

UNIVERSITE PARIS-SUD

Ecole Doctorale Ondes et Matière Institut des Sciences Moléculaires d'Orsay

DISCIPLINE Physique

THÈSE DE DOCTORAT soutenue le 25/04/2013

par **Chengjun LI**

Experimental study on electron impact double ionization dynamics for atomic and small molecular targets at intermediate incident energy

SYNTHESE EN FRANCAIS

Etude expérimentale de la dynamique de double ionisation des atomes et petites molécules par électron impact

L'étude de l'ionisation simple ou double des atomes et molécules par impact des particules chargés, et plus particulièrement par impact électronique, représente un des domaines les plus importants de la physique des collisions.

L'analyse des informations qu'apportent ces études joue un rôle essentiel aussi bien pour la compréhension de la structure de la matière que de la dynamique de la collision et présente un intérêt tant fondamental que pratique pour la compréhension de nombreux phénomènes naturels dans plusieurs domaines de la physique, tels que la biophysique, la physique des plasmas et astrophysique.

Nous avons étudié par des expériences dites $(e,3e)$ et $(e,3-1e)$ la dynamique de la double ionisation d'atomes et petites molécules. Nous utilisons un spectromètre d'électrons à double ou triple coïncidence, dans une géométrie coplanaire asymétrique où les électrons diffusés sont détectés dans un analyseur multi-angle dans un domaine fixé d'angles de diffusion, tandis que l'angle des électrons éjectés varie dans le plan de collision, plan formé par les vecteurs quantités de mouvement des électrons incident et diffusé et qui est perpendiculaire au jet de gaz.

L'acronyme $(e,3e)$ réfère spécifiquement à une expérience dans laquelle un électron projectile interagit avec la cible et lui arrache deux électrons. Les trois électrons dans l'état final (le diffusé et les deux électrons éjectés) sont analysés en énergie et en direction et sont détectés en coïncidence pour garantir qu'ils proviennent du même événement ionisant. La grandeur physique ainsi mesurée est la section efficace quintuplement différentielle qui contient l'information la plus complète et la plus détaillée sur le processus d'ionisation.

En raison de la difficulté technique des expériences ($e,3e$), liée à la très faible valeur des sections efficaces différentielles d'ordre 5, 5DCS, et au mauvais rapport signal sur bruit, attendu du fait que la grande majorité des électrons atteignant les détecteurs proviennent d'évènements de simple ionisation, il est également intéressant de considérer les expériences ($e,(3-1)e$) dans lesquelles deux des trois électrons présents dans l'état final sont détectés en coïncidence. Malgré l'intégration sur l'angle solide d'émission du troisième électron, la mesure de ces sections efficaces différentielles d'ordre 4 (4DCS) constitue une méthode précieuse d'investigation des processus de DI, sans les difficultés associées à une triple coïncidence.

En termes de mécanismes de double ionisation trois mécanismes sont envisageables (figure), pouvant conduire à la DI de la cible :

- (i) un processus de Shake off (SO) où l'électron incident interagit avec un électron de la cible, qui est éjecté. La seconde éjection résulte de la relaxation électronique due à la variation soudaine de la charge effective vue par le deuxième électron;
- (ii) un processus en 'deux étapes - une interaction' (dit two-step1, TS1) où le projectile interagit avec un électron de la cible, qui lui-même interagit avec le second, entraînant l'éjection de la paire;
- (iii) un processus 'en deux étapes - deux interactions' (Two-step2, TS2) où le projectile interagit successivement deux fois avec la cible, conduisant à sa double ionisation.

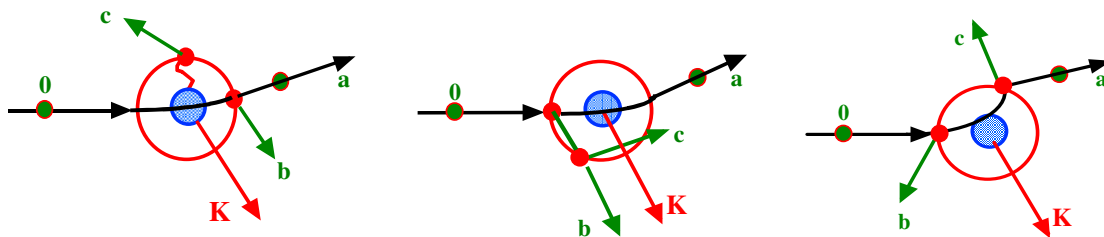


Figure: Représentations schématiques des mécanismes de double ionisation. De gauche à droite: Shake off SO, Two-step TS1 et Two-step TS2.

Une grandeur importante dans le processus d'ionisation est la quantité de mouvement K transmise à la cible par le projectile. Nous appelons mécanismes de premier ordre ceux qui impliquent une seule interaction avec la cible, comme SO et TS1. Comme la quantité de mouvement K est transférée lors d'une seule interaction, les distributions angulaires des électrons éjectés sont symétriques par rapport à cette quantité. Ce n'est pas le cas du mécanisme TS 2 où on perd l'information angulaire sur K . Ce dernier mécanisme peut être décrit de façon complètement cinématique simple en utilisant la théorie des collisions et donc en tenant compte du fait que les électrons sont émis avec une grande probabilité dans la direction des quantités de mouvement intermédiaires transmises à la cible lors des deux interactions impliqués dans le processus de double ionisation. A partir de cette idée l'équipe

du Professeur Azzedine Lahmam Bennani a modélisé le mécanisme TS2 et ils ont obtenu un modèle simple, appelé **modèle cinématique TS2**, qui sert à identifier les structures angulaires qui sont associées à ce mécanisme et qui peut être utilisé pour comparaison avec les résultats expérimentaux en absence des modèles théoriques.

Une contribution importante de notre travail a été donc de montrer que les conditions cinématiques utilisés (*énergie incidente d'environ 600 eV, énergie de l'électron diffusé fixé à 500 eV, énergies des électrons éjectés qui peu varier entre 5 eV et 80 eV*) permet de "favoriser" la contribution d'un mécanisme de DI par rapport aux autres mécanismes. Du point de vue théorique les processus du premier ordre doivent dominer les processus de second ordre. Au contraire dans les conditions cinématiques choisies, les distributions angulaires des électrons éjectés semblent dominées par ces derniers effets. Nous avons ainsi montré que le mécanisme de second ordre TS2 est largement présent dans nos observations et les résultats de ce travail ont été publiés dans des journaux à comité de lecture.

Tout d'abord nous avons étudié par des expériences (e,3-1e) la double ionisation des cibles atomiques comme He, Ar et Ne pour différentes énergies des électrons éjectés. Les distributions angulaires sont très riches et se caractérisent en général par un grand lobe dirigé dans la direction du moment transféré K par le projectile à la cible et un lobe dirigé vers les grands angles dans la direction $-K$. Un important shift par rapport à la quantité de mouvement K est observé dans tous les cas étudiés et des structures supplémentaires, très éloignées de la direction K viennent enrichir les distributions angulaires. Ces observations n'ont pas pu être reproduites par un modèle théorique qui tient compte que des mécanismes de premier ordre comme le modèle First Born Approximations with Three Coulomb Waves (FBA-3C), développé par C Dal Cappello. Même si ce premier modèle tient compte des interactions post-collisionnelles entre les électrons issus de l'interaction, il n'est pas suffisant pour décrire les résultats expérimentaux. L'accord est trouvé généralement lorsqu'on tient compte des mécanismes de deuxième ordre (comme TS2) où le projectile interagit une fois avec la cible en éjectant un électron et une deuxième fois avec la cible pour éjecter le deuxième.

Nous avons donc comparé nos résultats expérimentaux avec des modèles « de deuxième ordre » comme « Two-Step 2-Monte Carlo Event Generator » développé par M Schultz et « Second Born Approximation » développé par C Dal Cappello et on trouve un bon accord entre l'expérience et théorie. Nous avons donc conclu que le mécanisme TS2, considéré comme pas importante avant d'avoir ces preuves expérimentales, joue un rôle essentiel dans le processus de double ionisation.

Le succès de ces expériences nous a poussé à les étendre aux cibles moléculaires, pour lesquelles il existe très peu de données dans la littérature, avec comme premier but de tester les modèles théoriques existants. Nous avons d'abord mesuré la distribution angulaire de la section efficace quadruplement différentielle de DI (e,3-1e) de la molécule N_2 dans une

géométrie symétrique (les énergies des électrons éjectés sont identiques) et pour deux cas cinématiques : l'énergie des électrons éjectés est égale à 12 eV et respectivement à 37 eV. En l'absence des modèles théoriques, nous avons comparé les résultats expérimentaux à notre modèle cinématique TS2 et la comparaison montre la présence des structures associées aux mécanismes de deuxième ordre.

Nous avons également mesuré pour la première fois par des mesures complètes (e, 3e) la section efficace quintuplement différentielle de DI (e,3e) de N₂ pour les mêmes énergies des électrons éjectés. Les résultats sont comparés aux prédictions d'un modèle théorique de premier ordre représentant l'état de l'art actuel, développé par B. Joulakian et ses collaborateurs qui tiennent compte de la corrélation entre les électrons après l'interaction. Des énormes différences existent entre la théorie et l'expérience et cette comparaison montre que les distributions angulaires détectées doivent être associées à des mécanismes de deuxième ordre comme le mécanisme TS2. Nous avons expliqué l'origine des structures les plus importantes en utilisant notre modèle cinématique TS2.

Des résultats préliminaires de DI par des expériences (e,3-1e) sur Ne et CH₄ sont par la suite présentés. Nous voulons comparer et étudier la différence de dynamique pour le processus de double ionisation entre ces deux cibles isoélectroniques et également identifier le comportement moléculaire de CH₄. Les premières observations montrent une différence importante qui attend d'être confirmée par des prochaines mesures.

En conclusion, ce travail de thèse a été dirigé vers l'étude de la double ionisation par impact électronique des cibles simples et il a démontré que dans la gamme d'énergies étudiées, les mécanismes de deuxième ordre (comme TS2) sont très importants et doivent être pris en considération dans les traitements théoriques. Les résultats de cette thèse ont été publiés dans plusieurs journaux à comité de lecture et ce travail a été particulièrement bien reçu (par exemple l'article C Li et al 2012 J. Phys. B. 45 135201 a été sélectionné comme « highlight » par les éditeurs de J.Phys. B).