d'ailleurs qu'une image est un carré quadrillé de 256x256 pixels. Le choix du point T se fait à 1 pixel près, autrement dit $dy = 1$ pixel et ceci pour les deux détecteurs, b/c ou a. L'ensemble des résultats est résumé dans le tableau suivant :

Détecteur	y	u	Y_c	dY_c	$d\psi$ (rd)	$d\psi/\psi$
a	5	50	247	51	$2 \cdot 10^{-2}$	0,2
a	2	50	624	313	$2 \cdot 10^{-2}$	0,5
b	40	50	11	1,3	$1,2 \cdot 10^{-2}$	$1,77 \cdot 10^{-2}$

Tableau II.1 : Récapitulatif des valeurs pour les différents cas envisagés concernant l'analyse de la résolution angulaire.

Une première remarque concerne les choix des valeurs de y en fonction des détecteurs. Ces valeurs ont été choisies en fonction des valeurs observées lors des différentes analyses faites sur chacun des détecteurs. Elles sont donc tout à fait cohérentes avec les valeurs effectivement utilisées dans les calculs.

Les résultats du *tableau II.1* montrent clairement que la résolution en angle $\frac{d\psi}{\psi}$ est meilleure dans le cas du détecteur B/C que dans le cas du détecteur A.

Cependant la détermination de l'angle pour le détecteur A est facilitée par le fait que si le rayon de courbure est grand, il y a un lien de linéarité entre les distributions angulaires. Autrement dit, si un rayon de courbure R_1 est choisi pour l'analyse angulaire, un autre choix du rayon de courbure (R_2) donnera la même distribution angulaire mais les angles seront changés d'un facteur R_2/R_1 .

La figure suivante montre dans quelle gamme cette linéarité est justifiée.

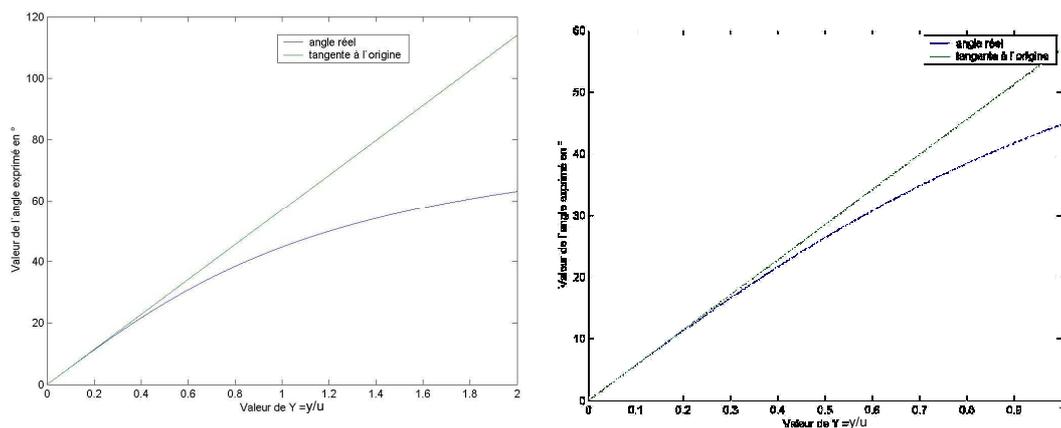


Figure II.34 : Représentation graphique de l'angle en fonction du paramètre $Y = y/u$. La figure de droite est un zoom de celle de gauche pour Y compris entre 0 et 1. Elle montre en particulier une certaine linéarité entre la valeur de l'angle et la paramètre Y pour Y allant jusqu'à une valeur de 0,3.

b. Résolution angulaire de l'analyseur a

Dans cette partie, nous nous proposons de déterminer la résolution angulaire du nouvel analyseur A. La largeur angulaire correspondant à chacune des fentes est de $0,3^\circ$. Le résultat attendu est une distribution angulaire du type gaussienne résultant d'un produit de convolution entre la réponse propre de l'appareil (gaussienne) et la largeur de la fente. La résolution angulaire sera influencée par deux facteurs. Le premier est lié à la construction même de l'analyseur. En effet, celui-ci est dans l'axe défini par le faisceau incident qui produit des électrons secondaires sur toute sa trajectoire. Pour essayer d'évaluer cette contribution, nous avons mesuré le taux de comptage en présence du gaz, sans que le gaz soit injecté par la buse proche du centre de collision mais par une buse latérale qui permet de conserver la même pression résiduelle de travail. Il y a environ un facteur 3 entre ces deux grandeurs. La contribution du gaz résiduel n'est donc pas négligeable et participe à la dégradation de la distribution angulaire. Un second point allant dans ce sens est le fait que les électrons analysés ont une énergie de 500 eV alors que l'énergie de passage est de 120 eV, il est alors nécessaire de décélérer ces électrons. La conséquence de cette décélération est une dégradation de la résolution angulaire (cf. formule de Lagrange-Helmoltz [GBS1955]).

Le réglage de l'analyseur A a été une étape laborieuse, à l'issue de laquelle nous avons pu obtenir une image sur le détecteur A conforme aux prévisions.

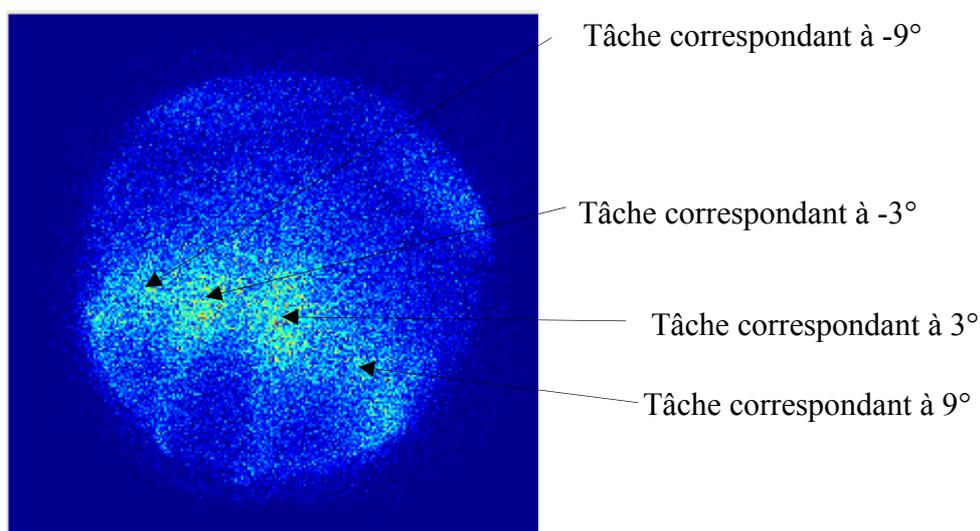


Figure II.35 : Image obtenue sur le détecteur pour des électrons diffusés de 500 eV d'énergie. Cette image montre quatre tâches correspondant aux angles de -9° , -3° , 3° , 9° .

L'attribution des angles pour chacune des tâches s'est faite de manière logique en suivant une trajectoire théorique dans l'analyseur. Ce dernier point sera explicité dans le paragraphe c de ce chapitre. Pour le moment nous ferons cette hypothèse de travail.

Comme il a été dit dans le paragraphe précédent le choix des paramètres pour déterminer les angles est assez délicat et ne conduit pas à une solution unique. Ce point va être discuté plus précisément dès à présent. Deux séries de paramètres ont été choisies pour étudier la distribution angulaire de l'image sur le détecteur (a) ainsi que sa résolution angulaire.

La série 1 correspond au choix suivant des paramètres :

Position du centre : $X_c = 22$ et $Y_c = 421$

Les rayons : $R_{inf} = 275$ et $R_{sup} = 311$ (série 1)

Ces valeurs ont été obtenues directement avec le logiciel par la méthode vue précédemment.

Une autre série a consisté à diviser environ par deux les rayons. Un ajustement du centre est alors nécessaire et a conduit aux valeurs suivantes :

Position du centre : $X_c = 80$ et $Y_c = 300$

Les rayons : $R_{inf} = 130$ et $R_{sup} = 180$ (série 2)

La représentation graphique des zones étudiées est donnée par la figure suivante :

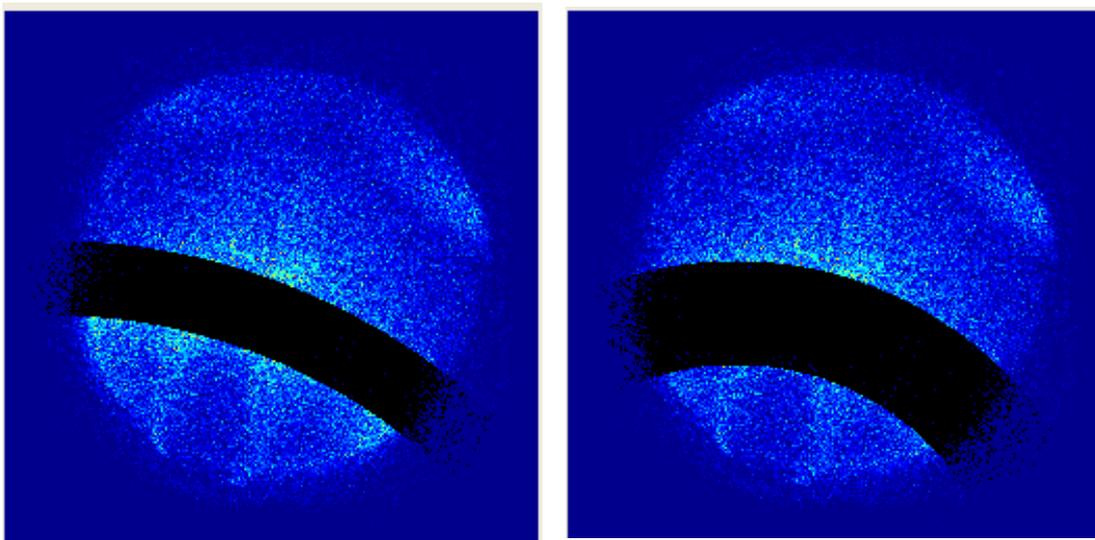


Figure II.36 : Représentation graphique des zones sélectionnées pour les deux séries envisagées. À gauche est représentée la série 1, à droite la série 2.

Le but de cette étude est de montrer que la distribution angulaire dont les angles sont normalisés, a la même allure tant que le choix des paramètres d'analyse reste judicieux. Pour cela, chacune des distributions angulaires correspondant aux séries détaillées ci-dessus est normalisée en angle et en amplitude. La procédure adoptée est alors la suivante : pour une distribution donnée, deux pics sont clairement observés. Le but de la normalisation angulaire est de trouver l'angle 0 et de ramener chacun des angles correspondant aux deux maxima à -1 et 1, ces angles étant arbitraires. Une relation affine existe alors entre les angles obtenus de

manière logicielle et ceux dits arbitraires. Enfin, les angles réels sont quant à eux simplement reliés (par construction) aux angles arbitraires par un facteur multiplicatif de 3. Une fois cette correction angulaire effectuée, un facteur de normalisation permet de tracer ces courbes pour que le maximum de f_a soit à 1 dans les deux cas. Ce facteur normalisateur est nécessaire car les zones couvertes pour chaque secteur ne sont pas les mêmes suivant les séries. Les deux distributions angulaires sont représentées sur la *figure II.37*.

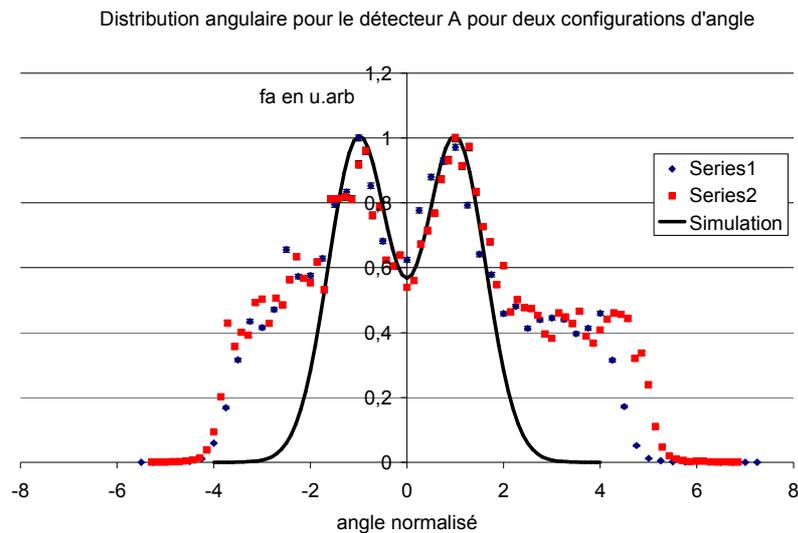


Figure II.37 : Tracé des distributions angulaires normalisées en angle et en amplitude pour les deux séries envisagées dans ce paragraphe. Le trait plein représente une simulation où deux gaussiennes sont ajoutées pour simuler la réponse de l'appareil aux angles 1 et -1, exprimées en unités arbitraires.

Sur cette figure a été ajoutée une simulation correspondant à la somme de deux gaussiennes centrées respectivement sur -1 et 1, correspondant en unité d'angle normalisée à -3° et 3° respectivement. Ces deux gaussiennes ont la même largeur caractérisée par un σ égal à 0,63. Ce nombre doit être multiplié par $2\sqrt{2\ln(2)}$ pour obtenir la largeur totale à mi-hauteur de cette gaussienne soit $\Delta\theta_N = 1,48$ en unité normalisée. En multipliant par 3 ce terme, la résolution angulaire est obtenue, soit : $\Delta\theta = 4,45^\circ$. Comme il a été dit précédemment, cette valeur est en fait le résultat d'une convolution entre la réponse propre de l'appareil et de la largeur de la fente mise en entrée. La largeur de la fente d'entrée étant de $0,3^\circ$, cela correspond à une largeur liée uniquement à l'appareil de $\sqrt{(4,45)^2 - (0,3)^2} = 4,4^\circ$, qui est la résolution angulaire sans coïncidence du nouvel analyseur. Toutefois, cette valeur est pessimiste car elle n'a pas tenu compte dans la simulation, de la présence des autres gaussiennes à -9° et à 9° dont l'effet évident sera de réduire la valeur de σ trouvée ici.

c. Simulation de la trajectoire des électrons dans le tore A

Dans ce paragraphe, nous nous proposons d'étudier un point du fonctionnement de l'analyseur A. Cette analyse est faite en deux étapes : une première consiste en la simulation avec SIMION des trajectoires électroniques dans le tore A, une seconde est basée sur des constats physiques.

Une analyse de la trajectoire théorique des électrons dans le tore A a été menée sur SIMION avec Ren Xue Wang, post doc dans le groupe (e ,3e). Rappelons que la spécificité de cet analyseur est d'être une portion de tore, et que les champs électriques dans la partie torique ne sont pas une extrapolation du cas idéal torique à symétrie de révolution de 360°. Pour examiner les trajectoires des électrons dans le tore A, les équipotentielles en entrée de l'analyseur ont été tracées dans le plan de collision, à l'entrée de l'analyseur (cf. *figure II.38*).

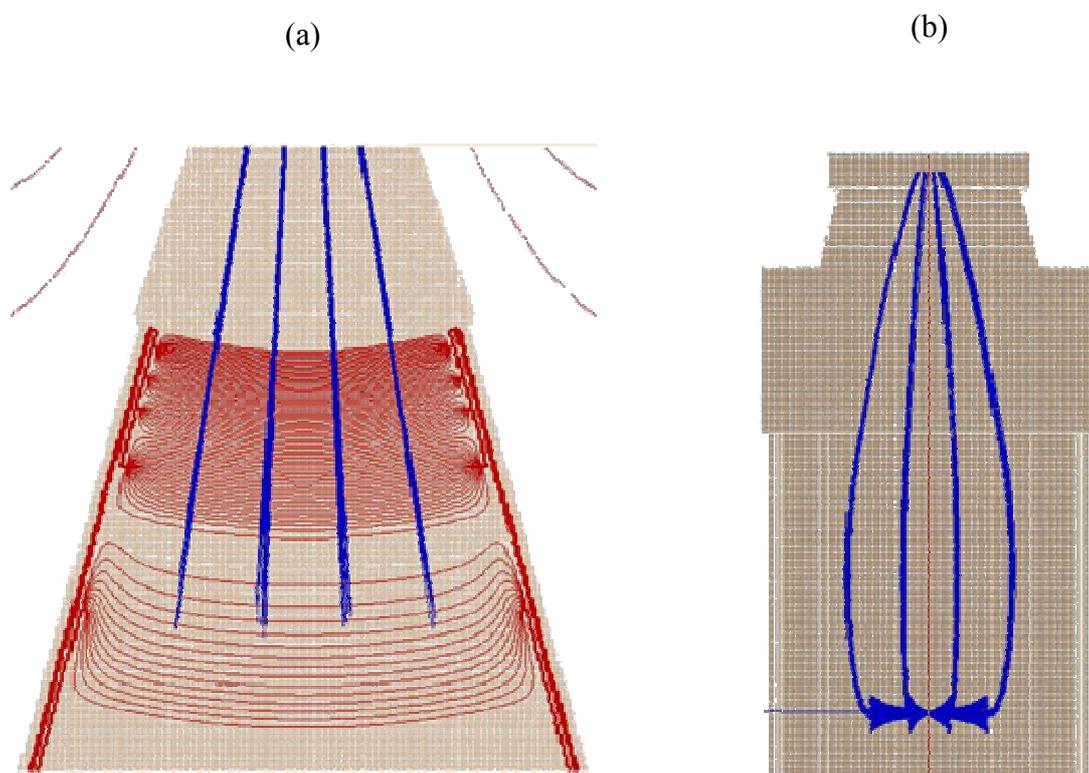


Figure II.38 : Cette figure représente la trajectoire des électrons dans le tore a pour une énergie de passage de : $E_p = 200$ eV. (a) représente ces trajectoires dans le plan de collision à l'entrée de l'analyseur. Les lignes rouges sont les équipotentielles. (b) représente ces trajectoires vues dans le plan perpendiculaire au plan de collision pour les angles de -3° , 3° , -9° et 9° .

La simulation précédente a été réalisée pour quatre angles particuliers de diffusion. Comme nous le verrons dans le chapitre III, une plaque percée de quatre fentes a été placée en entrée pour une première calibration angulaire. Les angles correspondant à ces fentes sont de -9° , -3° , 3° et 9° . Le fait de placer cette plaque, impose un potentiel nul à l'entrée de l'analyseur. Le risque est de perturber les lignes de champ de l'analyseur, modifiant ainsi sa réponse angulaire. Le calcul des trajectoires en ajoutant la plaque est donné par la figure suivante :

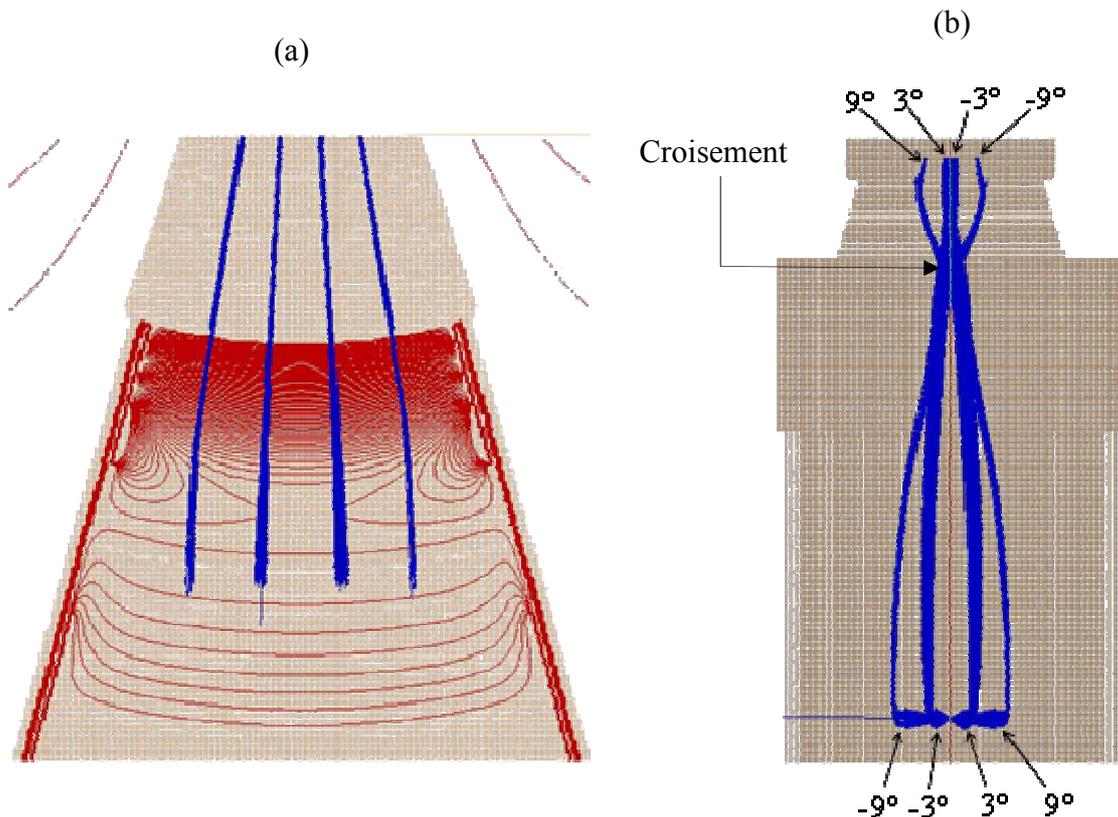


Figure II.39 : Cette figure représente la trajectoire des électrons dans le tore a pour une énergie de passage de : $E_p = 120$ eV. (a) représente ces trajectoires dans le plan de collision à l'entrée de l'analyseur. Les lignes rouges sont les équipotentiels. (b) représente ces trajectoires vues dans le plan perpendiculaire au plan de collision.

La figure II.39 semble montrer que les trajectoires des électrons se croisent et que les angles sont inversés. Cependant, l'ordre des angles projeté sur le détecteur est respecté conservant ainsi la cohérence interne. Le dispositif est complexe et ne présente pas d'axe de symétrie simple, les simulations ne donnent alors qu'une idée de la trajectoire des électrons dans ce système. Il est alors difficile de savoir de manière absolue s'il y a inversion des angles ou non. En revanche, il est possible de déterminer de manière non ambiguë la position des angles positifs et négatifs par une mesure en coïncidence et grâce à une analyse physique de cette mesure.

Pour cela, une plaque percée de deux fentes ne laissant passer que des électrons diffusés sous un angle de 6° et -6° a été disposée en entrée du tore A. Très clairement, deux tâches apparaissent sur le détecteur pouvant être attribuées à l'un ou l'autre de ces angles. Pour savoir quel angle correspond à quelle tâche, il suffit de faire une expérience du type (e,2e) sur l'hélium dans des conditions où il est aisé de déterminer la direction du transfert.

Prenons par exemple l'analyseur b, et effectuons une mesure (e,2e) pour une énergie incidente de 729 eV. Les analyseurs A et B sont respectivement réglés à 500 et 205 eV. La schématique du dispositif est donnée par la figure suivante :

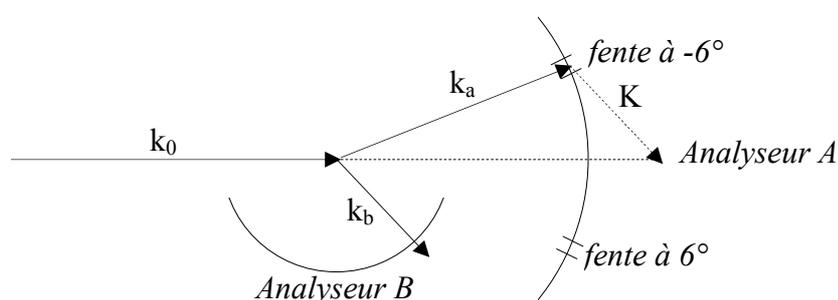


Figure II.40 : Schématique de la mesure (e,2e) pour la détermination des angles sur A.

Le vecteur transfert de quantité de mouvement est donné par la relation : $\vec{K} = \vec{k}_0 - \vec{k}_a$ donnant un angle pour ce vecteur dans la direction du demi-plan opposé au demi-plan contenant l'angle de diffusion. Dans notre cas, si l'angle de diffusion est de -6° , alors le vecteur transfert de quantité de mouvement est dans le demi-plan contenant l'analyseur B. Des études précédentes montrent que le maximum de la distribution angulaire de la section efficace (appelé lobe binaire) se trouve dans la direction du transfert de quantité de mouvement. Ce résultat est alors utilisé pour déterminer l'orientation des angles pour l'analyseur A.

Le résultat obtenu après la mesure en coïncidence des deux partenaires sont les images de la figure II.41. La première image est celle du détecteur A, la seconde celle obtenue sur l'analyseur B ainsi que le pic de coïncidence. La procédure est alors la suivante : dans un premier temps, le spectre de coïncidence est tracé ; la partie correspondant au signal est ensuite filtrée pour n'afficher que les événements qui contribuent à la zone sélectionnée du pic de coïncidence. Le synoptique de la procédure est donné par la figure II.41. On repère

alors aisément la tâche de plus forte intensité de coïncidence : c'est celle qui donne naissance au lobe binaire correspondant à la fente à -6° ; et de même on repère la tâche de plus faible intensité, à $+6^\circ$, correspondant au lobe de recul.

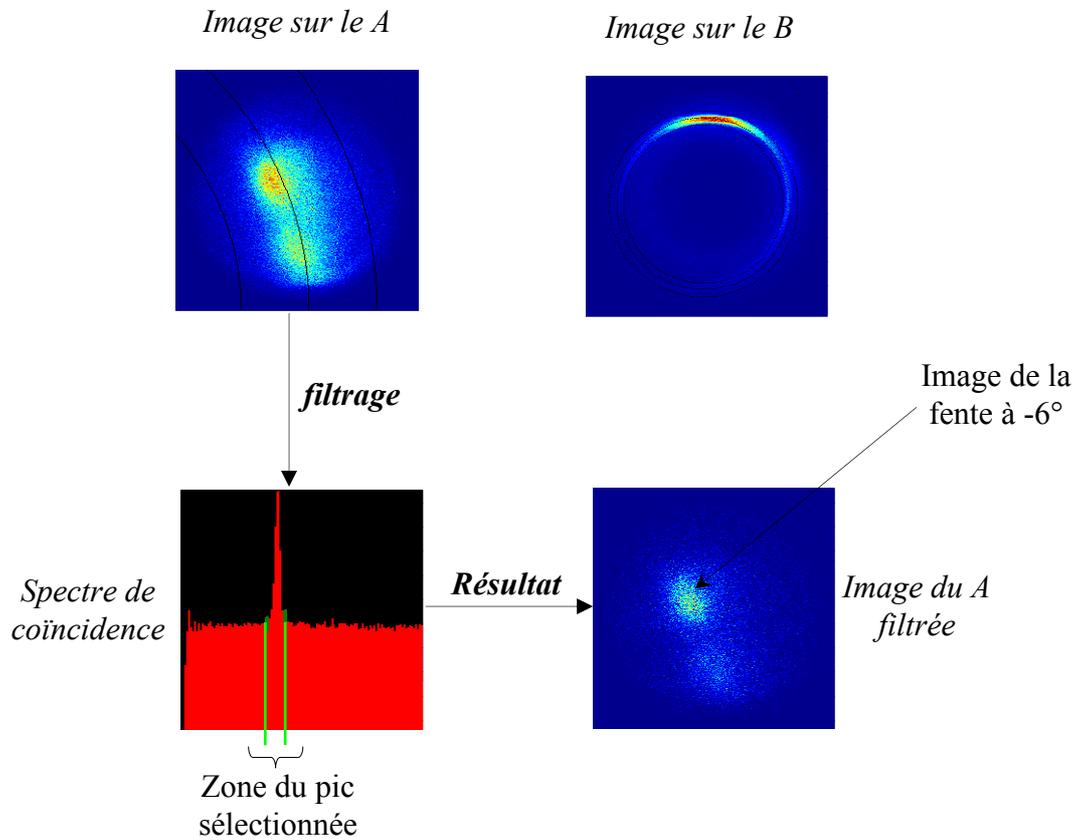


Figure II.41 : Schéma de principe de détermination de la position des fentes de -6° et 6° sur le détecteur A.

Cette méthode d'analyse physique nous permet donc de déterminer de manière univoque la position des images des fentes sur le détecteur A et donc de positionner correctement la portion des angles négatifs et positifs, confirmant la correspondance angulaire. Les résultats des mesures (e,2e) sur He et Ar du chapitre III, corroborent sans ambiguïté ces conclusions.

VI. Caractérisation des analyseurs B et C

Dans cette partie, nous allons nous intéresser plus spécifiquement aux caractéristiques angulaire et énergétique des analyseurs B et C dans les conditions expérimentales du chapitre III à savoir une analyse d'électrons dont l'énergie est de 205 eV.

1. Résolutions en énergie

Les conditions physiques pour les quelles nous désirons faire nos mesures impliquant des processus Auger, imposent le réglage des analyseurs B et C à une énergie de 205 eV. Le dispositif a montré, dans les études antérieures, un fonctionnement correct pour des énergies d'analyse de ≈ 10 eV. L'énergie de passage des électrons dans les deux configurations, est de 50 eV. Ce qui signifie que dans un cas les électrons sont initialement accélérés, et dans l'autre cas (le nôtre) ces électrons sont ralentis. La phase de décélération n'est pas sans conséquence. Elle dégrade notablement la distribution angulaire, et c'est un point que nous aborderons par la suite. Nos deux tores étant réglés aussi identiquement que possible, faisons l'hypothèse qu'ils ont la même réponse en énergie et en angle. Afin de définir les réponses en énergie des deux tores, on mesure le taux de coïncidences (e,2e)-bc vraies en fonction de l'énergie des électrons incidents. En particulier pour un mécanisme d'ionisation simple de l'hélium (dont l'énergie d'ionisation est de 24,6 eV) si on désire avoir des électrons éjectés et diffusés de 205 eV chacun, alors l'énergie incidente doit être de 434,6 eV. La *figure II.42* illustre ce point.

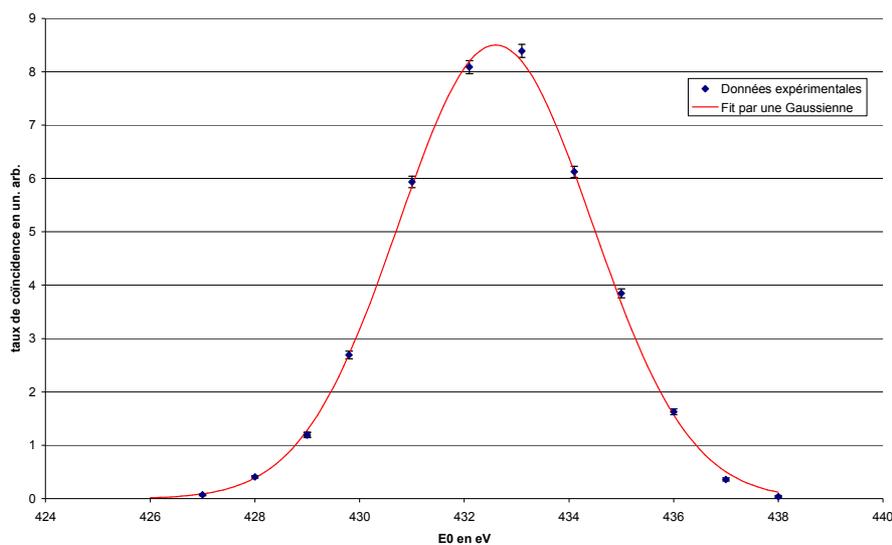


Figure II.42 : Tracé du taux de coïncidences vraies en fonction de l'énergie incidente. L'énergie des électrons détectés par les analyseurs B et C sont de 205 eV.

Les données expérimentales peuvent-être interpolées par une gaussienne de 4,3 eV de largeur et de valeur centrale 432,6 eV. Les électrons analysés ont donc une énergie de 204 eV avec une précision de l'ordre du volt, ce décalage ayant été corrigé par la suite. Enfin la résolution propre de chacun des analyseurs B et C est de $4,3/\sqrt{2} = 3$ eV (la contribution due à la résolution sur l'énergie incidente est négligeable). Pour les mesures en coïncidence où toutes les énergies sont fixées, la résolution effective des coïncidences est $3/\sqrt{2} = 2,1$ eV, comme il a été montré par Lahmam-Bennani et al. [LWD1985]. En ce qui concerne l'analyseur A, la résolution déterminée dans le paragraphe précédent est de 5 eV pour une énergie des électrons diffusés de 500 eV.

Les analyseurs B et C sont utilisés pour analyser les électrons Auger. On peut alors se demander si cette résolution est suffisante pour mesurer effectivement les distributions angulaires dues aux électrons Auger.

2. Spectre Auger

Essayons à présent d'évaluer la contribution des électrons Auger dans la zone de 197 à 208 eV où se trouve la quasi-totalité des transitions Auger $L_{23}M_{23}M_{23}$ de l'argon faisant l'objet de notre étude. En effet, dans cette zone, il y a une contribution non négligeable des électrons issus d'une simple ionisation et qui constitue du bruit pour notre analyse. Afin d'évaluer la contribution des électrons Auger, nous avons tracé le taux de comptage sur la voie b (ou c) en fonction de l'énergie analysée par notre détecteur. L'image obtenue sur l'anode résistive est un anneau dont la distribution radiale d'intensité représente la distribution en énergie. Il suffit donc de tracer le taux de comptage, intégré sur tous les angles, en fonction du rayon (pris sur une « épaisseur » δr la plus fine possible). Cette procédure revient à tracer le taux de comptage en fonction de l'énergie. On compare ensuite cette distribution à la distribution « vraie » des électrons Auger vue par l'analyseur. C'est-à-dire que l'ensemble du spectre de raies Auger pures est convolué par une gaussienne de largeur totale à mi-hauteur de 3 eV. La distribution en énergie des raies Auger est donnée dans les tables [ESCA].

La *figure II.43* donne la distribution énergétique vue par notre analyseur. La courbe rouge est celle dont la résolution en énergie est de 3 eV. A ce spectre d'électrons Auger, il faut ajouter un contribution quasi-constante due aux électrons éjectés qui ne sont pas liés à des processus résonants, qualifiée de bruit. Ce bruit contribue à hauteur de 5% au maximum de la courbe rouge. Pour évaluer la contribution de ceux-ci sur l'ensemble du signal, effectuons l'intégrale des différentes contributions et notons : $f_B(E)$ la contribution du bruit et $f_S(E)$ celle du signal ainsi que $B = \int_{197}^{208} f_B(E)dE$ et $S = \int_{197}^{208} f_S(E)dE$. Le rapport cherché est alors :

$SNR = \frac{B}{B + S}$. Une application numérique donne un SNR de 18%, rapport qui est acceptable vu la faible valeur de la section efficace.

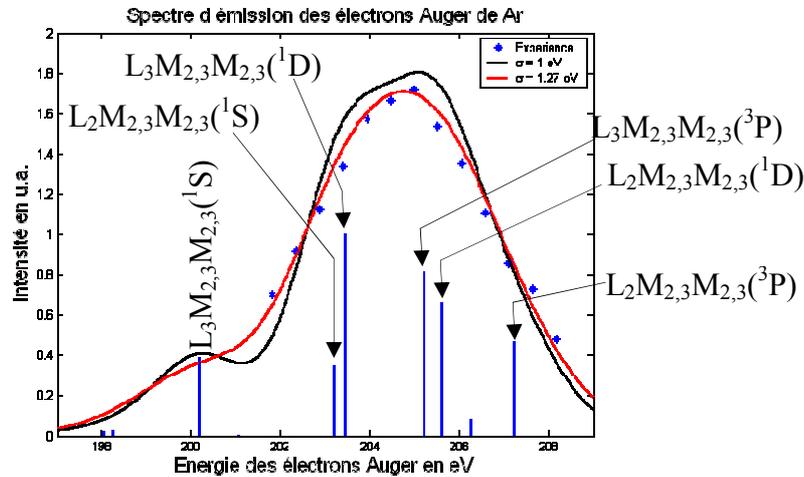


Figure II.43 : Tracé du spectre énergétique Auger vu par les détecteurs b et c. La résolution en énergie est de 3 eV.

3. Distributions angulaires

Une des caractéristiques essentielles des études que nous avons menées, est que nous nous sommes placés dans des conditions expérimentales n'ayant jamais été abordées. La raison est qu'à ces situations de transferts importants d'énergie et de moment à la cible, les sections efficaces différentielles sont très faibles. Seul un appareil à grande efficacité peut mesurer de telles distributions. Dans la suite de ce chapitre, nous allons étudier les réponses en angle des différents analyseurs.

Une première analyse consiste à étudier les distributions angulaires vues par chacun des analyseurs sans coïncidences. Ce type de mesure sera appelé par la suite f_B ou f_C suivant qu'il s'agisse de l'analyseur B ou C. En principe, le gaz est injecté via la buse et le volume de collision est défini par l'intersection du faisceau d'électrons et du jet de gaz. Sur le dispositif expérimental, il existe aussi une buse latérale qui permet d'introduire le gaz pour avoir la même pression de travail dans l'enceinte à vide, sans pour autant définir de volume de collision. Dans ce cas, tous les atomes qui sont sur la trajectoire du faisceau d'électrons vont contribuer à la mesure de la distribution angulaire. Si de plus le gaz injecté est de l'argon, et l'énergie d'analyse est centrée sur celle des électrons Auger à savoir 205 eV, alors puisque la distribution angulaire des électrons Auger est quasiment isotrope, le distribution mesurée doit aussi l'être. La distribution angulaire en traçant la fréquence f_B ou f_C en fonction de l'angle est

donnée sur la *figure II.44 (a)*. Cette figure montre que la distribution n'est pas constante et qu'il est nécessaire de corriger cette distribution angulaire.

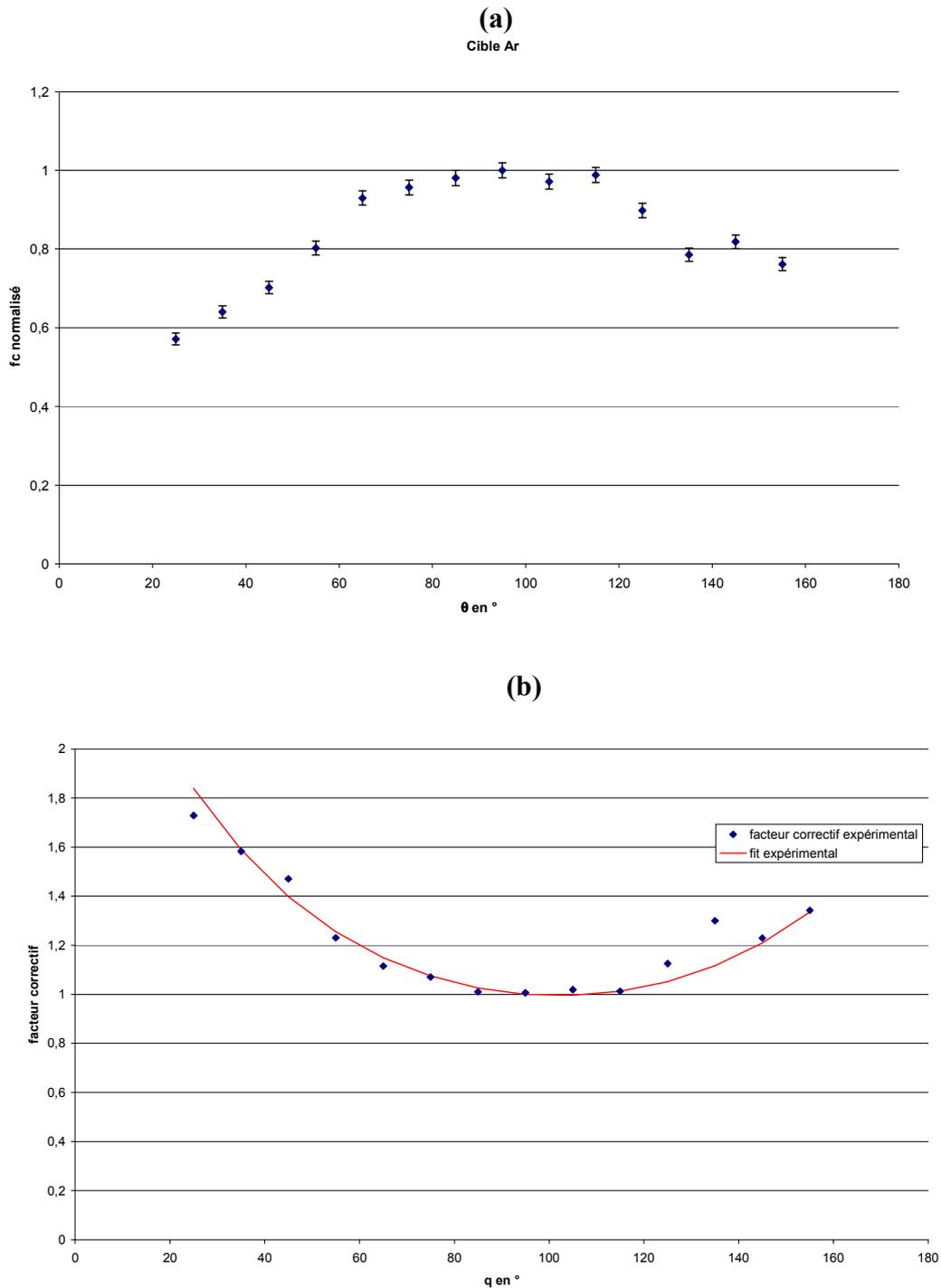


Figure II.44 : (a) Tracé des fréquences en fonction de l'angle pour l'analyseur C. Le gaz est injecté via la buse latérale. L'énergie des électrons détectés est de 205 eV. L'énergie des électrons incidents est de 953 eV.

(b) Tracé du facteur correctif angulaire et du fit correspondant.

Ce facteur correctif est donné par l'inverse des données de la *figure II.44 (a)*, car celle-ci est normalisée à 1. Le résultat est affiché sur la partie (b) de cette même figure. Un fit de cette distribution est donné et correspond à l'équation suivante :

$$C(\theta) = \frac{1}{[a + (1-a)\sin(\theta)] \times [b + (1-b)\sin(0,5\theta)]} \quad [\text{FII.25}]$$

Ce type de fonction $C(\theta)$ s'inspire de celui utilisé par DuBois [Dub1976].

Les paramètres a et b rendent compte de l'amplitude du facteur correctif. Plus ils tendent vers 0 plus la correction est forte. A l'inverse, plus ces facteurs tendent vers 1, moins cette correction est forte. Dans la courbe de la *figure II.44 (b)*, les coefficients obtenus sont : $a = 0,7$ et $b = 0,8$.

L'origine de cette distorsion de la distribution est pour le moment attribuée aux effets de bords, mais cette origine reste à être confirmée. Néanmoins l'hypothèse la plus probable est que les tensions appliquées sont telles qu'une forte décélération des électrons avant analyse est nécessaire, ayant pour conséquence inévitable de défocaliser les trajectoires des électrons. De plus les tores B et C ne sont pas de révolution complète, ce qui induit des effets de bords d'autant plus importants que les potentiels sont élevés, ce qui est notre cas. C'est la raison pour laquelle à des énergies d'analyse plus basses (de l'ordre de 10 eV) il n'était pas nécessaire d'utiliser un tel facteur. Cependant, il est difficile d'intervenir sur les analyseurs à ce niveau. Pour confirmer la pertinence de ce facteur correctif, nous avons mesuré des distributions angulaires d'électrons éjectés (sans coïncidence) qui sont bien établies. La *figure II.45* en donne un exemple en comparant nos mesures sur l'hélium à $E_0 = 953$ eV et $E_{ej} = 205$ eV à ceux admis dans la littérature. Ce graphique montre un particulier un excellent accord avec Opal [OBP1972], et les données d'Avaldi qui a eu l'obligeance de faire ces mesures, à notre demande. sur son spectromètre à Rome.

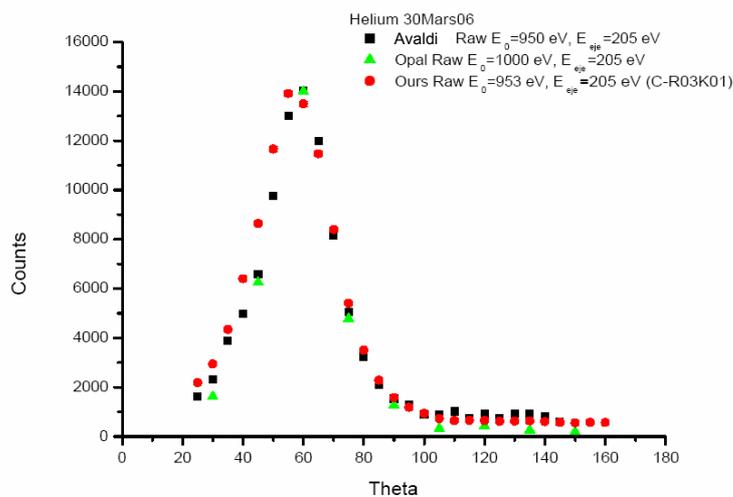


Figure II.45 : Comparaison entre notre mesure (en rouge) avec le facteur correctif et le résultat de Opal (en vert). Cette mesure est la distribution angulaire mesurée sans coïncidence à 205 eV pour une énergie incidente de 953 eV sur cible d'Hélium. Cette courbe montre aussi le résultat obtenu par le groupe de Avaldi (en noir).

Conclusion

L'étude qui vient d'être menée a montré les différentes améliorations sur l'électronique d'acquisition en adaptant la technique du chien de garde à celle de l'interruption. De même les modifications nécessaires des programmes d'acquisition ont été abordées, montrant les différents points clés.

Les différents paramètres de l'analyseur A développé au cours de cette thèse ont été présentés. On peut remarquer que dans les mesures de type $(e,2e)$, le dispositif permet une redondance dans la mesure, qui s'avère très utile : en effet, la mesure de la section efficace triplement différentielle pour l'angle $+\theta_a$, correspond à une répartition binaire/recul respectivement pour les angles (θ_b, θ_c) , alors que la mesure pour l'angle $-\theta_a$ donne la même répartition binaire/recul pour les angles (θ_c, θ_b) . Cette redondance est très utile car elle permet (i) une vérification de la cohérence interne des résultats, (ii) une accumulation deux fois plus rapide et donc d'améliorer la statistique des mesures, enfin (iii) une mesure quadruplement différentielle d'un processus de simple ionisation comme il sera précisé par la suite.

La résolution en énergie est de 5 eV et la résolution angulaire de $4,4^\circ$ pour les conditions de mesures de ce chapitre (largeur des fentes d'entrée, énergie de passage ...) et présente un ordre de grandeur des résolutions de cet appareil.

De manière générale, le tore b/c a un domaine angulaire accessible allant de $\pm(20^\circ$ à $160^\circ)$, alors que le nouveau tore A, permet une analyse simultanée des angles de diffusion $\pm(2$ à $10^\circ)$. Le dispositif permet donc une analyse dans quasiment tout le plan. En effet, faire une mesure de la section efficace différentielle du couple $(\theta_a, -\theta_b)$ est équivalent à la mesure de la section efficace différentielle $(-\theta_a, \theta_b)$. Si l'on désire faire une mesure avec l'analyseur cylindrique dans tout le plan, il suffit de faire deux séries de mesures, l'une dans un seul demi-plan pour θ_b et pour θ_a , l'autre toujours pour le même demi-plan de θ_b mais avec θ_a opposé. Ce qui est rendu possible en une seule mesure grâce au nouvel analyseur.

Références :

- [BCA2004] – P. Bolognesi, M. Coreno, G. Alberti, R. Richter, R. Sankari, L. Avaldi, J. Elec. Spec. 141 (2004) 105-119
- [Boe1989] – A.J.H. Boerboom Int. J. of Mass Spectr. And Ion Process **93** (1989) 267
- [Dub1976] – R. DuBois *et al* 1976 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **9** 2657-2667
- [Dup1993] – C. Dupré, thèse de Doctorat Université Paris Sud (1993)
- [Dup1991] – C. Dupré, A. Lahmam-Bennani, et A. Duguet, Meas. Sci. Technol., **2**, 327, 1991
- [EST1969] – H. Ehrhardt, M. Schultz, T. Tekaas, and K. Willmann, Phys. Rev. Lett., **22**, 89 (1969)
- [Elm1996] – B. El Marji, thèse de Doctorat Université Paris Sud (1996)
- [ESCA] – ESCA applied to free molecules, K. Siegbahn, C. Nordling, G. Johansson, J. Hedman, P. F. Hedén, K. Hambrin, U. Gelius, T. Bergmark, L.O. Werme, R. Manne and Y. Baer, 1969, North-Holland publishing company
- [FDC1995] – M.J. Ford, J.P. Doering, M. A. Coplan, J.W. Cooper and J.H. Moore, 1995 *Phys. Rev. A* **51**, 418
- [GBS1955] – P. Grivet, M. Bernard, A. Septier dans Optique électronique, Bordas (1955)
- [GI1965] – A.E. Glassdold and G. Ialongo, Phys. Rev. Lett., **175**, 151 (1965)
- [Gle1989] – Glenn F. Knoll dans Radiation detection and measurement, second edition (1989)
- [LC1979] – Lampton M. et Carlson C. W., Rev. Sci. Int. **50** (1979) 1093
- [LWD1985] – A. Lahmam-Bennani, H. Wellenstein, A. Duguet and M. Lecas, Rev. Sci. Instrum. **56**, 43 (1985)
- [LR1985] – R.C.G. Leckey and J.D. Riley, Appl. Surf. Sci. 22/23 (1985) 196
- [OBP1972] – C. Opal, E. Beaty and W. Peterson, ATOMIC DATA, Vol. 4, Number 3, 1972
- [Pto1999] – Ptoassov K. dans probabilités et incertitudes (1999) presse universitaire Grenoble
- [Tao2000] – I. Taouil, thèse de Doctorat Université Paris Sud (2000)
- [TLR1985] – F. Toffoletto, R.C.G. Leckey and J.D. Riley Nucl. Inst. Meth. B **12** (1985) 282
- [Roy1990] – Roy D, Tremblay D, Rep. Prog. Phys. **53** (1990) 1621
- [UMD2003] – J. Ullrich, R. Moshhammer, A. Dorn, R. Dörner, L. Schimdt and H. Schmidt-Böcking, Rep. Prog. Phys. **66** (2003) 1463-1545
- [Wol1967] – Wollnik H. in: Focussing of Charged particles, ed., A. Septier, **2** (1967) 164

CHAPITRE III :

Résultats et discussions

Sommaire

I. Introduction	130
II. Etude théorique de la corrélation via la section efficace différentielle.....	131
1. Densité mono-électronique	132
2. Densité bi-électronique	135
3. Etude théorique de l'influence de la corrélation sur la double ionisation.....	139
III. Etude de la simple ionisation de He et Ar	145
1- Mesures (e,2e) dans le cas de l'hélium	145
2- Mesures (e,2e) dans le cas de l'argon	148
a. Ionisation couche externe $3p^{-1}$	148
b. Charge effective	153
IV. Etude de la double ionisation de l'argon en couche 3p.....	156
1- Mesures (e,(3-1)e) sur la cible d'argon	157
a. $E_0 = 466$ eV.....	157
b. $E_0 = 658$ eV.....	162
c. $E_0 = 956$ eV.....	168
2- Mesures (e,3e) sur la cible d'Argon	176
a. Exploitations (e,(3-1)e)	176
b. Symétries.....	179
c. Exploitation (e,3e).....	181

I. Introduction

L'observation scientifique est toujours une observation polémique, elle confirme ou infirme une thèse antérieure, un schéma préalable, un plan d'observation ; elle montre en démontrant ; elle hiérarchise les apparences ; elle transcende l'immédiat ; elle reconstruit le réel après avoir reconstruit ses schémas.

Naturellement, dès qu'on passe de l'observation à l'expérimentation, le caractère polémique de la connaissance devient plus net encore. Alors il faut que le phénomène soit trié, filtré, épuré, coulé dans le moule des instruments, produit sur le plan des instruments. Or les instruments ne sont que des théories matérialisées. Il en sort des phénomènes qui portent de toutes parts la marque théorique.

Gaston Bachelard

Dans ce chapitre sont présentés, les résultats théoriques et expérimentaux obtenus dans ce travail. Le but de ce chapitre est de cerner les mécanismes conduisant à la simple ou double ionisation d'atomes dans les situations envisagées. Cette analyse se découpe en trois thèmes principaux qui sont : l'étude de la corrélation au sens monélectronique et bi-électronique, l'étude de la simple ionisation de He et Ar dans des conditions cinématiques particulières et enfin l'étude du processus Auger $L_{2,3}M_{2,3}M_{2,3}$ de l'argon.

Dans cette thèse, l'étude de la corrélation électronique sera abordée en terme de cinématique. Dans le cas d'une collision simplement ionisante, il est aisé de faire le lien, dans certaines conditions, entre corrélation électronique et section efficace [Mcg1997]. Nous tenterons alors de faire un parallèle, comme dans le cas de la simple ionisation, entre section efficace différentielle de double ionisation et densité bi-électronique.

Les premières mesures effectuées avec le nouvel analyseur concernent la simple ionisation de l'hélium et de l'argon en couche externe. Cette étude a été réalisée dans des conditions où le transfert d'impulsion est proche du minimum et pour des énergies moyennes, ces conditions expérimentales n'ayant jamais, à notre connaissance, été abordées.

De plus, nous nous sommes intéressé à des processus physiques de double ionisation. Les résultats que nous avons obtenus pour la mesure $(e,(3-1)e)$, ont été réalisés pour une paire d'électrons détectée de 205 eV chacun (énergie de l'électron Auger) et pour des énergies incidentes de 466 eV, 658 eV et 956 eV. A la lumière des calculs développés lors de ce travail, une tentative d'explication des différentes distributions angulaires sera donnée. Une exploration de la section efficace en fonction de l'état final de l'ion résiduel montre en particulier que l'essentiel de la physique impliquée a été introduit dans les modèles décrits au chapitre I.

Enfin, de nouveaux résultats $(e,3e)$ sur l'argon pour une énergie des électrons incidents de 956 eV sont présentés et brièvement commentés.

II. Etude théorique de la corrélation *via* la section efficace différentielle

L'étude des mécanismes d'ionisation est d'un intérêt fondamental. Comme il a été évoqué auparavant, la mesure de la section efficace triplement différentielle permet d'accéder à une mesure directe de la densité mono-électronique. Dans cette partie, nous nous proposons d'étudier l'influence de la corrélation électronique interne sur la mesure de la densité électronique ainsi que son influence sur la section efficace. Ensuite, nous montrerons qu'il est possible de trouver des conditions cinématiques équivalentes pour l'ionisation double, permettant d'établir un lien de proportionnalité entre la section efficace quintuplement différentielle et la densité bi-électronique.

Des études traitant du lien entre densité bi-électronique et section efficace ont déjà été menées pour les processus (e,3e) [SPL1978] et (e,3-1e) [PDK1996].

Les premiers auteurs ont mis en évidence le rôle fondamental de la corrélation dans des processus du type (e,3e) et (γ ,2e). Ils montrent en particulier que sous certaines conditions (proches de celle du Critère de Corrélation Interne : CCI qui sera explicité dans le paragraphe suivant), un lien existe entre section efficace et densité électronique à un degré de liberté, celui du mouvement relatif $\vec{r}_{12} = \vec{r}_1 - \vec{r}_2$.

Les seconds auteurs, se sont intéressés à l'influence de la corrélation électronique sur des processus (e,(3-1)e). En particulier, les conditions physiques choisies doivent être telles que l'électron qui n'est pas observé est celui qui possède le moins d'énergie. Alors, si les deux électrons sont détectés avec le même angle mais chacun dans un demi plan et avec la même énergie, la section efficace présente des différences notables suivant que la corrélation dans la fonction d'onde initiale est introduite ou non. Un travail plus récent [AMD2004] montre le rôle fondamental de la corrélation interne dans l'état initial. L'étude a porté sur une analyse de la section efficace comparée aux données expérimentales de Lahmam-Bennani et al. [LJD2002], en conservant le même état final mais en modifiant la fonction d'onde de l'état initial. Il a alors été montré que *la seule condition de diagonalisation de l'hamiltonien* n'est en aucun cas suffisante pour juger de la qualité de la fonction d'onde. L'essentiel à retenir ici est que la section efficace (e,3e) est beaucoup plus sensible au choix de la fonction d'onde de l'état initial que ne l'est la section efficace pour un processus (e,2e). Ceci est probablement dû au lien, si certaines conditions sont respectées, avec les densités électroniques.

Lahmam-Bennani et al. [LJD2002] ont effectué une étude comparable, montrant une signature de la densité bi-électronique dans la section efficace quintuplement différentielle. Ils ont en particulier montré que la section efficace présente un minimum dans la direction où $\vec{K} = \vec{k}_b + \vec{k}_c$ pour l'argon et un maximum dans les mêmes conditions pour l'hélium.

1. Densité mono-électronique

La relation entre la densité mono-électronique et la section efficace n'est pas directe, mais dépend fortement de la cinématique mise en jeu. Une condition à réaliser est que l'énergie de l'électron éjecté soit suffisamment grande pour assimiler la fonction d'onde de celui-ci à celle d'une onde plane. Dans ce cas, l'amplitude de transition pour la simple ionisation dans le cadre de l'approximation Born 1 s'écrit [RRS1980]:

$$t^{e2e} \propto \int e^{-i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_b} e^{i\vec{K} \cdot \vec{r}_b} \Psi_i(\vec{r}_b) d\vec{r}_b + g(K) \int e^{-i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_b} \Psi_i(\vec{r}_b) d\vec{r}_b \quad [\text{FIII.1}]$$

Dans cette expression, le terme \vec{k}_b représente le vecteur quantité de mouvement de l'électron éjecté et \vec{K} le vecteur transfert d'impulsion. Ψ_i est la fonction d'onde décrivant l'électron initialement dans la cible. Enfin, le terme $g(K)$ est une fonction ne dépendant que du module de K . Cette fonction permet de rendre compte de l'orthogonalisation de l'état final par rapport à l'état initial, cf. le chapitre I. Elle a pour principale propriété de tendre vers 0 pour de grandes valeurs de K (cf. fin de ce chapitre). Dans le cadre des collisions binaires, s'effectuant à grande valeur de K , très peu de quantité de mouvement est cédée à l'ion [Dup1993]. Les lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement, s'écrivent, en négligeant l'énergie de recul E_r de l'ion :

$$\begin{aligned} E_0 &= E_a + E_b + E^+ \\ \vec{p} + \vec{k}_0 &= \vec{k}_a + \vec{k}_b \end{aligned} \quad [\text{FIII.2}]$$

La quantité de mouvement de l'électron de la cible avant la collision (notée \vec{p}), est donc reliée aux paramètres de la collision par la relation $p = |\vec{k}_b - \vec{K}|$. La plus petite valeur de p (ici 0) est donnée par la condition : $\vec{k}_b = \vec{K}$ encore appelée critère de Bethe [DLD1985]. La condition de planéité de la fonction d'onde décrivant l'électron éjecté est obtenue pour des valeurs de k_b grandes impliquant une valeur de K grande aussi. De fait, le terme $g(K)$ peut-être négligé dans l'expression de l'amplitude de transition. L'utilisation de la relation FIII.2 permet d'écrire la section efficace triplement différentielle sous la forme :

$$\sigma \propto |t^{e2e}|^2 \propto \left| \int e^{-i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_b} e^{i\vec{K} \cdot \vec{r}_b} \Psi_i(\vec{r}_b) d\vec{r}_b \right|^2 = \left| \int e^{-i\vec{p} \cdot \vec{r}_b} \Psi_i(\vec{r}_b) d\vec{r}_b \right|^2 \quad [\text{FIII.3}]$$

Or par définition, la densité mono-électronique s'écrit [BS1957]:

$$\rho(\vec{p}) = \frac{1}{(2\pi)^3} \left| \int e^{-i\vec{p} \cdot \vec{r}} \Psi_i(\vec{r}) d\vec{r} \right|^2 \quad [\text{FIII.4}]$$

La section efficace différentielle pour les mécanismes de simple ionisation **est donc proportionnelle** à la densité électronique de l'orbitale dans laquelle était l'électron dans la cible, pour les conditions citées précédemment.

La densité électronique a une structure radicalement différente suivant qu'elle correspond à une orbitale du type s ou p. La *figure III.1* donne une allure caractéristique de cette densité en fonction de l'orbitale.

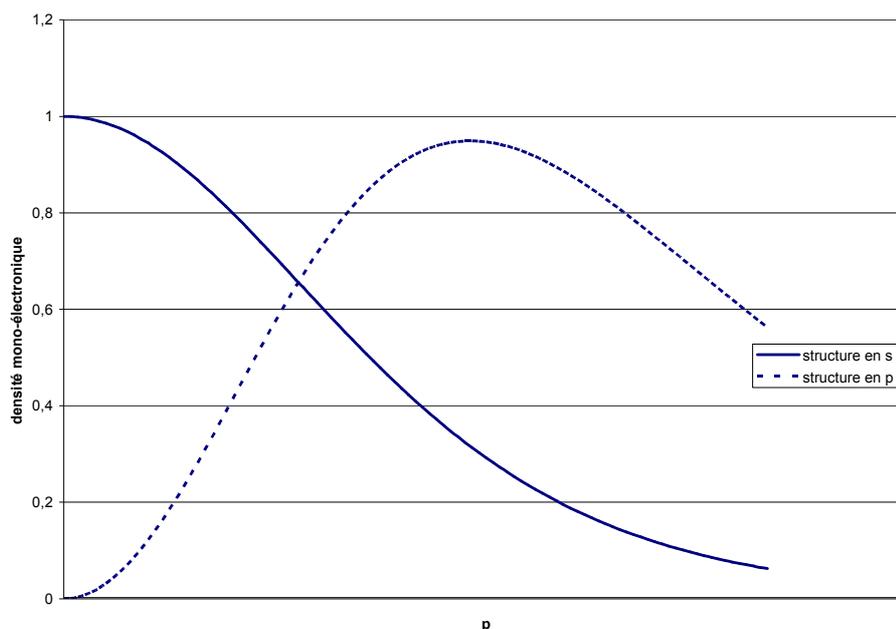


Figure III.1 : Tracé de la densité mono-électronique dans le cas des orbitales p et s

La densité électronique présente un maximum pour $p = 0$ si l'orbitale est du type s et un minimum nul en cette même valeur pour une orbitale du type p. Ces deux caractéristiques se retrouvent alors dans la distribution angulaire de la section efficace. En effet, d'après FIII.2 si $p = 0$ alors $\vec{k}_b = \vec{K}$ et la distribution angulaire présente un minimum dans la direction de \vec{K} pour une orbitale p et un maximum pour une orbitale s. Ces propriétés fondamentales sont utilisées pour caractériser des orbitales. Cette approche largement répandue, est appelée EMS pour l'acronyme anglo-saxon *Electron Momentum Spectroscopy* [MW1991, EJK1986].

Il est légitime à ce stade de se demander dans quelle mesure la corrélation électronique influence la densité électronique. Pour répondre à cette question, nous avons calculé la densité mono-électronique donnée par la formule FIII.4 pour différentes fonctions d'ondes de l'atome d'hélium. En particulier, nous mènerons cette étude pour des fonctions d'ondes du type Hartree-Fock (Cle) sans corrélation au sens du chapitre I, puis Silverman et Platas (SilPlat) contenant des corrélations ss' et sp respectivement (cf. Chapitre I). Le choix de ces fonctions

d'ondes est lié au fait qu'elles ne sont pas à variables séparables contrairement au cas de la fonction d'onde de Clémenti. Les résultats sont donnés sur le graphique suivant :

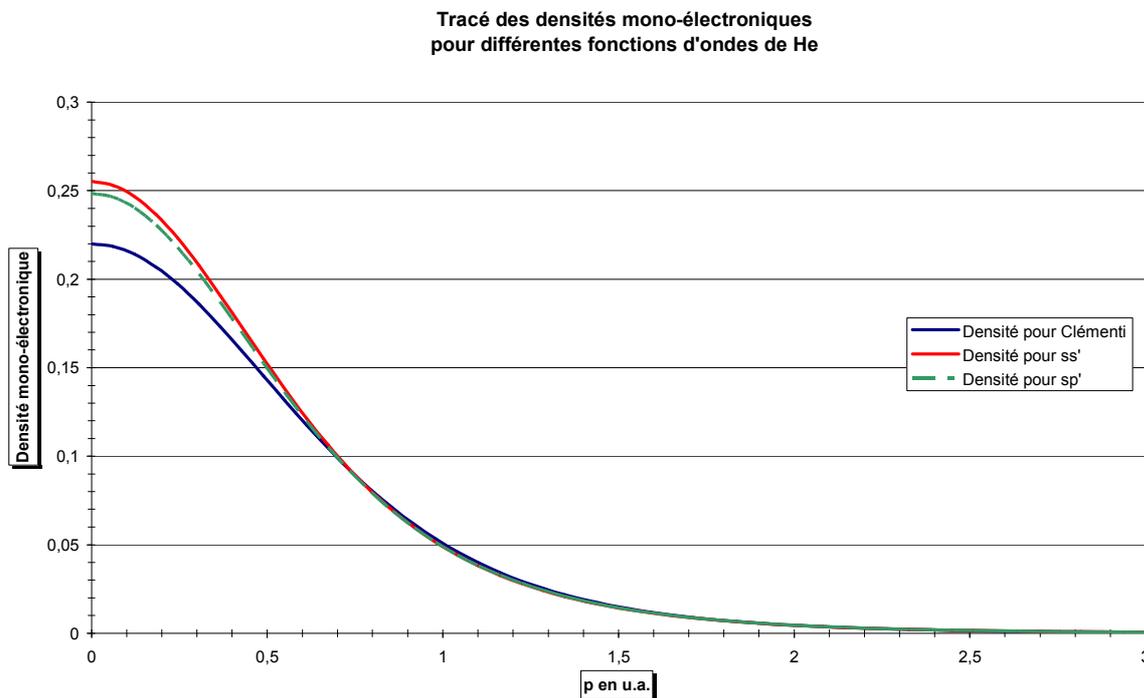


Figure III.2 : Tracé de la densité mono-électronique pour l'atome d'hélium, correspondant aux fonctions d'onde de Clémenti et de Silverman et Platas, avec une corrélation du type ss' et sp' (que l'on nommera respectivement $SilPlat(ss')$ et $SilPlat(sp')$).

La densité mono-électronique n'est donc pas très sensible au choix de la fonction d'onde initiale. Les conditions cinématiques choisies ici, correspondent au critère de Bethe où la qualité de la fonction d'onde de l'état initial n'influence guère la section efficace. Cependant, le but de cette étude est de mieux mettre en évidence l'influence de la corrélation. Cette corrélation est due à l'interaction de deux électrons dans un potentiel moyen (ion et les autres électrons s'il y en a). La corrélation électronique doit donc être mise plus facilement en évidence grâce à la densité bi-électronique. Un parallèle avec la simple ionisation, nous invite à penser que la section efficace quintuplement différentielle est donc plus adaptée à l'étude de la corrélation que la section efficace triplement différentielle. En particulier, seul le mécanisme SO permet une lecture directe de la corrélation électronique, car l'existence même de ce mécanisme est due à cette corrélation dans le cas de la double ionisation. L'étude de la densité bi-électronique fait l'objet du paragraphe suivant.

2. Densité bi-électronique

Par définition, la densité bi-électronique s'écrit [BS1957]:

$$\rho(\vec{p}_1, \vec{p}_2) = \frac{1}{(2\pi)^6} \left| \int e^{-i\vec{p}_1 \cdot \vec{r}_1} e^{-i\vec{p}_2 \cdot \vec{r}_2} \Psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \right|^2 \quad [\text{FIII.5}]$$

Le but de ce paragraphe est de montrer que cette densité bi-électronique peut-être reliée à la section efficace différentielle de double ionisation. Une condition nécessaire comme dans le cas de la simple ionisation, est d'avoir une énergie assez grande pour les électrons éjectés afin d'approximer la fonction d'onde de ces électrons par une onde plane. La conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement nous permet d'écrire, toujours en négligeant l'énergie de recul de l'ion :

$$\begin{aligned} E_0 &= E_a + E_b + E_c + E^{++} \\ \vec{p}_2 + \vec{p}_1 + \vec{k}_0 &= \vec{k}_a + \vec{k}_b + \vec{k}_c \end{aligned} \quad [\text{FIII.6}]$$

Dans l'expression précédente, E_i et \vec{k}_i sont respectivement l'énergie et la quantité de mouvement de la particule i appartenant au continuum, E^{++} est l'énergie de double ionisation et \vec{p}_i est la quantité de mouvement de la particule i dans la cible.

La section efficace, dans les conditions qui viennent d'être définies, s'écrit [DL1991]:

$$\begin{aligned} t^{SO} \propto & \left| \int e^{-i\vec{k}_c \cdot \vec{r}_c} e^{-i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_b} e^{i\vec{K} \cdot \vec{r}_b} \Psi_i(\vec{r}_b, \vec{r}_c) d\vec{r}_b d\vec{r}_c + \int e^{-i\vec{k}_c \cdot \vec{r}_c} e^{-i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_b} e^{i\vec{K} \cdot \vec{r}_c} \Psi_i(\vec{r}_b, \vec{r}_c) d\vec{r}_b d\vec{r}_c \right. \\ & \left. + g(K) \int e^{-i\vec{k}_c \cdot \vec{r}_c} e^{-i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_b} \Psi_i(\vec{r}_b, \vec{r}_c) d\vec{r}_b d\vec{r}_c \right|^2 \end{aligned} \quad [\text{FIII.7}]$$

$g(K)$ est, comme dans le paragraphe précédent, une fonction décroissante vers 0 pour des valeurs de K assez grandes. Les valeurs $p_1 = p_2 = 0$, permettent de définir le critère de Bethe dans le cas de la double ionisation, soit : $\vec{K} = \vec{k}_b + \vec{k}_c$, ce qui signifie que tout le transfert de quantité de mouvement est emporté par la paire d'électrons éjectés. La relation FIII.6 **ne permet pas** de définir une bijection entre les couples (\vec{p}_1, \vec{p}_2) et (\vec{k}_b, \vec{k}_c) . Plus généralement, la relation de Bethe est définie pour tous les couples (\vec{p}_1, \vec{p}_2) satisfaisant à la relation : $\vec{p}_2 + \vec{p}_1 = \vec{0}$.

Néanmoins, sous certaines conditions, il est possible d'établir un lien entre la section efficace et la densité bi-électronique. En effet, si K est suffisamment grand, alors $g(K)$ tend vers 0. Considérons alors deux électrons ayant chacun une structure orbitale soit du type s soit

du type p. C'est-à-dire que la TF de la fonction d'onde initiale est respectivement maximale dans la direction du transfert, ou minimale. Supposons alors que $\vec{k}_c \approx -\vec{K}$ et $\vec{k}_b \approx \vec{K}$, conditions qui dans la suite de ce travail est qualifié de **condition CCI**²³. Dans ce cas, le terme

$$t_1 = \int e^{-i\vec{k}_c \cdot \vec{r}_c} e^{-i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_b} e^{i\vec{K} \cdot \vec{r}_b} \Psi_i(\vec{r}_b, \vec{r}_c) d\vec{r}_b d\vec{r}_c \text{ est maximum et le terme}$$

$t_2 = \int e^{-i\vec{k}_c \cdot \vec{r}_c} e^{-i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_b} e^{i\vec{K} \cdot \vec{r}_c} \Psi_i(\vec{r}_b, \vec{r}_c) d\vec{r}_b d\vec{r}_c$ est minimum dans la direction opposée au transfert, de telle sorte que la somme $t_1 + t_2$ est dominée par t_1 pour les conditions du CCI. Cette dernière remarque s'explique par le fait que pour K assez grand, ne contribueront que les valeurs des variables d'intégration qui ne sont pas trop éloignées du maximum de la fonction d'onde initiale. Dans le cas des orbitales s, par exemple, cette condition se réalise lorsque $\vec{r} \approx \vec{0}$. Cette remarque est à rapprocher du comportement de la densité mono-électronique. La section efficace s'écrit alors : $t^{SO} \propto \left| \int e^{-i\vec{k}_c \cdot \vec{r}_c} e^{-i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_b} e^{i\vec{K} \cdot \vec{r}_b} \Psi_i(\vec{r}_b, \vec{r}_c) d\vec{r}_b d\vec{r}_c \right|^2$. Enfin en posant, $\vec{p}_2 = \vec{k}_c$, et $\vec{p}_1 = -\vec{K} + \vec{k}_b$, la section efficace s'écrit alors :

$$t^{SO} \propto \left| \int e^{-i\vec{p}_2 \cdot \vec{r}_c} e^{-i\vec{p}_1 \cdot \vec{r}_b} \Psi_i(\vec{r}_b, \vec{r}_c) d\vec{r}_b d\vec{r}_c \right|^2 \propto \rho(\vec{p}_1, \vec{p}_2) \quad [\text{FIII.8}]$$

La dernière relation permettant d'établir **un lien de proportionnalité** entre la section efficace de double ionisation et la densité bi-électronique. Cependant, comme il a été mentionné auparavant, notre raisonnement ne permet pas de sonder complètement l'espace des impulsions. Seule la région correspondant au couple $(\vec{p}_1, \vec{p}_2) \approx (-\vec{K}, \vec{0})$ est accessible.

La fonction d'onde de l'état initial est symétrique, de fait $\rho(\vec{p}_1, \vec{p}_2)$ l'est aussi. Une des conséquences est alors qu'une autre zone accessible est celle correspondant au couple : $(\vec{p}_1, \vec{p}_2) \approx (\vec{0}, -\vec{K})$. Si le vecteur \vec{k}_b est variable autour de la direction du transfert $\vec{k}_b = \vec{K} + \vec{\delta}$, avec \vec{k}_c dans la direction opposée au transfert, alors la partie accessible de la densité bi-électronique est : $\rho(\vec{\delta}, -\vec{K})$ où $\vec{\delta}$ est variable. De même si l'on fixe \vec{k}_b dans la direction du transfert et que \vec{k}_c soit variable autour de la direction opposée au transfert avec $\vec{k}_c = -\vec{K} + \vec{\delta}$, alors la zone accessible de la densité bi-électronique est : $\rho(\vec{0}, \vec{\delta} - \vec{K})$ où $\vec{\delta}$ est variable.

Afin de préciser le lien entre section efficace et densité bi-électronique, nous nous proposons d'étudier un cas particulier. Prenons une fonction d'onde pour l'hélium du type hydrogénoïde (donc de type s) et traçons la section efficace (en prenant $g(K) = 0$) ainsi que la densité bi-électronique. Cette étude est complétée par une fonction d'onde dont les deux électrons sont dans une orbitale p. Les résultats sont donnés par les *figures III.3 et III.4*.

²³ CCI : critère de corrélation interne

Dans la suite de ce paragraphe, nous allons nous concentrer sur la caractérisation de la corrélation *via* la densité bi-électronique. A cet effet, les calculs de FIII.5 sont effectués pour différentes fonction d'ondes : Clémenti, SilPlat(ss') et SilPlat(sp).

Une première remarque concerne le fait que dans le cas de la *corrélation SilPlat(sp)* la densité bi-électronique **dépend** des angles de chacun des vecteurs \vec{p}_1 et \vec{p}_2 . En réalité, le seul paramètre physique ayant un sens est l'angle mutuel entre ces deux vecteurs impulsions. En intégrant sur l'un de ces vecteurs, le résultat est alors la densité mono-électronique qui **ne dépend pas** de l'orientation de l'impulsion (*cf. Annexe III*). Il y a donc bien une différence fondamentale entre densité mono et bi-électronique. De plus cette étude ne concerne que la corrélation interne entre deux électrons, sans prendre en compte l'état formé par le couplage entre ces deux électrons. Par exemple, parmi l'ensemble des 15 états formés par le couplage de deux électrons de structure orbitale p, les états S ou P sont engendrés (le dernier étant l'état D). Ce caractère de **structure**²⁴ doit se retrouver dans la densité électronique, et donc dans la section efficace sous les conditions qui viennent d'être évoquées. Ce point sera discuté, sur un exemple concret, dans le paragraphe 3 de ce chapitre.

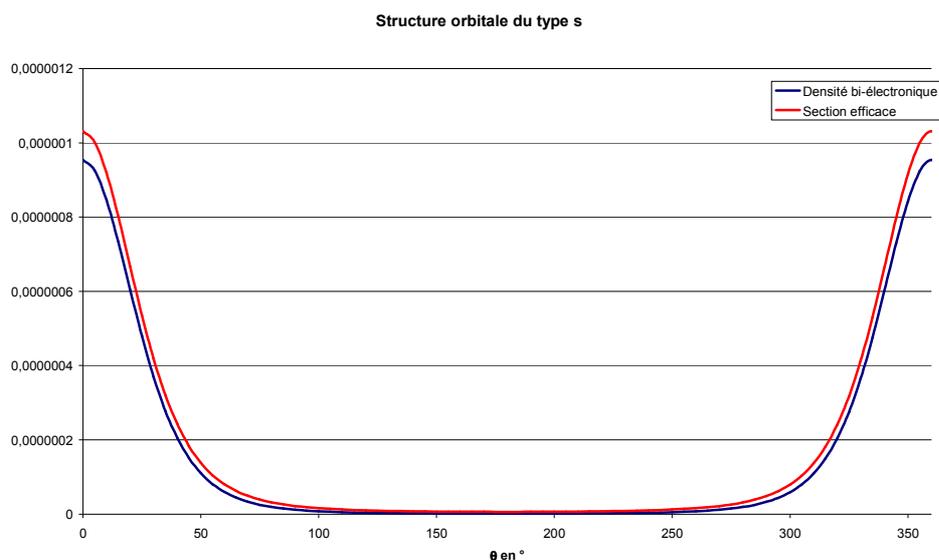


Figure III.3 : Tracé de la densité bi-électronique et de la section efficace pour une fonction d'onde du type : $\psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = Ne^{-\alpha r_1} e^{-\alpha r_2}$ (type He). Pour ces courbes, $\alpha = 2$, $K = 2$ u.a., $k_b = k_c = 2$ u.a. et l'angle variable est l'angle de l'électron b (ou c) dont l'origine des angles est pris dans la direction du transfert.

²⁴ Ce caractère sera nommé dans la suite corrélation de structure. Ce terme est à ne pas confondre avec celui du chapitre I où la corrélation structurelle fait référence aux corrélations *dans la cible* de manière générale. Ici, nous distinguons la corrélation dans la cible qui est liée à la nature coulombienne des interactions en la qualifiant de corrélation interne. Alors que la corrélation structurelle fait référence au caractère fermionique des électrons.

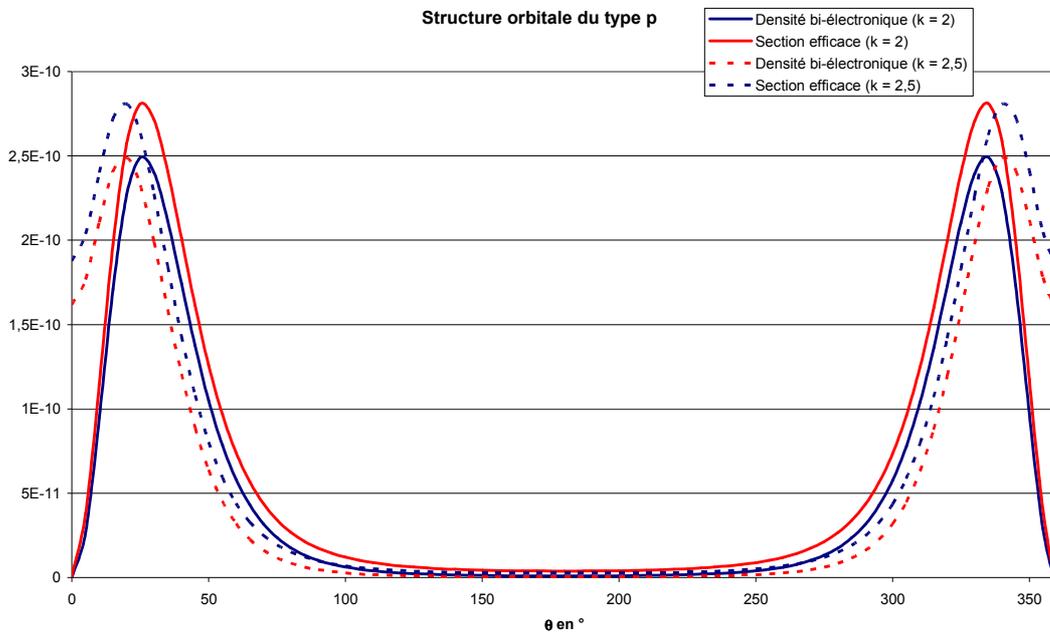


Figure III.4 : Même légende que précédemment à la différence que la fonction d'onde est composée de deux orbitales du type p, et $k = 2$ pour le trait plein et $k = 2,5$ pour le trait en pointillé.

Revenons au cas de la corrélation interne pour la cible d'hélium. Le premier commentaire concerne la dépendance angulaire de chacune des densités. Dans le cas des fonctions d'ondes du type Clementi et SilPlat(ss'), la densité bi-électronique est indépendante des orientations des vecteurs impulsions. Alors que pour SilPlat(sp), la densité dépend explicitement de ces mêmes angles. La figure suivante correspond au calcul des densités bi-électroniques pour les deux fonctions d'ondes du type Clementi et SilPlat(sp).

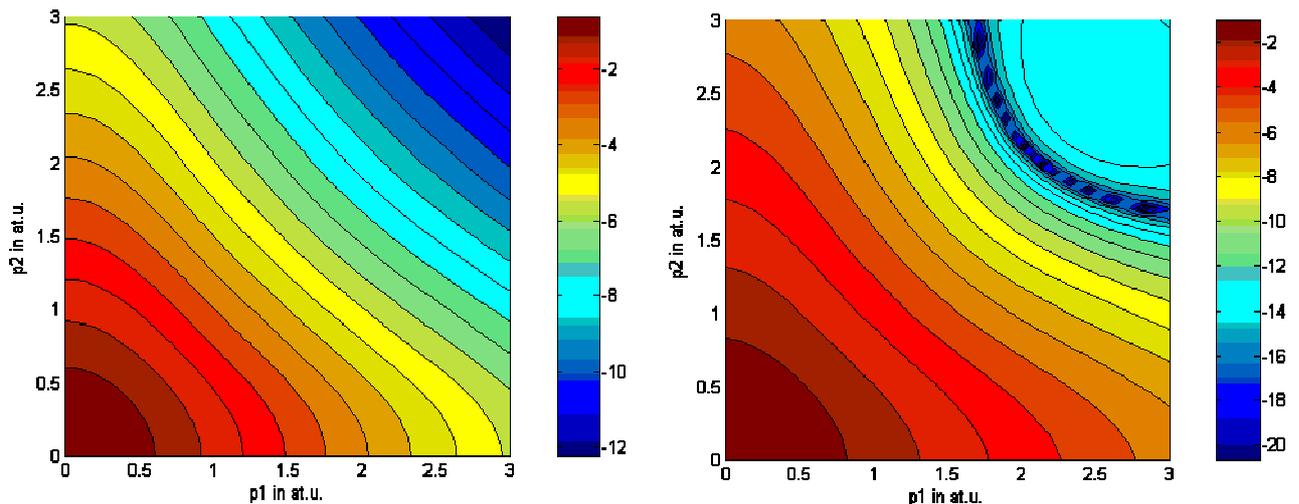


Figure III.5 : Densité bi-électronique pour He pour des fonctions d'onde du type Clementi (figure de gauche) et SilPlat(sp) (figure de droite). Le tracé de ces densités bi-électroniques est effectué en échelle logarithmique. Pour la fonction d'onde du type SilPlat(sp), l'angle mutuel de 180° a été choisi.

La différence n'est sensible que pour les grandes valeurs de p de l'ordre de 2 u.a. Ce qui va dans le sens des grandes valeurs de l'impulsion des électrons éjectés, mais n'est apparente qu'en échelle logarithmique. Une analyse plus fine montre que les densités pour $p_1 = p_2 = 0$ entre les différentes fonctions d'ondes sont de l'ordre de 10%, c'est à dire comparables au cas de la densité mono-électronique. Clairement un minimum (zone bleue foncée pour la figure de droite de la *figure III.15*) apparaît dans la région de $k = 2$ u.a. pour les deux électrons. Ce minimum peut-être attribué aux couplages entre les différentes orbitales s et p introduits dans la fonction d'onde. Une fonction d'onde initiale contenant plus de corrélation pourrait montrer une structure encore bien différente.

L'utilisation d'une échelle logarithmique dans le cas de la densité mono-électronique, montre une différence beaucoup moins marquée. Les résultats ainsi obtenus laissent espérer de pouvoir mesurer des différences de corrélation internes *via* la mesure de la section efficace dans les conditions évoquées ci-dessus. Cependant, les conditions expérimentales évoquées ci-dessus ne sont pas favorables car la section efficace est très faible. D'où la nécessité de développer un appareil à forte sensibilité comme celui réalisé au cours de cette thèse.

3. Etude théorique de l'influence de la corrélation sur la double ionisation

Dans ce paragraphe, nous allons caractériser l'influence de la corrélation électronique (introduite dans la fonction d'onde de l'état initial) sur la section efficace de double ionisation. En particulier, nous allons essayer de montrer, par des calculs, comment les relations évoquées ci-dessus sont valides théoriquement ou non. Dans le mécanisme SO, la corrélation intervient directement dans la description du processus même. En effet, si les deux électrons issus de la double ionisation sont décrits par des ondes coulombiennes, et que l'état initial est décrit par une fonction du type hydrogénoïde **sans** corrélation ($\alpha = 2$ avec la légende de la *figure III.3*) alors la section efficace différentielle est **nulle** pour une onde coulombienne. Les calculs de la section efficace ont été effectués pour une énergie incidente de 2000 eV et deux électrons éjectés de 200 eV. L'angle d'éjection de l'électron diffusé est de -14° (pour vérifier le CCI). Le résultat est donné sur la *figure III.6*. Les deux distributions angulaires ne sont pas fondamentalement différentes, et reflètent bien le fait que dans ce cas les effets de corrélations influencent peu la distribution angulaire. Pour caractériser les effets de la corrélation interne sur la section efficace, il faut se placer dans les conditions de CCI. Ces conditions sont a priori celles qui relient la densité électronique à la section efficace différentielle. La direction du transfert est donnée par $\theta_K = 54^\circ$, la direction opposée est de $\theta_K = 234^\circ$ et le module de $K = 3,17$ u.a.. Une première remarque concerne les deux sections efficaces obtenues sur la *figure III.6*. Un premier maximum est obtenu dans la direction du transfert et dépend peu de la direction de l'autre électron, sauf pour la zone correspondant au couple ($54^\circ, 54^\circ$) interdite

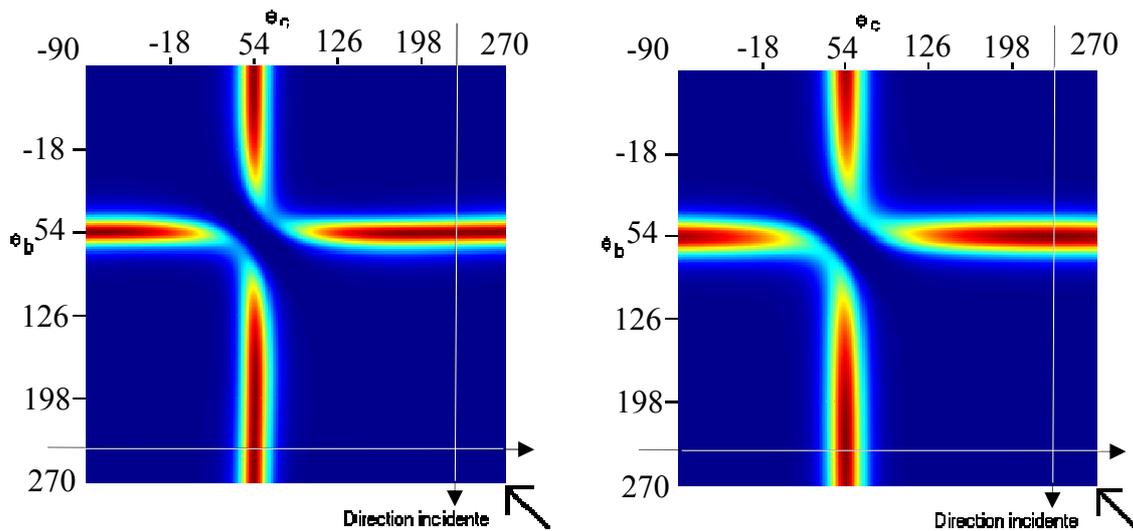


Figure III.6 : Tracé des distributions angulaires théoriques des deux électrons éjectés pour deux types de fonctions d'onde de l'état initial : à gauche SilPlat(sp) et à droite hydrogénoïde. L'état final est décrit par des ondes planes. L'énergie incidente est de 2000 eV et l'énergie des deux électrons éjectés est de 200 eV. L'angle du diffusé est de -14° et le transfert $K = 3,17$ u.a.

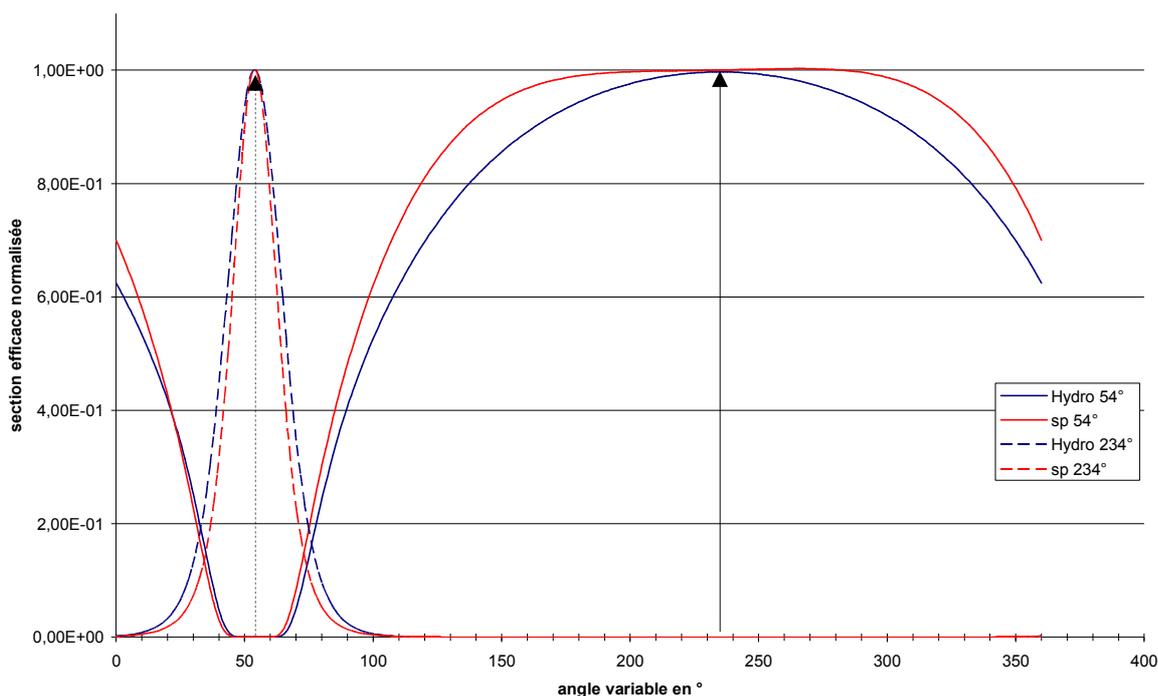


Figure III.7 : Coupe des courbes de la figure III.6. En rouge, la fonction d'onde de l'état initial est du type SilPlat(sp) et en bleu du type hydrogénoïde. Les traits pleins sont obtenus pour des électrons fixés dans la direction du transfert, soit 54° , et l'autre électron ayant un angle variable. Les traits en pointillés sont quant à eux obtenus en fixant l'un des électrons dans la direction opposée au transfert soit 234° .

par répulsion coulombienne. Le second point est que dans la direction opposée au transfert, la section efficace présente un pic prononcé dans la direction du transfert pour l'autre électron. Une analyse plus détaillée des coupes nous renseignera sur la nature de la corrélation.

Pour étudier plus précisément les effets de corrélation, regardons la section efficace selon la direction du transfert et la direction opposée. La *figure III.7* représente ces deux coupes pour deux cas de fonction d'onde. La partie en pointillés est la coupe selon la direction opposée au transfert, et la partie en trait plein est tracée pour un électron fixé dans la direction du transfert. La courbe en pointillée présente un maximum prononcé dans la direction du transfert pour les deux fonctions d'onde (flèche en trait pointillé). En revanche, un maximum apparaît pour des directions proches de celle de la direction opposée au transfert pour la courbe en trait plein (flèche en trait plein). Une différence notable apparaît alors entre les deux fonctions d'onde choisies. En particulier, la courbe dont la fonction d'onde de l'état initial est du type SilPlat(sp) (courbe rouge), présente un plateau dans cette direction, alors que la fonction du type hydrogénoïde a une section efficace décroissante autour de la direction opposée au transfert sensiblement plus prononcée. Ces deux caractéristiques sont explicables par l'étude de la densité bi-électronique. En effet, dans ces deux régions le critère CCI est vérifié. Il y a donc un lien de proportionnalité entre la section et la densité. Pour montrer ce lien, effectuons le calcul de la densité pour les situations qui nous intéressent. C'est ce que montre la figure suivante :

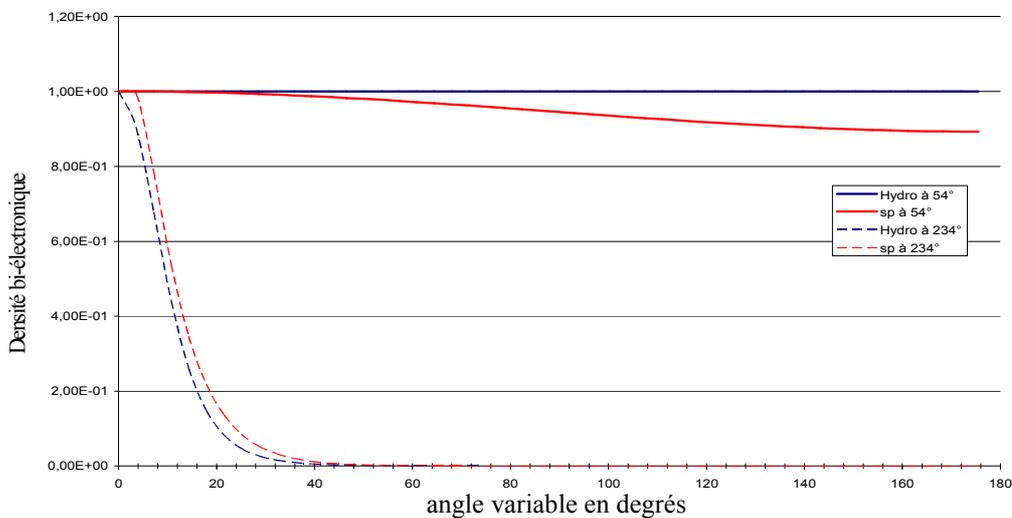


Figure III.8 : Tracé des densités bi-électroniques pour des fonctions d'onde de type hydrogénoïde (en bleu) et du type SilPlat(sp) (en rouge). Les courbes en traits plein et en pointillé correspondent aux géométries définies par la figure III.7. En particulier, pour l'électron fixé dans la direction du transfert par exemple $\vec{k}_b = \vec{K}$, il faut prendre garde au fait que l'impulsion correspondant à l'électron (d'impulsion \vec{k}_c) dont l'angle varie est définie par : $\vec{p} = -\vec{K} + \vec{k}_c$.

La courbe en pointillée de la *figure III.8* est à rapprocher de la courbe en pointillés de la *figure III.7*. Les deux distributions présentent les mêmes allures et sont directement liées au fait que la description de l'atome d'hélium est du type s pour les deux fonctions d'ondes.

Les courbes en trait plein de la *figure III.8* montrent des différences plus prononcées. En particulier, la densité bi-électronique ne varie pas en fonction de l'angle de l'impulsion pour la fonction d'onde du type hydrogéoïde, alors qu'elle dépend de ce même angle pour une fonction d'onde du type SilPlat(sp). Ceci était prévisible car la fonction d'onde ne dépend d'aucun angle spatial pour le cas hydrogéoïde alors qu'elle dépend des angles des coordonnées spatiales dans le cas SilPlat(sp). De plus, sur la *figure III.8*, la densité ne dépend pas de l'angle de l'impulsion pour la fonction d'onde hydrogéoïde alors que la section efficace dans la direction opposée au transfert (*figure III.7*) n'est pas constante. Ceci s'explique par le fait que le modèle prend en compte la répulsion coulombienne entre les deux électrons éjectés. Si l'on néglige cette interaction, alors la section devient quasiment constante autour de la direction du transfert. La remarque précédente peut-être appliquée au cas de la fonction d'onde du type SilPlat(sp). La section efficace est alors décroissante de part et d'autre de la direction opposée au transfert (flèche en trait plein sur la *figure III.7*). C'est exactement ce que montre la densité électronique, sachant que cette direction correspond à l'angle de 180° sur la *figure III.8*.

Finalement, l'étude de la section efficace dans la direction du transfert, nous renseigne sur la nature des corrélations internes du couple d'électrons, c'est-à-dire si les deux électrons sont couplés entre eux pour former un couplage de type S, P, ... En revanche, l'étude de la section efficace dans la direction opposée donne plus de détails sur la corrélation (au sens de l'interaction coulombienne) entre les deux électrons (corrélation qui sera qualifiée par la suite de corrélation interne).

Quelques critiques sont à faire sur les hypothèses CCI qui viennent d'être évoquées, l'hypothèse la plus forte et la plus contraignante du CCI étant l'approximation de l'onde plane. En effet une énergie de 200 eV est-elle suffisante pour décrire l'électron comme une onde plane ? La réponse devrait être oui à la lumière de l'étude menée dans le chapitre I. Cette remarque est sans compter sur le fait que la section efficace est en fait une probabilité de transition, donc un produit scalaire sous certaines conditions (K proche de 0). Le fait de décrire la fonction d'onde initiale par des termes en s ou des termes couplés sp a une influence. Par exemple, si la fonction d'onde de l'état initial est du type hydrogéoïde et que la fonction d'onde de l'état final est décrite par une onde coulombienne de charge 2, la section efficace est alors quasiment inchangée en distribution angulaire par rapport au cas de l'onde plane. Cependant, pour une fonction d'onde initiale du type SilPlat(sp), la distribution est différente entre le cas coulombien et une onde plane. Le cas coulombien est donné par la *figure III.9*. L'essentiel est que l'on retrouve la même forme dans la direction du transfert (l'autre électron étant fixé dans la direction opposée). La direction opposée est quant à elle différente montrant la forte sensibilité à la corrélation interne de la section efficace lorsque

l'état final est décrit par une onde coulombienne. Enfin pour des conditions différentes et avec des énergies plus grandes, nous avons obtenu des résultats où, lorsque la section efficace est décrite avec la fonction d'onde SilPlat(sp), les deux caractères s et p de la fonction d'onde apparaissent.

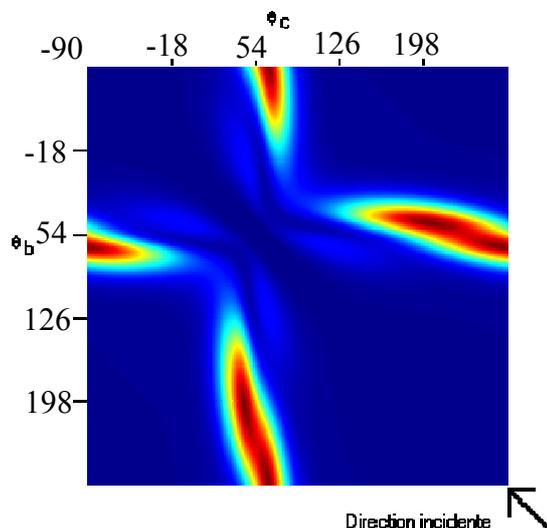


Figure III.9 : Tracé de la section efficace dans les mêmes conditions que la figure III.6, mais pour la fonction d'onde du type SilPlat(sp) et avec une onde coulombienne $Z = 2$.

Un dernier point sur lequel nous voulons apporter un œil nouveau, est l'influence de la corrélation électronique par rapport aux mécanismes d'ionisation. Jusqu'à présent, nous nous sommes intéressé au cas de la double ionisation par le processus SO qui est un processus d'ordre 1. La question que l'on peut se poser est de savoir quelle est la sensibilité de la section efficace vis-à-vis de la corrélation électronique pour des mécanismes d'ordres supérieurs.

A cet effet, la figure III.10 montre l'effet de la corrélation électronique pour des mécanismes d'ordre 1 et 2. Les courbes ont été tracées pour une cible d'hélium et pour la cinématique suivante : l'énergie incidente est de 500 eV, les deux électrons éjectés ont une énergie de 5 eV et l'électron diffusé a un angle de diffusion de 6° . En ce qui concerne les mécanismes d'ordre 2, les termes correspondant aux processus TS1 et TS2 ont été introduits. Sans entrer trop dans les détails, les images (a) et (c) représentent les distributions angulaires pour Born 1 avec une corrélation SilPlat(ss') ou SilPlat(sp). Ces deux figures montrent clairement des différences de structure attribuables à la corrélation électronique. Les images (b) et (d) quant à elles représentent les distributions angulaires pour le cas Born 2 (B2). Ces deux graphiques montrent aussi une différence mais pas de structure. Seules les intensités relatives changent entre les deux distributions. Ceci s'explique en particulier par le fait que « l'information » corrélation est perdue lors de la première phase de l'ionisation qui se fait en plusieurs étapes pour B2.

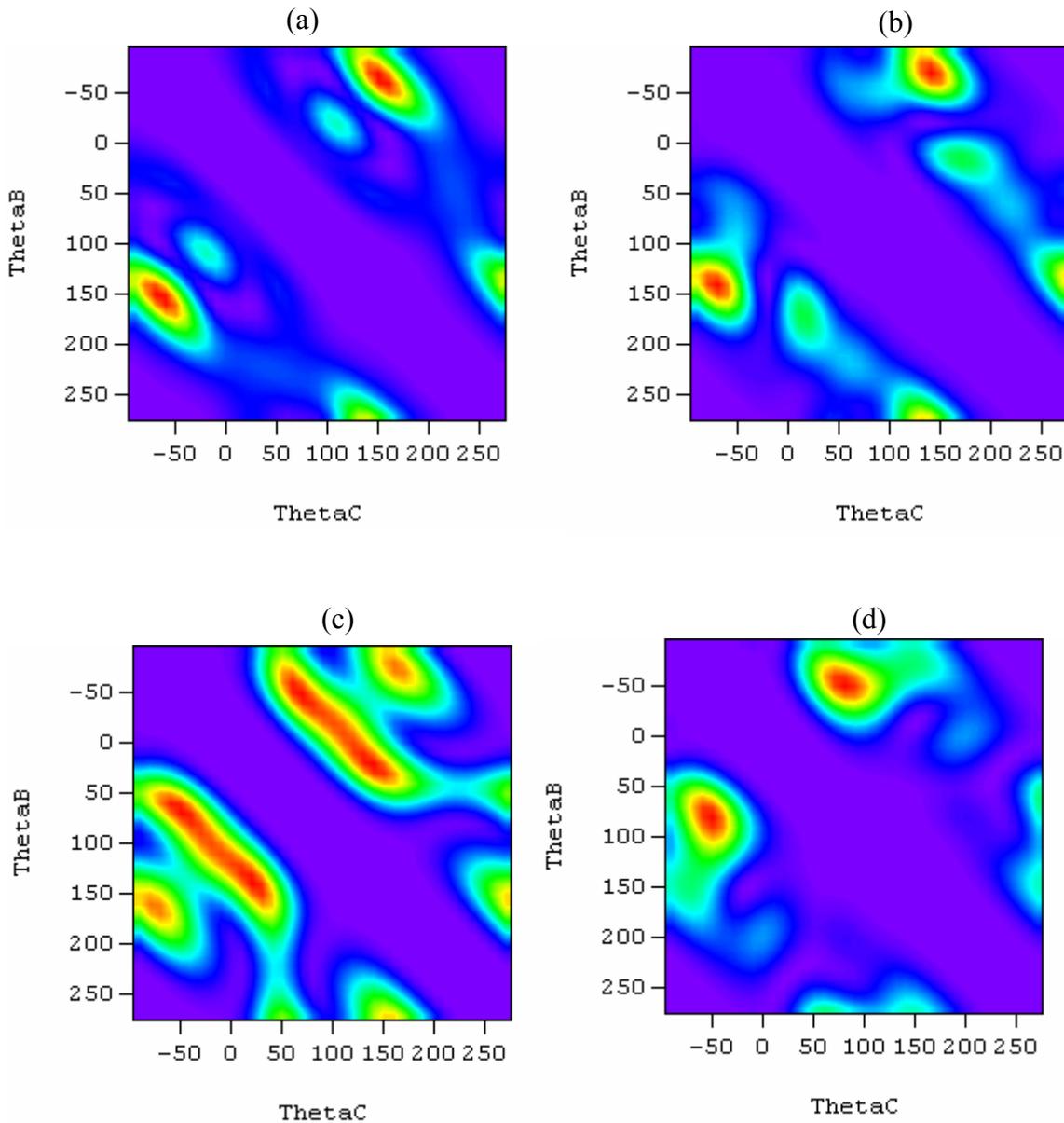


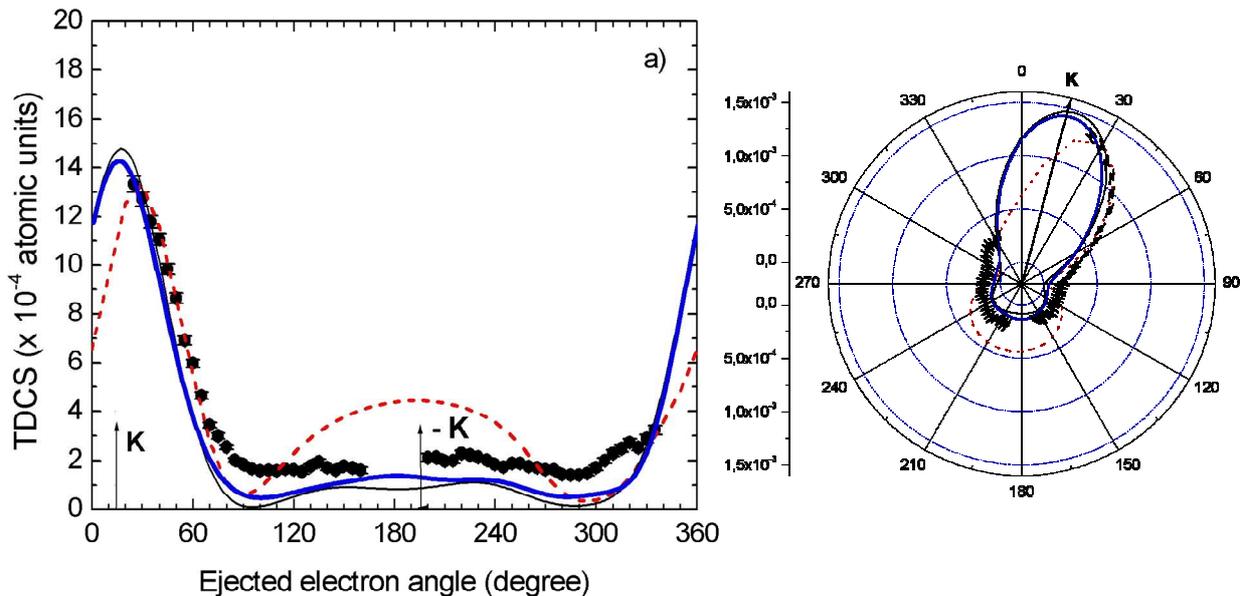
Figure III.10 : Distributions angulaires de la double ionisation de l'hélium avec la cinématique suivante : un électron incident de 500 eV, deux électrons éjectés de 5 eV et un angle de diffusion de 6° . (a) et (c) représentent le cas du mécanisme Born 1 respectivement pour la fonction d'onde du type SilPlat(sp) et SilPlat(ss'). (b) et (d) représentent le cas du mécanisme Born 2 respectivement pour la fonction d'onde du type SilPlat(sp) et SilPlat(ss').

III. Etude de la simple ionisation de He et Ar

Dans cette partie, nous nous sommes intéressés aux mesures des sections efficaces triplement différentielles obtenues à l'aide du dispositif composé du nouvel analyseur et de la nouvelle électronique d'acquisition. L'analyseur A est réglé à une énergie de 500 eV avec une résolution de 3 eV. Les deux tores B/C sont réglés pour analyser des électrons d'une énergie de 205 eV, avec une résolution de 3 eV. L'étude porte sur les cibles d'hélium et d'argon, avec des angles de diffusion de 3°, 6° et 9°. Pour chacune des expériences, le facteur correctif angulaire a été appliqué (cf. chapitre II).

1- Mesures (e,2e) dans le cas de l'hélium

L'énergie de simple ionisation de l'atome d'hélium est de 24 eV. Les mesures que nous avons effectuées correspondent à un électron diffusé de 500 eV et un électron éjecté de 205 eV. Pour observer un pic de coïncidence, il faut donc une énergie incidente de 729 eV. Les résultats sont donnés par les courbes suivantes pour les angles de diffusion envisagés [CSN2006] :



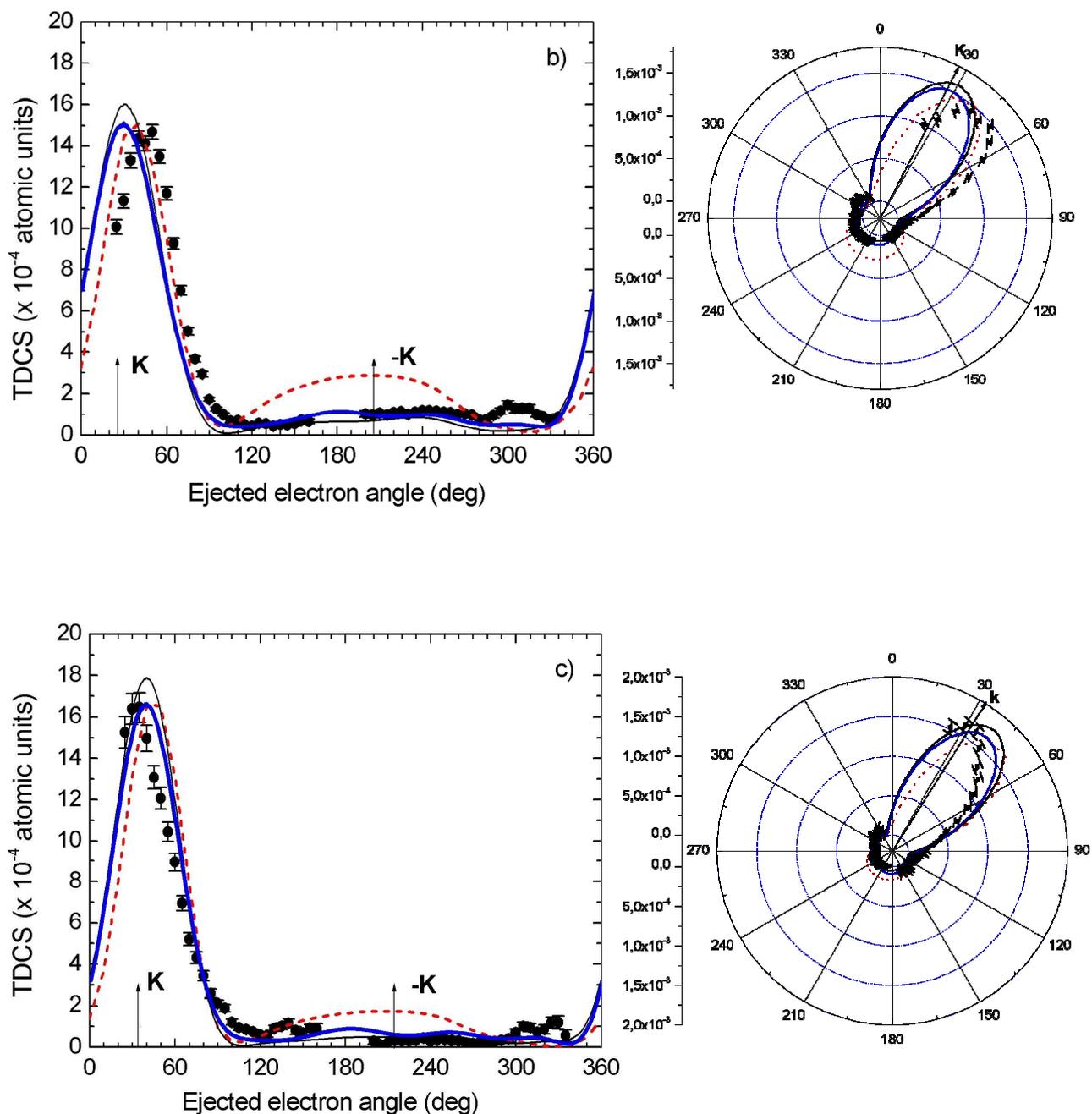


Figure III.11 : Tracé des section efficaces différentielles triples de He pour les paramètres expérimentaux suivants : $E_0 = 729 \text{ eV}$, $E_{ej} = 205 \text{ eV}$. La courbe (a) a été obtenue pour un angle de diffusion de -3° , (b) -6° et (c) -9° . Les valeurs respectives du transfert sont : $K = 1,31 \text{ u.a.}$, $1,44 \text{ u.a.}$ et $1,64 \text{ u.a.}$. Les courbes en pointillés rouges correspondent au modèle BBK, les courbes en bleu aux modèles DWBA-R-Matrix Born 2 et en trait plein noir DWBA-R-matrix Born 1. Un coefficient multiplicatif a été appliqué sur BBK valant respectivement 1,6 pour (a), 1,3 pour (b) et 1,08 pour (c).

Une première remarque concerne les conditions expérimentales dans lesquelles nous nous sommes placés pour effectuer ces expériences. En effet, les valeurs de K sont assez grandes mais proches tout de même de la valeur minimum $K_{\min} = 1,26$ u.a., correspondant au cas où l'angle de diffusion est nul. Ces conditions particulières ont rarement été étudiées.

De manière générale, les processus $(e,2e)$ sont dominés par deux lobes. L'un dans la direction du transfert (binaire) l'autre dans la direction opposée (recul). On peut alors remarquer que les distributions expérimentales présentent essentiellement un lobe dans la direction du transfert. Le lobe de recul est quasiment inexistant. On observe un décalage du lobe binaire expérimental par rapport à la direction du transfert (cf. *Tableau III.1*). Ce décalage tend vers 0 pour l'angle de diffusion de -9° , et vaut entre 10 et 15° pour un angle de diffusion de -6° . Il est difficile de se prononcer pour -3° . Ce point de comparaison est à mettre en contraste avec la théorie. Afin de mieux cerner la physique mise en jeu dans ces processus, des modèles ont été comparés à ces données expérimentales.

Le premier modèle est le modèle BBK où les interactions entre les trois corps en voie de sortie sont traitées équitablement par des ondes coulombiennes. La particule incidente est quant à elle décrite par une onde plane. La description de l'atome d'hélium est celle de Clémenti. Ce modèle a été développé dans la partie I de cette thèse.

La méthode DWBA a été développée par Bartschat et al. [BB1987] et utilise des ondes distordues pour décrire les particules dans le continuum. L'onde distordue de l'électron incident est calculée pour un potentiel statique moyen de l'atome neutre. L'introduction de cette onde distordue rend compte des mécanismes de collision élastiques de la particule incidente sur l'hélium. Les mécanismes d'ordre deux ont été calculés par une méthode hybride appelé R-matrix prenant en compte des pseudo états pour le traitement de l'atome d'hélium [FB2001].

Les deux modèles rendent compte de l'essentiel de la physique impliquée dans le processus étudié. Toutefois, le modèle BBK produit un recul plus important que les modèles DWBA. La section efficace ne présente alors plus ce maximum aussi prononcé, en particulier pour la *figure III.11 (a)*, lorsque les interactions entre électrons sont modélisées par le facteur de Gamow.

Angle de diffusion	Exp.	DWBA	Direction du transfert	BBK
-3°		14°	14°	28°
-6°	45°	30°	26°	40°
-9°	35°	40°	35°	50°

Tableau III.1 : Positions angulaires des maximum des lobes binaires pour les différents modèles, aux angles de diffusions considérées.

Dans le *Tableau III.1*, on constate que l'écart angulaire entre la direction du transfert et le lobe binaire pour le modèle BBK reste quasiment constant et égal à 14° . En revanche, pour le modèle DWBA, cet écart augmente avec l'angle de diffusion. Dans le modèle BBK, le décalage angulaire est principalement dû à la répulsion coulombienne entre les deux électrons. De plus, les conditions cinématiques envisagées semblent correspondre à des mécanismes d'ordre 1. En effet, les calculs DWBA-Born 1 ne diffèrent guère avec ceux de Born 2. Ceci explique aussi pourquoi le lobe de recul est relativement bien orienté dans la direction opposée au transfert.

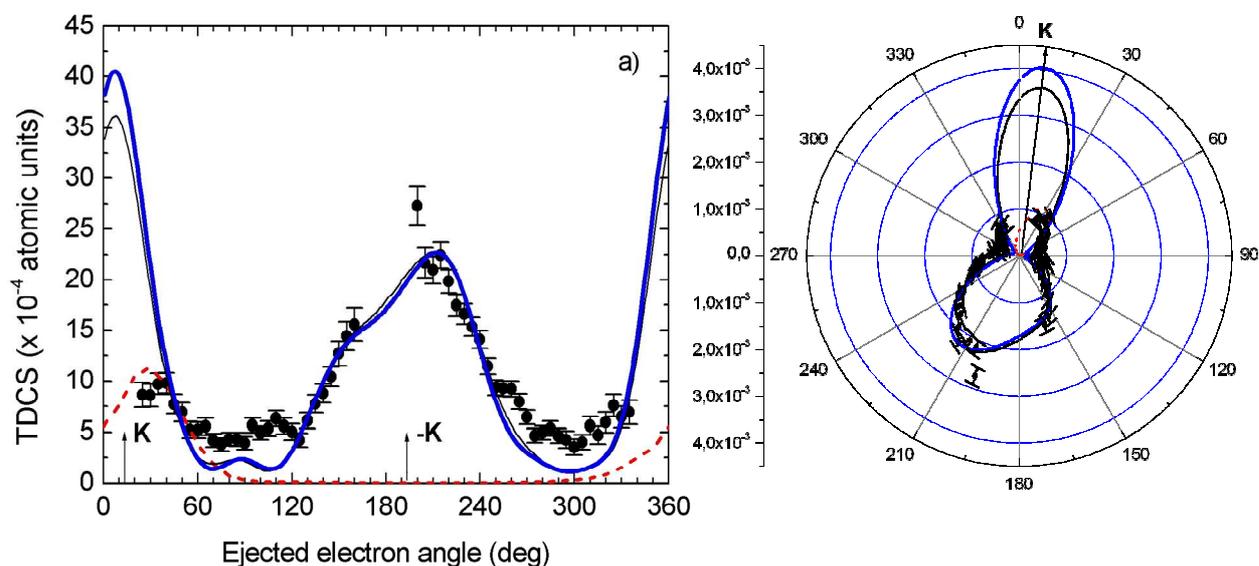
De manière générale, les deux modèles sont en assez bon accord avec les courbes expérimentales, montrant ainsi que dans les conditions cinématiques envisagées, l'interaction est essentiellement de type collision binaire où aucune impulsion n'est cédée à la cible (absence de pic de recul).

2- Mesures (e,2e) dans le cas de l'argon

Des mesures dans des conditions similaires, ont été réalisées pour une cible d'argon, les remarques faites sur l'hélium demandant à être confirmées pour cette cible.

a. Ionisation en couche externe $3p^{-1}$

Les courbes suivantes donnent les résultats obtenus pour l'ionisation de l'argon en couche externe $3p^{-1}$, pour les conditions : $E_0 = 721$ eV, $E_a = 500$ eV, $E_{ej} = 205$ eV. Les courbes expérimentales ont été obtenues par la même procédure que pour l'hélium [CSN2006].



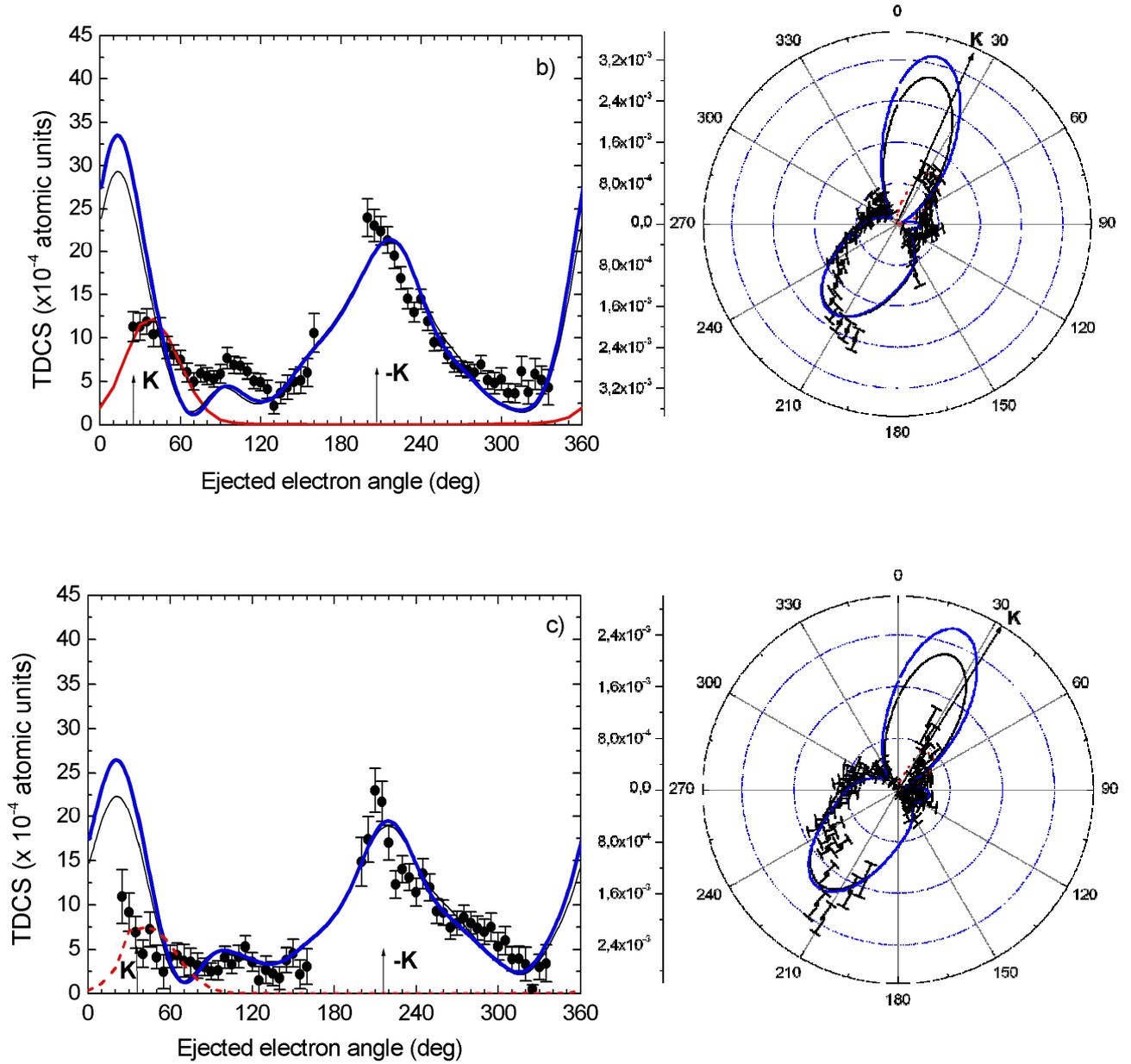


Figure III.12 : Tracé des section efficaces différentielles triples de Ar pour les paramètres expérimentaux suivants : $E_0 = 721$ eV, $E_{ej} = 205$ eV. La courbe (a) a été obtenue pour un angle de diffusion de -3° , (b) -6° et (c) -9° . Les valeurs respectives du transfert sont : $K = 1,27$ u.a., $1,40$ u.a. et $1,60$ u.a. Les courbes en pointillés rouges correspondent au modèle BBK, les courbes en bleu aux modèles DWBA-R-Matrix Born 2 et en trait plein noir DWBA-R-Matrix Born 1. Un coefficient multiplicatif a été appliqué sur BBK valant respectivement $0,5$ pour (a), $0,35$ pour (b) et $0,14$ pour (c).

De manière générale, les courbes expérimentales présentent une structure sous la forme de deux lobes correspondant au lobe binaire et au lobe de recul. Contrairement au cas de l'hélium, le lobe de recul est beaucoup plus intense que le lobe binaire dans les trois situations envisagées. Expérimentalement, on peut aussi observer un décalage de la position du lobe binaire par rapport à la direction du transfert. Le décalage est un peu moins marqué en ce qui concerne les lobes de recul, par rapport à la direction opposée au transfert.

La description théorique des mécanismes de simple ionisation de la couche 3p, reste un sujet où il y a encore beaucoup de progrès à faire sur le plan théorique. Par exemple, même si on simplifie le problème en ne prenant en compte que les électrons impliqués dans le processus, il faut inclure les 6 électrons de la couche 3p, rendant les calculs assez lourds.

Dans le cadre du modèle BBK, une approximation plus forte a été introduite, l'approximation à un électron actif (cf. partie I de cette thèse). Les trois électrons de la voie de sortie, comme dans le cas de l'hélium, sont décrits par trois ondes coulombiennes pour chacune des interactions coulombiennes mises en jeu.

Le modèle DWBA contient quant à lui plus d'informations physiques. Comme dans le cas de l'ionisation simple de l'hélium, la particule incidente est décrite par une onde distordue. De même, chacun des électrons de la voie de sortie est décrit par une onde distordue. De plus, la description de l'état final est plus élaborée que dans le modèle BBK. En particulier, les voies résultant de la simple ionisation $(3s^23p^5)^2P$ et $(3s3p^6)^2S$, ont été couplées [BV2005, BT1975].

Le modèle BBK reproduit assez bien les positions du lobe binaire, mais ne possède pas de lobe de recul. A l'inverse, le modèle DWBA reproduit bien le pic de recul, mais introduit un décalage du lobe binaire. De plus l'amplitude de ce lobe binaire, par rapport au lobe de recul n'est pas reproduite par le modèle DWBA. La différence fondamentale entre les deux modèles qui explique la présence du lobe de recul pour DWBA, est la prise en compte de l'interaction entre cible et projectile dans la voie d'entrée. Cette interaction se manifeste en particulier par une diffusion élastique sur le noyau d'où la présence aussi importante du lobe de recul. Dans le cas du modèle BBK, seul l'électron impliqué dans la réaction est pris en compte ne laissant pas de possibilité de diffusion élastique sur le noyau. Cette diffusion peut-être « reproduite » en augmentant la charge apparente du noyau. En effet, dans le modèle BBK, celle-ci est prise égale à 1 pour un modèle à 1 électron actif. La couche 3p de l'argon contient 6 électrons, et le projectile voit en fait une charge +6 pour le noyau (dans le cadre du cœur gelé) écranté par les 5 autres électrons spectateurs de la réaction. Cette charge nucléaire peut donc être bien différente de 1. Par exemple, en prenant $Z = 2$, il est alors possible de faire « apparaître » un lobe de recul dans les cas où une ou deux ondes coulombiennes sont introduites (cf. *figure III.13*). Cependant d'une part, l'intensité relative de ce lobe de recul reste largement insuffisante. D'autre part, cette charge de 2 n'est pas justifiée *ab-initio*. De même la prise en compte des effets d'échanges ne modifie quasiment pas la distribution angulaire.

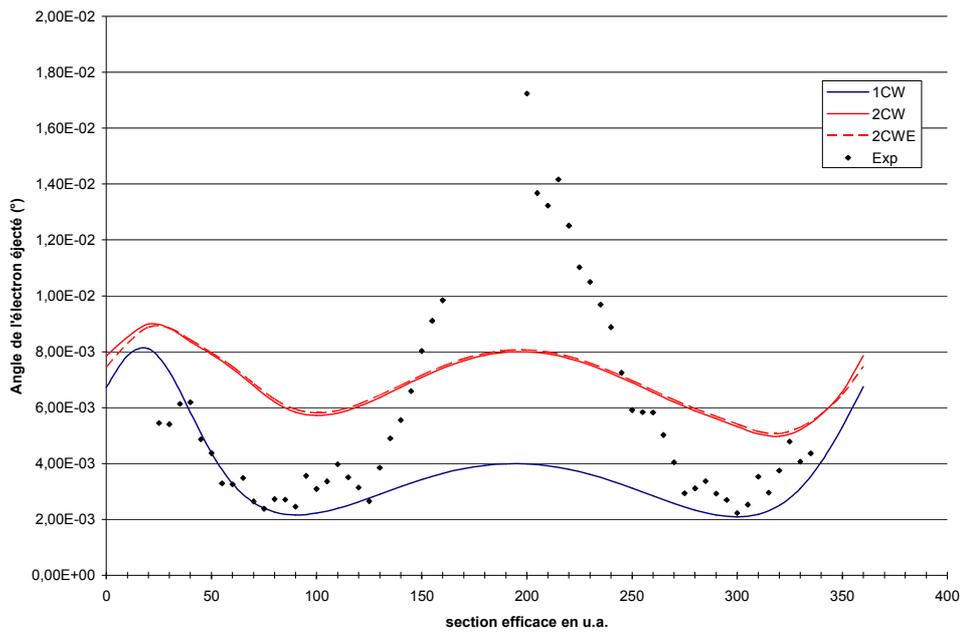


Figure III.13 : Section efficace ($e,2e$) pour Ar ($3p^{-1}$) en comparaison des modèles BBK à 1(1CW) et 2 (2CW) ondes coulombiennes avec une charge $Z = 2$. 2CWE correspond au cas où les échanges sont pris en compte.

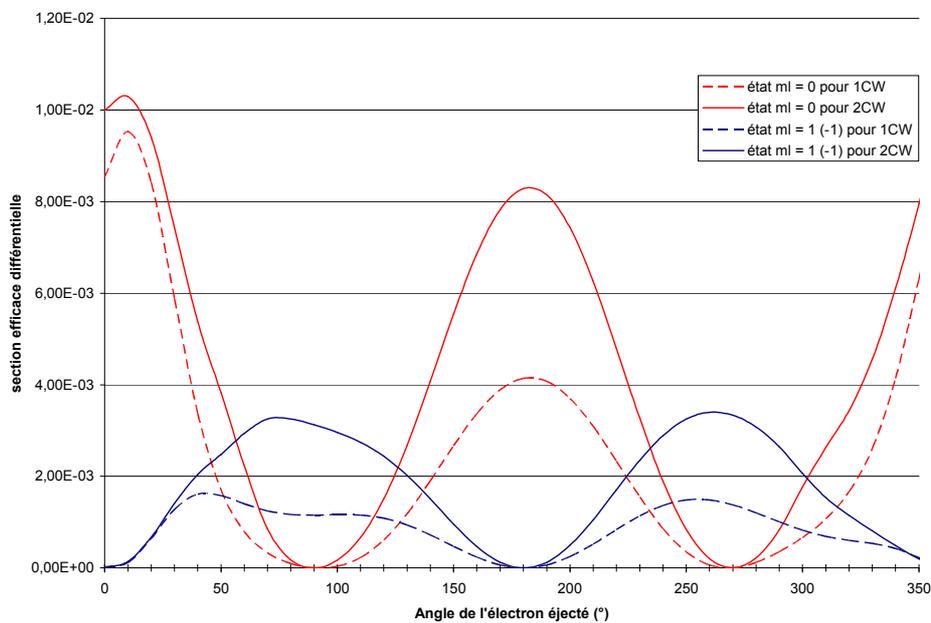


Figure III.14 : Tracé des sections efficaces en fonction de l'état final $m_l = -1, 0$ ou 1 pour les modèles BBK à une onde et deux ondes coulombiennes pour $Z = 2$.

Afin d'expliciter la position des lobes observés, une étude plus détaillée a été effectuée. Les états issus de la simple ionisation de l'argon en couche 3p sont les états 2P . Ce qui correspond à 3 états si on ne tient pas compte du spin électronique. On peut alors tracer la section efficace pour les différentes valeurs de m_l . La *figure III.14* représente la section efficace pour les différentes valeurs de m_l . Ces courbes montrent que la section efficace passe par un minimum nul à 90° et 270° pour $m_l = 0$. De même, la section efficace passe par un minimum nul à 0° et 180° pour $m_l = 1(-1)$. Ces minima s'expliquent aisément par des considérations spectroscopiques. Si on suppose que l'électron éjecté provient d'une couche $m_l = 0$, par conservation du moment cinétique orbital ainsi que de sa coupe, l'électron éjecté aura la même distribution angulaire dans le continuum, proportionnelle à $\cos(\theta)$. D'où les minima à 90° et 270° . De même pour $m_l = 1$ et -1 , la section efficace est proportionnelle à $\sin(\theta)$, donc les minima sont présents aux angles 0° et 180° . Les calculs présentés dans la *figure III.14* ont été effectués pour une charge nucléaire égale à 2. De ce fait, il n'y a pas d'orthogonalité entre état final et état initial. En appliquant la procédure de Schmidt (cf. Partie I de cette thèse) il est possible d'introduire artificiellement cette orthogonalité. Ceci revient alors à prendre une charge nucléaire de $Z = 0,12$ pour $m_l = 0$ et $Z = 1,23$ pour $m_l = 1$ et -1 , dans nos conditions. La charge nucléaire introduite dans les ondes coulombiennes est toujours $Z = 2$. La section efficace obtenue est donnée par la *figure III.15*.

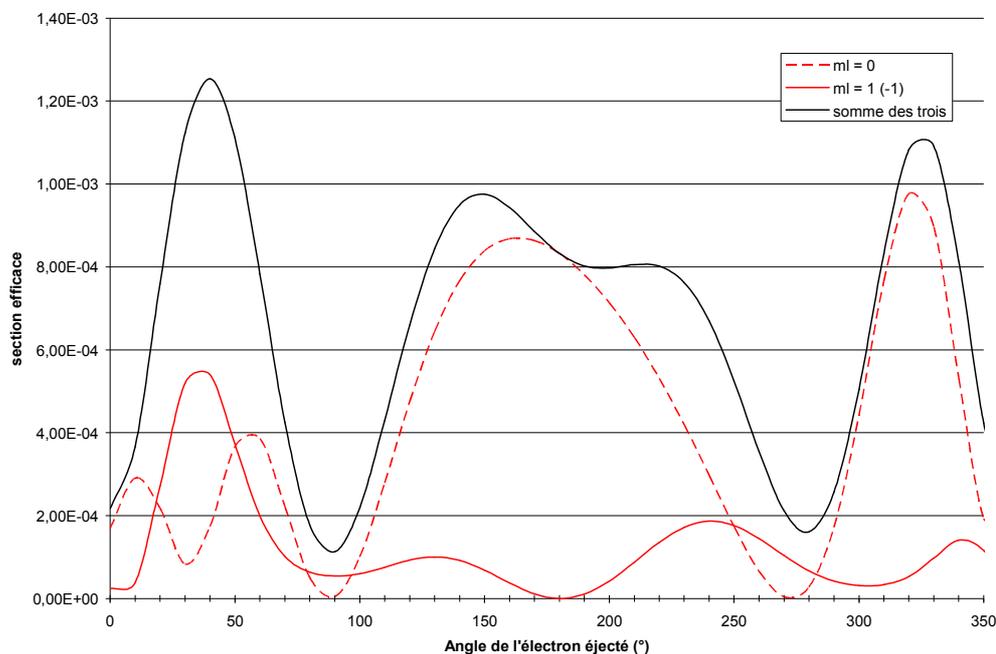


Figure III.15 : Tracé des sections efficace en fonction de l'état final $m_l = -1, 0$ ou 1 pour les modèles BBK à une onde coulombienne en prenant en compte l'orthogonalisation entre état final et état initial : c'est le modèle OCW. L'angle de diffusion est de -3° .

La position des minima est inchangée par rapport au cas sans orthogonalisation, mais il apparaît un pic aux grands angles (autour de 230°). La contribution du pic binaire est principalement due à l'état $m_l = 1$ et -1 alors que dans le cas non orthogonal, c'est l'état $m_l = 0$ qui domine dans le pic binaire. Inversement, l'orthogonalisation renforce encore plus la part prépondérante due à la contribution $m_l = 0$. Ce calcul montre la sensibilité à l'orthogonalisation entre état final et état initial. En particulier, le lobe de recul est amélioré quand celui-ci est pris en compte.

b. Charge effective

Cette procédure d'orthogonalisation a été introduite également dans le cas 2CW (et BBK) pour voir quels en sont les effets. Le cas de l'hélium a été étudié ici, en revanche il restera à poursuivre le calcul dans le cas de l'argon pour deux ondes coulombiennes.

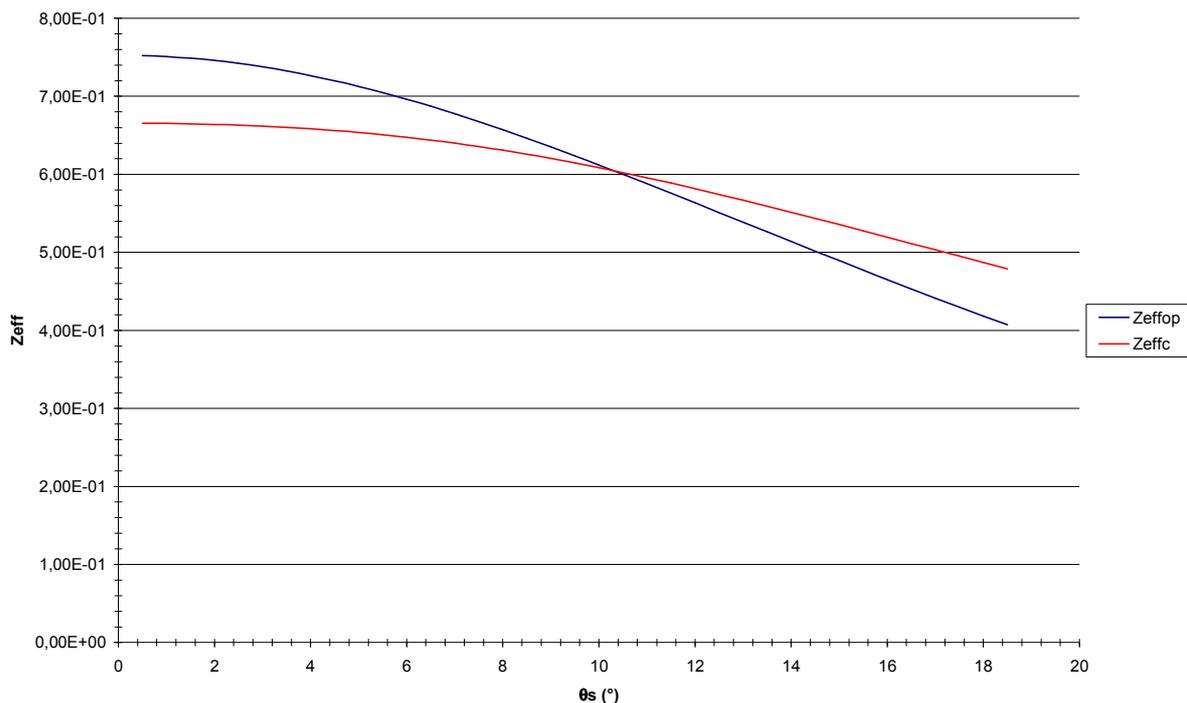


Figure III.16 : Tracé des charges effectives dans le cadre d'une description onde coulombienne (courbe rouge ; Z_{effc}) ou onde plane (courbe bleue ; Z_{effop}) pour décrire l'état final, en fonction de l'angle de diffusion, pour une cible d'hélium.

La figure précédente montre que l'introduction de deux ondes coulombienne dans le continuum, a une influence sur la charge effective. Dans nos conditions expérimentales, l'influence de la charge effective dans un modèle à onde coulombienne, a pour effet de

réduire considérablement le lobe de recul, ce qui n'a pas trop d'importance puisque dans notre cas ce pic est quasiment inexistant, mais cette remarque reste générale.

Revenons au cas de l'Argon pour lequel les calculs de la charge effective ont été effectués dans le cadre d'un électron diffusé décrit par une onde plane. Au cours des différents calculs, il a été observé que cette charge devenait parfois, à notre grande surprise, négative. Rappelons qu'elle est censée représenter la charge du noyau. Une analyse plus approfondie, permet de clarifier la situation. Tout d'abord, si la fonction d'onde est décrite par une onde plane, le seul paramètre dont dépend la charge effective est le transfert d'impulsion K . Du point de vue classique, cette grandeur est représentative du paramètre d'impact de la collision. Plus K est grand plus le paramètre d'impact est petit. En poursuivant cette analyse classique, il est possible d'écrire l'équation de la trajectoire sous la forme:

$$r(\theta) = \frac{c}{-1 + \cos(\theta) + \frac{c}{b} \sin(\theta)} \quad [\text{FIII.10}]$$

Les hypothèse du calcul sont, un noyau plus lourd que la particule incidente et de charge notée c . Sous cette forme, la particule va des x positifs vers les x négatifs (θ de 0 à 180°). Pour un angle de 0° et 180° le rayon de courbure tend alors vers l'infini. La projection de la trajectoire sur l'axe des y est donnée par : $y(\theta) = r(\theta) \sin(\theta)$. Un développement limité à l'ordre 1 donne une valeur de $y = b$ pour θ tendant vers 0 . b est donc représentatif du paramètre d'impact de la collision. Enfin l'angle de diffusion est obtenu pour un dénominateur nul soit :

$$-1 + \cos(\psi) + \frac{c}{b} \sin(\psi) = 0 \quad \text{d'où} \quad \frac{1 - \cos(\psi)}{\sin(\psi)} = \frac{c}{b} \quad [\text{FIII.11}]$$

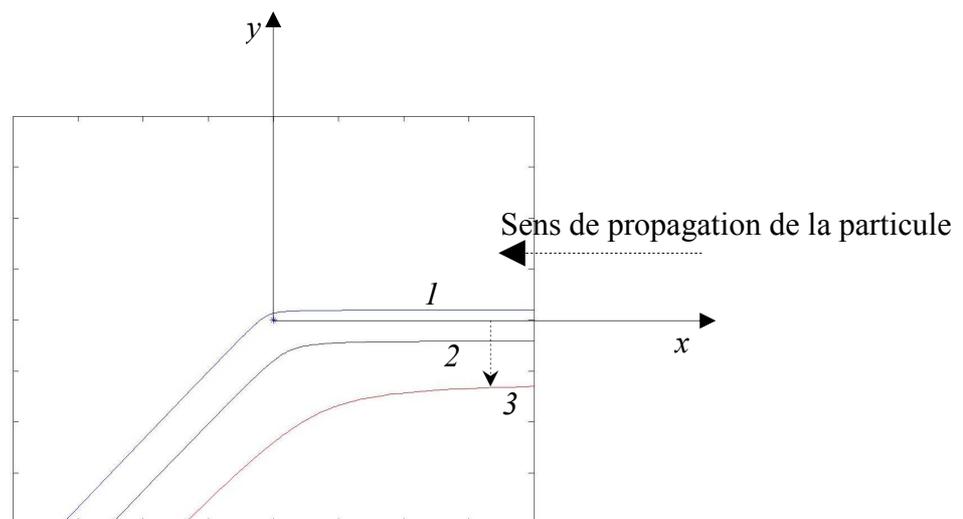


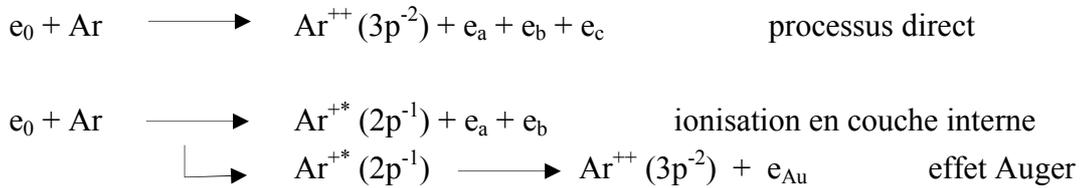
Figure III.17 : Tracé des trajectoires de deux corps en interaction coulombienne pour les paramètres : (1) $b = 1$ et $c = -1/2$, (2) $b = -2$ et $c = 1/4$, (3) $b = -6$ et $c = 1/6$.

La relation FIII.11, établit le lien entre l'angle de diffusion et les paramètres de la collision. Autrement dit, un ensemble infini de couples (c,b) peut engendrer une même déviation du projectile. Même si la charge du noyau est « vue » comme négative, ceci signifie que le paramètre d'impact, lui, est positif. La *figure III.17* illustre ce point en montrant des trajectoires pour des paramètres collisionnels différents mais ayant le même angle de diffusion ψ . Finalement, obtenir une charge négative pour décrire le noyau, n'est qu'un artifice calculatoire rendant compte d'une certaine cinématique de la collision dans le cadre quantique.

Pour conclure sur cette partie, nous avons montré par comparaison des données expérimentales de simple ionisation sur l'hélium, et les différents modèles, que la collision est essentiellement du type collision binaire. Dans le cas de l'argon, le lobe de recul est beaucoup plus prononcé. Ce lobe de recul semble s'interpréter par la présence de mécanismes de diffusion élastique dans ces conditions cinématiques.

IV. Etude de la double ionisation de l'argon en couche 3p

Une autre partie de ce travail de thèse est l'étude des mécanismes de double ionisation $3p^{-2}$ de l'argon par des processus directs et résonant tels que l'effet Auger :



Il est à remarquer que la nomenclature est ici arbitraire, a, b ou c ne désignant que les électrons détectés respectivement par l'analyseur A, B ou C. Seul e_{Au} désigne l'électron Auger, pouvant être détecté indifféremment par l'analyseur B ou C ou encore l'analyseur A dans le cas où celui-ci analyse des électrons dont l'énergie est celle de l'électron Auger.

Ces deux mécanismes donnent naissance au même état final et sont donc pris en compte dans la section efficace différentielle sous la forme d'une somme cohérente des amplitudes de diffusion (cf. chapitre I). Pour comprendre les mécanismes mis en jeu, nous nous sommes intéressé plus particulièrement à trois conditions correspondant à des énergies incidentes différentes : $E_0 = 956$ eV, $E_0 = 658$ eV et $E_0 = 466$ eV. Les analyseurs toroïdaux B et C sont réglés pour détecter des électrons d'une énergie de 205 eV, énergie de l'électron Auger. L'électron diffusé a donc respectivement une énergie de 503 eV, 205 eV et 13 eV. De manière générale, l'électron diffusé est l'électron le plus rapide en voie de sortie. Dans le cas où l'énergie incidente est de 466 eV, le détecteur A doit alors analyser un électron d'une énergie de 13 eV, qui clairement ne peut-être qualifié de diffusé. Néanmoins, nous ferons cet abus de langage à plusieurs reprises en gardant à l'esprit que l'électron « diffusé » est l'électron détecté par l'analyseur A. Une première expérience, en début de thèse, a été réalisée pour tenter de mesurer une coïncidence triple pour $E_0 = 956$ eV, $E_{b/c} = 205$ eV, et $E_s = 503$ eV avec l'analyseur cylindrique déjà en place. Cette expérience a échoué, car le pic de coïncidence n'est pas ressorti des coïncidences fortuites, en raison du trop faible angle solide de collection de l'analyseur cylindrique. Nous avons donc réalisé des expérience (e,(3-1)e) où deux électrons sur trois sont détectés en voie de sortie par les analyseurs B et C, avec une énergie de 205 eV pour chacun d'entre eux. En fin de thèse, nous avons réussi à mettre en œuvre le dispositif expérimental avec son nouvel analyseur toroïdal qui nous a alors permis de faire une mesure (e,3e) pour une énergie de 953 eV.

Historiquement, d'autres groupes ont déjà effectué des mesures (e,(3-1)e) identiques aux nôtres, mais sans pouvoir en faire des distributions angulaires [DCC1990]. Doering et al. ont étudié les processus $L_{2,3}M_{2,3}M_{2,3}$ de Ar en détectant en coïncidence deux électrons sur trois de l'état final. Ces électrons ont une énergie de 205 eV. Par contre, leur système est constitué de deux détecteurs hémisphériques détectant à angle fixe les deux électrons. Ils ont alors tracé la

section efficace quadruplement différentielle en fonction de l'énergie incidente pour un angle mutuel entre les électrons de 160° . Ils ont observé un maximum de cette distribution pour une énergie incidente de 460 eV. Ceci est en contradiction apparente avec les résultats que nous avons : parmi les trois énergies incidentes qui ont été étudiées, le maximum du taux de coïncidence totale (intégré sur tous les angles) est obtenu pour une énergie incidente de 658 eV. Ceci s'explique par le fait, comme il sera montré ultérieurement, que dans ce cas la section efficace est la somme de deux contributions, l'une pour la double ionisation, et l'autre pour l'ionisation en couche interne. Cette contradiction peut néanmoins s'expliquer par le fait que la géométrie utilisée par Deoring et al. est non coplanaire, donc très différente de la nôtre.

De même Ford et al. [FDC1995], ont mesuré la section efficace du processus Auger $L_{2,3}M_1M_1$ sur du Mg. Les électrons éjectés et Auger ont une énergie de 35 eV pour une énergie incidente de 3500 eV. Cette mesure a montré une forte dépendance de la section efficace en fonction de l'angle mutuel, qu'ils attribuent à une forte corrélation entre les deux électrons.

Dans cette partie, nous allons discuter des résultats obtenus par nos mesures $(e,(3-1)e)$ afin de mettre en évidence les différences liées aux conditions cinématiques, puis nous affinerons l'étude du cas où $E_0 = 953$ eV par une mesure $(e,3e)$ donnant plus d'informations physiques. Ces mesures seront comparées aux résultats théoriques développés lors de cette thèse.

Afin de fixer les idées sur la statistique, les temps d'accumulation typiques des expériences $(e,(3-1)e)$ vont de la journée pour les cas favorables à la semaine, et de l'ordre du mois pour les expériences $(e,3e)$.

1- Mesures $(e,(3-1)e)$ sur la cible d'argon

Dans l'ensemble du paragraphe, la même convention d'angle sera adoptée. Le vecteur d'onde de l'électron incident est l'axe de référence séparant le plan entier en deux demi-plans. Le premier demi-plan (compté dans le sens horaire) correspond à des angles compris entre 0° et 180° . Le second demi-plan correspond à des angles compris entre 180° et 360° ou, de manière équivalente, modulo 360° , à des angles négatifs. Par exemple un angle de 350° qui est donc contenu dans le second demi-plan, peut être vu comme étant un angle de -10° .

a. $E_0 = 466$ eV

Le premier résultat consiste en la mesure de la section efficace quadruplement différentielle d'un processus de double ionisation, c'est-à-dire que deux électrons sur les trois de la voie de sortie sont détectés. Dans notre expérience, les électrons détectés ont une énergie

de 205 eV nous assurant, *a priori*, qu'un des électrons détecté est bien un électron Auger. Enfin l'électron qui n'est pas observé, a une énergie de 13 eV. La distribution angulaire correspondant à cette mesure est donnée par la figure suivante :

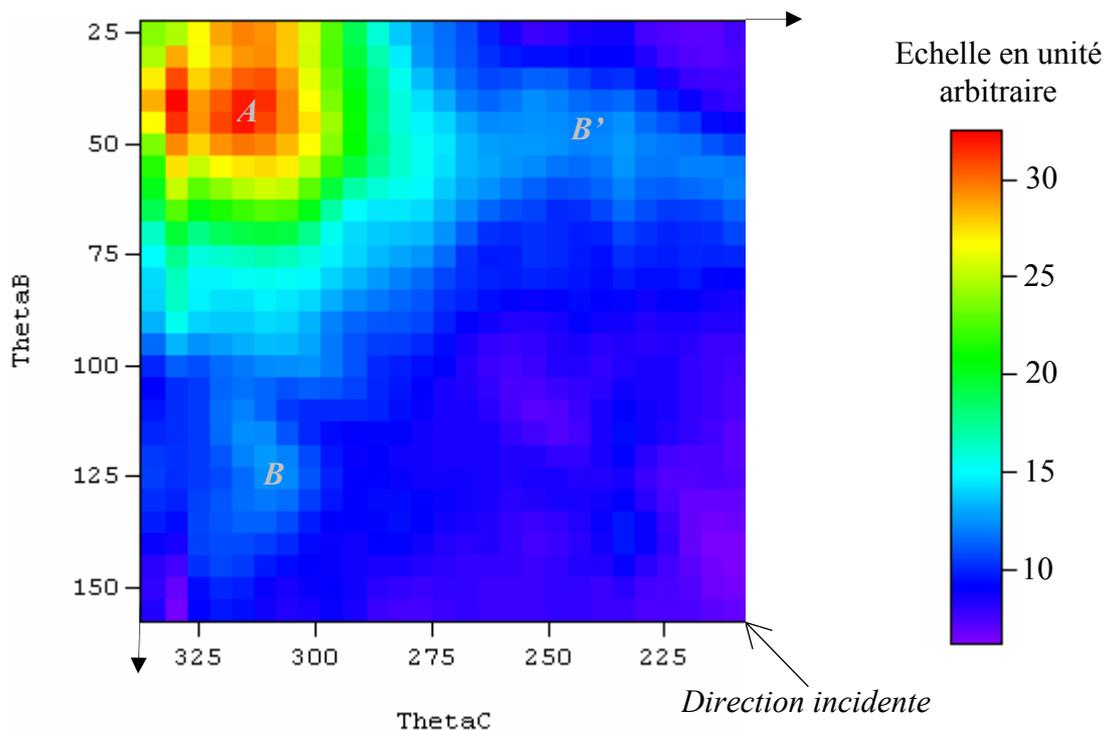


Figure III.18 : Distribution angulaire $(e,(3-1)e)$ d'un processus de double ionisation pour $E_0 = 466 \text{ eV}$ dont les deux électrons détectés ont une énergie de 205 eV. . Le maximum de cette distribution est de $1,7 \cdot 10^{-3} \text{ evt/s}$.

Une première remarque concerne le fait que la détection de deux électrons de même énergie, impose une symétrie de la distribution angulaire $(e,(3-1)e)$ par rapport à la direction incidente, donnée par la flèche de la *figure III.18*. Cette même figure montre effectivement une symétrie par rapport à cette direction.

La distribution angulaire est principalement dominée par trois pic notés A, B et B', le pic B' étant simplement le symétrique du pic B. A est centré sur la position $(50^\circ, 310^\circ)$ et s'étale sur 10° environ. Le pic B est quand à lui donné pour le couple $(125^\circ, 310^\circ)$, bien sûr le pic B' a pour coordonnées $(50^\circ, 235^\circ)$.

L'ensemble des calculs développés ont été réalisés pour des conditions $(e,3e)$ et non $(e,(3-1)e)$ car l'intégration sur tout l'angle solide de l'électron qui n'est pas observé, nécessite des temps de calculs qui ne sont pas raisonnables (plus de 6 mois sur station!). Une

amélioration des algorithmes pourrait probablement remédier en partie à ce problème. Néanmoins, des calculs réalisés à angles de diffusion différents²⁵ montrent une faible dépendance de la distribution angulaire en fonction de cet angle. C'est la raison pour laquelle les calculs présentés ont été effectués pour un angle de diffusion de -3° .

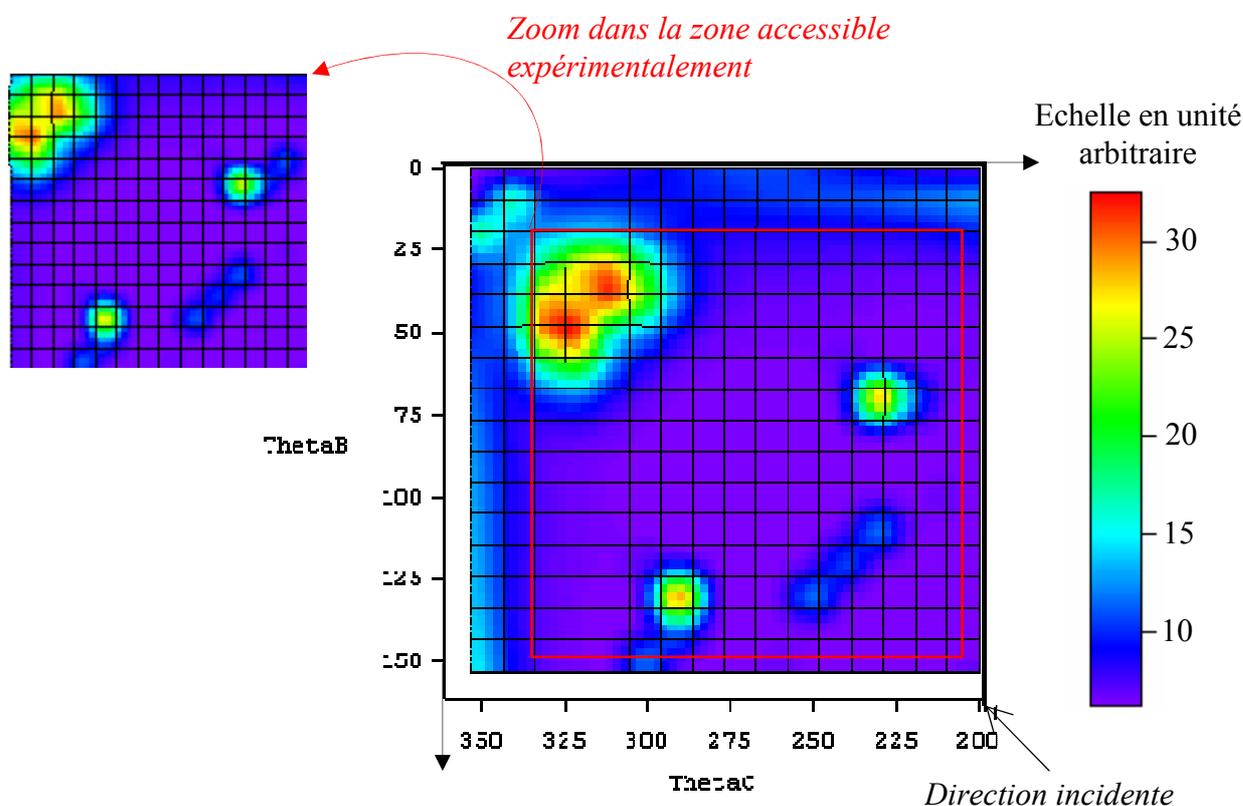


Figure III.19 : Distribution angulaire du calcul $(e,3e)$ pour des électrons éjectés de 205 eV, une énergie incidente de 466 eV, un angle de « diffusion » de -3° pour le processus SO et Auger décrit par trois ondes coulombiennes avec échange. Le maximum correspond à $1,4 \cdot 10^{-4}$ u.a.

Le résultat du calcul de la *figure III.19* prend en compte l'ensemble des mécanismes SO et Auger. Ces calculs ont été effectués en prenant en compte les effets d'échange entre électrons. Ces échanges sont nécessaires afin de ne pas réduire le calcul au cas où l'électron diffusé est effectivement l'électron de 13 eV, ce qui est très peu probable. Afin de séparer la contribution propre de l'effet Auger de celle du processus SO, nous avons tracé la contribution du processus Auger seul sur la *figure III.20*.

²⁵ Angle de diffusion est à prendre au sens large du terme, l'électron diffusé correspondant à l'électron non détecté. Clairement, physiquement parlant l'électron diffusé a plus de chance d'être l'un des électrons à 205 eV. Ce choix a été dicté par le formalisme théorique développé dans cette thèse.

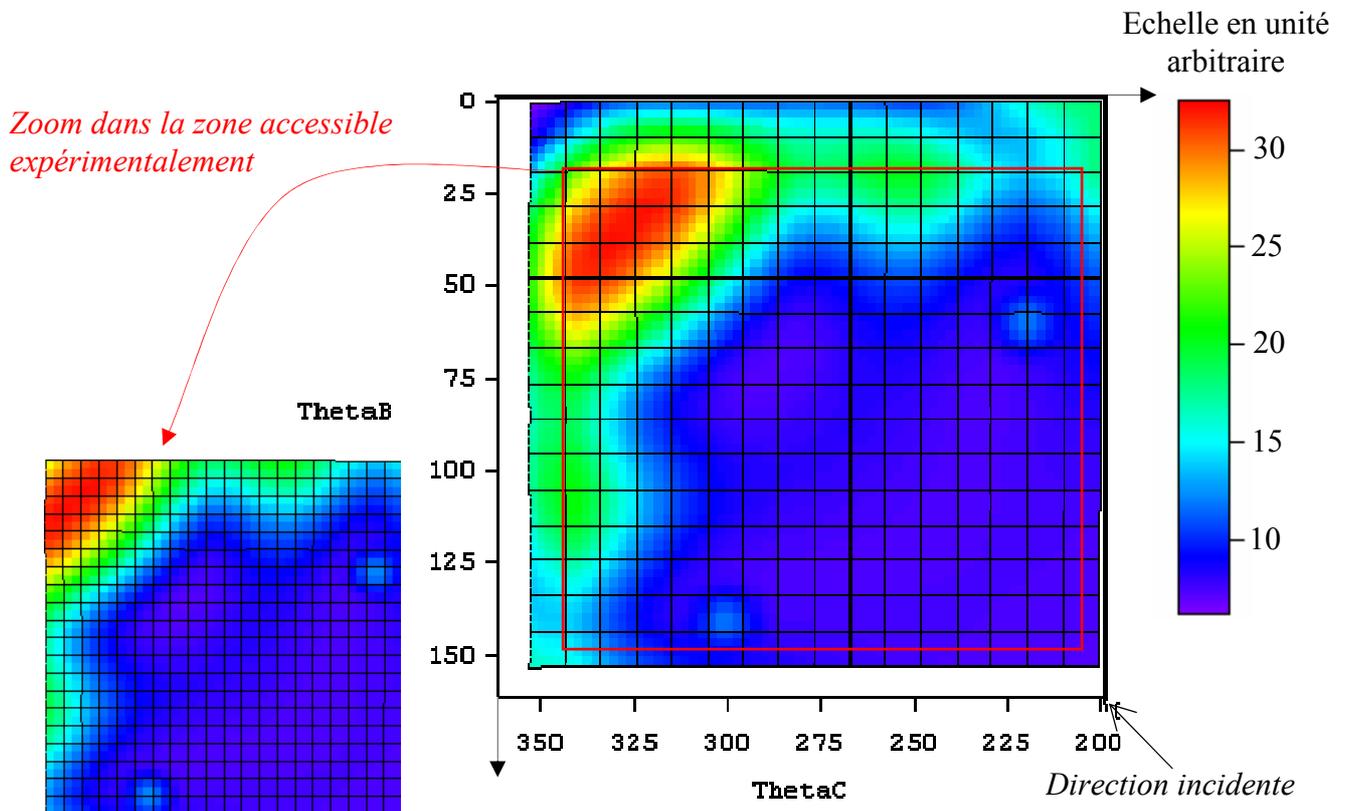


Figure III.20 : Distribution angulaire du calcul (e,3e) pour des électrons éjectés de 205 eV, une énergie incidente de 466 eV, un angle de diffusion de -3° pour le processus Auger décrit par trois ondes coulombiennes avec échange. Le maximum correspond à $7 \cdot 10^6$ u.a.

La comparaison entre les distributions angulaires calculées de la figure III.19 et 20 montre que la somme des deux amplitudes est largement dominée par le processus SO. Ceci peut être expliqué par le fait que le mécanisme SO est un mécanisme de premier ordre alors que le processus Auger se produit en deux temps. La comparaison entre expérience et théorie montre que le pic A de la figure III.18 est présent à la bonne position si le processus est décrit par le mécanisme SO (cf. figure III.19). La forme du pic A, pour la distribution théorique de la figure III.19, est en fait composée de deux pics qui ne forment plus qu'un après intégration angulaire [ECD] sur l'ensemble des 4π stéradian des coordonnées de l'électron à 13 eV. Le pic résultant a pour coordonnées $(50^\circ, 310^\circ)$.

Le pic A peut-être interprété de différentes manières. Les conditions cinématiques sont très proches de celle d'une simple ionisation où les deux électrons éjectés sont à 205 eV. L'énergie incidente est alors de 426 eV. Le critère de Bethe nous indique alors que la direction privilégiée d'émission des électrons éjectés est dans la direction du transfert l'électron diffusé pouvant indifféremment être l'un des électrons de 205 eV. Dans nos conditions, ceci revient à dire qu'un électron part dans la direction 45° et l'autre à 315° , car

les deux électrons ont la même énergie. Le couple d'angles correspondant au critère de Bethe est en fait (41°, 319°) car il faut introduire dans la conservation de l'énergie, l'énergie d'ionisation modifiant légèrement ces angles. Ce qui explique assez bien la présence du pic A aux coordonnées (50°, 310°).

Une autre manière d'expliquer la présence de ce pic A est de modéliser classiquement la situation d'une double ionisation. Ce modèle consiste à décrire le système comme étant composé d'une particule incidente qui entre en collision avec un système de deux particules qui sont initialement immobiles. Suite à cette collision, les particules initialement immobiles sont alors mises en mouvement. L'écriture des équations de conservation de l'énergie et de l'impulsion ne permettent pas de trouver une solution unique à ce problème. A ce stade, une hypothèse peut alors être faite en prenant en compte les résultats expérimentaux. En effet, le pic A est situé sur la droite d'équation : $\theta_b = 360 - \theta_c$. Imposons alors cette dernière relation aux angles cherchés, ce qui revient à dire que l'angle θ_a est quasiment nul. La conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement a alors une solution unique donnée par (l'angle de l'électron a est choisi nul):

$$\cos(\theta_b) = \frac{k_0 \pm k_a}{2k_b} \quad [\text{FIII.11}]$$

On trouve alors les deux angles de 51° et 28°. Ces deux angles sont exactement ceux trouvés par le calcul (e,3e) pour le processus SO (*cf. figure III.19*), permettant de conclure quant à la nature classique de la collision. Le couple (50°, 310°) correspond aux coordonnées où le module de l'impulsion de l'ion est minimum. Ceci est en accord avec des analyses théoriques [BK1993] tendant à montrer que les maxima de la section efficace peuvent être reliés aux minima du module du vecteur impulsion de l'ion.

Les pics B et B' sont quant à eux présents uniquement dans les distributions angulaires théoriques où le processus Auger seul est inclus. Cependant les pics ne sont pas présents aux bons angles, mais ils restent dans le prolongement du pic A. Rappelons que ce calcul a été réalisé pour un angle de -3° pour l'électron qui a une énergie de 13 eV. De plus, dans le calcul de la *figure III.20*, l'intensité des pic B et B', relativement au pic A, n'est pas la même que dans l'expérience, *figure III.18*.

Cependant, il est à noter que les durées de vie de chacun des états ont été négligées, dans le formalisme développé pour le processus Auger. Une étape ultérieure de ce travail serait donc de prendre en compte les effets liés à l'existence de ces résonances. En effet, les auteurs Lebech et al. [LHD2006] ont montré une forte influence sur la distribution angulaire dans le

référentiel moléculaire de N_2O suivant que l'énergie du photon est plus grande ou plus petite que l'énergie de résonance. Cette conclusion est probablement vraie aussi dans le cas d'un impact électronique.

Pour cette énergie incidente, on peut donc conclure que la contribution principale est le mécanisme SO dont la position du pic principal est interprétable classiquement par une collision du type sphères dures. La distribution angulaire expérimentale montre aussi des traces de la présence du mécanisme Auger qui entre en compétition avec le processus SO.

b. $E_0 = 658 \text{ eV}$

Nous nous sommes aussi intéressé au cas où l'énergie des trois électrons de la voie finale est la même pour chacun d'entre eux, à savoir celle de l'électron Auger qui est de 205 eV. L'énergie incidente correspondante est alors de 658 eV. Ce cas particulier correspond à un partage égal de l'énergie entre les trois électrons impliqués dans la collision. Du point de vue quantique, les trois électrons sont indiscernables. Néanmoins, chaque situation d'échange d'électrons correspond à une amplitude particulière et il est possible théoriquement de distinguer les différentes situations d'échange.

La distribution angulaire expérimentale ($e,(3-1)e$) est donnée par le *figure III.21*. Cette distribution est dominée par trois pics. Un pic principal (A) autour du couple d'angle ($125^\circ, 235^\circ$), et deux pics secondaires (B et B') aux couples d'angles : ($60^\circ, 225^\circ$) et ($130^\circ, 300^\circ$). Enfin, un minimum (C) apparaît pour le couple d'angle ($70^\circ, 290^\circ$).

Le pic A peut s'interpréter classiquement. Les trois particules ont la même énergie, la configuration correspondant au minimum d'énergie potentielle, est celle où l'angle mutuel entre deux électrons est de 120° . Pour un électron incident peu dévié, ceci revient à dire que les deux électrons détectés sont respectivement à 120° et 240° . Ce couple est alors à rapprocher de celui du pic A. En revanche, les pics B et B' nécessitent l'utilisation de calculs plus sophistiqués pour conclure sur leur nature.

L'analyse de cette distribution angulaire n'est pas aisée du fait que les trois électrons sont identiques²⁶, ne serait-ce que pour l'attribution des noms. En effet, il est impossible de discerner les éjectés du diffusé. Par souci de simplification, les électrons détectés par les deux analyseurs B et C seront assimilés aux électrons éjectés et l'électron qui n'est pas observé, à l'électron diffusé.

²⁶ C'est-à-dire indiscernable au sens quantique et de même énergie

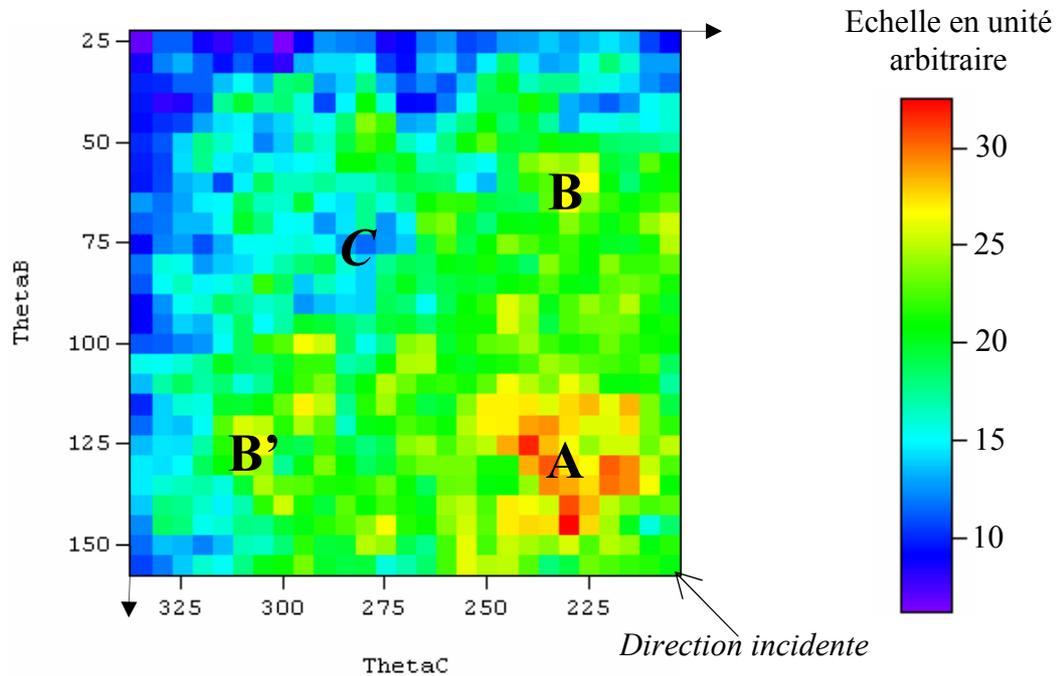


Figure III.21 : Distribution angulaire $(e,(3-1)e)$ d'un processus de double ionisation pour $E_0 = 658 \text{ eV}$ et les deux électrons détectés ont une énergie de 205 eV . Le maximum de cette distribution est de $5 \cdot 10^{-3} \text{ evt/s}$.

Les points de comparaison sont les calculs $(e,3e)$ qui ont été effectués lors de cette thèse. La grande difficulté de cette comparaison reste le fait que l'électron diffusé a la même énergie que les deux électrons éjectés. Il n'y a donc, a priori, aucune raison de privilégier un angle pour l'électron diffusé plutôt qu'un autre. Néanmoins, dans l'optique d'un calcul utilisable pour une mesure $(e,3e)$ avec le nouveau dispositif, les calculs ont été effectués pour des angles de diffusion de -3° .

Un premier résultat théorique concerne le calcul de la section efficace différentielle en prenant en compte les mécanismes SO et Auger. Cette distribution angulaire est donnée par la figure III.22.

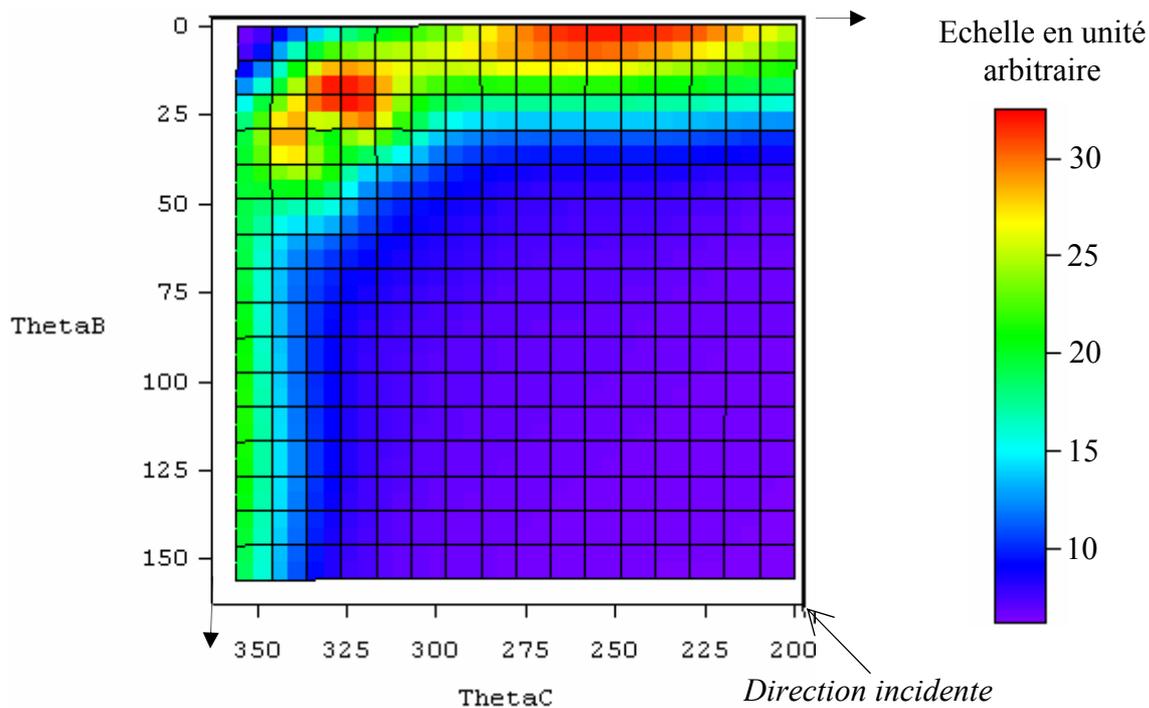


Figure III.22 : Distribution angulaire du calcul $(e,3e)$ pour des électrons éjectés de 205 eV, une énergie incidente de 658 eV, un angle de diffusion de -3° pour le processus SO et Auger décrit par trois ondes coulombiennes avec échange. Le maximum correspond à 1.10^{-5} u.a.

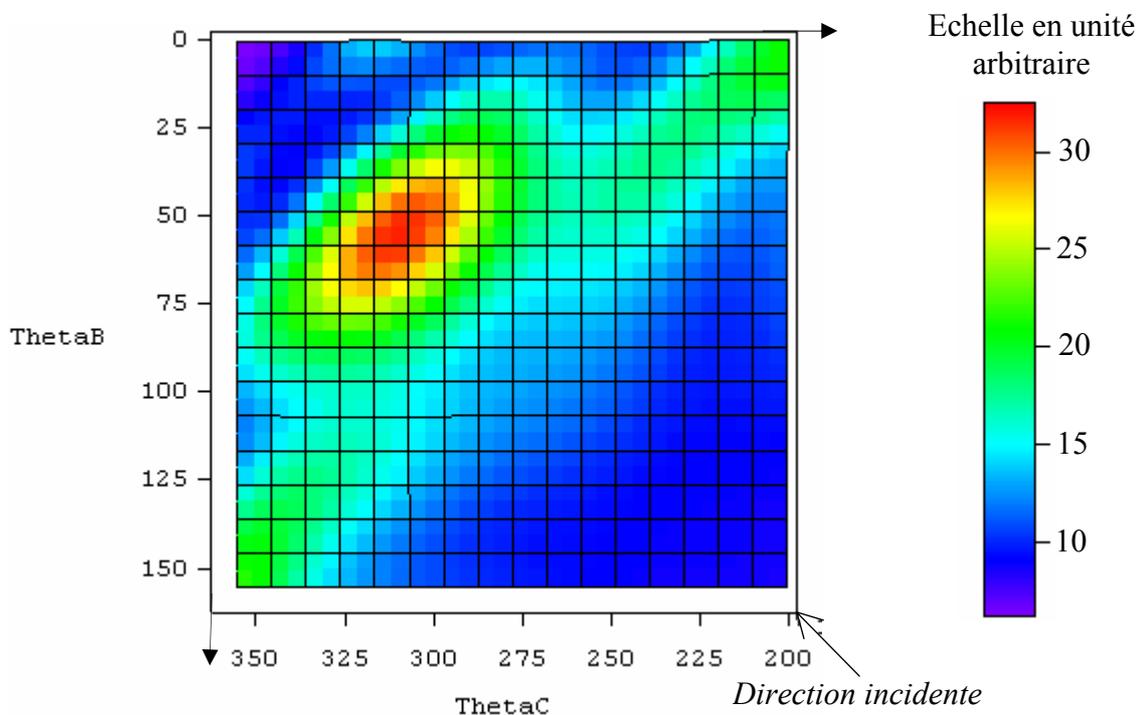


Figure III.23 : Distribution angulaire du calcul $(e,3e)$ pour des électrons éjectés de 205 eV, une énergie incidente de 658 eV, un angle de diffusion de -3° pour le processus Auger décrit par trois ondes coulombiennes avec échange. Le maximum correspond à 1.10^{-6} u.a.

Afin de séparer la contribution propre des effets Auger et SO, le calcul a aussi été effectué en ne prenant en compte que les effets Auger ; C'est ce que montre la *figure III.23*. Les maxima des *figures III.22* et *III.23* situés respectivement à $(25^\circ, 325^\circ)$ et $(60^\circ, 300^\circ)$ ne correspondent pas à la position du maximum expérimental A de la *figure III.21*. L'ensemble de ces deux courbes est en désaccord avec la distribution angulaire expérimentale. Avant de poursuivre la discussion sur les courbes théoriques, explicitons ce désaccord. Les courbes expérimentales correspondent à des situations où deux électrons sur trois sont détectés. Ceci signifie qu'il est possible de détecter trois couples d'électrons : (diffusé, éjecté 1), (diffusé, éjecté 2) et enfin (éjecté 1, éjecté 2). Les deux premiers couples, ne peuvent être détectés que dans le cas où les trois énergies des électrons de l'état final sont égales. L'un de ces couples correspond à la détection des deux électrons issus de la première étape du processus Auger, à savoir le processus de **simple ionisation en couche interne** ($2p^{-1}$). La section efficace est alors la somme de deux contributions : l'une correspondant à la section efficace $(e, (3-1)e)$ contenant le processus Auger et SO dont nous avons parlé au chapitre I, ainsi que la section efficace $(e, 2e)$ décrivant l'ionisation en couche $2p$ de l'Argon. Un calcul de cette distribution a alors été obtenu par B. Lohmam à notre demande, en utilisant le code de McCarthy basé sur le modèle DWBA. Le résultat est donné par la *figure III.24*.

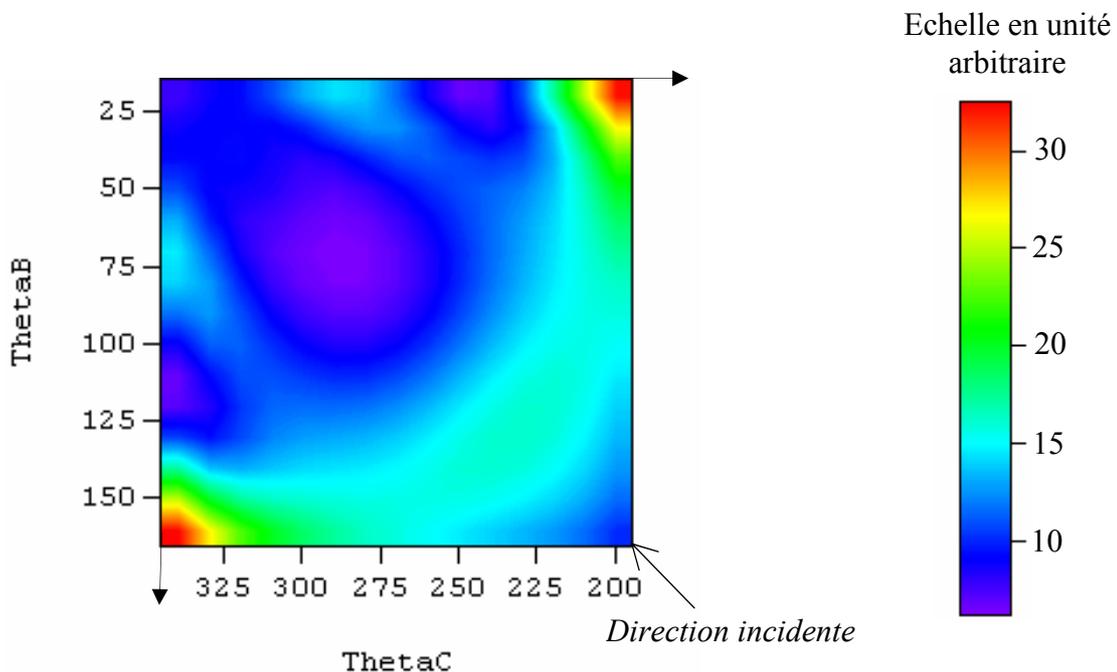


Figure III.24 : Distribution angulaire du calcul $(e, 2e)$ en couche $2p$ pour un électron éjecté de 205 eV, une énergie incidente de 658 eV. Le modèle est celui de DWBA.

Cette *figure III.24* montre un maximum secondaire au point $(125^\circ, 235^\circ)$ et un minimum aux coordonnées $(65^\circ, 290^\circ)$. Ces deux extrema sont à rapprocher des points A et C de la *figure III.21*. En revanche, les maxima B et B' ne sont pas reproduits par le calcul de simple ionisation. L'existence du pic aux coordonnées $(125^\circ, 235^\circ)$ signifie que les deux électrons issus de la simple ionisation partent dans des directions symétriques par rapport à la direction incidente et vers l'arrière. Cette configuration peut s'interpréter par le fait qu'il y a dans un premier temps une réflexion de la particule incidente sur le noyau et qu'ensuite la collision entre les électrons a effectivement lieu dans les conditions de Bethe, qui peuvent être réalisées dans ces conditions cinématiques. Ces conditions de Bethe conduisent à un pic qui devrait être positionné aux coordonnées $(154^\circ, 206^\circ)$. Le décalage, avec $(125^\circ, 235^\circ)$ peut-être attribué à la répulsion coulombienne entre les deux électrons qui tend à augmenter l'angle mutuel.

Ces dernières observations nous laissent penser qu'effectivement, la distribution angulaire de la *figure III.21* est dominée par le mécanisme de simple ionisation en couche interne. Ceci est corroboré par le fait que lors des différentes mesures, le taux de coïncidences vraies est plus important pour cette énergie que dans les autres cas envisagés. Il est à noter que la section efficace simplement différentielle tracée en fonction du partage d'énergie montre un minimum dans le cas où ce partage est égal. Dans notre cas, la section efficace est donc à son minimum dans notre configuration énergétique mais l'emporte globalement sur la section totale, car elle est contenue aussi dans le processus Auger. A ce titre elle intervient plusieurs fois dans l'expression de la section.

Poursuivons alors notre analyse des courbes théoriques du calcul $(e,3e)$. Une première remarque concerne le fait que dans ces conditions, le mécanisme SO est dominant sur le mécanisme Auger. Un autre point important mis en évidence par les calculs est l'influence des effets d'échange. En effet, le fait de prendre en compte les échanges dans l'état initial et final doit se manifester plus sur la distribution angulaire quand les énergies des électrons en voie de sortie sont proches les unes des autres, ce qui est le cas pour l'énergie incidente de 658 eV. La *figure III.25* correspond au calcul du mécanisme SO sans prendre en compte les effets d'échanges.

La comparaison des *figures III.22* et *III.25* montre que globalement la distribution reste inchangée si ce n'est la présence du pic aux coordonnées $(25^\circ, 325^\circ)$. La présence de ce pic dans le cas où l'on prend en compte les effets d'échange peut s'expliquer de la manière suivante : une simple ionisation a lieu dans les conditions de Bethe où un électron est éjecté dans la direction du transfert qui est de 26° et le second électron part avec un angle

symétrique c'est-à-dire dans la direction 334° . Ces dernières valeurs ont été calculées simplement en se basant sur la conservation de la quantité de mouvement, en minimisant la valeur de k_{ion} qui dans ce cas est nulle, mais en respectant le bilan énergétique de la double ionisation. Enfin, du fait de la corrélation entre les deux électrons de la couche 3p de l'Argon, le dernier électron part dans la direction -3° minimisant ainsi le module de k_{ion} global. Ce mécanisme montre alors une influence importante de l'échange dans ces conditions.

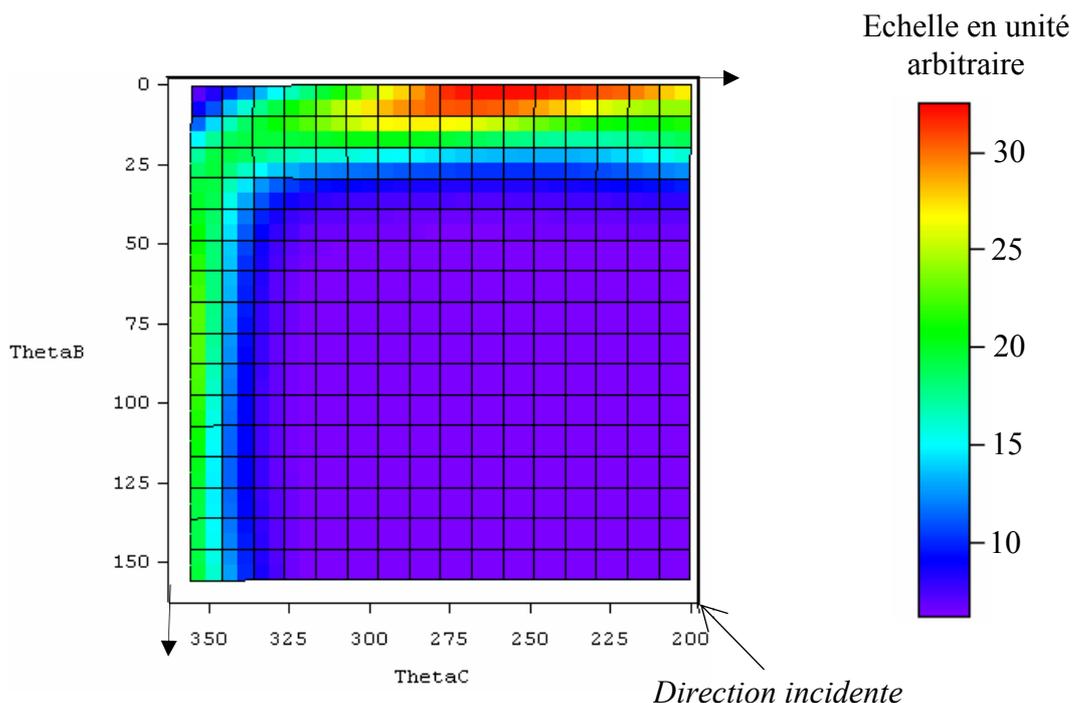


Figure III.25 : Distribution angulaire du calcul $(e,3e)$ pour des électrons éjectés de 205 eV, une énergie incidente de 658 eV, un angle de diffusion de -3° pour le processus SO décrit par trois ondes coulombiennes sans échange

La figure III.25 comporte un pic principal de coordonnées $(5^\circ, 270^\circ)$. Ce pic s'interprète de la manière suivante : l'électron incident entre en collision avec la cible pour être diffusé à -3° , un des électrons part alors dans la direction du transfert $\vec{K} = \vec{k}_0 - \vec{k}_a$ qui est de $3,8^\circ$ et dont le module est de $K = 3$ u.a. Dans ce cas, le dernier électron est éjecté pour minimiser le module de la projection selon l'axe z de l'impulsion de l'ion. Deux angles sont alors solutions, l'un à 102° et l'autre à 258° . Seul l'angle 258° est dans un domaine angulaire acceptable. Ce qui est en accord avec le couple $(5^\circ, 270^\circ)$ observé.

Globalement, une étude (non présentée ici) en fonction des états finaux montre que la distribution angulaire de la section efficace est largement dominée par celle de l'état 3P . Ceci s'explique très bien par le fait que le nombre d'états finaux est plus important pour 3P que pour les autres états: 9 sur les 15 possibles.

c. $E_0 = 956 \text{ eV}$

Un dernier cas a été envisagé, celui où l'électron qui n'est pas observé a une énergie de 503 eV. Autrement dit, puisque les électrons détectés ont une énergie de 205 eV, l'énergie incidente est de 956 eV. Ce cas nous permet alors de distinguer l'électron diffusé, comme étant celui qui a le plus d'énergie en voie de sortie. Pour cette mesure, l'électron diffusé est donc l'électron qui n'est pas observé. La distribution angulaire mesurée est donnée par la *figure III.26*.

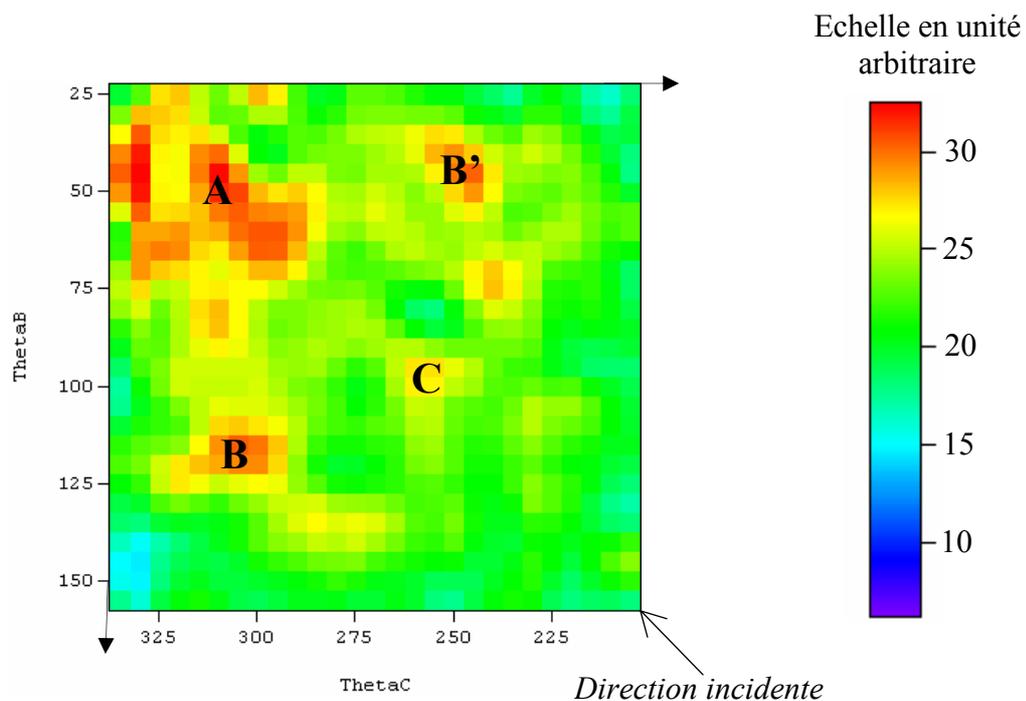


Figure III.26 : Distribution angulaire $(e,(3-1)e)$ d'un processus de double ionisation pour $E_0 = 956 \text{ eV}$ et les deux électrons détectés ont une énergie de 205 eV. . Le maximum de cette distribution est de $4,4 \cdot 10^{-4} \text{ evt/s}$.

Cette distribution angulaire est dominée par le pic A de coordonnées $(60^\circ, 320^\circ)$. Deux pics secondaires (B et B') sont aussi présents respectivement aux coordonnées $(120^\circ, 310^\circ)$ et $(50^\circ, 250^\circ)$ qui sont symétriques l'un de l'autre. Enfin un pic ternaire (C) est présent aux

coordonnées (100°, 250°). De la même manière que dans le cas $E_0 = 658$ eV, une comparaison avec les calculs (e,3e) est nécessaire afin de mieux analyser les structures expérimentales. Le calcul (e,3e) pour un angle de diffusion de -3° est donné par la *figure III.27*.

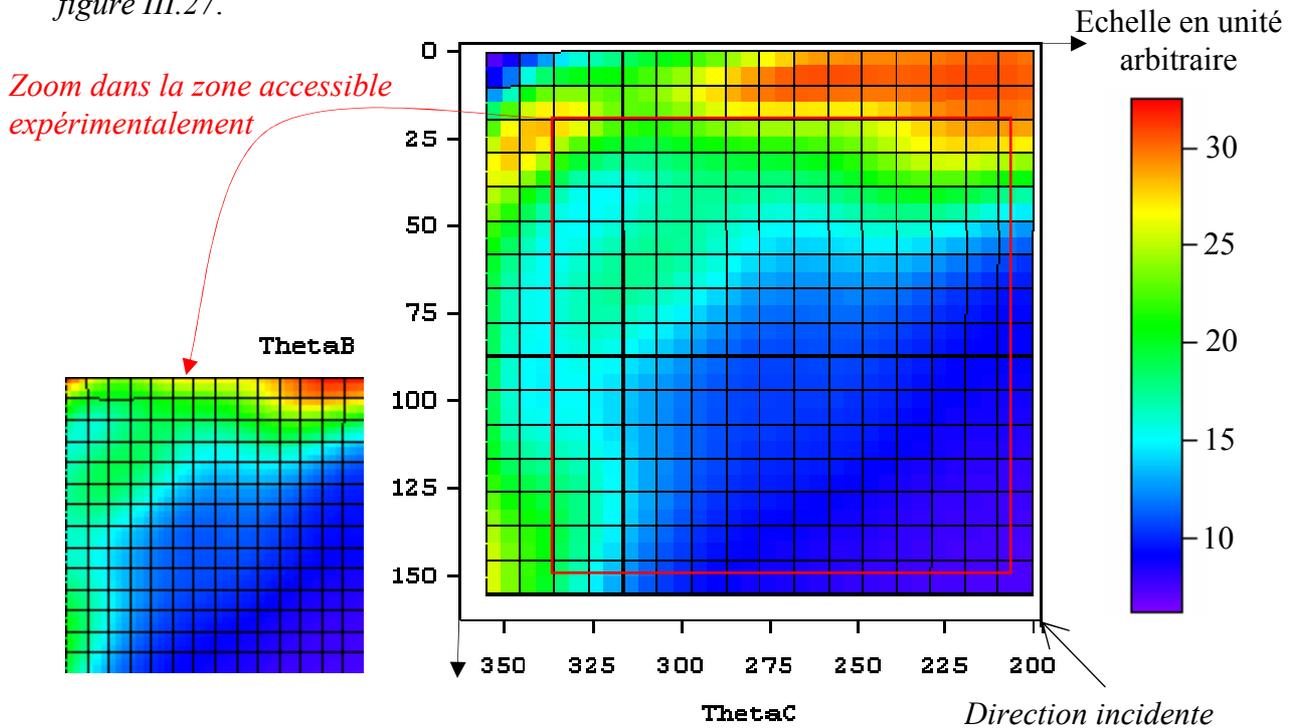


Figure III.27 : Distribution angulaire du calcul (e,3e) pour des électrons éjectés de 205 eV, une énergie incidente de 956 eV, un angle de diffusion de -3° pour le processus SO et Auger décrit par trois ondes coulombiennes avec échange. Le maximum correspond à $4,4 \cdot 10^{-6}$ u.a.

L'essentiel de la *figure III.27* n'est pas en accord avec la distribution de la *figure III.26*, si ce n'est le pic A que l'on retrouve dans la courbe théorique comme un maximum secondaire. Ce calcul est effectué en ajoutant dans la section efficace les contributions des mécanismes SO et Auger. Pour séparer la contribution de chacun des mécanismes nous avons représenté sur la *figure III.28* la distribution angulaire de la section efficace pour le mécanisme SO, et sur la *figure III.29* la distribution angulaire de la section efficace pour le mécanisme Auger. Le mécanisme SO est dominé par deux pics, l'un aux coordonnées (20°, 340°) et l'autre aux coordonnées (10°, 260°). La distribution angulaire du processus Auger est quant à elle dominée par un pic principal aux coordonnées (60°, 310°) et deux pics secondaires aux coordonnées (160°, 360°) et (20°, 200°). Une première remarque concerne le fait que pour cette énergie, le mécanisme Auger commence à se « manifester » sur la distribution angulaire théorique de la *figure III.27* montrant l'influence de ce mécanisme en fonction de l'énergie incidente.

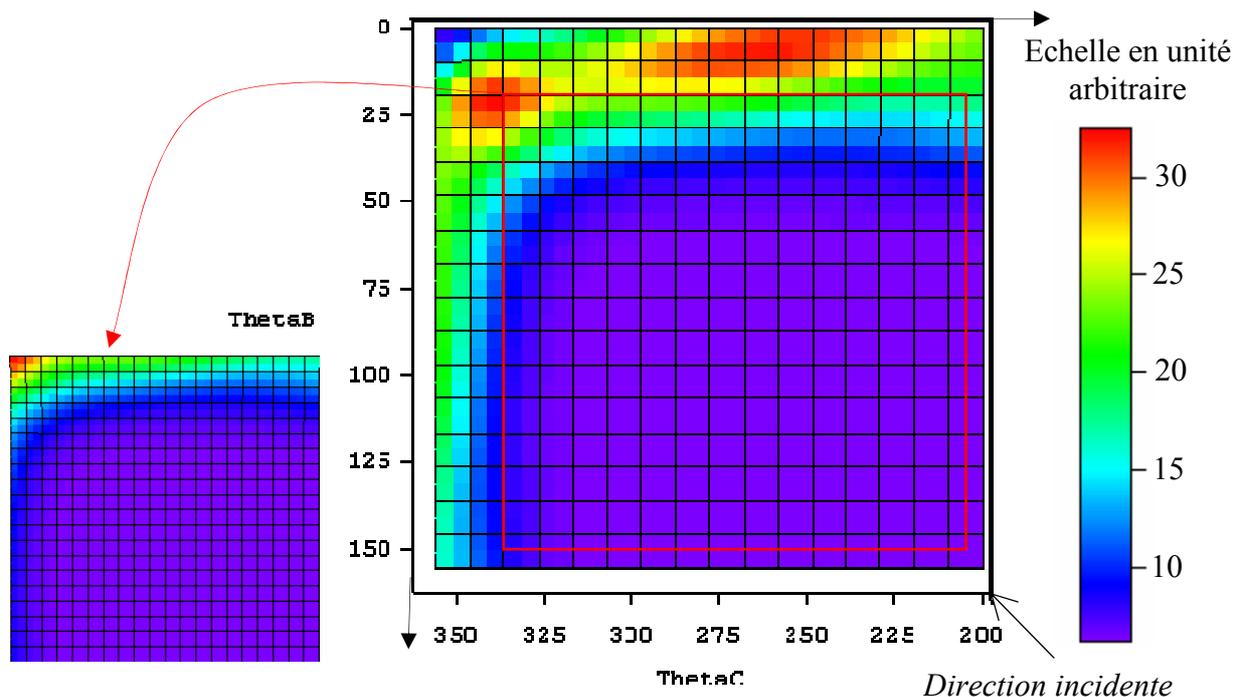


Figure III.28 : Distribution angulaire du calcul (e,3e) pour des électrons éjectés de 205 eV, une énergie incidente de 956 eV, un angle de diffusion de -3° pour le processus SO décrit par trois ondes coulombiennes avec échange. Le maximum correspond à $3,2 \cdot 10^{-6}$ u.a.

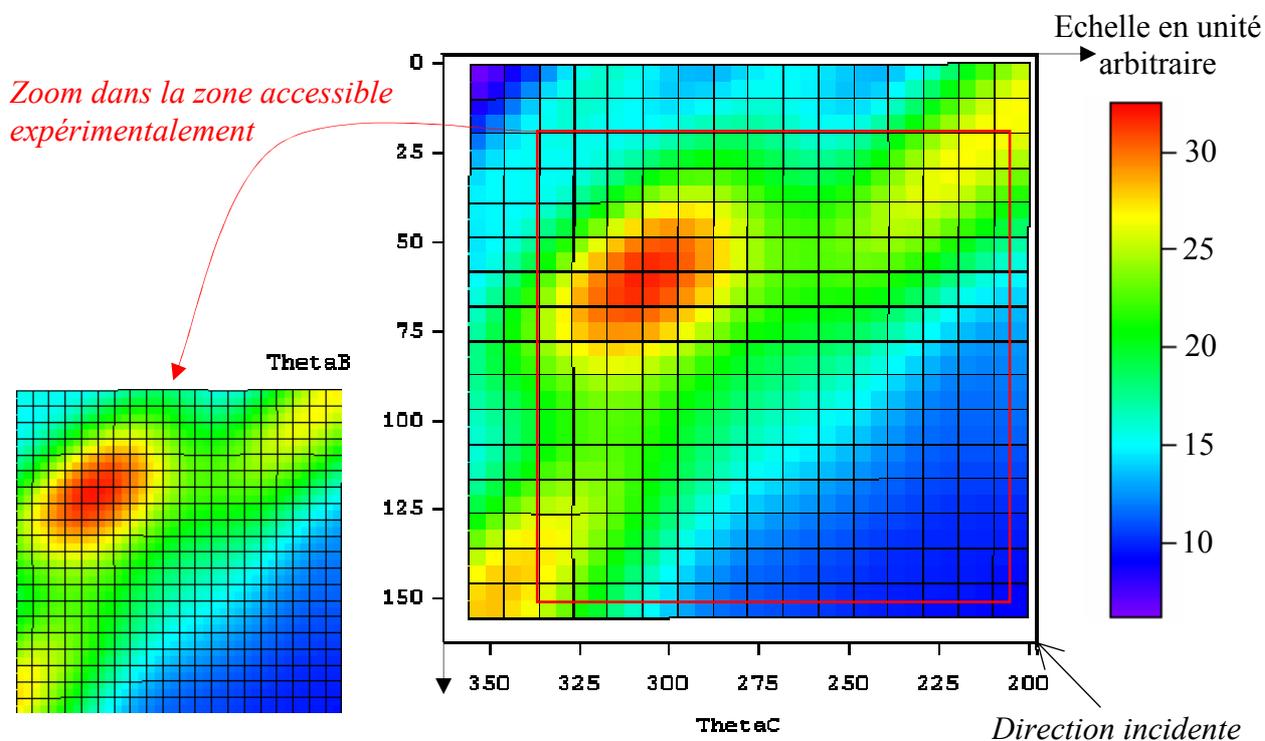


Figure III.29 : Distribution angulaire du calcul (e,3e) pour des électrons éjectés de 205 eV, une énergie incidente de 956 eV, un angle de diffusion de -3° pour le processus Auger décrit par trois ondes coulombiennes avec échange. Le maximum correspond à $1,8 \cdot 10^{-6}$ u.a.

Cette remarque peut s'expliquer par la dépendance de la section efficace totale en fonction de l'énergie incidente pour chacun des mécanismes. Cette section efficace a la distribution suivante : elle part d'une valeur nulle pour une énergie incidente proche du seuil de double ionisation, pour augmenter jusqu'à une valeur de l'énergie incidente égale à environ trois fois l'énergie du seuil. Enfin, cette section efficace totale diminue lorsque l'énergie augmente. La décroissance au-delà du maximum dépend du mécanisme. Cette allure nous indique que le processus SO est maximum pour une énergie incidente de l'ordre de la centaine d'eV pour ensuite rester quasiment constant. Alors que pour le mécanisme Auger ce maximum correspond à une énergie incidente de l'ordre de 1000 eV. Ce dernier point sera explicité lors de l'étude plus précise du mécanisme Auger.

Concernant le processus SO, le pic présent aux coordonnées $(20^\circ, 340^\circ)$ (*figure III.28*) disparaît si les effets d'échanges ne sont pas pris en compte. Un raisonnement équivalent à celui qui a été utilisé pour l'énergie incidente de 658 eV, montre que le critère de Bethe ne peut-être satisfait (dû aux conditions énergétiques) pour un mécanisme de « simple ionisation » avec les deux électrons de 205 eV. Ce même critère n'est pas vérifié pour des électrons d'énergie 205 eV et 500 eV. Cependant, un minimum de transfert d'impulsion à l'ion est réalisé pour la condition où les deux électrons de 205 eV partent tous les deux dans la direction de l'électron incident. Du fait de la répulsion coulombienne entre ces deux électrons, qui est prise en compte dans le modèle, cette direction est interdite. L'ionisation a donc lieu avec les électrons de même énergie partant avec des angles opposés par rapport à la direction incidente (une des conditions pour minimiser le transfert d'impulsion à l'ion), ce qui peut expliquer le maximum aux coordonnées $(20^\circ, 340^\circ)$. En revanche, le pic observé à $(10^\circ, 260^\circ)$ est toujours présent si les effets d'échange ne sont pas pris en compte. Si l'on considère l'électron qui a une énergie de 500 eV comme étant l'électron diffusé, alors la direction du transfert est de $7,7^\circ$ et $K = 2,35 \text{ u. a.}$ De même, si on cherche à minimiser la contribution de la composante z du vecteur impulsion de l'ion, deux angles sont solutions : l'un à 113° , l'autre à 246° . Le seul angle contenu dans la gamme $[180^\circ, 360^\circ]$ est l'angle 246° . Le couple d'angle ainsi obtenu est $(7,7^\circ, 246^\circ)$ qui est à comparer au couple $(10^\circ, 260^\circ)$ du calcul. La petite différence apparaissant pour le second angle s'explique par des perturbations de nature coulombiennes. Les résultats habituels concernant la position des maxima d'intensité en fonction de l'impulsion cédée à l'ion ont tendance à montrer que les maxima sont positionnés aux angles où le minimum d'impulsion est transféré à l'ion [BK1993]. Alors que ce paragraphe semble montrer que seul le module de la composante z doit être minimisé. Ceci est probablement dû au fait que la cible est de l'argon et non de l'hélium.

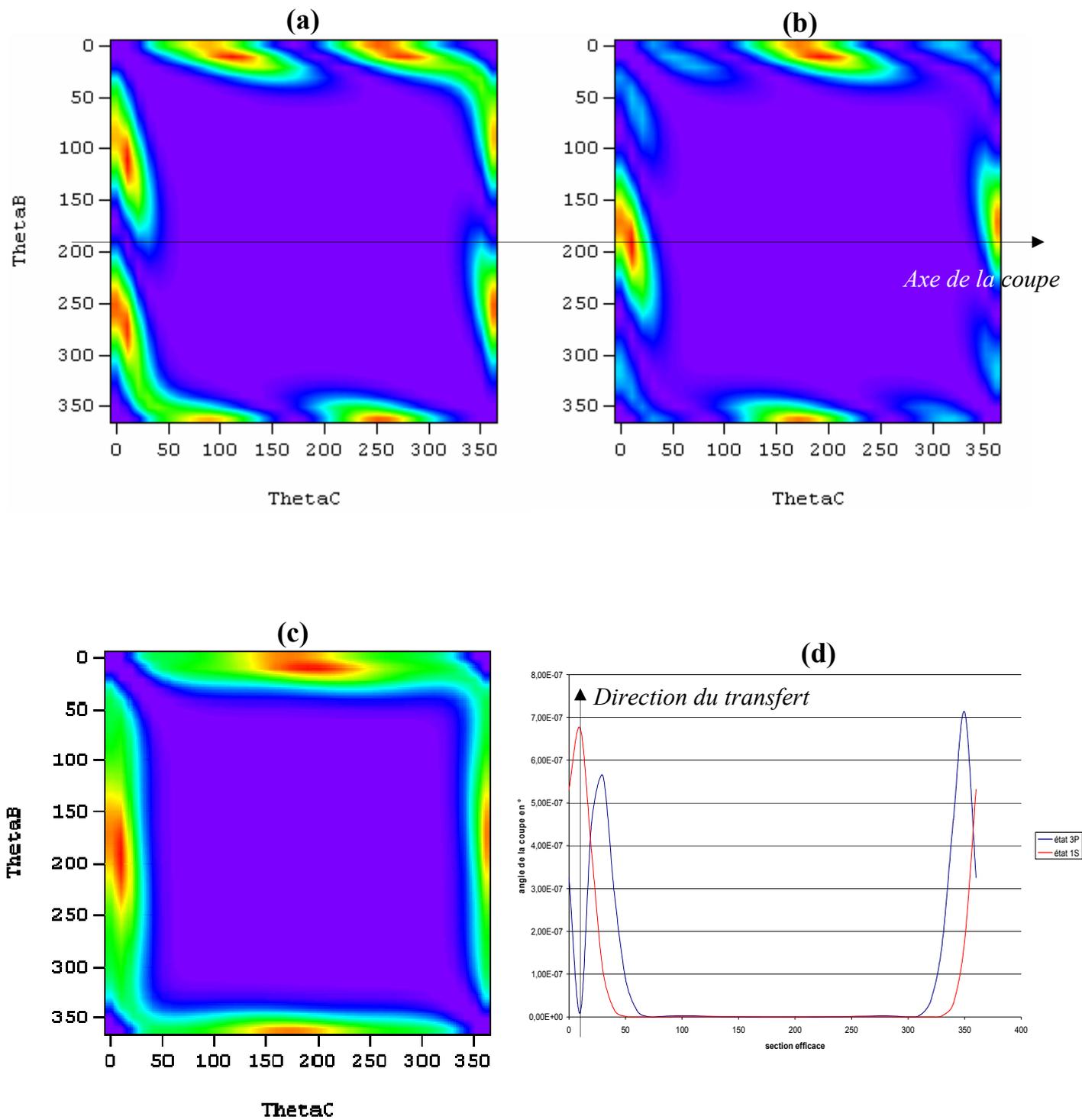


Figure III.30 : Cette figure représente la section efficace quintuplement différentielle pour les conditions de la figure III.28 mais en fonction de l'état final avec : (a) 3P , (b) 1S et (c) 1D . Le graphique (d) représente la coupe de (a) (courbe bleue) et (b) (courbe rouge) selon la direction opposée au transfert qui est de $187,7^\circ$.

Avant de poursuivre cette analyse et de la compléter par celle du mécanisme Auger, le lien entre section efficace et densité bi-électronique est précisé pour le mécanisme SO. Dans la première partie de ce chapitre, nous nous sommes intéressés à l'étude de la corrélation et précisément à ce que nous appelons la corrélation interne. De même, la notion de corrélation de structure a été brièvement introduite. C'est ce dernier point qui sera abordé dans ce paragraphe. Dans la modélisation à deux électrons actifs, l'association de deux électrons de la couche 3p donne naissance à 15 états possibles. Ces états sont états propres de l'opérateur moment cinétique orbital et de spin. Comme il a déjà été mentionné, ces états sont décrits dans l'annexe I. Les états quantiques ainsi formés sont : les états 3P , 1D et 1S . Dans la première partie de ce chapitre le critère CCI semble montrer une forte sensibilité à la corrélation interne. Nous allons montrer que ce critère est aussi sensible à la corrélation de structure. Dans les conditions qui sont les nôtres, $K = 2,35$ u.a. et $\theta_K = 7,7^\circ$ donc $\theta_{-K} = 187,7^\circ$, et l'impulsion de l'électron éjecté est de 3,88 u.a. D'après le CCI, si l'état final est l'état 1S , alors en fixant un électron éjecté dans la direction opposée au transfert, la distribution angulaire de l'autre électron doit présenter un maximum dans la direction du transfert. La coupe de la *figure III.30 (b)* suivant l'axe $\theta_b = \theta_{-K}$, présentée en *figure III.30 (d)*, montre effectivement la présence du maximum escompté. De même, si l'état final est l'état 3P , alors en fixant un électron éjecté dans la direction opposée au transfert, la distribution angulaire de l'autre électron doit présenter un minimum dans la direction du transfert. Ce qui est bien le cas en examinant la *figure III.30 (a et d)*. De manière générale, les deux contributions 3P et 1S se mélangent dans la section efficace totale. Sachant que l'état 3P représente les 9/15 des états finaux et l'état 1S le quinzième, il est légitime alors de penser que la section efficace doit présenter un minimum, celui de l'état 3P . C'est sans compter sur l'état 1D qui masque la distribution de l'état 3P dans la région du CCI comme le montre la *figure III.30 (c)*.

Un dernier commentaire concerne le critère CCI. En effet, d'après le paragraphe I de ce chapitre, pour vérifier le CCI, il faut que K soit de même norme que le module de l'impulsion d'un des électrons éjectés. Dans nos conditions, $K = 2,35$ u.a. alors que $k = 3,88$ u.a. Néanmoins on constate ici que ce critère s'applique même si les conditions réunies ne sont pas strictement celles du CCI. Ceci peut expliquer en partie pourquoi le minimum de l'état 3P n'est pas strictement nul. Rappelons enfin que ce calcul a été effectué avec des ondes coulombiennes alors que le CCI impose des grandes valeurs de k pour que les fonctions

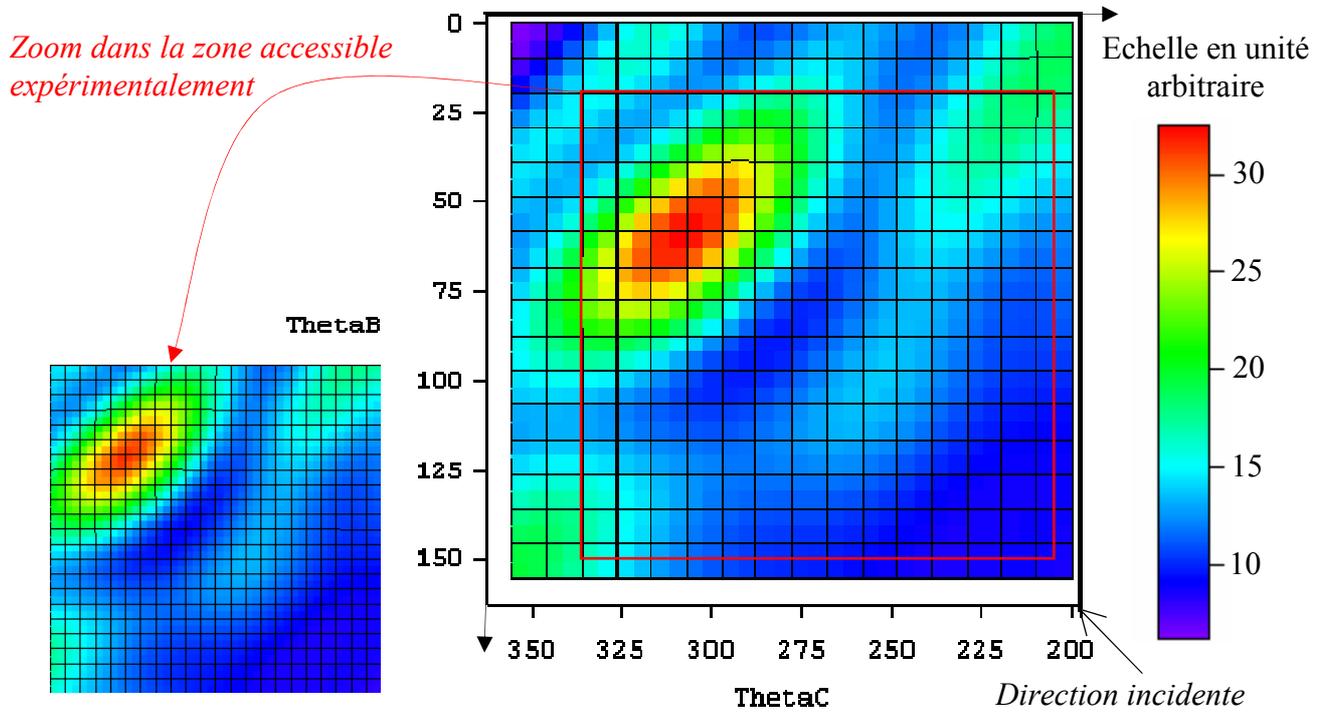


Figure III.31 : Distribution angulaire du calcul $(e,3e)$ pour des électrons éjectés de 205 eV, une énergie incidente de 956 eV, un angle de diffusion de -3° pour le processus Auger décrit par trois ondes coulombiennes avec échange pour l'état final 3P . Le maximum correspond à $1,5 \cdot 10^{-6}$ u.a.

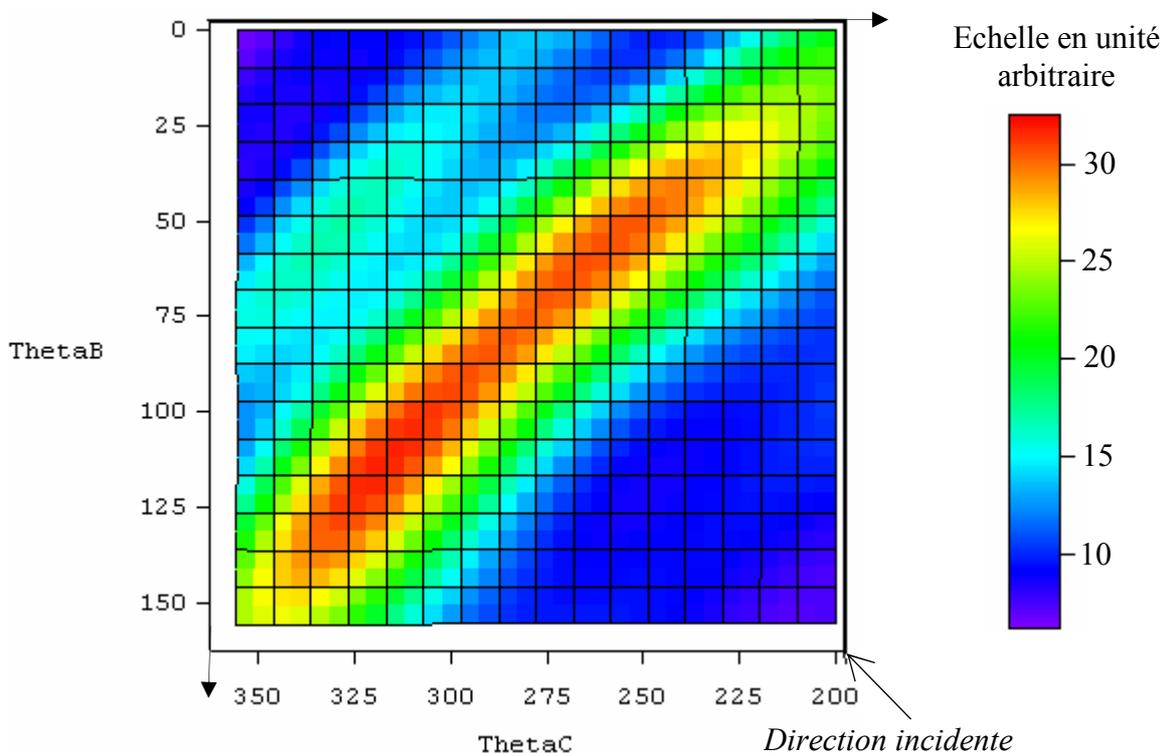


Figure III.32: Distribution angulaire du calcul $(e,3e)$ pour des électrons éjectés de 205 eV, une énergie incidente de 956 eV, un angle de diffusion de -3° pour le processus Auger décrit par trois ondes coulombiennes avec échange pour l'état final 1D . Le maximum correspond à $8 \cdot 10^{-7}$ u.a.

d'ondes de l'état final puissent être assimilées à des ondes planes, ce qui justement est notre cas (cf. chapitre I).

Détaillons à présent la contribution du mécanisme Auger. Plus spécifiquement détaillons la contribution de ce mécanisme pour les différents états finaux 3P , 1S , 1D . Les figures III.31 et 32 représentent les distributions angulaires du mécanisme Auger respectivement pour les états 3P et 1D qui représentent les 14/15 des états finaux. La figure III.31, est dominée par un pic principal aux coordonnées $(60^\circ, 310^\circ)$ et un pic secondaire $(110^\circ, 260^\circ)$. La figure III.32 est quand à elle caractérisée par deux pics l'un aux coordonnées $(120^\circ, 310^\circ)$ et un second à $(60^\circ, 265^\circ)$. Les pics du mécanisme Auger correspondant à l'état final 3P sont à comparer aux pics A et C de la distribution expérimentale. De même, les pics de la figure III.32 sont à rapprocher des pics B et B' de la figure III.26. La distribution angulaire prenant en compte l'effet Auger conduisant aux états finaux 3P et 1D , reproduit qualitativement la position des pics observés expérimentalement. Néanmoins, les intensités relatives ne sont pas reproduites. La description de l'ionisation en couche interne utilisée dans notre modèle est du type 2CW. L'utilisation d'un modèle plus sophistiqué, du type DWBA, pour décrire cette étape, permettra sans doute de remédier au problème des intensités relatives.

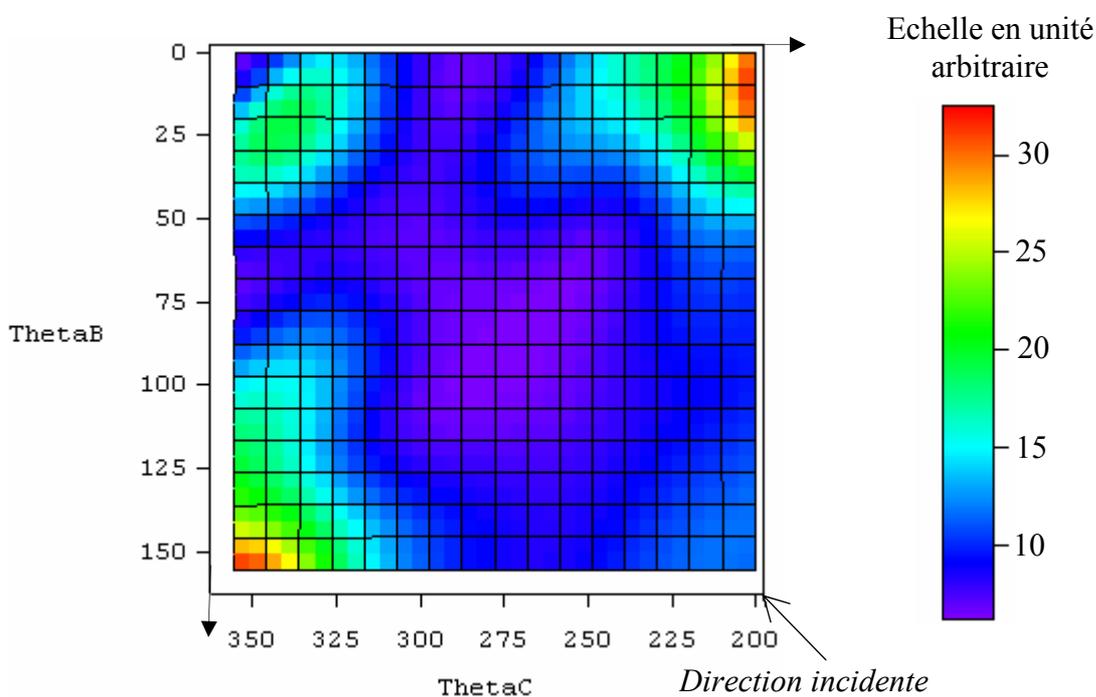


Figure III.33 : Distribution angulaire du calcul $(e,3e)$ pour des électrons éjectés de 205 eV, une énergie incidente de 956 eV, un angle de diffusion de -3° pour le processus Auger décrit par trois ondes coulombiennes avec échange pour l'état final 1S . Le maximum correspond à $1,8 \cdot 10^7$ u.a.

Pour conclure sur cette partie, la *figure III.33* représente la distribution angulaire dont l'état final est l'état 1S . Cette figure montre effectivement que cet état n'influence guère la distribution angulaire totale représentée sur la *figure III.27*.

2- Mesures (e,3e) sur la cible d'Argon

Dans ce paragraphe, nous allons présenter notre mesure (e,3e) **six fois différentielle**. A cet effet, ce paragraphe s'articulera autour de trois axes principaux. Le premier a pour but d'explicitier la notion d'exploitation (e,(3-1)e) dans le cadre d'une mesure (e,3e). Le second a pour but de vérifier les symétries inhérentes à notre configuration expérimentale. Enfin, nous terminerons par l'exploitation de la mesure (e,3e) qui a été effectuée durant la fin de thèse.

a. Exploitations (e,(3-1)e)

Une mesure dite (e,3e) consiste à mesurer, en coïncidence, les trois électrons de la voie de sortie, c'est-à-dire déterminer les temps T_{ab} et T_{ac} caractérisant les différences de temps d'arrivée des électrons entre la voie A et la voie B (cf. chapitre II). Le nombre de coïncidences par couple (T_{ab}, T_{ac}), est ensuite tracé pour obtenir un diagramme à trois dimensions du type :

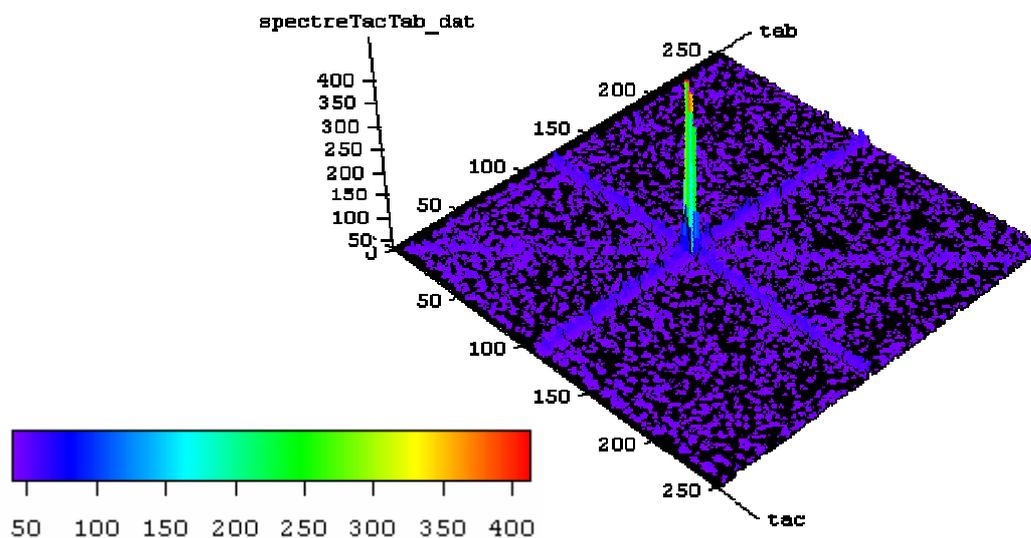


Figure III.34 : Spectre de coïncidence triple mesuré pour l'expérience (e,3e).

L'exploitation de ce spectre pour des mesures du type (e,3e) a été détaillée dans le chapitre II. A partir de ces données complètes, une exploitation où un des électrons n'est pas

pris en compte est néanmoins possible. Ce type d'exploitation est appelée $(e,(3-1)e)$ mais ne correspond pas exactement à une mesure $(e,(3-1)e)$. En effet, dans ce dernier cas, un des électrons n'est pas détecté et peut donc avoir n'importe quelle orientation. En revanche, pour une exploitation $(e,(3-1)e)$ avec des **données** de coïncidences **triples**, même si un des électrons n'est pas pris en compte au sens de la coïncidence, celui-ci a tout de même été détecté dans l'angle solide défini par le détecteur. Trois types d'exploitation $(e,(3-1)e)$ sont possibles, celle où les électrons a et b sont coïncidents, celle où a et c sont coïncidents ou enfin b et c. Pour les deux premiers cas, si l'électron a est effectivement l'électron diffusé alors ce sont des exploitations de première espèce. La dernière situation est qualifiée quant à elle d'exploitation de seconde espèce.

Pour les exploitations de première espèce, le spectre de coïncidence est monodimensionnel et obtenu par la projection du spectre de coïncidence sur les axes T_{ab} et T_{ac} . Chacun des spectres obtenus est donné par la figure suivante :

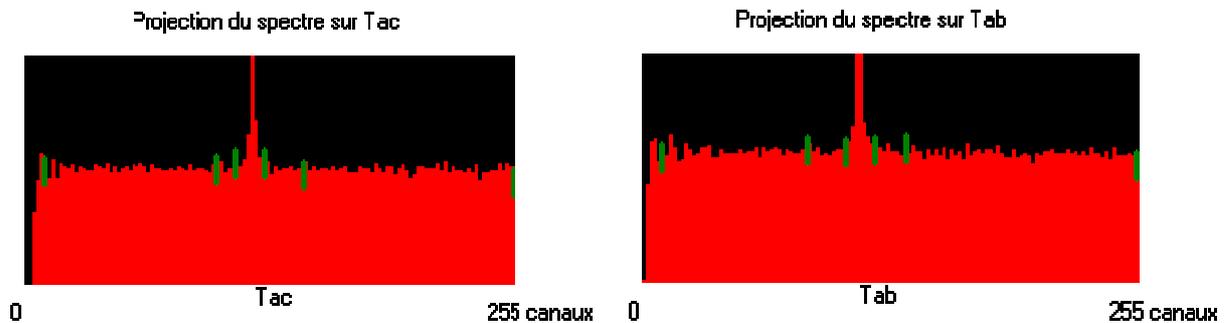


Figure III.35 : Projection du spectre de triple coïncidence sur les axes T_{ab} (figure de gauche) et T_{ac} (figure de droite).

Enfin, l'exploitation du spectre de coïncidence est identique à la procédure du type $(e,2e)$ vue au chapitre II.

La difficulté est alors d'exploiter le spectre T_{bc} . Car en effet, le temps T_{bc} **n'est pas** mesuré directement. Néanmoins, cette valeur de temps, pour un couple (T_{ab}, T_{ac}) donné est calculable par la relation : $T_{bc} = T_{ac} - T_{ab}$. Chaque valeur de temps est codée sur 256 canaux, ce qui signifie que T_{bc} est compris entre -256 canaux et 256 canaux, soit deux fois plus de canaux. Ce qui pose problème, c'est le fait que par cette méthode, le nombre de canaux comptabilisé pour chaque valeur de T_{bc} n'est pas constant et varie entre 1 et 362 (cf. figure III.36). En effet, pour le temps $T_{bc} = 0$, toutes les valeurs de T_{ac} et T_{ab} vérifiant $T_{ab} = T_{ac}$ (c'est-à-dire selon la diagonale) contribuent au nombre de canaux comptabilisés. De même, le temps $T_{bc} = -256$ n'est vérifié que pour le point $T_{ab} = 256$ et $T_{ac} = 0$ (voir la figure III.36).

Le spectre de coïncidence double T_{bc} présente donc deux pentes représentatives du nombre de canaux (voir la *figure III.37*). Il suffit alors de corriger ce spectre par un simple facteur multiplicatif correspondant au nombre de canaux pour obtenir la courbe de la *figure III.38*.

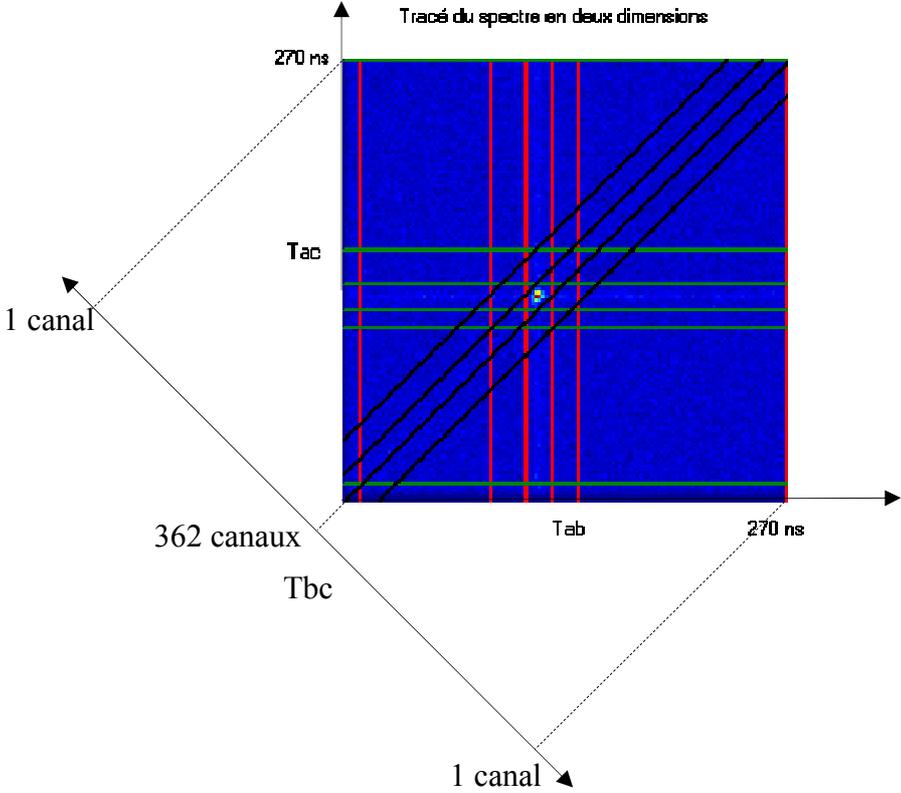


Figure III.36 : Schéma de principe d'obtention du spectre sur l'axe T_{bc} .

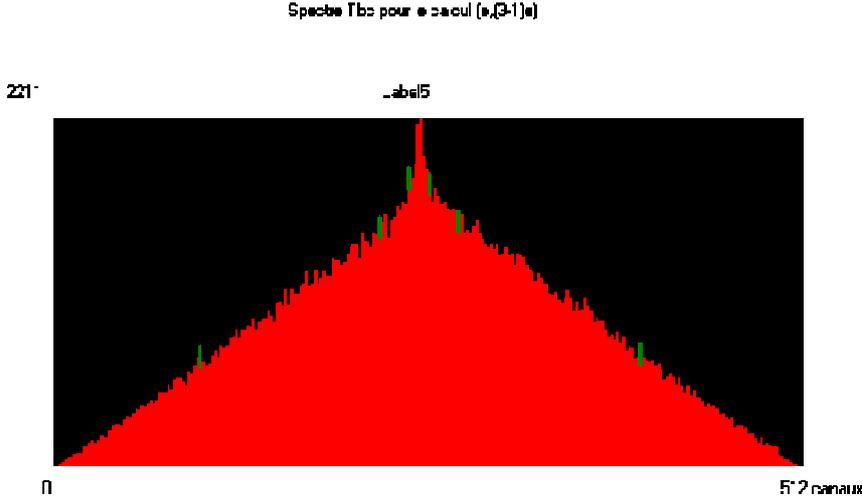


Figure III.37 : Image obtenue par la projection du spectre de coïncidence sur l'axe T_{bc} .

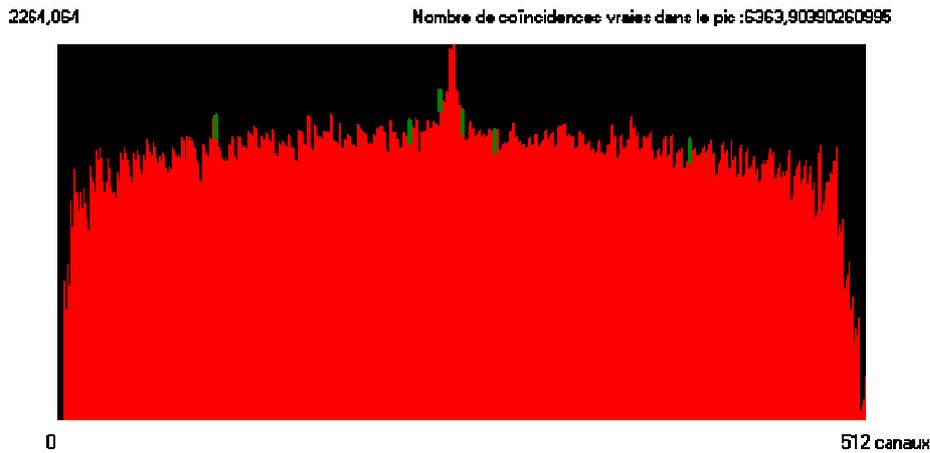


Figure III.38 : Image construite de la projection du spectre de coïncidence sur l'axe T_{bc} , une fois corrigé.

Un traitement du type (e,2e) s'applique alors pour obtenir la section efficace (e,(3-1)e) entre les électrons b et c.

Le paragraphe suivant a pour objectif d'utiliser les exploitations qui viennent d'être explicitées pour vérifier la consistance des mesures du type (e,3e) qui ont été effectuées avec notre nouvel analyseur.

b. Symétries

Une première remarque concerne le fait que les mesures ont été effectuées avec des électrons b et c de même énergie. Cette caractéristique doit se retrouver sur la section efficace par une symétrie en remplaçant θ_a par $-\theta_a$ et en échangeant le rôle des électrons b et c. Une première analyse consiste alors à vérifier la consistance des mesures en exploitant les résultats à l'aide d'une analyse du type (e,(3-1)e) de première espèce. Les deux graphiques de la *figure III.39* représentent les sections efficaces quadruplement différentielles pour le couple ab et ac, sans traitement angulaire. La *figure III.39* montre exactement ce résultat, à savoir une symétrie des distributions par rapport à l'angle $\theta_a = 0^\circ$ pour les deux distributions.

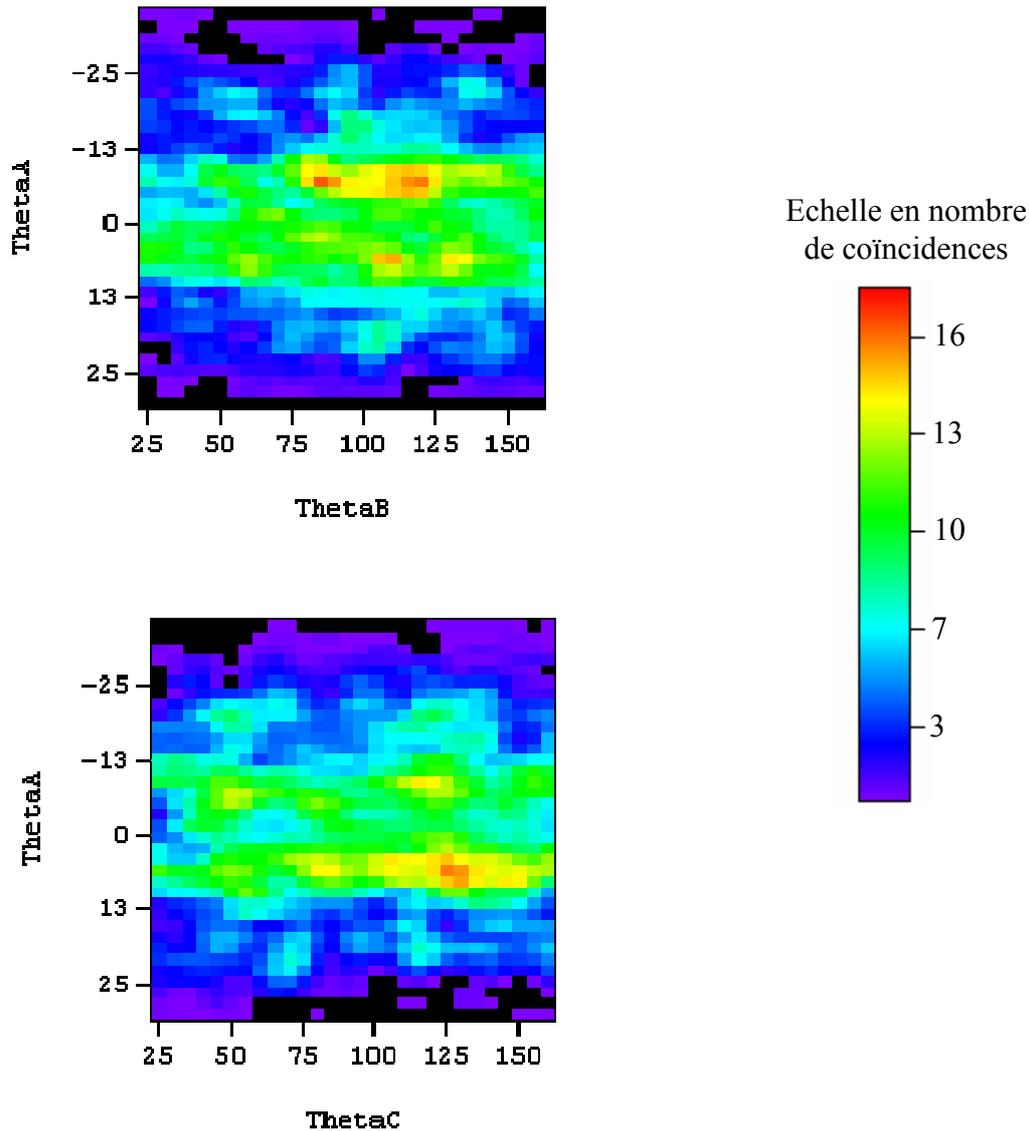


Figure III.39 : Distribution angulaire de la section efficace quintuplement différentielle en fonction des angle θ_a et θ_b pour la figure du haut et θ_c pour la figure du bas. Les distributions angulaires ne sont pas corrigées ici.

Un dernier point de comparaison est l'exploitation (e,(3-1)e) du type bc, qui doit présenter une symétrie par rapport à la direction de l'électron incident. De plus, cette exploitation doit pouvoir se comparer à la **mesure** (e,(3-1)e) effectuée lors de cette thèse et présentée à la *figure III.26*. Néanmoins, ces distributions ne sont pas absolument identiques car le cas de l'exploitation (e,(3-1)e), comme il a été remarqué auparavant, correspond à une détection de l'électron a dans la totalité de l'angle solide couvert par l'analyseur A. Pour effectuer cette comparaison, l'application de la correction angulaire est rendue nécessaire. Le résultat est alors donné par la *figure III.40*. Cette figure montre effectivement des similitudes avec la distribution angulaire de la *figure III.26*. En particulier, le pic A est présent sur la

figure III.40. En fait, dû au peu de statistique, le pic A est « éparpillé » et ne présente pas exactement la même forme que dans le cas de la figure III.26. De même les pics B et B' sont effectivement présents mais à des positions légèrement différentes. Ici, B est aux coordonnées (130°, 310°) au lieu de (120°, 310°) sur la figure III.26, et le pic B' est quant à lui aux coordonnées (50°, 230°) montrant de fait la symétrie entre ces deux points. Enfin, la présence du pic C peut être reconnue autour de la coordonnée (120°, 240°), au lieu de (100°, 250°).

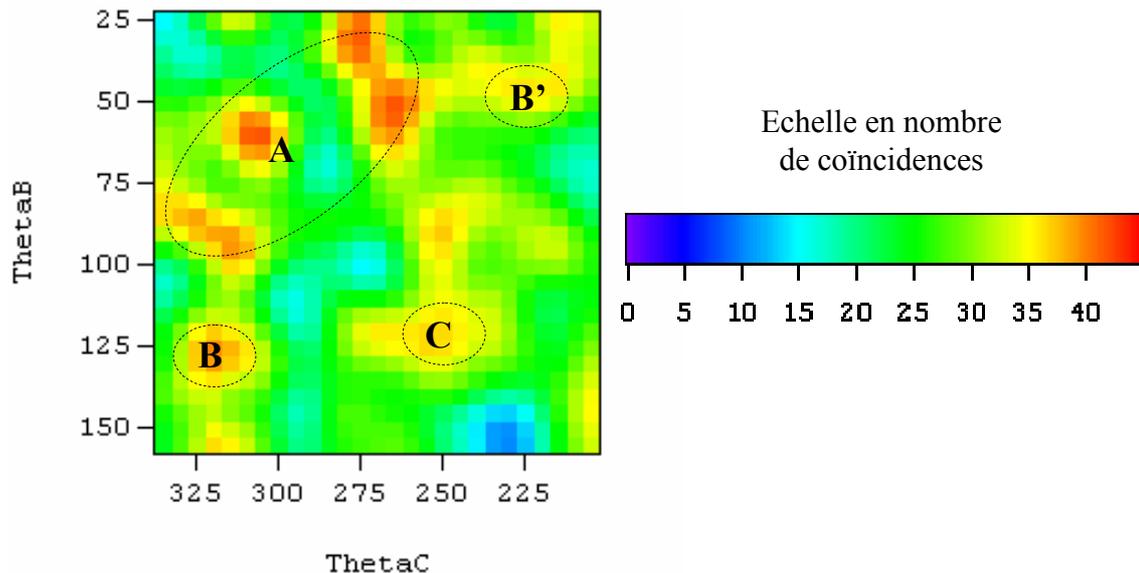


Figure III.40 : Distribution angulaire de la section efficace quadruplement différentielle en fonction des angle θ_b et θ_c . Cette distribution angulaire été corrigée (cf. chapitre II).

Pour conclure sur cette partie, il reste à exploiter les données en coïncidence triple, par une exploitation du type (e,3e). C'est l'objet du paragraphe suivant.

c. Exploitation (e,3e)

Dans ce paragraphe, nous allons présenter les mesures (e,3e) effectuées avec l'analyseur développé lors de cette thèse. L'énergie de l'électron incident est de 956 eV, les énergies des électrons éjectés sont de 205 eV et l'énergie de l'électron diffusé est de 500 eV. Rappelons tout d'abord qu'une tentative de mesure de ces coïncidences (e,3e) a été faite au début de ce travail avec l'ancienne version du dispositif, et qu'elle s'est révélée infructueuse (signal trop faible). Précisons ensuite quelques valeurs concernant la statistique. Le temps d'accumulation pour ces données est de **30 jours** pour un nombre de coïncidences totales de 500 000. Ce qui correspond à une fréquence de **0,2 coïncidence par seconde**. Dans l'ensemble de ces

coïncidences, seules les coïncidences vraies sont d'un intérêt physique. Ces coïncidences vraies représentent **0,5 %** de l'ensemble des coïncidences totales soit un taux de 10^{-3} **coïncidences vraies par seconde**. Ceci laisse présager d'une statistique faible rendant l'exploitation délicate. Ce point peut d'ores et déjà être mis en avant en regardant les échelles des exploitations (e,(3-1)e) vu précédemment. En effet, sur la *figure III.40*, le chiffre de 50 coïncidences par pixel angulaire est le maximum atteint par cette distribution angulaire. C'est toutefois l'ordre de grandeur de la statistique atteinte dans quasiment toutes les expériences (e,3e) publiées à ce jour [DKS2003]. Le mérite de ces mesures est que nous avons pu les réaliser, pour la première fois, sur un processus en couche interne, de section efficace intrinsèquement faible, et qui plus est, à grands transferts d'énergies et de quantité de mouvement à la cible. L'ensemble de ces remarques prouve le gain en sensibilité de notre spectromètre, dû au nouvel analyseur A.

La *figure III.41* montre les distributions angulaires (e,3e) où deux électrons de 205 eV sont détectés en coïncidence avec un électron de 500 eV. On constate une relative symétrie des deux distributions par rapport à la direction de l'électron incident compte tenu de la statistique. Le maximum de ces distributions angulaires est de 20 coïncidences par pixel.

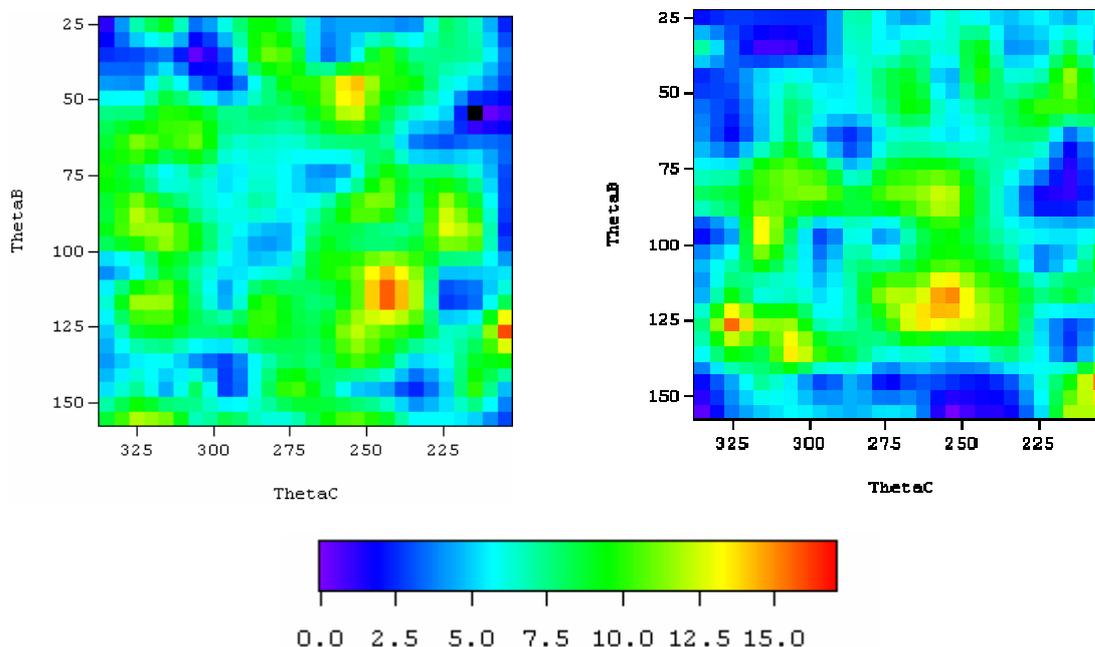


Figure III.41 : Distribution angulaire de la section efficace quintuplement différentielle en fonction des angle θ_b et θ_c . Cette distribution angulaire n'a pas été corrigée La figure de gauche correspond à un angle de diffusion de -3° à -9° et celle de droite à 3° et 9° .

Rappelons qu'une plaque métallique percée de deux fentes a été placée à l'entrée de l'analyseur pour faire cette mesure. Les deux fentes couvrent des domaines angulaires ($6\pm 3^\circ$) et $-(6\pm 3^\circ)$. L'ouverture angulaire peut sembler grande, mais correspond en fait à une gamme allant de $K = 2,35$ à $2,57$ u.a. (le transfert d'impulsion est le paramètre physique important dans ce problème). Cette mesure peut alors être assimilée à une mesure dont le transfert d'impulsion est de $K = 2,46 \pm 0,1$ u.a., qui correspond donc à une bonne résolution en K . La *figure III.41* montre certaines similarités avec la mesure $(e,(3-1)e)$ du type bc. L'analyse physique ayant déjà été faite par ailleurs tout semble indiquer que le modèle inclut l'essentiel de la physique mais nécessite tout de même quelques améliorations notables en particulier pour la distribution des pics. De même un effort particulier est à faire dans le domaine expérimental pour produire un résultat statistiquement satisfaisant.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons mis en avant un critère appelé CCI qui permet d'établir un lien de proportionnalité entre la section efficace et la densité bi-électronique.

Nous avons de même mesuré des distributions angulaires de simple ionisation pour des cibles d'hélium et d'argon pour des conditions cinématiques similaires. La comparaison de ces mesures avec des modèles, montre que la physique mise en jeu est principalement du type binaire pour l'hélium et semble indiquer l'existence d'un processus inélastique dans le cas de l'argon.

Des mesures $(e,(3-1)e)$ sur l'argon pour des énergies incidentes différentes dans des conditions incluant l'Auger, montrent une forte dépendance de la distribution angulaire de la section efficace quadruplement différentielle. Une comparaison avec les modèles développés dans le chapitre I montre que les aspects principaux de la physique sont inclus dans le modèle.

Enfin, nous avons présenté une mesure de la section efficace six fois différentielle de l'argon montrant un fonctionnement satisfaisant du nouveau dispositif. C'est la première fois qu'une telle mesure est réalisée pour un processus en couche interne en détectant des électrons Auger.

Références :

- [AMD2004] – L.U. Ancarani, T. Montagnese and C. Dal Cappello, *Phys. Rev. A.*, **70**, 12711, 2004.
- [BB1987] – K. Bartschat and P.G. Burke, 1987 *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **20** 3191
- [BV2005] – K. Bartschat and O. Vorov, 2005 *Phys. Rev. A* **72**, 22728
- [BK1993] – J.B. Berakdar and H. Klar, 1993 *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **26** 4219
- [BS1957] – H. Bethe and E. Salpeter, “Quantum mechanics of one-and two-electron atoms”, Springer, 1957
- [BT1975] – P. Burke and K. Taylor, 1975 *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **8** 2620
- [CSN2006] – F. Catoire, E. M. Staicu-Casagrande, M. Nekkab, C. Dal Cappello, K. Bartschat and A. Lahmam-Bennani, *J. Phys B : At. Mol. Opt. Phys.*, **39**, 2827-2838 (2006)
- [Dup1993] – C. Dupré, thèse de Doctorat Université Paris Sud (1993)
- [DL1991] – C. Dal Cappello and H. Le Rouzo, 1991, *Phys. Rev. A* **43**, 1395
- [DLD1985] – A. Daoud, A. L. Bennani, A. Duguet, C. Dal Cappello and C. Tavard, 1985 *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **18**, 141
- [DCC1990] – J.P. Doering, M. A. Coplan , J.W. Cooper and J.H. Moore, 1990 *Phys. Rev. A* (Rapid communication) **41**, 535
- [DKS2003] – A. Dorn, A. Kheifets, C. Schröter, C. Höhr, G. Sakhelashvili, R. Moshhammer, J. Lower and J. Ullrich, *Phys. Rev. A* **68**, 012715 (2003)
- [EJK1986] – H. Ehrardt, K Jung, G Knoth and P Schlemmer, 1986 *Z. Phys D* 13
- [ECD] – S. Elazzouzi, F. Catoire, C. Dal Cappello, A. Lahmam-Bennani and I. Charpentier *à paraître*
- [ESCA] – ESCA applied to free molecules, K. Siegbahn, C. Nordling, G. Johansson, J. Hedman, P. F. Hedén, K. Hambrin, U. Gelius, T. Bergmark, L.O. Werme, R. Manne and Y. Baer, 1969, North-Holland publishing company
- [FB2001] – Y. Fang and K. Bartschat, 2001 *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **34** L19
- [FDC1995] – M.J. Ford, J.P. Doering, M. A. Coplan , J.W. Cooper and J.H. Moore, 1995 *Phys. Rev. A* **51**, 418
- [FMD1995] – M.J. Ford, B. El Marji, J.P. Doering, M. A. Coplan , J.W. Cooper and J.H. Moore, 1995 *Phys. Rev. A* **57**, 325
- [FMW1983] – L. Frost, J. Mitro and E. Weigold, 1983 *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **16**, 223-331
- [LL1974] – L.D. Landau and E.M. Lifshitz, *Quantum Mechanics* (Moscow : Nouka), 1974
- [LJD2002] – A. Lahmam-Bennani, C.C. Jia, A. Duguet and L. Avaldi, 2002 *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **35**, L215
- [LHD2006] – M. Lebech, J.C. Houver, D. Dowek and R.R. Lucchese, *PRL* **96**,073001 (2006)

- [MW1991] – McCarthy I E and Weigold E 1991 *Rep. Prog. Phys.* **54** 789 - 860
- [Mcg1997] – J.H. McGuire, “Introduction to Dynamic Correlation in Atomic Collisions”, Cambridge University Press, 1997.
- [OBP1972] – C. Opal, E. Beaty and W. Peterson, *ATOMIC DATA*, Vol. 4, Number 3, 1972
- [PDK1996] – Y. Popov, C. Dal Cappello, K. Kuzakov, 1996 *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **14**, 5901
- [RRS1980] – A. Roy, K.J. Roy and N.C. Sil, 1980 *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **13**, 3443
- [SPL1978] – Y. Smirnov, A Pavlitchenkov, V. Levin, V. Neudatchin, 1978 *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **11**, 3587

CONCLUSION GÉNÉRALE

Lors ce travail de thèse, nous avons concentré nos efforts dans deux directions complémentaires. Premièrement, nous avons réalisé un nouvel analyseur toroïdal pour permettre une acquisition (e,3e) de grande efficacité ; deuxièmement nous avons élaboré un modèle pour interpréter les données expérimentales obtenues dans ce travail.

L'activité expérimentale concernant la réalisation de l'analyseur toroïdal s'est partagée en deux tâches : l'une est la construction du dispositif à proprement parler, l'autre la conception et la réalisation de l'électronique associée.

Nous avons ainsi réalisé un analyseur toroïdal permettant de détecter des électrons d'énergie allant de 100 à 2000 eV. L'ensemble du dispositif détecte alors trois électrons issus de la double ionisation d'atomes ou de molécules dans tout le plan de collision. En pratique, deux analyseurs collectent des électrons dans une gamme angulaire allant de 20° à 160°, le troisième et nouvel analyseur A, quant à lui, a une ouverture angulaire effective de 20°. Avec un analyseur cylindrique mono-canal, une tentative de mesure de la section efficace différentielle de double ionisation s'est avérée infructueuse. Avec notre nouvel analyseur, au terme de cette thèse, une mesure équivalente a permis l'obtention du pic de triple coïncidence montrant ainsi la grande efficacité du dispositif. De plus, des mesures de simple ionisation en couche externe de l'argon ont pu être réalisées. Pour des conditions expérimentales identiques, le groupe de B. Lohmann disposant actuellement d'un des dispositifs mono-canal à géométrie coplanaire les plus performants, n'a pas pu observer le pic de coïncidence avec des analyseurs hémisphériques. Ce résultat illustre également la grande efficacité de collection de notre nouveau dispositif, nous estimons qu'un gain de l'ordre 20 à 30 a été obtenu.

Pour la partie électronique, il a fallu intégralement reprendre l'ensemble des programmes d'acquisition et d'exploitation, ce qui a été l'occasion de repenser la logique d'acquisition. En effet, l'ancienne version d'acquisition fonctionnait avec une procédure ayant pour corollaire l'utilisation d'un ordinateur dédié uniquement à cette tâche alors même que le taux de coïncidence est de l'ordre de 0,1 coïncidence par seconde. La nouvelle procédure d'acquisition est basée sur une logique d'interruption. Ce schéma d'acquisition a le grand avantage de n'utiliser le temps CPU du processeur que si un événement coïncident a effectivement été détecté. Outre le fait que l'électronique développée est désormais adaptable sur n'importe quelle machine, elle offre une grande interactivité entre l'utilisateur et le système d'acquisition.

L'activité théorique s'est de même partagée en deux pôles : l'un concerne l'étude de l'échange entre les particules, l'autre l'étude du processus Auger à proprement parler.

Les effets d'échange ont été préalablement étudiés par Schultz dans le cas de l'hélium. Ces mécanismes font intervenir des termes supplémentaires dans l'écriture de la section efficace,

rendant compte du fait que l'électron incident peut être n'importe quel électron de l'état final. Nous avons, dans un premier temps, étendu l'écriture de la section efficace au cas de l'ionisation (simple ou double) de l'argon construit sur un modèle à deux électrons actifs pour un processus SO. L'écriture de cette section efficace reste générale et a été établie pour la première fois dans ce travail. Le processus SO a été décrit dans l'état final par une fonction d'onde composée de trois ondes coulombiennes.

De même, le processus Auger a été décrit par un mécanisme en deux temps : premièrement une ionisation en couche interne, deuxièmement une relaxation d'un électron de la couche externe vers la lacune libérant ainsi l'électron Auger. Les mécanismes d'échange ont alors été modifiés pour intégrer des cas où la section efficace est décrite par des mécanismes en plusieurs étapes, du type Auger. La fonction d'onde de l'électron Auger est décrite aussi par une onde coulombienne permettant d'utiliser le formalisme d'échange nécessitant une description identique des fragments de l'état final.

Enfin, le mélange des processus directs et Auger a été introduit dans le modèle. La section efficace est alors composée d'une somme incohérente de section efficace pour chaque état final et d'une somme cohérente d'amplitudes de transitions de chacun des processus, pour un état final donné.

Les modèles développés ainsi que le nouveau dispositif ont permis une étude de la simple et de la double ionisation.

Concernant la simple ionisation, nous nous sommes intéressés aux cibles d'hélium et d'argon. Les conditions expérimentales choisies sont peu représentées dans la littérature et correspondent à une cinématique où les impulsions sont élevées mais où le module du transfert de la quantité de mouvement est proche de sa valeur minimale. Pour l'hélium et pour des énergies d'électrons détectés de 500 eV et 205 eV, nous avons montré que la structure principale est dans la direction du lobe binaire. Cette étude a été menée pour différents angles de diffusion. Les modèles utilisés montrent une structure analogue, en bon accord avec l'expérience. Ceci conforte l'idée d'une ionisation du type Born 1. Pour l'ionisation de l'argon, seul le cas de l'ionisation en couche externe a été envisagé. L'énergie incidente est de 721 eV, tous les autres paramètres étant égaux par ailleurs. Dans ce cas, la structure montre un lobe de recul prépondérant sur le lobe binaire, contrairement au cas de l'hélium. Seul le modèle DWBA montre la présence d'un tel lobe, laissant penser que des mécanismes de diffusion sur le noyau se produisent lors de la collision.

Par ailleurs, des mesures $(e,(3-1)e)$ impliquant des processus Auger de l'argon ont été réalisées et comparées aux calculs $(e,3e)$. Les mesures ont été effectuées pour des électrons éjectés ayant l'énergie de l'électron Auger, à savoir 205 eV. Les différentes configurations énergétiques envisagées correspondent aux énergies incidentes de 466 eV, 658 eV et 956 eV, laissant respectivement une énergie de 13 eV, 205 eV, 503 eV pour l'électron qui n'est pas observé. Le premier cas montre une distribution dont les caractéristiques essentielles peuvent

être interprétées classiquement par une collision du type boule de billard. Du point de vue théorique, le processus SO est dominant sur le processus Auger. Dans le cas où l'énergie incidente est de 658 eV, la distribution angulaire est largement dominée par le processus d'ionisation en couche interne qui n'est détectable que dans cette configuration énergétique. Enfin, le dernier cas envisagé montre une distribution angulaire dont l'essentiel de la physique est interprétable par une description en terme de mécanisme Auger. Du point de vue théorique, la distribution angulaire montre une contribution non négligeable du processus Auger. L'ensemble des résultats théoriques et expérimentaux semble indiquer que le processus Auger a une contribution d'autant plus importante que l'énergie incidente est élevée.

Les mesures (e,3e) réalisées dans des conditions équivalentes à celle de la mesure (e,(3-1)e) pour une énergie incidente de 956 eV, montrent de grandes similarités. De même, les symétries inhérentes au fait que les électrons détectés ont la même énergie sont effectivement présentes, montrant un fonctionnement satisfaisant du dispositif.

Dans le cadre du mécanisme SO, une analyse des distributions angulaires théoriques en fonction de l'état final a pu montrer, dans une certaine mesure, le lien entre section efficace de double ionisation et la densité bi-électronique (*via* le CCI). Cette analyse révèle ainsi la sensibilité de la densité bi-électronique à la corrélation de structure ou corrélation interne.

Perspectives :

Pour compléter les résultats de cette thèse, une mesure (e,3e) où les trois électrons de la voie de sortie ont la même énergie serait d'un grand intérêt. La suppression du cache percé de fentes placé à l'avant de l'analyseur permettra un gain en sensibilité. A long terme, il serait intéressant de mesurer la section efficace différentielle en différenciant les états finaux de la double ionisation, permettant de valider ou non les hypothèses concernant le CCI.

Théoriquement, un perfectionnement des modèles consiste à introduire la durée de vie des niveaux pour les transitions Auger. De même, la description de l'état final pour les processus d'ionisation en couche externe et surtout en couche interne est à consolider.

Enfin, une étape ultérieure serait de faire le calcul de la section efficace en prenant en compte rigoureusement les trois électrons actifs décrivant le processus Auger pour les mécanismes d'échanges.

ANNEXE I :

Compléments aux calculs théoriques

I. 3j de Wigner	192
II. Calcul de $I_{n_1}^{n_2}(\beta_1, \beta_2; k)$	194
III. Calcul de $I_2^{n_2}(\beta_1, \beta_2; k)$	195
IV. Autour des hypergéométriques	196
V. Etats propres de Ar ; échanges pour SO et Auger	201

I. 3j de Wigner

Ce paragraphe a pour objet de préciser la manière dont a été implémenté le calcul des 3j dans les calculs pour la transition Auger. Le but de cette annexe n'est pas de développer en détails l'utilisation des 3j mais d'explicitier certaines de ses propriétés ainsi qu la manière générale de programmer ceux-ci. Par définition les 3j de wigner sont reliés aux coefficients de Clebsch-Gordan :

$$\begin{pmatrix} j_1 & j_2 & j_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix} = (-1)^{j_1-j_2-m_3} \sqrt{2j_3+1} \langle j_1 j_2 m_1 m_2 | j_3 -m_3 \rangle$$

La formule de Racah donne la valeur des 3j de manière explicite :

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} j_1 & j_2 & j_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix} &= (-1)^{j_1-j_2-m_3} \sqrt{\Delta(j_1 j_2 j_3)} \\ &\times \sqrt{(j_1+m_1)!(j_1-m_1)!(j_2+m_2)!(j_2-m_2)!(j_3+m_3)!(j_3-m_3)!} \\ &\times \sum_t (-1)^t \left\{ \frac{t!(j_3-j_2+t+m_1)!(j_3-j_1+t-m_2)!(j_1+j_2-t-j_3)!}{\times (j_1-t-m_1)!(j_2-t+m_2)!} \right\}^{-1} \end{aligned}$$

$$\text{avec : } \Delta(j_1 j_2 j_3) = \frac{(j_1+j_2-j_3)!(j_2+j_3-j_1)!(j_3+j_1-j_2)!}{(j_1+j_2+j_3+1)!}$$

La somme sur t s'effectue pour toutes les valeurs qui ne rendent pas les factorielles négatives.

Donc les conditions nécessaires pour avoir un 3j non nul sont :

$$m_1 + m_2 + m_3 = 0, \quad |m_1| < j_1, \quad |m_2| < j_2, \quad |m_3| < j_3 \quad \text{et} \quad |j_2 - j_1| \leq j_3 \leq j_2 + j_1.$$

Les 3j vérifient certaines conditions de symétries :

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} j_1 & j_2 & j_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} j_3 & j_1 & j_2 \\ m_3 & m_1 & m_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} j_2 & j_3 & j_1 \\ m_2 & m_3 & m_1 \end{pmatrix} \\ (-1)^{j_1+j_2+j_3} \begin{pmatrix} j_1 & j_2 & j_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} j_2 & j_1 & j_3 \\ m_2 & m_1 & m_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} j_1 & j_2 & j_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} j_3 & j_2 & j_1 \\ m_3 & m_2 & m_1 \end{pmatrix} \end{aligned}$$

On en déduit alors les relations suivantes :

$\begin{pmatrix} j_1 & j_2 & j_3 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$ est non nul si $j_1 + j_2 + j_3$ est pair et plus généralement :

$$\begin{pmatrix} j_1 & j_2 & j_3 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} = \begin{cases} 0 & \text{si } j_1 + j_2 + j_3 \text{ est impair} \\ (-1)^{j_1+j_2+j_3} \sqrt{\frac{(j_1+j_2-j_3)!(-j_1+j_2+j_3)!(j_1-j_2+j_3)!}{(j_1+j_2+j_3+1)!}} \left(\frac{j_1+j_2+j_3}{2}\right)! & \text{autrement} \\ \frac{(j_1+j_2-j_3)!(-j_1+j_2+j_3)!}{\left(\frac{j_1+j_2-j_3}{2}\right)! \left(\frac{-j_1+j_2+j_3}{2}\right)!} \left(\frac{j_1-j_2+j_3}{2}\right)! & \end{cases}$$

Enfin : $\begin{pmatrix} j & j & 0 \\ m & -m & 0 \end{pmatrix} = (-1)^{j-m} \frac{1}{\sqrt{2j+1}}$

Deux dernières relations sont utilisées dans le chapitre I :

$$\begin{pmatrix} 1 & 1 & 2 \\ 1 & -y & y-1 \end{pmatrix} = (-1)^{y+1} \frac{\sqrt{2-y}\sqrt{3-y}}{2\sqrt{15}}$$

$$\begin{pmatrix} 1 & 3 & 2 \\ -1 & y & 1-y \end{pmatrix} = (-1)^{y+1} \frac{\sqrt{2+y}\sqrt{3+y}}{\sqrt{210}}$$

Référence : « Angular Momentum » Richard N. Zare

II. Calcul de ${}^l I_{n_1}^{n_2}(\beta_1, \beta_2; k)$

Rappelons que ce terme correspond au calcul suivant :

$${}^l I_{n_1}^{n_2}(\beta_1, \beta_2; k) = \int \frac{r_1^l}{r_1^{l+1}} r_1^{n_1} r_2^{n_2} e^{-\beta_1 r_1} e^{-\beta_2 r_2} j_{l'}(kr_2) dr_1 dr_2. \quad [\text{AI.1}]$$

Quels sont les critères de convergence de ce terme ? Sur n_1 on doit avoir : $n_1 - l - 1 > 0$.

Sachant que $n_1 \geq 3$ et $l \leq 2$ d'où $n_1 - l - 1 \geq 1$ ceci est conforme. De même on doit avoir : $n_2 - l - l' > 0$. Cependant $l \leq 2$ ce qui est réalisé lorsque $l' = 3$. Donc la relation est bien convergente.

Le calcul de [AI.1] se fait en coupant l'intégrale en deux, ce qui s'écrit :

$$\begin{aligned} {}^l I_{n_1}^{n_2}(\beta_1, \beta_2; k) &= \int_0^\infty \int_0^{r_2} \frac{r_1^l}{r_2^{l+1}} r_1^{n_1} r_2^{n_2} e^{-\beta_1 r_1} e^{-\beta_2 r_2} j_{l'}(kr_2) dr_1 dr_2 \\ &+ \int_0^\infty \int_{r_2}^\infty \frac{r_2^l}{r_1^{l+1}} r_1^{n_1} r_2^{n_2} e^{-\beta_1 r_1} e^{-\beta_2 r_2} j_{l'}(kr_2) dr_1 dr_2 \end{aligned}$$

A ce stade introduisons le terme : $J_n(a) = \int_0^a r^n e^{-\beta r} dr$, une suite obtenue par intégration par

partie donne le résultat : $J_n(a) = \frac{n!}{\beta^{n+1}} - \left(\sum_{k=0}^n \frac{n!}{k! \beta^{n+1-k}} a^k \right) e^{-\beta a}$. De même, on introduit le

terme : $\bar{J}_n(a) = \int_a^\infty r^n e^{-\beta r} dr$ d'où

$$\bar{J}_n(a) = \int_0^\infty r^n e^{-\beta r} dr - \int_0^a r^n e^{-\beta r} dr = \frac{n!}{\beta^{n+1}} - J_n(a) = \left(\sum_{k=0}^n \frac{n!}{k! \beta^{n+1-k}} a^k \right) e^{-\beta a}$$

D'où :

$$\begin{aligned} {}^l I_{n_1}^{n_2}(\beta_1, \beta_2; k_A) &= \sum_{k=0}^{n_1-l-1} \frac{(n_1-l-1)!}{k! \beta_1^{n_1-l-k}} \int_0^\infty r_2^{k+l+n_2} e^{-(\beta_1+\beta_2)r_2} j_{l'}(kr_2) dr_2 \\ &+ \frac{(n_1+l)!}{\beta_1^{n_1+l+1}} \int_0^\infty r_2^{n_2-l-1} e^{-(\beta_2)r_2} j_{l'}(kr_2) dr_2 \\ &- \sum_{k=0}^{n_1+l} \frac{(n_1+l)!}{k! \beta_1^{n_1+l-k+1}} \int_0^\infty r_2^{k-l-1+n_2} e^{-(\beta_1+\beta_2)r_2} j_{l'}(kr_2) dr_2 \end{aligned}$$

Utilisons une dernière notation :

$\int_0^\infty e^{-ax} j_l(bx) x^{\mu-1} dx = {}^l \Omega^\mu(a; b)$, d'après Joachain :

$${}^l \Omega^\mu(a; b) = \frac{\sqrt{\pi} b^l \Gamma(\mu + l)}{2^{l+1} a^{\mu+l} \Gamma(l + \frac{3}{2})^2} F_1\left(\frac{\mu + l}{2}, \frac{\mu + l + 1}{2} \middle| l + \frac{3}{2} \middle| -\frac{b^2}{a^2}\right)$$

Ce dernier terme converge si $\text{Re}(a+ib) > 0$; $\text{Re}(a-ib) > 0$ et $\text{Re}(\mu+l) > 0$.

Le terme ${}_2F_1$ est la fonction hypergéométrique cf. partie IV de ce chapitre.

Dans notre cas, les paramètres μ et l sont des entiers positifs donc quelques simplifications peuvent être faites :

$\Gamma(\mu + l) = (\mu + l - 1)!$ et $\Gamma(l + \frac{3}{2}) = \sqrt{\pi} \frac{(2l+1)!}{2^{2l+1} l!}$ par récurrence, d'où :

$${}^l \Omega^\mu(a; b) = \frac{b^l (\mu + l - 1)!}{(2l+1)! a^{\mu+l} 2} F_1\left(\frac{\mu + l}{2}, \frac{\mu + l + 1}{2} \middle| l + \frac{3}{2} \middle| -\frac{b^2}{a^2}\right)$$

Le terme A.I.1 s'écrit finalement comme suit :

$$\begin{aligned} {}^l I_{n_1}^{n_2}(\beta_1, \beta_2; k_A) &= \sum_{k=0}^{n_1-l-1} \frac{(n_1-l-1)!}{k! \beta_1^{n_1-l-k}} {}^l \Omega^{n_2-l}(k; \beta_2) \\ &+ \frac{(n_1+l)!}{\beta_1^{n_1+l+1}} {}^l \Omega^{n_2+k-l}(k; \beta_1 + \beta_2) \\ &- \sum_{k=0}^{n_1+l} \frac{(n_1+l)!}{k! \beta_1^{n_1+l-k+1}} {}^l \Omega^{n_2+l+k+1}(k; \beta_1 + \beta_2) \end{aligned}$$

III. Calcul de ${}^l I_{n_1}^{n_2}(\beta_1, \beta_2; k)$

Le calcul de ce terme est très proche de celui de A.I.1, à la différence qu'il faut effectuer la substitution $j_l(kr) \leftarrow e^{i\sigma_l} \frac{F_l(\gamma; kr)}{kr}$ où : $F_l(\eta; kr) = c_l e^{ikr} (kr)^{l+1} {}_1F_1(l+1+i\eta|2l+2|-2ikr)$ et

$$c_l = 2^l e^{-\pi\eta/2} \frac{|\Gamma(l+1+i\eta)|}{(2l+1)!}.$$

D'où l'expression de Ω :

$$\int_0^\infty 2^l e^{-\frac{1}{2}\pi\gamma} \frac{\Gamma(l+1+i\gamma)}{(2l+1)!} e^{-ax} e^{ibx} (bx)^l x^{\mu-1} {}_1F_1(l+1+i\gamma|2l+2|-2ibx) dx = {}^l\Omega^\mu(a; b; \gamma)$$

Effectuons le changement de variable : $X = bx$

$${}^l\Omega^\mu(a; b; \gamma) = 2^l e^{-\frac{1}{2}\pi\gamma} \frac{\Gamma(l+1+i\gamma)}{(2l+1)!} \frac{1}{b^\mu} \int_0^\infty e^{-\left(\frac{a}{b}-i\right)X} (X)^{l+\mu-1} {}_1F_1(l+1+i\gamma|2l+2|-2iX) dX$$

Reste à calculer le terme : $\zeta_n(a, b, \beta) = \int_0^\infty X^n e^{-\beta X} {}_1F_1(a|b|-2iX) dX$

Or : $\zeta_n(a, b, \beta) = \left(-\frac{\partial}{\partial\beta}\right)^n \zeta_0(a, b, \beta)$ où $\zeta_0(a, b, \beta) = \int_0^\infty e^{-\beta X} {}_1F_1(a|b|-2iX) dX$

Ce dernier terme s'écrit (cf. partie IV de l'annexe) $\zeta_0(a, b, \beta) = \frac{{}_2F_1\left(1; a|b|-\frac{2i}{\beta}\right)}{\beta}$

Ceci $\forall(a, b, c) \in \mathcal{C}^3$ si $\text{Re}(\beta) > 0$.

D'où ${}^l\Omega^\mu(a; b; \gamma) = 2^l e^{-\frac{1}{2}\pi\gamma} \frac{\Gamma(l+1+i\gamma)}{(2l+1)!} \frac{1}{b^\mu} \zeta_{l+\mu+1}\left(1; l+1+i\gamma|2l+2|-\frac{2i}{\frac{a}{b}-i}\right)$.

Donc l'expression est **analytique**.

IV. Autour des hypergéométriques

Cette partie de l'annexe n'a pas pour objectif d'explicitier en détail les propriétés des hypergéométriques, ceci ayant déjà été fait par la sous-routine développée à Metz. Nous voulons simplement détailler les points cruciaux et délicats qui ont été introduits dans nos calculs.

- La fonction hypergéométrique confluyente

On la note ${}_1F_1$ par définition : ${}_1F_1(a|b|z) = \frac{\Gamma(b)}{\Gamma(b-a)\Gamma(a)} \int_0^1 e^{zt} t^{a-1} (1-t)^{b-a-1} dt$ où Γ est la fonction gamma d'Euler. Cette fonction est développable en série entière, dans la mesure de la convergence : ${}_1F_1(a|b|z) = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\Gamma(a+k)\Gamma(b)}{\Gamma(a)\Gamma(b+k)} \frac{z^k}{k!}$.

- La fonction hypergéométrique

Cette fonction est définie par : ${}_2F_1(a; b|c|z) = \frac{\Gamma(c)}{\Gamma(c-b)\Gamma(b)} \int_0^1 t^{b-1} (1-t)^{c-b-1} (1-zt)^{-a} dt$

De même, dans la mesure de la convergence elle est développable en série entière avec la relation : ${}_2F_1(a; b|c|z) = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\Gamma(a+k)\Gamma(b+k)\Gamma(c)}{\Gamma(a)\Gamma(b)\Gamma(c+k)} \frac{z^k}{k!}$.

- Calcul de $\zeta_0(a, b, \beta)$

Par définition :

$$\zeta_0(a, b, \beta) = \int_0^{\infty} e^{-\beta X} {}_1F_1(a|b|-2iX) dX = \frac{\Gamma(b)}{\Gamma(b-a)\Gamma(a)} \int_0^{\infty} \int_0^1 e^{-\beta X} e^{-2iXt} t^{a-1} (1-t)^{b-a-1} dt dX$$

En intégrant sur X :

$$\zeta_0(a, b, \beta) = \frac{\Gamma(b)}{\Gamma(b-a)\Gamma(a)} \int_0^1 \beta^{-1} (1 + \frac{2i}{\beta}t)^{-1} t^{a-1} (1-t)^{b-a-1} dt = \frac{{}_2F_1(1; a|b|-\frac{2i}{\beta})}{\beta}$$

Ceci est vrai si $\text{Re}(\beta) > 0$.

Dans l'évaluation des transitions Auger considérées dans ce travail, le calcul du terme précédent est assez délicat. Les différentes dérivées pour introduire le terme $\zeta_n(a, b, \beta)$ nécessite le calcul des termes ${}_2F_1$ qui convergent de manière précise. Avant d'expliciter ce point, montrons que dans notre cas, seule la partie réelle de ce terme nous est nécessaire. Or numériquement celle-ci ne l'est pas tout à fait et elle ne fait que contribuer de manière à « polluer » le résultat final. A cet effet réécrivons $\zeta_0(a, b, \beta)$ sous la forme qui nous intéresse :

$$\Gamma_{n_0} = \frac{{}_2F_1(1; n_0 + a_2 i | 2n_0 | - \frac{2i}{\beta})}{\beta} \quad \text{avec } n_0 \text{ entier positif, } \beta = \beta_1 - i \text{ où } \beta_1 \text{ est réel et } a_2$$

aussi. Toutes les dérivées introduites pour le calcul de $\zeta_n(a, b, \beta) = (-\frac{\partial}{\partial \beta})^n \zeta_0(a, b, \beta)$ sont fonctions des termes précédents. Montrons alors par récurrence que Γ_{n_0} , pour $n_0 \geq 1$, est un réel pur.

$$* \Gamma_1 = \frac{{}_2F_1(1; 1 + a_2 i | 2 | - \frac{2i}{\beta})}{\beta} = \frac{-1 + \left(\frac{i + \beta_1}{-i + \beta_1} \right)^{-ia_2}}{2a_2} \text{ qui est bien un réel}$$

* Supposons que $\forall n \leq n_0, \Gamma_n \in \mathbf{R}$

Utilisons la propriété générale:

$$c(1-z) {}_2F_1(a; b | c | z) = (c+1-a) {}_2F_1(a-1; b | c | z) + [a-1+(c-b)z] {}_2F_1(a; b | c+1 | z)$$

$$\text{Donc : } {}_2F_1(1; n_0 + a_2 i | 2n_0 + 1 | z) = \frac{(2n_0)(1-z) {}_2F_1(1; n_0 + a_2 i | 2n_0 | z) - 2n_0}{-(2n_0 - n_0 - a_2 i)z} \text{ avec } z = -\frac{2i}{\beta}$$

$$\text{car } {}_2F_1(0; b | c | z) = 1.$$

En itérant de nouveau cette opération, on obtient :

$${}_2F_1(1; n_0 + a_2 i | 2n_0 + 2 | z) = \frac{1}{-(2n_0 + 1 - n_0 - a_2 i)z} \left[-(2n_0 + 1) + (2n_0 + 1)(1-z) \left\{ \frac{(2n_0)(1-z) {}_2F_1(1; n_0 + a_2 i | 2n_0 | z)}{-(n_0 - a_2 i)z} + \frac{2n_0}{(n_0 - a_2 i)z} \right\} \right]$$

Ce qui se simplifie en :

$${}_2F_1(1; n_0 + a_2 i | 2n_0 + 2 | z) = \frac{2n_0 + 1}{(n_0 + 1 - a_2 i)z} \left[1 - \frac{2n_0}{n_0 - a_2 i} \frac{1-z}{z} \right] + \frac{2n_0(2n_0 + 1)}{(n_0 + 1 - a_2 i)(n_0 - a_2 i)} \left(\frac{1-z}{z} \right)^2 {}_2F_1(1; n_0 + a_2 i | 2n_0 | z) \quad [\text{AIV.1}]$$

En appliquant la relation générale suivante :

$$(c - a - b)_2F_1(a; b|c|z) - (c - a)_2F_1(a - 1; b|c|z) + b(1 - z)_2F_1(a; b + 1|c|z) = 0$$

on obtient :

$$(2n_0 + 2 - 1 - n_0 - a_2i)_2F_1(1; n_0 + a_2i|2n_0 + 2|z) - (2n_0 + 2 - 1) = -(n_0 + a_2i)(1 - z) {}_2F_1(1; n_0 + 1 + a_2i|2n_0 + 2|z)$$

En simplifiant cette dernière expression et en y intégrant [AIV.1], le résultat suivant est obtenu:

$$\begin{aligned} -(1 - z)(n_0 + a_2i)_2F_1(1; n_0 + 1 + a_2i|2n_0 + 2|z) &= -(2n_0 + 1) + (2n_0 + 1) \frac{1}{z} \left[1 - \frac{2n_0}{n_0 - a_2i} \frac{1 - z}{z} \right] \\ &\quad + \frac{2n_0(2n_0 + 1)}{n_0 - a_2i} \left(\frac{1 - z}{z} \right)^2 {}_2F_1(1; n_0 + a_2i|2n_0|z) \end{aligned}$$

établissant ainsi une relation de récurrence entre les différents termes :

$$\begin{aligned} \Gamma_{n_0+1} &= \frac{{}_2F_1(1; n_0 + 1 + a_2i|2n_0 + 2|z)}{\beta} \\ &= -\frac{2n_0 + 1}{n_0 + a_2i} \frac{1}{z\beta} + (2n_0 + 1) \frac{2n_0}{|n_0 + a_2i|^2} \frac{1}{z^2\beta} - \frac{2n_0(2n_0 + 1)}{|n_0 + a_2i|^2} \frac{1 - z}{z^2} \Gamma_{n_0} \end{aligned}$$

$$\text{or } 1 - z = 1 + \frac{2i}{\beta_1 - i} = \frac{\beta_1 + i}{\beta_1 - i} = e^{-2i\varphi} \text{ où } \beta = \beta_1 - i = |\beta|e^{i\varphi} \Rightarrow \frac{1 - z}{z^2} = \frac{e^{-2i\varphi}}{(-2i)^2} \beta^2 = -\frac{|\beta|^2}{4} \in \mathbf{R}$$

Donc le « premier » terme $\frac{2n_0(2n_0 + 1)}{|n_0 + a_2i|^2} \frac{1 - z}{z^2} \Gamma_{n_0}$ est réel. Qu'en est-il du « second » ?

Il peut se réécrire sous la forme :

$$-\frac{2n_0 + 1}{n_0 + a_2i} \frac{1}{z\beta} + (2n_0 + 1) \frac{2n_0}{|n_0 + a_2i|^2} \frac{1}{z^2\beta} = \frac{(2n_0 + 1)(1 - z)}{|n_0 + a_2i|^2 z^2} \left(\frac{2n_0 - z(n_0 - a_2i)}{\beta(1 - z)} \right)$$

Il est à noter que : $\frac{(2n_0 + 1)(1 - z)}{|n_0 + a_2i|^2 z^2}$ est réel, de plus :

$$\frac{2n_0 - z(n_0 - a_2i)}{\beta(1-z)} = \frac{\frac{2i}{\beta}(n_0 - a_2i) + 2n_0}{\beta + 2i} \text{ cependant } \beta + 2i = \overline{\beta}$$

d'où $\frac{\frac{2i}{\beta}(n_0 - a_2i) + 2n_0}{\beta + 2i} = \frac{2in_0 + 2a_2 + 2n_0\beta}{\beta\overline{\beta}} = \frac{2n_0\beta_1 + 2a_2}{\beta\overline{\beta}}$ qui est réel, donc Γ_{n_0+1} l'est aussi, CQFD.

Afin de préciser ce que nous venons de dire, prenons un exemple avec $a = 4$, $b = 8$ et $\beta = 0,75 - i$ (soit $z = \frac{(32-24i)}{25}$). Un calcul numérique de Γ_{13} donne le résultat $\Gamma_{13} = -1,01656E6 + 1,0296E - 10i$ ce qui est en accord avec le fait que la partie imaginaire est nulle. Un résultat strictement identique est obtenu par notre méthode analytique.

- Cas particuliers de la ${}_2F_1$

Explicitons deux relations utiles et générales pour nos calculs des ${}_2F_1$:

$${}_2F_1(a; b+1|c|z) = \frac{1}{bz^{b-1}} \frac{\partial}{\partial z} (z^b {}_2F_1(a; b|c|z)) \quad \text{et}$$

$${}_2F_1(a+1; b|c|z) = \frac{1}{a} [-(b-a) {}_2F_1(a; b|c|z) + b {}_2F_1(a; b+1|c|z)]$$

Pour clore cette partie, nous allons préciser quelles ont été les modifications apportées au calcul de la ${}_2F_1$ pour que le calcul converge. Car en effet le calcul de ${}_2F_1(1; 4|8|z)$ (et le même z que précédemment) avec la méthode développée à Metz, donne le résultat $-1,6E-3+6,94E-3i$ alors qu'un calcul numérique par Mathematica donne le résultat : $0,861403-1,14854i$. Nous avons donc repris l'implémentation des calculs des ${}_2F_1$ pour qu'ils soient analytiques et qu'ils se calculent rapidement. Tout réside dans l'expression analytique des différentes dérivées (effectués à l'aide de Mathematica) et d'un calcul précis dans le cas où $a = 1$. Le résultat que nous trouvons est alors : $0,861403-1,14854i$. Pour le calcul précis du cas où $a = 1$, nous avons procédé de la manière suivante :

Sachant que ${}_2F_1(1; b|1|z) = (1-z)^{-b}$, il suffit d'utiliser la relation de récurrence définie plus haut pour calculer tous les autres termes (dérivées dans notre cas d'ordre 22 !!).

V. Etats propres de Ar ; échanges pour SO et Auger

Dans cette partie, nous allons préciser les états propres de l'argon dans un modèle à deux électrons actifs sans prendre en compte les échanges. Puis nous expliciterons certains points concernant les échanges pour le mécanisme SO et Auger.

- Etats propres de l'Argon

Afin de construire les états propres de l'Argon dans le cas d'un modèle à deux électrons actifs, deux méthodes sont utilisées et équivalentes. Dans les deux cas, l'état de l'Argon est décrit par deux électrons de la couche 3p. La première étape consiste alors à appliquer la méthode de Cleish-Gordon pour en déduire les 15 états possibles. Une autre méthode consiste à partir d'états connus et de construire les autres états en fonction de ceux là. On part de l'état avec la plus grande valeur de M_L qui est 2 : $M_L = 2$ on obtient $|2p_1\overline{2p_1}|$. La notation « entre barre » fait référence à un déterminant de Slater et la barre sur le $2p_1$ au spin up. On applique alors l'opérateur $L = L_{1+} + L_{2-}$ à cet état. L'état de base est nécessairement caractérisé par $L = 2$. De cette manière, on construit l'ensemble des états qui caractérise l'état D dont le spin est 0. De même on part de l'état qui a la plus grande valeur de M_S qui est 1 avec la plus grande valeur de M_L possible qui est 1 aussi. D'où l'état $M_L = 1 \quad M_S = 1 \rightarrow |2p_1\overline{2p_0}|$. Nécessairement, cet état appartient à l'ensemble 3P . Ensuite en appliquant les opérateurs L et S . (agissant sur le spin de la même manière), on construit l'ensemble des états de 3P . Il ne reste plus alors qu'à établir le dernier état qui est le vecteur 1S . Il peut être obtenu à partir des états $M_L = 0$ et $M_S = 0$ de 3P et 1D . En effet, les trois vecteurs doivent être orthogonaux pour former une BON. On applique alors le produit vectoriel entre ces deux vecteurs pour obtenir celui de 1S . Le résultat est alors :

$$\text{Etat : } ^1S_0 \rightarrow \frac{1}{\sqrt{3}} (|2p_1\overline{2p_{-1}}| - |\overline{2p_1}2p_{-1}| - |2p_0\overline{2p_0}|)$$

$$M_L = 2 \rightarrow |2p_1\overline{2p_1}|$$

$$M_L = 1 \rightarrow \frac{1}{\sqrt{2}} (|2p_1\overline{2p_0}| - |\overline{2p_1}2p_0|)$$

$$\text{Etats } ^1D \rightarrow M_L = 0 \rightarrow \frac{1}{\sqrt{6}} (|2p_1\overline{2p_{-1}}| - |\overline{2p_1}2p_{-1}| + 2|2p_0\overline{2p_0}|)$$

$$M_L = -1 \rightarrow \frac{1}{\sqrt{2}} (|2p_{-1}\overline{2p_0}| - |\overline{2p_{-1}}2p_0|)$$

$$M_L = -2 \rightarrow |2p_{-1}\overline{2p_{-1}}|$$

$$M_L = 1 \quad M_S = 1 \rightarrow |2p_1 2p_0|$$

$$M_L = 1 \quad M_S = 0 \rightarrow \frac{1}{\sqrt{2}} (|2p_1\overline{2p_0}| + |\overline{2p_1}2p_0|)$$

$$M_L = 1 \quad M_S = -1 \rightarrow |\overline{2p_1}\overline{2p_0}|$$

$$M_L = 0 \quad M_S = 1 \rightarrow |2p_1 2p_{-1}|$$

$$\text{Etats } {}^3P \rightarrow M_L = 0 \quad M_S = 0 \rightarrow \frac{1}{\sqrt{2}} (|2p_1\overline{2p_{-1}}| + |\overline{2p_1}2p_{-1}|)$$

$$M_L = 0 \quad M_S = -1 \rightarrow |\overline{2p_1}\overline{2p_{-1}}|$$

$$M_L = -1 \quad M_S = 1 \rightarrow |2p_0 2p_{-1}|$$

$$M_L = -1 \quad M_S = 0 \rightarrow \frac{1}{\sqrt{2}} (|2p_0\overline{2p_{-1}}| + |\overline{2p_0}2p_{-1}|)$$

$$M_L = -1 \quad M_S = -1 \rightarrow |\overline{2p_0}\overline{2p_{-1}}|$$

- Echanges pour le processus SO

Le but de cette partie n'est pas de retrouver l'ensemble des amplitudes de transition introduit dans le chapitre I mais d'explicitier la notion de symétrie pour compléter les termes d'échange dans le cas Auger.

Par exemple comme il a été précisé, le terme f_I s'écrivant :

$$f_1 = g_0^f(\vec{r}_0)g_1^f(\vec{r}_1)g_2^f(\vec{r}_2) (V(\vec{r}_0, \vec{r}_1, \vec{r}_2)) g_0^i(\vec{r}_0)g_1^i(\vec{r}_1)g_2^i(\vec{r}_2)$$

où g_0^f et g_0^i sont les fonctions d'onde respectivement de l'état final et initial de l'électron 0 si les échanges ne sont pas pris en compte. Le potentiel V pour un processus SO dans le cas de la double s'écrit : $V(\vec{r}_0, \vec{r}_1, \vec{r}_2) = -\frac{2}{r_0} + \frac{1}{r_{01}} + \frac{1}{r_{02}}$. On en déduit alors la propriété :

$$V(\vec{r}_0, \vec{r}_1, \vec{r}_2) = V(\vec{r}_0, \vec{r}_2, \vec{r}_1).$$

Echangeons alors le rôle de \vec{r}_1 et \vec{r}_2 dans l'expression de f_I , on obtient de ce fait :

$$f_1 = g_0^f(\vec{r}_0)g_1^f(\vec{r}_2)g_2^f(\vec{r}_1) (V(\vec{r}_0, \vec{r}_2, \vec{r}_1)) g_0^i(\vec{r}_0)g_1^i(\vec{r}_2)g_1^i(\vec{r}_1)$$

En se basant sur les propriétés de symétrie de V, cette expression est donc identique à la précédente. D'où la notation f_I ou lieu de f_{II} .

- Echanges pour le processus Auger

Dans le cas du mécanisme Auger, cette règle de symétrie n'est plus applicable. En effet, si le même état initial est considéré, l'amplitude Auger s'écrit :

$$f_{11} = g_0^f(\vec{r}_0)g_1^f(\vec{r}_1)g_2^f(\vec{r}_2) g_3^f(\vec{r}_3)(V^{Au}(\vec{r}_2, \vec{r}_3)|V^{(e,2e)}(\vec{r}_0, \vec{r}_1)) g_0^i(\vec{r}_0)g_1^i(\vec{r}_1)g_1^i(\vec{r}_2)g_3^i(\vec{r}_3)$$

L'inversion des rôles de \vec{r}_1 et \vec{r}_2 donne alors :

$$f_{11} = g_0^f(\vec{r}_0)g_1^f(\vec{r}_2)g_2^f(\vec{r}_1) g_3^f(\vec{r}_3)(V^{Au}(\vec{r}_2, \vec{r}_3)|V^{(e,2e)}(\vec{r}_0, \vec{r}_1)) g_0^i(\vec{r}_0)g_1^i(\vec{r}_1)g_1^i(\vec{r}_2)g_3^i(\vec{r}_3),$$

qui n'est plus la même expression. On introduit alors l'amplitude :

$$f_{xd} = g_0^f(\vec{r}_0)g_1^f(\vec{r}_2)g_2^f(\vec{r}_1) g_3^f(\vec{r}_3)(V^{Au}(\vec{r}_2, \vec{r}_3)|V^{(e,2e)}(\vec{r}_0, \vec{r}_1)) g_0^i(\vec{r}_0)g_x^i(\vec{r}_1)g_x^i(\vec{r}_2)g_3^i(\vec{r}_3)$$

Certains termes de la section efficace où les échanges sont pris en compte pour le processus SO, doivent être modifiés pour être adapté au cas Auger.

Le terme décrivant l'état 1S_0

$$t_5 = \frac{1}{\sqrt{6}}(-f_0 - f_{0d} + h_0 + g_0) \quad t_6 = \frac{1}{\sqrt{18}}(f_0 - f_{0d} + h_0 + 2h_{0d} - g_0 - 2g_{0d})$$

- Etat 1D_0 $M_L = -2$

$$t_1 = f_{-1} + f_{-1d} - g_{-1} - h_{-1} \quad t_2 = f_{-1} - f_{-1d} - g_{-1} - 2g_{-1d} + h_{-1} + 2h_{-1d}$$

$$\text{et } \sigma^{1D_0(-2)} = \frac{1}{2}|t_1|^2 + \frac{1}{6}|t_2|^2$$

- Etat 1D_0 $M_L = 2$

$$t_1 = f_1 + f_{1d} - g_1 - h_1 \quad t_2 = f_1 - f_{1d} - g_1 - 2g_{1d} + h_1 + 2h_{1d}$$

$$\text{et } \sigma^{1D_0(2)} = \frac{1}{2}|t_1|^2 + \frac{1}{6}|t_2|^2$$

Si les termes d sont égaux aux termes sans d , la section calculé est bien celle du mécanisme SO avec échange.

Pour le mécanisme Auger, toutes les propriétés de symétrie de la section efficace explicitées dans le chapitre I ont été vérifiées, validant ainsi le formalisme adopté.

ANNEXE II :

Rappels de Statistiques et applications aux cas (e,2e) et (e,3e)

L'objectif de cette annexe est de rappeler quelques notions de statistiques qui sont nécessaires pour le traitement des données du type (e,2e) et (e,3e). Dans la partie II de cette thèse, il a déjà été montré le lien statistique entre ces deux mesures. Nous nous proposons d'analyser les principales distributions que sont les distributions binomiales, de Poisson et de Gauss. Enfin nous justifierons les hypothèses faites dans cette thèse en ce qui concerne la statistique en coïncidence. Cette annexe a pour vocation d'être un complément au traitement statistique de données si nécessaire à l'expérimentateur.

I- Distribution binomiale

La distribution binomiale est la principale distribution en statistique. Toutes les autres distributions (Poisson et Gauss) dérivent de cette distribution.

Prenons un ensemble composé de N événements. Chacun de ces événements est associé à la possibilité que celui-ci soit vrai ou faux. Par exemple, considérons un ensemble composé de dix événements correspondant à une marche à une dimension. Cette marche s'effectue par des pas soit à gauche, soit à droite. L'événement sera dit vrai si le pas se fait à droite et faux dans le cas contraire. Notons n le nombre d'occurrences vraies (nombre de pas à gauche), alors le nombre d'occurrence fausses (nombre de pas à gauche) n' est donnée par la relation $N = n + n'$. Les probabilités associées à chacun de ces cas sont notées p pour le cas vrai, et q pour le cas faux, avec $p + q = 1$. Pour notre exemple, p est la probabilité pour qu'une occurrence corresponde effectivement à un pas à droite. La probabilité d'avoir une séquence donnée, c'est-à-dire un nombre d'occurrence vraie égale à n , est donc $p^n q^{n'} = p^n (1-p)^{N-n}$. Or pour une séquence donnée, il y a plusieurs chemins possibles en fait il y en a $C_N^n = \frac{N!}{n!(N-n)!}$ correspondant au nombre de combinaisons. Par exemple, si $N = 3$ et $n = 1$, tous les couples suivants sont possibles (droite, gauche, gauche) ou (gauche, droite, gauche) ou encore (gauche, gauche, droite) soit $C_3^1 = 3$. Finalement, la probabilité d'avoir n occurrences vraies est :

$$P(n) = C_N^n p^n (1-p)^{N-n}$$

Les valeurs possibles de n sont celles allant de 0 à N .

Quelques exemples de ces distributions sont donnés par les figures suivantes :

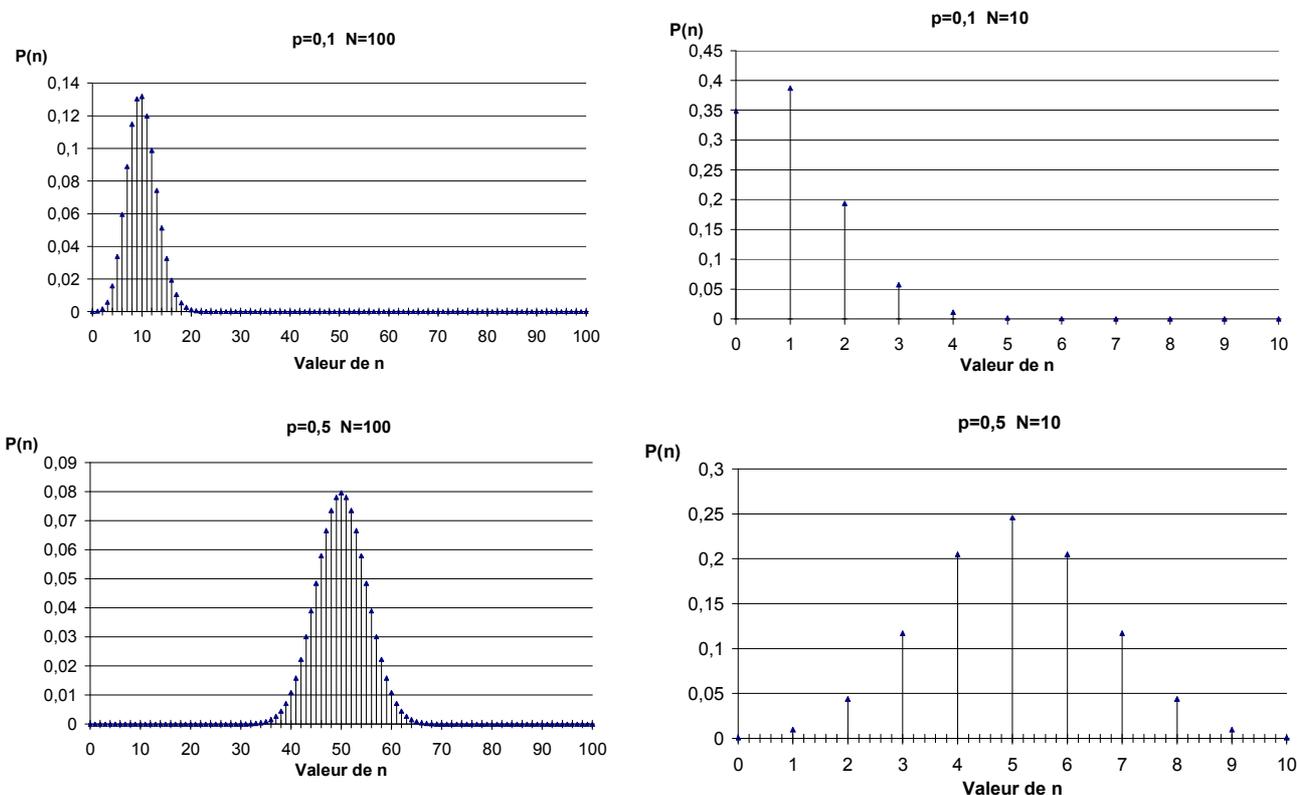


Figure 1 : Les graphiques représentent les distributions binomiales pour les cas suivants : $p=0,1$ pour les deux graphes du haut avec $N = 10$ pour la figure de droite et $N = 100$ pour celle de gauche. Les deux figures du bas correspondent aux cas où $p = 0,5$ avec $N=100$ pour la figure de gauche et $N = 10$ pour la figure de droite.

Une première remarque porte sur les cas où N est de l'ordre de 100, alors les distributions sont proches d'une gaussienne.

La valeur moyenne de la distribution binomiale est donnée par la relation :

$$\langle n \rangle = \sum_{k=0}^N k C_N^k p^k (q)^{N-k} \text{ car de manière générale : } \langle n \rangle = \sum_{k=0}^N k P(k)$$

Sachant que l'on a la relation : $kp^k = p \frac{\partial}{\partial p} p^k$, l'expression précédente peut s'écrire :

$$\langle n \rangle = \sum_{k=0}^N C_N^k p \frac{\partial}{\partial p} (p^k) (q)^{N-k} = p \frac{\partial}{\partial p} \sum_{k=0}^N C_N^k p^k (q)^{N-k} = p \frac{\partial}{\partial p} (p+q)^N = pN(p+q)^{N-1}$$

Or $p+q=1$ donc $\langle n \rangle = Np$.

Cette dernière relation peut être vérifiée sur les différentes courbes de la figure 1. Une autre grandeur très utile est la largeur quadratique moyenne définie par la relation : $(\Delta n)^2 = \langle (n - \langle n \rangle)^2 \rangle$ encore appelée écart-type. Cette grandeur rend compte de l'écartement moyen autour de la valeur moyenne. Cette valeur s'écrit encore sous la forme : $(\Delta n)^2 = \langle n^2 - 2n \langle n \rangle + \langle n \rangle^2 \rangle = \langle n^2 \rangle - 2 \langle n \rangle^2 + \langle n \rangle^2$ soit en simplifiant $(\Delta n)^2 = \langle n^2 \rangle - \langle n \rangle^2$.

Le calcul de $\langle n^2 \rangle$ se fait sur le même principe que celui de $\langle n \rangle$. En effet,

$$\langle n^2 \rangle = \sum_{k=0}^N k^2 C_N^k p^k (q)^{N-k} = \sum_{k=0}^N C_N^k \left(p \frac{\partial}{\partial p} \right)^2 p^k (q)^{N-k} = \left(p \frac{\partial}{\partial p} \right)^2 \sum_{k=0}^N C_N^k p^k (q)^{N-k} = \left(p \frac{\partial}{\partial p} \right)^2 (p+q)^N$$

or $\left(p \frac{\partial}{\partial p} \right)^2 (p+q)^N = p(N(p+q)^{N-1} + pN(N-1)(p+q)^{N-2}) = pN(1+p(N-1))$ donc

$$\langle n^2 \rangle = pN(pN + (1-p)) = \langle n \rangle^2 + Np(1-p) \text{ d'où } (\Delta n)^2 = Np(1-p).$$

Une première remarque consiste à dire que l'étalement de la distribution est d'autant plus grand que la valeur de N l'est. Mais cette analyse ne prend pas en compte le fait que l'écart quadratique moyen varie comme la racine carrée de N, alors que la valeur moyenne est proportionnelle à N. Ce qui nous renseigne sur la largeur de la distribution c'est le calcul de

l'écart quadratique relatif $\sigma_r = \frac{\Delta n}{\langle n \rangle} = \sqrt{\frac{1-p}{p}} \frac{1}{\sqrt{N}}$ qui varie en inverse de la racine carrée de

N. La distribution paraît donc de plus en plus fine quand N augmente, cf. *figure 1*.

II- Distribution de Gauss

La distribution de Gauss est un cas particulier de la distribution binomiale. Elle correspond au cas où $N \gg 1$ et p fini. De fait, on peut considérer la variable n comme étant une variable continue puisque dans ce cas :

$$|P(n+1)-P(n)| \ll P(n)$$

Les variations de $P(n)$ autour de $\langle n \rangle$ sont très rapides et P est maximum en cette valeur. Ce qui fait que l'on peut effectuer un développement limité du Ln de cette distribution autour de la valeur moyenne. D'où le résultat :

$$\ln(P(n)) = \ln(P(\langle n \rangle)) + (n - \langle n \rangle) \left. \frac{\partial}{\partial n} (\ln(P(n))) \right|_{n=\langle n \rangle} + \frac{(n - \langle n \rangle)^2}{2} \left. \frac{\partial^2}{\partial n^2} (\ln(P(n))) \right|_{n=\langle n \rangle}$$

Par construction la dérivée première de $\ln(P(n))$ en $\langle n \rangle$ est nulle. Donc le second terme de ce développement s'annule. De plus la dérivée seconde, est strictement négative. Si l'on note :

$$\alpha^2 = - \left. \frac{\partial^2}{\partial n^2} (\ln P(n)) \right|_{n=\langle n \rangle} \text{ l'expression précédente s'écrit :}$$

$$\ln(P(n)) = \ln(P(\langle n \rangle)) - \alpha^2 \frac{(n - \langle n \rangle)^2}{2}$$

La distribution statistique s'exprime alors de la manière suivante :

$$P(n) = P(\langle n \rangle) \exp\left(-\alpha^2 \frac{(n - \langle n \rangle)^2}{2}\right)$$

La distribution « réelle » de $P(n)$ est une distribution binomiale, les valeurs de $\langle n \rangle$ et $\sigma = \Delta n$ sont connues. Il est donc possible de déterminer la valeur moyenne de $\langle n \rangle$ et σ par des méthodes liées aux hypothèses de construction de cette distribution. En effet :

$$\ln(P(n)) = \ln(N!) - \ln(n!) - \ln((N-n)!) + n \ln(p) + (N-n) \ln(1-p)$$

Autour de $\langle n \rangle$ n varie continûment ce qui nous permet d'écrire que $n! \approx \sqrt{2\pi n} \left(\frac{n}{e}\right)^n$ qui est la formule de Stirling. Cette relation reste valable autour de $\langle n \rangle$ car N est grand.

$$\text{On obtient } \ln(n!) \approx K + \frac{1}{2} \ln(n) + n \ln(n) - n \approx n \ln(n) - n \text{ d'où } \frac{\partial}{\partial n} \ln(n!) = \ln(n).$$

La dérivée première par rapport à n pour $n = \langle n \rangle$ s'écrit alors :

$$\left. \frac{\partial}{\partial n} \ln P(n) \right)_{n=\langle n \rangle} = -\ln(\langle n \rangle) + \ln(N - \langle n \rangle) + \ln(p) - \ln(1-p)$$

L'égalité précédente s'annule pour $\langle n \rangle = Np$, ce qui est conforme au cas binomial par construction. De même la dérivée seconde en $n = \langle n \rangle$ nous donne la valeur de α . Et on a la relation :

$$\left. \frac{\partial^2}{\partial n^2} \ln P(n) \right)_{n=\langle n \rangle} = -\frac{1}{\langle n \rangle} - \frac{1}{N - \langle n \rangle} = -\frac{1}{Np(1-p)} = -\alpha^2 \text{ car } \langle n \rangle = Np.$$

$$\text{Donc } \alpha = \frac{1}{\sigma} = \frac{1}{\sqrt{Np(1-p)}}.$$

En résumé cette distribution s'écrit :

$$P(n) = P(\langle n \rangle) \exp\left(-\frac{(n - \langle n \rangle)^2}{2\sigma^2}\right)$$

Il est possible de déterminer la valeur de $P(\langle n \rangle)$ en utilisant la formule de Stirling, mais l'expression de cette constante peut-être déterminée par le fait que $P(n)$ est une grandeur continue en fonction de n et qu'elle doit être normalisée. Autrement dit :

$$\int_{n=-\infty}^{\infty} P(n) dn = \int_{n=-\infty}^{\infty} P(\langle n \rangle) \exp\left(-\frac{(n - \langle n \rangle)^2}{2\sigma^2}\right) dn = P(\langle n \rangle) \sigma^2 \int_{-\infty}^{\infty} \exp(-X^2) dX = P(\langle n \rangle) \sqrt{\sigma^2 2\pi} = 1$$

$$\text{D'où } P(\langle n \rangle) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}}$$

Bien sûr cette expression n'a de sens en réalité que pour $n = 0$ à N , mais au-delà de cet intervalle, la distribution est nulle. C'est le passage du discret au continu qui a rendu cette distribution non nulle au-delà de cet intervalle.

En résumé, une distribution Gaussienne a l'expression suivante :

$$P(n) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} \exp\left(-\frac{(n - \langle n \rangle)^2}{2\sigma^2}\right)$$

III- Distribution de Poisson

Une dernière distribution qui est très utile, est la cas où $p \ll 1$ et $n \ll N$. On fait alors l'hypothèse d'une variation rapide de $P(n)$ dès que n augmente. Dans ce cas la combinaison s'écrit :

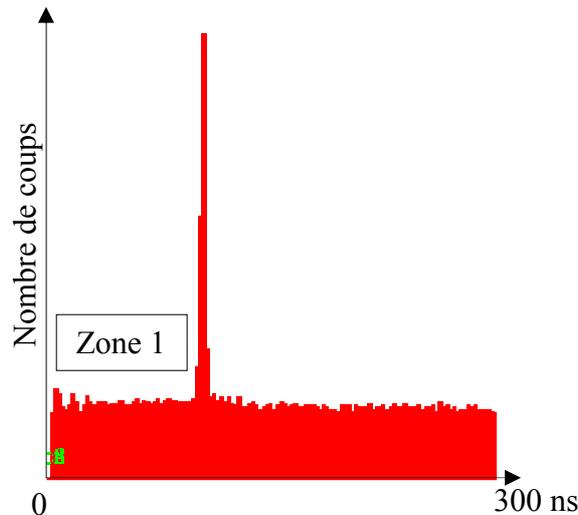
$$C_N^n = \frac{N(N-1)\dots(N-(n-1))}{n!} \approx \frac{N^n}{n!} \text{ car } n \ll N \text{ de même } \ln(1-p) \approx -p \text{ car } p \ll 1.$$

Donc $(1-p)^{N-n} = \exp((N-n)\ln(1-p)) \approx \exp(-Np)$, l'expression obtenue s'écrit :

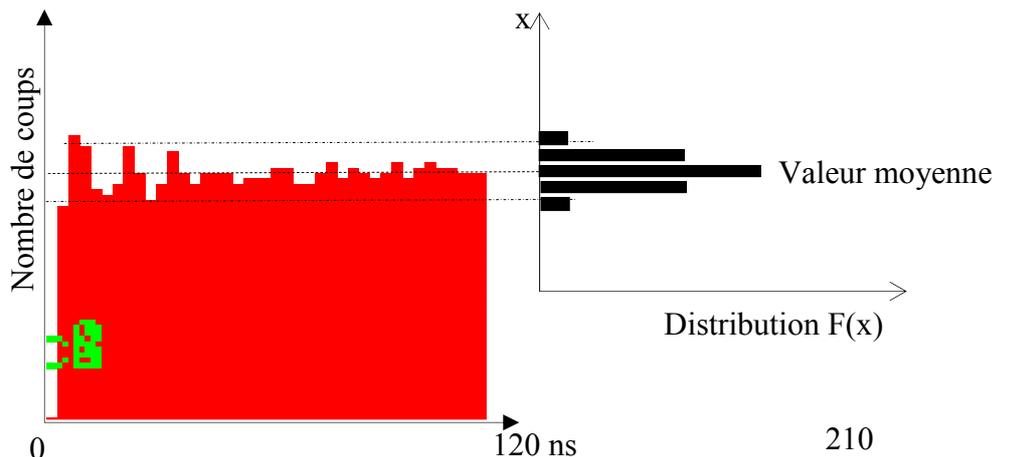
$P(n) = \frac{N^n}{n!} \exp(-Np) p^n = \frac{(Np)^n}{n!} \exp(-Np)$. La valeur moyenne est Np comme dans les autres cas.

IV- Notions générales sur la statistique de données

Dans le cas (e,2e), les distributions sont discrètes mais le nombre d'occurrence est suffisamment grand pour considérer celle-ci comme continue. Reprenons l'exemple du pic de coïncidence.



En ne considérant que le cas où on a des coïncidences fortuites (zone 1), la contribution de celles-ci est la suivante :



La distribution en fonction (notée F) du nombre de coups (noté x) suit au moins la distribution binomiale. Une étude détaillée consisterait à mesurer effectivement la valeur moyenne de la distribution pour les coïncidences fortuites. Cette valeur moyenne serait donnée par :

$$\bar{x} = \sum xF(x) \text{ et l'écart quadratique moyen par la relation : } \sigma^2 = \sum (x - \bar{x})^2 F(x).$$

L'acquisition dans nos conditions s'est faite pour un nombre de coïncidences de l'ordre de 300 000. Ce nombre (qui dans notre cas correspond à N) est suffisamment grand pour considérer cette distribution comme gaussienne. De plus la probabilité associée pour qu'il y ait coïncidences fortuites est faible (encore plus pour les coïncidences vraies). Dans l'exemple qui nous intéresse, une coïncidence du type ab est effectuée avec un START sur le détecteur a et un STOP sur le détecteur b. Un taux de comptage défavorable pour le cas considéré correspond à $f_b = 1\text{kHz}$. Prenons par exemple $f_a = 1\text{kHz}$: la fenêtre de temps pendant laquelle le TAC est actif est de $\tau = 300\text{ ns}$. Cela correspond à un taux de coïncidences fortuites de $f = f_a f_b \tau = 0,3\text{ cps}$, donc pendant 300 ns il y a $9 \cdot 10^{-8}$ événements fortuits. Ce nombre est plus petit que l'unité mais il correspond à un temps très court. Supposons qu'un START ait eu lieu. Pendant les 300 ns qui suivent il aurait pu y avoir $f_b \tau = 3 \cdot 10^{-4}$ possibilités d'arrêt. La probabilité, dans ces conditions, pour qu'il y ait coïncidence est de $9 \cdot 10^{-8} / (9 \cdot 10^{-8} + 3 \cdot 10^{-4}) = 3 \cdot 10^{-4}$.

De manière générale cette probabilité est de $\frac{f_a f_b \tau^2}{f_a f_b \tau^2 + f_b \tau} = \frac{f_a \tau}{f_a \tau + 1}$. Dans notre cas,

la probabilité est bien plus petite que l'unité. On se retrouve dans la cas typique d'une distribution Gaussienne où $p \ll 1$. En conséquence l'écart quadratique moyen s'écrit :

$$\sigma = \sqrt{(1-p)pN} \approx \sqrt{pN} = \sqrt{\langle n \rangle}$$

Comme nous l'avons affirmé dans le chapitre II de cette thèse, l'écart quadratique moyen est égal à la racine carrée de la valeur moyenne de la distribution. Cette distribution est donc définie de manière unique.

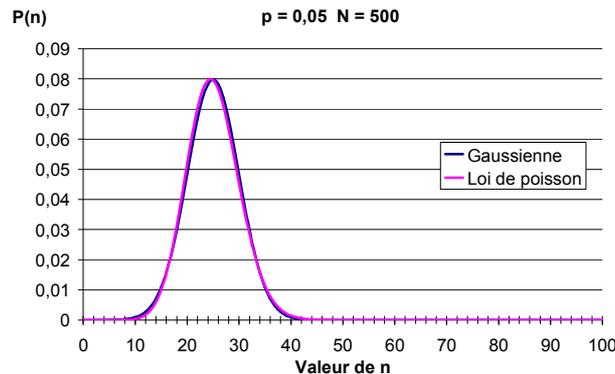


Figure 2 : Exemple de distribution de Poisson et de Gauss pour $p = 0,05$ et $N = 500$. Ces deux distributions sont équivalentes. Ce qui est aussi le cas pour l'étude (e,2e).

Pour les grandeurs continues considérées, la fonction P(n) représente en fait une densité de probabilité, c'est à dire la probabilité d'avoir un événement entre n et n+dn. Un sens physique est alors donné à l'écart type σ . La question que l'on peut se poser est la

suivante, qu'elle est la probabilité d'avoir un événement autour de sa valeur moyenne ? Autrement dit qu'elle est la probabilité d'avoir n compris entre $\langle n \rangle - \alpha\sigma$ et $\langle n \rangle + \alpha\sigma$, avec α positif ? Pour répondre à cette question, il faut calculer

$$\Pi(\langle n \rangle - \alpha\sigma \leq n \leq \langle n \rangle + \alpha\sigma) = \int_{\langle n \rangle - \alpha\sigma}^{\langle n \rangle + \alpha\sigma} P(n) dn.$$

Un changement de variable $x = \frac{(n - \langle n \rangle)}{\sigma\sqrt{2}}$ donne la relation :

$$\Pi = \int_{\langle n \rangle - \alpha\sigma}^{\langle n \rangle + \alpha\sigma} \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} \exp\left(-\frac{(n - \langle n \rangle)^2}{2\sigma^2}\right) dn = \int_{-\frac{\alpha}{\sqrt{2}}}^{\frac{\alpha}{\sqrt{2}}} \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} \exp(-x^2) \sigma\sqrt{2} dx = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^{\frac{\alpha}{\sqrt{2}}} \exp(-x^2) dx$$

La fonction souvent utilisée en statistique est la fonction erreur notée et définie par :

$$Erf(y) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^y \exp(-x^2) dx$$

Dans ce cas la probabilité vue plus haut peut se réécrire :

$$\Pi(\langle n \rangle - \alpha\sigma \leq n \leq \langle n \rangle + \alpha\sigma) = Erf\left(\frac{\alpha}{\sqrt{2}}\right)$$

Des tables permettent de donner des valeurs de cette fonction. En particulier pour $\alpha = 1, 2$ et 3 :

$$\Pi(\langle n \rangle - \sigma \leq n \leq \langle n \rangle + \sigma) = Erf\left(\frac{1}{\sqrt{2}}\right) = 0,683 = 68,3\%$$

$$\Pi(\langle n \rangle - 2\sigma \leq n \leq \langle n \rangle + 2\sigma) = Erf\left(\frac{2}{\sqrt{2}}\right) = 0,954 = 95,4\%$$

$$\Pi(\langle n \rangle - 3\sigma \leq n \leq \langle n \rangle + 3\sigma) = Erf\left(\frac{3}{\sqrt{2}}\right) = 0,997 = 99,7\%$$

ANNEXE III :

Complément sur le calcul de la densité bi-électronique

Le but de cette annexe est de vérifier certaines propriétés de la densité bi-électronique surtout pour la fonction d'onde initiale du type SilPlat(sp). En particulier, l'objet est de montrer que même si la densité bi-électronique dépend effectivement des angles des impulsions, la densité mono-électronique n'en dépend pas.

L'expression de la fonction d'onde est la suivante :

$$\begin{aligned} \langle \vec{r}_1, \vec{r}_2 | \varphi \rangle = \varphi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) &= \frac{N}{\sqrt{1+\lambda^2}} \{1s(\vec{r}_1)1s'(\vec{r}_2) + 1s'(\vec{r}_1)1s(\vec{r}_2)\} \\ &+ \frac{\lambda}{\sqrt{3}\sqrt{1+\lambda^2}} \{2p_0(\vec{r}_1)2p_0(\vec{r}_2) - 2p_1(\vec{r}_1)2p_{-1}(\vec{r}_2) - 2p_{-1}(\vec{r}_1)2p_1(\vec{r}_2)\} \end{aligned}$$

Les différents paramètres de cette fonction d'onde sont donnés dans la chapitre I de cette thèse. A ce titre, on remarquera que cette fonction d'onde est à variable non séparable. La fonction d'onde dans l'espace des impulsions est donnée par :

$$\bar{\Psi}(\vec{p}_1, \vec{p}_2) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int e^{-i\vec{p}_1 \cdot \vec{r}_1} e^{-i\vec{p}_2 \cdot \vec{r}_2} \varphi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) d\vec{r}_1 d\vec{r}_2$$

Le résultat est alors :

$$\begin{aligned} \bar{\Psi}(\vec{p}_1, \vec{p}_2) &= \frac{16Nab}{2\pi\sqrt{1+\lambda^2}} \left\{ \frac{Y_0^0(\vec{p}_1)}{(a^2 + p_1^2)^2} \frac{Y_0^0(\vec{p}_2)}{(b^2 + p_2^2)^2} + \frac{Y_0^0(\vec{p}_1)}{(b^2 + p_1^2)^2} \frac{Y_0^0(\vec{p}_2)}{(a^2 + p_2^2)^2} \right\} \\ &+ \frac{\lambda}{\sqrt{3}\sqrt{1+\lambda^2}} \frac{4}{3} g^7 (16)^2 \frac{1}{2\pi} \frac{p_1 p_2}{(g^2 + p_1^2)^3 (g^2 + p_2^2)^3} \{Y_1^1(\vec{p}_1)Y_1^{-1}(\vec{p}_2) + Y_1^{-1}(\vec{p}_1)Y_1^1(\vec{p}_2) - Y_1^0(\vec{p}_1)Y_1^0(\vec{p}_2)\} \end{aligned}$$

La densité bi-électronique dans l'espace des impulsions est donnée par :

$$\rho(\vec{p}_1, \vec{p}_2) = \left| \bar{\Psi}(\vec{p}_1, \vec{p}_2) \right|^2$$

La densité mono-électronique est obtenue à partir de la densité bi-électronique par la relation :

$$\rho(\vec{p}) = \int \rho(\vec{p}, \vec{p}') d\vec{p}'$$

qui de manière générale dépend de l'orientation de \vec{p} .

Le calcul de $\rho(\vec{p})$ est donné par :

$$\rho(\vec{p}_2) = \frac{(16Nab)^2}{2\pi} \frac{1}{1+\lambda^2} \left\{ \int \frac{p_1^2 dp_1}{(a^2 + p_1^2)^4} \frac{Y_0^{0*}(\vec{p}_2) Y_0^0(\vec{p}_2)}{(b^2 + p_2^2)^2} + \int \frac{p_1^2 dp_1}{(b^2 + p_1^2)^4} \frac{Y_0^{0*}(\vec{p}_2) Y_0^0(\vec{p}_2)}{(a^2 + p_2^2)^2} \right\} \\ + \frac{\lambda^2}{27(1+\lambda^2)} \frac{16^5 g^{14}}{(2\pi)^2} \int \frac{p_2^2 p_1^4 dp_1}{(p_1^2 + g^2)^6 (p_2^2 + g^2)^6} \{Y_1^{0*}(\vec{p}_2) Y_1^0(\vec{p}_2) + Y_1^{1*}(\vec{p}_2) Y_1^1(\vec{p}_2) + Y_1^{-1*}(\vec{p}_2) Y_1^{-1}(\vec{p}_2)\}$$

Cette relation montre que *a priori*, le densité mono-électronique dépend effectivement de l'orientation du vecteur impulsion.

Cependant, une relation très utile peut être utilisée :

$$\sum_{m=-l}^l Y_l^{m*}(\hat{x}_1) Y_l^m(\hat{x}_2) = \frac{2l+1}{4\pi} P_l(\cos(\hat{x}_1, \hat{x}_2)).$$

En ce qui nous concerne $l = 1$ et les angles font

référence au même vecteur impulsion d'où : $\sum_{m=-1}^1 Y_l^{m*}(\vec{p}_2) Y_l^m(\vec{p}_2) = \frac{3}{4\pi} P_1(1) = \frac{3}{4\pi}$.

On en déduit alors l'expression de la densité mono-électronique :

$$\rho(\vec{p}) = \frac{(16Nab)^2}{2\pi} \frac{1}{1+\lambda^2} \left(\frac{1}{(8a)^3} \frac{1}{(b^2 + p^2)^4} + \frac{1}{(8b)^3} \frac{1}{(a^2 + p^2)^4} + \frac{1}{8ab(a+b)^3} \frac{1}{(b^2 + p^2)^2} \frac{1}{(a^2 + p^2)^2} \right) \\ + \frac{\lambda^2}{3(1+\lambda^2)} \frac{16^5 \pi}{(2\pi)^4} \frac{g^7}{2^9} \frac{p^2}{(p^2 + g^2)^6}$$

Cette expression **ne dépend plus** de l'orientation du vecteur impulsion et l'on écrit alors : $\rho(\vec{p}) = \rho(p)$.

La densité électronique doit ensuite vérifier une dernière propriété qui est la normalisation à savoir : $\int \rho(p) d\vec{p} = 4\pi \int p^2 \rho(p) dp = 1$, ce qui est bien le cas.

MOTS CLÉS

Processus Auger
Technique de coïncidences
Analyseur toroïdal
Multi-analyse et multi-détection
Interférences quantiques
Section efficace différentielle
Corrélation électronique

KEY WORDS

Auger process
Coincidence technique
Toroidal analyser
Multi-analysis and multi-detection
Quantum interferences
Differential cross section
Electronic correlation

RÉSUMÉ

Lors de ce travail de thèse, les mécanismes de double ionisation de l'argon par impact électronique incluant l'effet Auger ont été étudiés en fonction de l'énergie de l'électron incident. Des sections efficaces cinq et six fois différentielles en angle et en énergie ont été mesurées et analysées en géométrie coplanaire.

La mise au point d'un nouvel analyseur toroïdal a permis d'améliorer l'efficacité de détection de l'ensemble du dispositif. La section efficace six fois différentielle où l'électron Auger et l'électron éjecté ont des énergies identiques (205 eV) a ainsi été obtenue en première mondiale avec une cible d'argon, pour une énergie incidente de 956 eV.

Les modèles théoriques développés lors de ce travail représentent le triple continuum par un ensemble d'ondes coulombiennes décrivant les interactions entre les trois électrons de la voie de sortie et l'ion résiduel. Les effets d'échange entre les électrons ont aussi été inclus dans les modèles.

La confrontation des résultats expérimentaux et théoriques a permis de mettre en évidence la contribution relative de l'effet Auger et de la double ionisation directe sur la dépendance angulaire de la section efficace quintuplement différentielle, révélant en particulier une influence de l'effet Auger d'autant plus importante que l'énergie incidente est élevée.

ABSTRACT

In this work, double ionisation mechanisms of argon by electron impact in which the Auger effect is included have been studied as a function of the incident electron energy. Five and six fold differential cross sections in angle and in energy have been measured and analysed in a coplanar geometry.

The efficiency of the apparatus has been improved by the use of a new toroidal analyser. For the first time, the six fold differential cross section in which the Auger electron and the ejected electron with identical kinetic energies (205 eV) are involved, was measured at an incident energy of 956 eV in the case of argon.

In the theoretical models developed during this work, the triple continuum is represented by a manifold of coulomb waves describing the interaction of all electrons with the residual ion. Exchange effects between electrons were also included in the models.

Comparison between experimental and theoretical results allows to study the relative contribution of the Auger process and the direct double ionisation on the angular dependence five fold differential cross section. In particular, the Auger process contribution seems to become increasingly important as the incident energy is increased.