



HAL
open science

Etude de l'ionisation de la molécule d'eau par impact d'ions

Ouarda Boudrioua

► **To cite this version:**

Ouarda Boudrioua. Etude de l'ionisation de la molécule d'eau par impact d'ions. Autre [cond-mat.other]. Université Paul Verlaine - Metz, 2007. Français. NNT: 2007METZ004S . tel-01749032

HAL Id: tel-01749032

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01749032>

Submitted on 29 Mar 2018

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.



AVERTISSEMENT

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

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

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

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

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

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

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

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

Thèse

Présentée pour obtenir le grade de Docteur
de l'université Paul Verlaine de Metz

Discipline : Physique

Spécialité : Physique Atomique et des collisions

Ouarda BOUDRIOUA

Etude de l'ionisation de la molécule d'eau par impact d'ions

Soutenue le 12 Juin 2007 devant le jury composé de

Rapporteur	P. A. HERVIEUX	Professeur à l'Université de Strasbourg
Rapporteur	S. HOUAMER	Maître de Conférences à l'Université Ferhat Abbas-Sétif (Algérie)
Examineur	J. LANGLOIS	Professeur à l'Université de Brest
Directeur de thèse	C. DAL CAPPELLO	Professeur à l'Université de Metz
Examineur	C. CHAMPION	Maître de Conférences à l'Université de Metz
Examineur	F. MENAS	Maître de Conférences à l'Université Mouloud Mammeri de Tizi Ouzou (Algérie)

Introduction Générale	6
I Eléments de la théorie des collisions	9
I.1 Introduction	9
I.2 Description de l'état initial	12
I.3 Description de l'état final	16
I.3.1 le modèle FBA-CW	16
I.3.1.1 Exemple de calcul :(1s)	17
I.3.1.2 Exemple de calcul : (2p0).....	20
I.3.2 le modèle 2CW	23
I.3.3 le modèle BBK	29
I.4 Calcul explicite de l'élément de matrice	33
I.5 L'approximation de la collision binaire	34
II Résultats et discussion	35
II.1 Ionisation de la molécule d'eau par impact de protons.....	35
II.1.1 Section efficace doublement différentielle (SDCS).....	35
II.1.2 Section efficace simplement différentielle (SDCS).....	51
II.1.3 Section efficace totale	53
II.2 Ionisation de la molécule d'eau par impact de particules alpha	55
II.2.1 Section efficace doublement différentielle (SDCS).....	55
II.2.2 Section efficace simplement différentielle (SDCS).....	66
II.2.3 Section efficace totale	68
II.3 Ionisation de la molécule d'eau par impact de particules C ⁶⁺	70
II.3.1 Section efficace doublement différentielle (SDCS).....	70
II.3.2 Section efficace simplement différentielle (SDCS).....	75
II.3.3 Section efficace totale	77
III CONCLUSION ET PERSPECTIVES FUTURES	80
Références	82
ANNEXE A	87
ANNEXE B	88

Fig. 1 L'état initial du système	12
Fig. 2 Système de coordonnées utilisé dans la définition des orbitales atomiques de H_2O . La molécule d'eau se trouve dans le plan xOz pour la fonction de Moccia.....	14
Fig. 3 Distribution angulaire de la section efficace doublement différentielle pour	37
Fig. 4 Distribution angulaire de la section efficace doublement différentielle pour la simple ionisation de H_2O par impact d'un proton de 0.5 MeV pour différentes valeurs de l'énergie de l'électron éjecté.....	38
Fig. 5 Distribution angulaire de la section efficace doublement différentielle pour la simple ionisation de H_2O par impact d'un proton de 1 MeV pour différentes valeurs de l'énergie de l'électron éjecté.....	39
Fig. 6 Distribution angulaire de la section efficace doublement différentielle pour la simple ionisation de H_2O par impact d'un proton de 1.5 MeV pour différentes valeurs de l'énergie de l'électron éjecté.....	40
Fig. 7 Distribution angulaire de la section efficace doublement différentielle pour la simple ionisation de la molécule d'eau par impact d'un proton de 0.5 MeV. L'énergie de l'électron éjecté est de 250 eV.....	46
Fig. 8 Distribution angulaire de la section efficace doublement différentielle pour la simple ionisation de la molécule d'eau par impact d'un proton de 0.3 MeV. L'énergie de l'électron éjecté est de 100 eV.....	47
Fig. 9 Distribution angulaire de la section efficace doublement différentielle pour la simple ionisation de H_2O par impact d'un proton de 100 keV pour différentes valeurs de l'énergie de l'électron éjecté.....	48
Fig. 10 Contribution de chaque orbitale moléculaire de la molécule..... d'eau à la DDCS pour un proton de 1.5 MeV et une énergie de l'électron éjecté de 250 eV.	49 49
Fig. 11 La section efficace simplement différentielle de la simple ionisation de la molécule d'eau en fonction de l'énergie de l'électron éjecte pour différentes valeurs d'énergies du proton incident	52
Fig. 12 La section efficace totale en fonction de l'énergie du proton incident. Les résultats théoriques (modèle FBA-CW) sont comparés à des données expérimentales : cercles et triangles Rudd et al. [7,40], diamants Bolorizadeh et Rudd [9]. Les étoiles représentent les résultats théoriques de Gervais et al. [39].....	54
Fig. 13 Section efficace doublement différentielle pour la simple ionisation de la molécule d'eau par des particules alpha de 6 MeV /u en fonction de l'angle d'éjection et pour différentes valeurs de l'énergie de l'électron éjecté.	57
Fig. 14 Section efficace doublement différentielle pour la simple ionisation de la molécule d'eau par des particules alpha de 10 MeV /u en fonction de l'angle d'éjection et pour différentes valeurs de l'énergie de l'électron éjecté.	58
Fig. 15 Section efficace doublement différentielle pour la simple ionisation de la molécule d'eau par des particules alpha de 15 MeV /u en fonction de l'angle d'éjection et pour différentes valeurs de l'énergie de l'électron éjecté.	59
Fig.16 Section efficace doublement différentielle pour l'ionisation de l'eau par des particules alpha de 1.2 MeV en fonction de l'énergie de l'électron éjecté pour trois angles d'éjection fixés à $\theta_e = 15^\circ$ et $\theta_e = 30^\circ$, et $\theta_e = 45^\circ$. Les résultats théoriques (ligne continue) obtenus par le modèle FBA-CW sont comparés aux expériences de Toburen et al. [9].....	62
Fig. 17 a) Comparaison des résultats du modèle FBA-CW aux résultats..... expérimentaux de Toburen et al. [6] pour une énergie incidente des particules alpha de 2 MeV en fonction de l'angle d'éjection, pour différentes valeurs de l'énergie de l'électron éjecté.....	65 65

Fig. 17 b) Comparaison entre les DDCS obtenues par les trois modèles théoriques étudiés dans ce travail (FBA-CW, 2CW et BBK) aux expériences de Toburen et al. pour une énergie des particule alpha de 2 MeV en fonction de l'angle d'éjection, pour une valeur fixe de l'énergie éjecté de 200 eV.	65
Fig. 18 La section efficace simplement différentielle de la simple ionisation de la molécule d'eau en fonction de l'énergie de l'électron éjecté pour différentes valeurs de l'énergie incidente des particules alpha.	67
Fig. 19 Section efficace totale en fonction de l'énergie des particules alpha incidentes	69
Fig. 20 La section efficace doublement différentielle de l'ionisation de la molécule d'eau par des ions C^{6+} de 72 MeV /u pour différentes valeurs de l'énergie des électrons éjectés en fonction de l'angle d'éjection.	71
Fig. 21 Section efficace doublement différentielle pour l'ionisation de la molécule d'eau par des ions C^{6+} de 72 MeV /u en fonction de l'énergie des électrons éjectés pour trois angles d'éjection.	74
Fig. 22 La section efficace simplement différentielle pour la simple ionisation de la molécule d'eau en fonction de l'énergie de l'électron éjecté pour des ions C^{6+} de 72 MeV /u . Comparaison entre les résultats théoriques obtenus par le modèle FBA- CW et l'expérience de Oshawa et al.	76
Figure 23 La section efficace totale calculée par le modèle FBA-CW en fonction de l'énergie de l'ion C^{6+} incident.	78
Figure 24 Comparaison entre les trois sections efficace totales pour l'ionisation de la molécule d'eau par impact des trois ions (H^+ , He^{2+} et C^{6+}).	79

Tableau 1 Les nombres quantiques (n_{ik}, l_{ik}, m_{ik}) et les différents coefficients (a_{ik}, ξ_{ik}) inclus dans les combinaisons linéaires des orbitales atomique de la molécule d'eau. Les cinq orbitales moléculaires des orbitales atomique de la molécule d'eau sont $1a_1, 2a_1, 3a_1, 1b_2, 1b_1$ respectivement.

Tableau 2 comparaison entre les valeurs calculées par Moccia et les valeurs expérimentales concernant le moment dipolaire μ , la première énergie d'ionisation (IP), la longueur de liaison O-H, la longueur de liaison H-H et l'angle H-O-H.

Tableau 3 Les valeurs théorique des angles d'éjections correspondant au pic de la collision binaire pour des énergies du proton incident de 0.3, 0.5, 1 et 1.5 MeV pour différents valeurs d'énergie de l'électron éjecté : 12, 50, 100, 250, 750 et 2200 eV.

Tableau 4 Comparaison entre les angles d'éjection critiques théoriques et expérimentaux correspondant à une collision binaire pour différentes énergies incidentes du proton et pour différents énergies de l'électron éjecté.

Tableau 5 Les valeurs théorique des angles d'éjections correspondant au pic de la collision binaire pour des énergies des ions incidents de 6, 10, 15 MeV/u He^{2+} et pour différents valeurs d'énergies de l'électron éjecté : 19.2, 38.5, 96.2, 192, 385, et 673 eV.

Tableau 6 Comparaison entre les angles d'éjections critiques théoriques et expérimentaux correspondant à une collision binaire pour différentes énergies des particules alpha pour différentes énergies des électrons éjectés.

Tableau 7 Les valeurs théoriques des angles d'éjections correspondant au pic de la collision binaire pour des énergies des ions incidents de 6.0 MeV /u C^{6+} et pour différentes valeurs d'énergies de l'électron éjecté : 9.6, 19.2, 38.5, 67.3, 96.2, 192, et 384 eV.

Tableau 8 Comparaison entre les angles d'éjection critiques théoriques et expérimentaux correspondant à une collision binaire pour différentes énergies incidentes des ions C^{6+} et pour différentes énergies de l'électron éjecté.

Introduction Générale

L'ionisation d'atomes et de molécules par des particules chargées est un des processus fondamentaux qui intervient dans un grand nombre de domaines de la physique tel que la physique des plasmas, l'astrophysique et l'interaction avec la matière vivante[1-3].

Dans ce dernier cas, les données numériques des sections efficaces différentielles et totales se sont avérées indispensables pour modéliser l'interaction particule chargée-matière vivante, en particulier pour la thérapie du cancer [4].

Il est à remarquer que jusqu'à présent la matière vivante est souvent modélisée par les molécules d'eau, d'où l'importance de l'étude de l'ionisation de cette molécule.

Nous nous limiterons dans ce travail à l'étude de l'ionisation de la molécule d'eau en phase vapeur par impact de particules chargées massives (protons, particules alpha...).

Les mesures expérimentales (sections efficaces différentielles et totales) relatives à l'ionisation de la molécule d'eau (en phase vapeur) avec des particules chargées massives sont extrêmement rares.

Un premier travail a été effectué par Toburen et Wilson [5] qui ont mesuré les sections efficaces doublement différentielles (DDCS) pour des protons de 300-1500 keV. Puis Toburen et al. [6] ont aussi mesuré des DDCS pour 300-2000 keV pour des collisions avec des ions He^+ et He^{2+} . Plus tard, Rudd et al. [7-8] ont réalisé des expériences d'ionisation de la molécule d'eau par impact de protons de 7-4000 keV et d'ions He^+ de 5-450 keV et ont également mesuré la section totale. Plus récemment, Bolorizadeh et Rudd [9] ont prolongé le travail précédent de Rudd et al. [7] en mesurant les DDCS pour l'impact de protons de 15-150 keV. L'ionisation multiple et la fragmentation de la molécule d'eau ont été étudiées par Werner et al. [10] pour l'impact de protons et d'ions He^+ . Gobet et al. [11] ont déterminé un certain nombre de sections efficaces d'ionisation de la molécule d'eau par impact de protons d'énergie 20-150 keV en incluant les sections efficaces totales et partielles pour les ions H^+ et H_2O^+ . Récemment, Gobet et al. [12] ont réussi à déterminer un ensemble complet de sections efficaces partielles absolues correspondant aux fragments H^+ , H_2O^+ , OH^+ , O^+ .

Plus récemment, Oshawa et al. [14] ont mesuré des sections efficace doublement différentielles pour les distributions angulaires d'électrons secondaires produit dans les collisions ion He^{2+} -molécule d'eau de 6.0 et 10.0 MeV/ u et ont évalué les sections

efficaces simplement différentielle (SDCS) en intégrant leurs données expérimentales provenant des DDCS.

Du point de vue théorique peu de modèles ont été proposés pour étudier l'ionisation directe de la molécule d'eau par impact de particules chargées massives.

Senger et al. [15-16] ont appliqué l'approximation de Born en utilisant le modèle (FBA-CW) où le proton incident et le proton diffusé sont décrits par des ondes planes alors que l'électron éjecté est décrit par une onde coulombienne. En fait Senger et al. sont partis de la formule de Kuyatt et Jorgensen [17] correspondant à l'ionisation de l'atome d'hydrogène par impact de protons et de son extension aux couches L et M par Khandelwal et Merzbacher [18, 19] et Choi et al. [20] (dans ces derniers cas c'est l'ionisation d'un atome d'hydrogène excité préalablement dans une couche L ou M). De plus, ils ont utilisé le facteur de Salin [21] qui permet de prendre en compte le mécanisme de capture de l'électron éjecté dans le continuum. Récemment, Olivera et al. [22] ont utilisé l'approximation (CDW-EIS) (Fainstein et al. [23]), qui inclut les effets de longue portée du potentiel coulombien, aussi bien pour l'état final que pour l'état initial. Malheureusement, Olivera et al. [22] (comme Senger et al. [15-16]) n'ont jamais utilisé une fonction d'onde précise pour décrire l'état initial de la molécule d'eau. Ainsi Olivera et al. ont utilisé la méthode CNDO (Complete Neglect of Differential Overlap) (dans cette méthode, comme son nom l'indique, tous les recouvrements sont négligés, Siegbahn et al. [24]), dans laquelle les orbitales moléculaires sont des combinaisons linéaires des orbitales atomiques des constituants.

Dans le présent travail, nous décrivons l'approche théorique que nous avons adoptée pour traiter le processus d'ionisation de la molécule d'eau par impact de particules chargées massives. Trois modèles différents ont été étudiés, tous décrivant l'état fondamental de la cible moléculaire par une fonction d'onde précise mono-centrique (centrée sur l'atome d'oxygène) se développant sur une base de fonctions de type Slater. Les trois modèles prendront en compte successivement l'interaction électron éjecté-ion moléculaire (modèle FBA-CW, mais avec une bien meilleure description de l'état initial), l'interaction particule massive diffusée-ion moléculaire (modèle 2CW) puis l'interaction électron éjecté-particule massive diffusée (modèle BBK, Brauner et al. [26]). La prise en compte de l'interaction électron éjecté-particule massive diffusée expliquera en grande partie l'augmentation brutale de la section efficace quand l'électron est éjecté dans une direction proche de celle

de la diffusion de la particule massive et pour une vitesse de l'électron éjecté proche de celle de la particule massive diffusée (capture de l'électron dans le continuum (ECC)).

Chapitre I

I Eléments de la théorie des collisions

I.1 Introduction

Il ne nous a pas semblé nécessaire de rappeler la théorie formelle des collisions dans ce chapitre sachant que le lecteur intéressé pourra toujours consulter les ouvrages généraux (tel que Goldberger et Watson...).

Nous nous attacherons par contre à détailler les modèles utilisés dans ce travail.

Le système d'unités atomiques sera toujours utilisé sauf indications spécifiques contraires.

Le processus de l'ionisation directe de la molécule d'eau par une particule chargée massive est schématisé par :



On considère ici une particule chargée massive de charge z_p , de masse μ et de moment initial \vec{k}_i qui ionise une molécule d'eau en phase vapeur.

L'état final du système {p-H₂O} est caractérisé par un proton diffusé de moment \vec{k}_s , un électron éjecté de moment \vec{k}_e et l'ion H₂O⁺.

La section quadruplement différentielle s'écrit (d'après Massey et Mohr [27]) :

$$\frac{d^4\sigma}{k_s^2 dk_s d\Omega_s k_e^2 dk_e d\Omega_e} = \frac{\mu}{k_i} |T_{fi}|^2 \delta\left(\frac{k_i^2}{2\mu} - |I_i| - \frac{k_s^2}{2\mu} - \frac{k_e^2}{2} - \frac{(\vec{K} - \vec{k}_e)^2}{2M_{ion}}\right), \quad (2)$$

Si dans une expérience d'ionisation de l'eau par impact de particules chargées massives on était capable de détecter en coïncidence l'électron éjecté et la particule massive diffusée

(expérience analogue aux (e, 2e) des collisions électron-atome ou molécule) on aurait accès à la section efficace triplement différentielle :

$$\frac{d^3\sigma}{d\Omega_s d\Omega_e d\left(\frac{k_e^2}{2}\right)} = \frac{\mu^2}{k_i} k_s k_e |T_{fi}|^2, \quad (3)$$

La relation (3) s'obtient à partir de la relation (2) en utilisant une propriété de la fonction de Dirac (C. COHEN-TANNOUJJI, B. DIU et F. LALOE , mécanique quantique tome II, éditeur Hermann appendice II) :

$$\delta(ax) = \frac{1}{|a|} \delta(x), \quad (3)$$

Donc en intégrant par rapport à

$$k_s dk_s = d\left(\frac{k_s^2}{2}\right), \quad (4)$$

et en utilisant la fonction de Dirac un terme μ apparaît au numérateur.

L'énergie d'ionisation est notée I_i et M_{ion} est la masse de l'ion de l'eau H_2O^+ . Le moment de transfert est défini par $\vec{K} = \vec{k}_i - \vec{k}_s$ et correspond à la quantité de mouvement transférée par la particule incidente à la cible lors de la collision.

La section efficace est différentielle en énergie de l'électron éjecté $\frac{k_e^2}{2}$, différentielle en direction de l'électron éjecté $d\Omega_e$, différentielle en énergie de la particule diffusée $\frac{k_s^2}{2\mu}$ et différentielle en direction de la particule diffusée $d\Omega_s$.

Dans les expériences considérées ici, la particule diffusée n'est pas détectée en coïncidence avec l'électron éjecté, et seul l'électron éjecté est détecté. On obtient alors une section efficace doublement différentielle (DDCS) qui s'écrit :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega_e dE_e} = \frac{\mu k_e}{k_i} \int |T_{fi}|^2 \delta\left(\frac{k_i^2}{2\mu} - |I_i| - \frac{k_s^2}{2\mu} - \frac{k_e^2}{2} - \frac{(\vec{K} - \vec{k}_e)^2}{2M_{ion}}\right) d\vec{k}_s, \quad (5)$$

Soit, après intégration sur k_s

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega_e dE_e} = \frac{\mu^2 k_e k_s}{k_i} \int d\Omega_s |T_{fi}|^2, \quad (6)$$

L'intégrale sur l'angle solide de la particule diffusée Ω_s peut aussi s'écrire :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega_e dE_e} = \frac{\mu^2 k_e}{k_i^2} \int K dK d\varphi_s |T_{fi}|^2, \quad (7)$$

Si $|T_{fi}|^2$ ne dépend pas de φ_s (première approximation de Born) l'intégrale double se réduit à une simple intégration sur le moment du transfert.

On a utilisé ici :

$$2KdK = 2k_i k_s \sin \theta_s d\theta_s, \quad (8)$$

et

$$d\Omega_s = \frac{KdK}{k_i k_s} d\varphi_s, \quad (9)$$

L'amplitude de diffusion est donné par :

$$T_{fi} = \frac{-Z_p}{2\pi} \langle \psi_f | V | \psi_i \rangle, \quad (10)$$

où V représente l'interaction entre la particule incidente et la cible :

$$V = -\frac{8}{r_0} - \frac{1}{|\vec{r}_0 - \vec{R}_1|} - \frac{1}{|\vec{r}_0 - \vec{R}_2|} + \sum_{i=1}^{i=10} \frac{1}{|\vec{r}_0 - \vec{r}_i|}, \quad (11)$$

où \vec{r}_i ($i=0,1,2,\dots,10$) désigne la position des électrons par rapport au centre situé sur l'atome d'oxygène. $R_1 = R_2 = R_{OH}$ représente la longueur de la liaison O-H ($R_{OH}=1.81$ a.u. [25]).

I.2 Description de l'état initial

L'état initial du système est composé du proton incident et de la molécule d'eau.

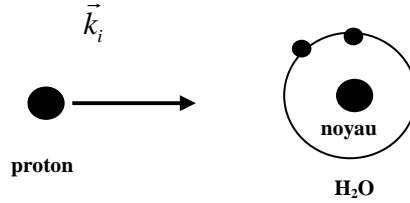


Fig. 1 L'état initial du système

La fonction d'onde qui décrit l'état initial sera le produit d'une fonction d'onde plane (pour le proton incident) par une fonction d'onde moléculaire concernant les électrons de la molécule d'eau.

$$|\psi_i\rangle = \left| \phi(\vec{k}_i, \vec{r}_0) \varphi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_{10}) \right\rangle \quad (12)$$

avec \vec{r}_0 la position de l'origine (l'atome de l'oxygène). L'état fondamental des dix électrons de la molécule d'eau avec les vecteurs de positions $\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_{10}$ est décrit par Moccia (1964) [25] qui exprime la fonction d'onde moléculaire par des fonctions de types Slater toutes centrées sur une origine commune, l'atome le plus lourd, ici l'oxygène.

Les 10 électrons de l'état fondamental sont distribués entre cinq fonctions mono-centriques $v_j(\vec{r})$ (avec $j=1, \dots, 5$) équivalant à cinq orbitales moléculaires $^1b_1, ^3a_1, ^1b_2, ^2a_1$, et 1a_1 respectivement. Les énergies d'ionisation de chaque électron d'une orbitale moléculaire sont respectivement égales à 12.6, 14.7, 18.5, 32.2, 558.5 eV.

Les orbitales moléculaires de la molécule d'eau sont écrites sous la forme:

$$v_j(\vec{r}) = \sum_{k=1}^{N_j} a_{jk} \Phi_{n_{jk} l_{jk} m_{jk}}^{\xi_{jk}}(\vec{r}) \quad (13)$$

où N_j est le nombre de fonctions de type Slater utilisé dans le développement de la j^{ieme} orbitale moléculaire et a_{jk} le poids de chaque composante atomique réelle $\Phi_{n_{jk} l_{jk} m_{jk}}^{\xi_{jk}}(\vec{r})$ (Le

tableau 1 donne les nombres quantiques (n_{ik}, l_{ik}, m_{ik}) et les différents coefficients (a_{ik}, ξ_{ik}) calculés par Moccia).

Dans l'équation (13), $\Phi_{n_{jk}l_{jk}m_{jk}}^{\xi_{jk}}(\vec{r})$ est écrit comme suit :

$$\Phi_{n_{jk}l_{jk}m_{jk}}^{\xi_{jk}}(\vec{r}) = R_{n_{jk}}^{\xi_{jk}}(r) S_{l_{jk}m_{jk}}(\vec{r}) \quad (14)$$

où la partie radiale est donnée par :

$$R_{n_{jk}}^{\xi_{jk}}(r) = \frac{(2\xi_{jk})^{n_{jk}+1/2}}{\sqrt{(2n_{jk})!}} r^{n_{jk}-1} e^{-\xi_{jk}r} \quad (15)$$

et où $S_{l_{jk}m_{jk}}(\vec{r})$ sont les harmoniques solides réelles. Leur expression en fonction de la valeur de m_{jk} est :

$$\begin{cases} \text{if } m_{jk} \neq 0: & S_{l_{jk}m_{jk}}(\vec{r}) = \left(\frac{m_{jk}}{2|m_{jk}|} \right)^{1/2} \left\{ Y_{l_{jk}-|m_{jk}|}(\vec{r}) + (-1)^{m_{jk}} \left(\frac{m_{jk}}{|m_{jk}|} \right) Y_{l_{jk}|m_{jk}|}(\vec{r}) \right\} \\ \text{if } m_{jk} = 0: & S_{l_{jk}0}(\vec{r}) = Y_{l_{jk}0}(\vec{r}) \end{cases} \quad (16)$$

tel que :

$$Y_{lm}(\vec{r}) = \sum_{\mu=-l}^{+l} D_{\mu m}^{(l)}(\tilde{\alpha}, \tilde{\beta}, \tilde{\gamma}) Y_{l\mu}(\vec{r}_{col}) \quad (17)$$

où $D_{\mu m}^{(l)}(\tilde{\alpha}, \tilde{\beta}, \tilde{\gamma})$ est la matrice de rotation et $(\tilde{\alpha}, \tilde{\beta}, \tilde{\gamma})$ les angles d'Euler.

Cette fonction d'onde est très précise car elle reproduit les principales caractéristiques de la molécule d'eau telles que le moment dipolaire, la première énergie d'ionisation (IP) et les paramètres géométriques de la molécule (voir tableau 2).

	Calculé par Moccia	Valeur expérimentale
μ (a.u.)	0.8205	0.728
IP(a.u.)	0.4954	0.463
O-H	1.814	1.810
H-H	2.907	2.873
H-O-H	106.53°	105.5°

Tableau 2 : Comparaison entre les valeurs calculées par Moccia et les valeurs expérimentales concernant le moment dipolaire μ , la première énergie d'ionisation (IP), la longueur de liaison O-H, la longueur de liaison H-H et l'angle H-O-H.

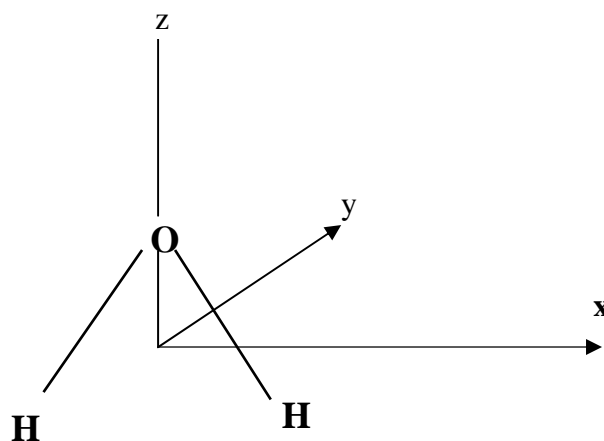


Fig. 2 Système de coordonnées utilisé dans la définition des orbitales atomiques de H_2O . La molécule d'eau se trouve dans le plan xOz pour la fonction de Moccia.

$n_{(i)}$	$l_{(i)}$	$m_{(i)}$	ξ	$1a_1$	$2a_1$	$3a_1$	$1b_2$	$1b_1$
1	0	0	12.600	0.05167	0.01889	-0.00848		
1	0	0	7.450	0.94656	-0.25592	0.08241		
2	0	0	2.200	-0.01708	0.77745	-0.30752		
2	0	0	3.240	0.02497	0.09939	-0.04132		
2	0	0	1.280	0.00489	0.16359	0.14954		
2	1	0	1.510	0.00107	0.18636	0.79979		
2	1	0	2.440	-0.00244	-0.00835	0.00483		
2	1	0	3.920	0.00275	0.02484	0.24413		
3	2	0	1.600	0.00000	0.00695	0.05935		
3	2	0	2.400	0.00000	0.00215	0.00396		
3	2	2	1.600	-0.00004	-0.06403	-0.09293		
3	2	2	2.400	0.00003	-0.00988	0.01706		
4	3	0	1.950	-0.00004	-0.02628	-0.01929		
4	3	2	1.950	-0.00008	-0.05640	-0.06593		
2	1	-1	1.510				0.88270	
2	1	-1	2.440				-0.07083	
2	1	-1	3.920				0.23189	
3	2	-1	1.600				0.25445	
3	2	-1	2.400				-0.01985	
4	3	-1	1.950				0.04526	
4	3	-3	1.950				-0.06381	
2	1	1	1.510					0.72081
2	1	1	2.440					0.11532
2	1	1	3.920					0.24859
3	2	1	1.600					0.05473
3	2	1	2.400					0.00403
4	3	1	1.950					0.00935
4	3	3	1.950					-0.02691

Tableau 1 Les nombres quantiques (n_{ik}, l_{ik}, m_{ik}) et les différents coefficients (a_{ik}, ξ_{ik})

inclus dans les combinaisons linéaires des orbitales atomique de la molécule d'eau.

Les cinq orbitales moléculaires nécessaires pour décrire la molécule d'eau sont

$1a_1, 2a_1, 3a_1, 1b_2, 1b_1$ respectivement.

I.3 Description de l'état final

L'état final est représenté par un produit de deux fonctions d'ondes, l'une décrivant la particule diffusée et l'autre les électrons de la cible. Si les phénomènes d'échange électron éjecté-électrons de la cible sont négligés la fonction d'onde décrivant tous les électrons se factorise par un produit de deux termes :

$$\psi_f(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_{10}; \vec{k}_e; \vec{s}_1, \dots, \vec{s}_{10}) = \varphi_e(\vec{k}_e, \vec{r}_i; \vec{s}_i) \varphi_f(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_{i-1}, \vec{r}_{i+1}, \dots, \vec{r}_{10}; \vec{s}_1, \dots, \vec{s}_{i-1}, \vec{s}_{i+1}, \dots, \vec{s}_{10}), \quad (18)$$

dans lequel $\varphi_f(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_{10}; \vec{k}_e; \vec{s}_1, \dots, \vec{s}_{10})$ est un déterminant de Slater 10×10 .

Finalement la fonction d'onde décrivant l'état final s'écrira :

$$\psi_f^T = \varphi_p(\vec{k}_s, \vec{r}_0; \vec{s}_0) \varphi_e(\vec{k}_e, \vec{r}_1; \vec{s}_1) \varphi_f(\vec{r}_2, \dots, \vec{r}_{10}; \vec{s}_2, \dots, \vec{s}_{10}), \quad (19)$$

Nous allons maintenant examiner les différents modèles utilisés pour décrire le produit

$$\varphi_{(p,e)} = \varphi_p(\vec{k}_s, \vec{r}_0) \varphi_e(\vec{k}_e, \vec{r}_1) \quad (20)$$

I.3.1 le modèle FBA-CW

Dans le cadre de la première approximation de Born (la particule incidente interagit avec la cible une seule fois) la particule diffusée est décrite par une onde plane (donc on néglige toutes les interactions de cette dernière avec la cible ionisée et l'électron éjecté). L'électron éjecté, généralement moins rapide, est alors décrit par une onde coulombienne. Ceci signifie que l'on prend en compte l'interaction électron éjecté-ion H_2O^+ . L'avantage de ce modèle est de ramener le calcul des éléments de matrice (tel que celui de T_{fi}) à de simples expressions analytiques. Ceci permet un calcul très rapide des sections efficaces différentielles doubles (DDCS) et simples (SDCS).

L'expression de l'état final représentant la particule diffusée et l'électron éjecté sera ici :

$$e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0} \frac{e^{i\vec{k}_e \cdot \vec{r}_1}}{(2\pi)^{3/2}} e^{\pi z_e / k_e \Gamma(1 + \frac{iz_e}{k_e})} {}_1F_1\left(-\frac{iz_e}{k_e}, 1, -i(k_e r_1 + \vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1)\right), \quad (21)$$

Z_e correspond à la charge ionique efficace et sera prise égale à 1 (Brothers et Bonham [33]). Le calcul de l'élément de matrice T_{fi} nécessite le calcul de l'expression suivante :

$$M_{FBA-CW} = \left\langle \frac{e^{i\vec{k}_e \cdot \vec{r}_e}}{(2\pi)^{3/2}} e^{\pi z_e / k_e} \Gamma\left(1 + \frac{iz_e}{k_e}\right) {}_1F_1\left(\frac{-iz_e}{k_e}, 1, -i(k_e r_1 + \vec{k}_e \cdot \vec{r}_1)\right) \middle| e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_1} \middle| \varphi_i(\vec{r}_i) \right\rangle, \quad (22)$$

où $\varphi_i(\vec{r}_i)$ désigne une orbitale de Slater. Le calcul de (22) peut se faire EXACTEMENT en suivant la méthodologie développée par (Brothers et Bonham [33]) pour des $\varphi_i(\vec{r}_i)$ correspondant à 1s, 2s, 2p₀, 2p₁, 2p₋₁, 3p₀, 3p₁, 3p₋₁, 4p₀, 4p₁ et 4p₋₁ et étendue par Dal Cappello (Thèse d'état 1986, non publiée) à 3s, 4s, 3d₀, 3d₁, 3d₋₁, 3d₂, 3d₋₂, 4f₀, 4f₁, 4f₋₁, 4f₂, 4f₋₂, 4f₃ et 4f₋₃. Nous détaillons maintenant cette méthode pour les cas de 1s et 2p₀.

I.3.1.1 Exemple de calcul :(1s)

$$M_{1s} = \left\langle \frac{e^{i\vec{k}_e \cdot \vec{r}}}{(2\pi)^{3/2}} e^{\pi\alpha/2} \Gamma(1+i\alpha) {}_1F_1(-i\alpha, 1, -i(k_e r + \vec{k}_e \cdot \vec{r})) \middle| e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \middle| \frac{\mathcal{E}^{3/2}}{\sqrt{\pi}} e^{-\varepsilon r} \right\rangle, \quad (23)$$

$$\text{avec} \quad \alpha = \frac{z}{k_e}$$

$${}_1F_1(a, c; z) = \frac{\Gamma(c)}{\Gamma(a)\Gamma(c-a)} \int_0^1 t^{a-1} (1-t)^{c-a-1} e^{zt} dt, \quad (24)$$

d'où

$${}_1F_1(i\alpha, 1, i(k_e r + \vec{k}_e \cdot \vec{r})) = \frac{1}{\Gamma(i\alpha)\Gamma(1-i\alpha)} \int_0^1 t^{i\alpha-1} (1-t)^{-i\alpha} e^{ik_e r t} e^{i\vec{k}_e \cdot \vec{r} t} dt, \quad (25)$$

$$M_{1s} = \left[\frac{e^{\pi\alpha/2} \Gamma(1-i\alpha)}{(2\pi)^{3/2}} \right] \left[\frac{\mathcal{E}^{3/2}}{\sqrt{\pi}} \right] \left[\frac{1}{\Gamma(i\alpha)\Gamma(1-i\alpha)} \right] \int_0^1 t^{i\alpha-1} (1-t)^{-i\alpha} dt \underbrace{\int e^{i(\vec{k}-\vec{k}_e) \cdot \vec{r}} e^{i\vec{k}_e \cdot \vec{r} t} e^{ik_e r t} e^{-\varepsilon r} d\vec{r}}_{(26)},$$

transformée de Fourier

$$M_{1s} = \left[\frac{e^{\pi\alpha/2} \Gamma(1-i\alpha)}{(2\pi)^{3/2}} \right] \frac{\mathcal{E}^{3/2}}{\sqrt{\pi}} \left[\frac{1}{\Gamma(i\alpha)\Gamma(1-i\alpha)} \right] 4\pi \left(\frac{-d}{d\varepsilon} \right) \int_0^1 \frac{t^{i\alpha-1} (1-t)^{-i\alpha}}{q^2 + \beta^2} dt, \quad (27)$$

avec $\vec{q} = \vec{K} - \vec{k}_e(1-t)$ et $\beta = \varepsilon - ik_e t$

$$q^2 + \beta^2 = A + Bt \quad \text{avec} \quad A = (\vec{K} - \vec{k}_e)^2 + \varepsilon^2 ; \quad B = -2[k_2^e + i\varepsilon k_e - \vec{K} \cdot \vec{k}_e]$$

et

$$M_{1s} = \left[\frac{e^{\pi\alpha/2} \Gamma(1-i\alpha)}{(2\pi)^{3/2}} \right] \frac{\varepsilon^{3/2}}{\sqrt{\pi}} \left[\frac{4\pi}{\Gamma(i\alpha)\Gamma(1-i\alpha)} \right] \left(\frac{-d}{d\varepsilon} \right) \int_0^1 t^{i\alpha-1} (1-t)^{-i\alpha} \left(\frac{1}{A} \right) (1-\omega t)^{-1}, \quad (28)$$

$$\text{avec } \omega = \frac{-B}{A} \quad \text{et} \quad A+B = K^2 + \varepsilon^2 - k_e^2 - 2i\varepsilon k_e$$

par l'utilisation de la relation :

$$\int_0^1 t^{b-1} (1-t)^{c-b-1} (1-\omega t)^{-a} dt = \frac{\Gamma(b)\Gamma(c-b)}{\Gamma(c)} {}_2F_1(a, b, c; \omega), \quad (29)$$

$$\text{ici} \quad b = i\alpha ; \quad a = 1 ; \quad c - b - 1 = -i\alpha \Rightarrow c = -i\alpha + 1 + i\alpha = 1$$

Et

$$\int_0^1 t^{i\alpha-1} (1-t)^{-i\alpha} (1-\omega t) dt = \frac{\Gamma(i\alpha)\Gamma(1-i\alpha)}{\Gamma(1)} {}_2F_1(1, i\alpha, 1; \omega), \quad (30)$$

$$\text{où} \quad {}_2F_1(1, i\alpha, 1; \omega) = (1-\omega)^{-i\alpha}$$

donc

$$M_{1s} = \frac{e^{\pi\alpha/2} \Gamma(1-i\alpha)}{(2\pi)^{3/2}} \frac{\varepsilon^{3/2}}{\pi} 4\pi \left(\frac{-d}{d\varepsilon} \right) \left\{ \frac{1}{A} \left(1 + \frac{B}{A} \right)^{-i\alpha} \right\} \quad (31)$$

soit :

$$M_{1s} = \frac{e^{\pi\alpha/2} \Gamma(1-i\alpha) \varepsilon^{3/2} \sqrt{2}}{\pi} \left(\frac{-d}{d\varepsilon} \right) \left\{ A^{i\alpha-1} (A+B)^{-i\alpha} \right\}, \quad (32)$$

$$\text{Si on pose } f = A^{i\alpha-1} \quad \text{et} \quad g = (A+B)^{-i\alpha}, \quad \frac{d}{d\varepsilon}(fg) = f'g + fg'$$

$$\text{Avec } \begin{cases} f' = 2\varepsilon(i\alpha - 1)A^{i\alpha-2} \\ g' = 2(\varepsilon - ik_e)(-i\alpha)(A+B)^{-i\alpha-1} \end{cases} \quad (33)$$

$$\begin{aligned} M_{1s} &= \frac{-e^{\pi\alpha/2}\Gamma(1-i\alpha)\varepsilon^{3/2}\sqrt{2}}{\pi} \times \\ & \left[2\varepsilon(i\alpha - 1)A^{i\alpha-2}(A+B)^{-i\alpha} + A^{i\alpha-1} 2(\varepsilon - ik_e)(-i\alpha)(A+B)^{-i\alpha-1} \right] \end{aligned} \quad (34)$$

Vérification

1) pour $z \rightarrow 0$ on doit retrouver la simple transformée de Fourier de $1s$:

$$\begin{cases} M_{1s} = \frac{\varepsilon^{3/2}\sqrt{2}}{\pi} \frac{2\varepsilon}{A^2} = \frac{2^{3/2}\varepsilon^{5/2}}{\pi(\varepsilon^2 + p^2)^2} \\ \text{et} \\ \chi_{1s}(\vec{p}) = \frac{2^{5/2}\varepsilon^{5/2}}{\sqrt{\pi}2\sqrt{\pi}(\varepsilon^2 + p^2)^2} \end{cases}$$

2) pour $z = \varepsilon$ et $K = 0$ alors $M_{1s}(K = 0) = 0$

$$M_{1s}(K = 0) = \frac{-e^{\pi\alpha/2}\Gamma(1-i\alpha)\varepsilon^{3/2}\sqrt{2}}{\pi A^{i\alpha-2}(A+B)^{-i\alpha-1}} \left[2\varepsilon(i\alpha - 1)(A+B) - 2i\alpha(\varepsilon - ik_e)A \right]$$

$$\text{et } (A+B)_{K=0} = \varepsilon^2 - k_e^2 - 2i\varepsilon k_e ; A_{K=0} = \varepsilon^2 + k_e^2$$

$$M_{1s}(K = 0) = \left[\frac{-e^{\pi\alpha/2}\Gamma(1-i\alpha)\varepsilon^{3/2}\sqrt{2}}{\pi A^{i\alpha-2}(A+B)^{-i\alpha-1}} \right] \left[(2\varepsilon i\alpha - 2\varepsilon)(\varepsilon^2 - k_e^2 - 2i\varepsilon k_e) - 2i\alpha(\varepsilon - ik_e)(\varepsilon^2 + k_e^2) \right]$$

$$M_{1s}(K = 0) = \left[\frac{-e^{\pi\alpha/2}\Gamma(1-i\alpha)\varepsilon^{3/2}\sqrt{2}}{\pi A^{i\alpha-2}(A+B)^{-i\alpha-1}} \right] \left[\left(2\varepsilon \frac{iz}{k_e} - 2\varepsilon \right) (\varepsilon^2 - k_e^2 - 2i\varepsilon k_e) - \frac{2iz}{k_e} (\varepsilon - ik_e)(\varepsilon^2 + k_e^2) \right]$$

$$\begin{aligned} M_{1s}(K = 0) &= \left[\frac{-e^{\pi\alpha/2}\Gamma(1-i\alpha)\varepsilon^{3/2}\sqrt{2}}{\pi A^{i\alpha-2}(A+B)^{-i\alpha-1}} \right] \times \\ & \left[\frac{2i\varepsilon^2}{k_e} (\varepsilon^2 - k_e^2 - 2i\varepsilon k_e) - 2\varepsilon (\varepsilon^2 - k_e^2 - 2i\varepsilon k_e) - \frac{2i\varepsilon}{k_e} (\varepsilon^3 + \varepsilon k_e^2 - ik_e \varepsilon^2 - ik_e^3) \right] \end{aligned}$$

$$\boxed{M_{1s}(K = 0) = 0}$$

I.3.1.2 Exemple de calcul : (2p0)

$$M_{2p_0} = \left\langle \frac{e^{i\vec{k}_e \cdot \vec{r}}}{(2\pi)^{3/2}} e^{\pi\alpha/2} \Gamma(1+i\alpha) {}_1F_1(-i\alpha; 1; -i(k_e r + \vec{k}_e \cdot \vec{r})) \left| e^{i\vec{K} \cdot \vec{r}} \right| \frac{2}{\sqrt{3}} \varepsilon^{5/2} r e^{-\varepsilon r} y_1^0 \right\rangle \quad (35)$$

$$M_{2p_0} = \left[\frac{e^{\pi\alpha/2} \Gamma(1-i\alpha) 2\varepsilon^{5/2}}{(2\pi)^{3/2} \sqrt{3}} \right] \int_0^1 \frac{dt}{\Gamma(i\alpha) \Gamma(1-i\alpha)} \int t^{i\alpha-1} (1-t)^{-i\alpha} e^{i(\vec{K}-\vec{k}_e) \cdot \vec{r}} e^{i\vec{k}_e \cdot \vec{r} t} r e^{-\beta r} y_1^0 e^{ik_e r t} d\vec{r} \quad (36)$$

On pose

$$\vec{q} = \vec{K} - \vec{k}_e(1-t) ; \quad \beta = \varepsilon - ik_e t$$

$$M_{2p_0} = \frac{e^{\pi\alpha/2} \Gamma(1-i\alpha) 2\varepsilon^{5/2}}{\sqrt{3} (2\pi)^{3/2} \Gamma(i\alpha) \Gamma(1-i\alpha)} \int_0^1 t^{i\alpha-1} (1-t)^{-i\alpha} 8\pi i \left(\frac{-d}{d\varepsilon} \right) \frac{q y_1^0(\theta_q, \varphi_q)}{(q^2 + \beta^2)^2} dt \quad (36)$$

$$M_{2p_0} = \frac{e^{\pi\alpha/2} \Gamma(1-i\alpha) 2\varepsilon^{5/2} 8\pi i}{(2\pi)^{3/2} \sqrt{3} \Gamma(i\alpha) \Gamma(1-i\alpha)} \frac{\sqrt{3}}{\sqrt{4\pi}} \left(\frac{-d}{d\varepsilon} \right) \times \left[\int_0^1 \frac{t^{i\alpha-1} (1-t)^{-i\alpha}}{(q^2 + \beta^2)^2} [k_i - k_d \cos \theta_d - k_e \cos \theta_e] dt + k_e \cos \theta_e \int_0^1 \frac{t^{i\alpha} (1-t)^{-i\alpha}}{(q^2 + \beta^2)^2} dt \right] \quad (37)$$

Car

$$q \cos \theta_q = k_i - k_d \cos \theta_d - k_e \cos \theta_e (1-t) = k_i - k_d \cos \theta_d - k_e \cos \theta_e + k_e \cos \theta_e t \quad (38)$$

$$q^2 + \beta^2 = A + Bt ; \quad A = (\vec{K} - \vec{k}_e)^2 + \varepsilon^2 ; \quad B = -2[k_e^2 + i\varepsilon k_e - \vec{K} \cdot \vec{k}_e] ; \quad \omega = \frac{-B}{A} \quad (39)$$

$$\int_0^1 t^{b-1} (1-t)^{c-b-1} (1-t\omega)^{-a} dt = \frac{\Gamma(b) \Gamma(c-b)}{\Gamma(c)} {}_2F_1(a, b, c; \omega) \quad (40)$$

➤ pour la première intégrale : $\int_0^1 t^{i\alpha-1} (1-t)^{-i\alpha} (1-t\omega)^{-2} dt$

donc

$$b = i\alpha ; \quad a = 2 ; \quad c = -i\alpha + 1 + i\alpha = 1$$

et

$${}_2F_1(2, i\alpha, 1, \omega) = \frac{d}{d\omega} [\omega(1-\omega)^{-i\alpha}] = (1-\omega)^{-i\alpha} + i\alpha \omega(1-\omega)^{-i\alpha-1} \quad (41)$$

➤ pour la deuxième intégrale : $\int_0^1 t^{i\alpha} (1-t)^{-i\alpha} (1-t\omega)^{-2} dt$

donc

$$b = i\alpha + 1 ; a = 2 ; c = -i\alpha + 1 + i\alpha + 1 = 2$$

et

$${}_2F_1(2, 1+i\alpha, 2; \omega) = (1-\omega)^{-i\alpha-1} \quad (42)$$

Donc

$$\left\{ \begin{aligned} \int_0^1 t^{i\alpha-1} (1-t)^{-i\alpha} (1-t\omega)^{-2} &= \Gamma(i\alpha) \Gamma(1-i\alpha) [1-\omega+i\alpha\omega] (1-\omega)^{-i\alpha-1} dt \\ \int_0^1 t^{i\alpha} (1-t)^{-i\alpha} (1-t\omega)^{-2} &= \frac{\Gamma(i\alpha+1) \Gamma(1-i\alpha)}{\Gamma(2)} (1-\omega)^{-i\alpha-1} = i\alpha \Gamma(i\alpha) \Gamma(1-i\alpha) (1-\omega)^{-i\alpha-1} \end{aligned} \right. \quad (43)$$

alors

$$\begin{aligned} M_{2p_0} &= \frac{e^{\pi\alpha/2} \Gamma(1-i\alpha) 2\varepsilon^{5/2}}{\sqrt{3} (2\pi)^{3/2}} \frac{8\pi i \sqrt{3}}{\sqrt{4\pi}} \left(\frac{-d}{d\varepsilon} \right) \left[A^{i\alpha-2} (A+B)^{-i\alpha-1} \right] \times \\ &\{k_z [A+B(1-i\alpha)] + k_e \cos \theta_e i\alpha A\} \end{aligned} \quad (44)$$

avec : $k_z = k_i - k_d \cos \theta_d - k_e \cos \theta_e$

On note $f = A^{i\alpha-2}$; $g = (A+B)^{-i\alpha-1}$; $h = k_z [A+B(1-i\alpha)] + k_e \cos \theta_e i\alpha A$

$$\frac{d}{d\varepsilon} (fgh) = f^{(1)} gh + fg^{(1)} h + fgh^{(1)}$$

$$f^{(1)} = 2\varepsilon(i\alpha-2)A^{i\alpha-3} ; g^{(1)} = -2(\varepsilon - ik_e)(i\alpha+1)(A+B)^{-i\alpha-2}$$

$$h^{(1)} = k_z [2\varepsilon - 2ik_e(1-i\alpha)] + k_e \cos \theta_e i\alpha 2\varepsilon$$

donc :

$$M_{\hat{p}p_0} = e^{\pi\alpha/2} \frac{\Gamma(1-i\alpha)}{\pi} 2^{(3/2)} \varepsilon^{5/2} i(-1) \left[f^{(1)} gh + fg^{(1)} h + fgh^{(1)} \right]$$

Vérification

$$1) \text{ si } z \rightarrow 0 \quad M_{2p_0} \rightarrow \frac{-4\epsilon k_z (A+B)}{A^3 (A+B)} \frac{2^{(3/2)} \epsilon^{(5/2)} (-i)}{\pi} = \frac{2^{(7/2)} \epsilon^{(7/2)} i k_z}{\pi (p^2 + \epsilon^2)^3}$$

$$\chi_{2p_0} \rightarrow \frac{2}{\sqrt{3}\sqrt{\pi}} \frac{2^{(7/2)} \epsilon^{(7/2)} i p y_1^0}{(p^2 + \epsilon^2)^3} \quad \text{et} \quad p y_1^0 = \frac{\sqrt{3}}{\sqrt{4\pi}} k_z$$

soit

$$\chi_{2p_0} \rightarrow \frac{2^{(7/2)} \epsilon^{(7/2)}}{\pi} \frac{i k_z}{(p^2 + \epsilon^2)^3}$$

$$2) \text{ si } K=0 \text{ et } z=2\epsilon \quad M_{2p_0} \rightarrow 0$$

Actuellement, et avec l'aide de S. Houamer et A. Mansouri, le calcul de (15) a été effectué pour :

1s-12s, 2p-12p, 3d-12d, 4f-12f, 5g-12g, 6h-12h, 7i-12i, 8j-12j, 9k-12k, 10l-12l et 10m.

Tous ces calculs analytiques ont été vérifiés pour les deux cas particuliers :

si $Z_e=0$ on doit retrouver la simple expression de la transformée de Fourier

$$\chi(\vec{p}) = \int \frac{e^{-i\vec{k}_e \cdot \vec{r}_1}}{(2\pi)^{3/2}} e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_1} \varphi_i(\vec{r}_1) d\vec{r}_1 \quad (45)$$

et

$$\chi(\vec{p}) = \frac{N}{(2\pi)^{3/2}} 4\pi \cdot (2i)^l (l!) \left(\frac{-d}{d\epsilon}\right)^{l+k} \left[\frac{p^l Y_l^m(\theta_p, \varphi_p)}{(p^2 + \epsilon^2)^{l+1}} \right] \quad (46)$$

avec

$$\bar{\varphi}_i(\vec{r}_1) = N r_1^{l+k} e^{-\epsilon r} Y_l^m(\theta, \varphi)$$

et pour $K=0$ et $\epsilon = \frac{z}{n}$ on doit trouver 0. En fait, avec la précision des ordinateurs on doit se contenter de 10^{-9} .

Le calcul de ces termes nous permettra d'appliquer cette méthodologie à des molécules plus complexes telles que l'uracile et les bases de l'ADN.

I.3.2 le modèle 2CW

Lorsque la particule diffusée a même vitesse que celle de l'électron éjecté il est logique de la décrire de la même façon. Ainsi le modèle 2CW (Schulz [34]) décrit chacune des deux particules par une onde coulombienne en tenant compte de l'effet répulsif pour l'interaction particule diffusée-cible ionisée et de l'effet attractif pour l'interaction électron éjecté-cible ionisée. Mais ce modèle ne tient pas compte de l'interaction particule diffusée-électron éjecté.

L'état final peut s'écrire

$$\begin{aligned} \varphi_{(p,e)}(\vec{k}_s, \vec{r}_0, \vec{k}_e, \vec{r}_1) &= \frac{\exp(i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0)}{(2\pi)^{3/2}} {}_1F_1 \left[i\mu z_s / k_s, 1, -i(\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0 + k_s r_0) \right] \\ &\times \exp\left(\frac{-\pi z_s \mu}{2k_s}\right) \Gamma(1 - iz_s \mu / k_s) \times \frac{\exp(i\vec{k}_e \cdot \vec{r}_1)}{(2\pi)^{3/2}} {}_1F_1 \left[-iz_e / k_e, 1, -i(\vec{k}_e \cdot \vec{r}_1 + k_e r_1) \right], \\ &\times \exp\left(\frac{\pi z_e}{2k_e}\right) \Gamma(1 + iz_e / k_e). \end{aligned} \quad (47)$$

pour lequel les charges vues par le proton diffusé et l'électron éjecté sont définies comme les charges ioniques effectives avec $z_e = z_s = 1$.

Le calcul de l'élément de matrice

$$\mathbf{M}_{2CW}(\vec{k}_s, \vec{k}_e) = \left\langle \varphi_{(p,e)} \left| \frac{-1}{r_0} + \frac{1}{r_{01}} \right| e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \varphi_i(\vec{r}_1) \right\rangle, \quad (48)$$

nécessite le calcul de l'intégrale générale :

$$\begin{aligned} I &= \iint d\vec{r}_0 d\vec{r}_1 e^{-\lambda r_{01}} e^{-cr_0} e^{-a r_1} e^{i(\vec{v}-\vec{k}_s) \cdot \vec{r}_0} e^{i(\vec{v}-\vec{k}_e) \cdot \vec{r}_1} e^{i\vec{p} \cdot \vec{r}_0} e^{i\vec{w} \cdot \vec{r}_1} \times \\ &{}_1F_1(i\alpha_s, 1, i(k_s r_0 + \vec{k}_s \cdot \vec{r}_0)) {}_1F_1(i\alpha_e, 1, i(k_e r_1 + \vec{k}_e \cdot \vec{r}_1)) \end{aligned}, \quad (49)$$

En utilisant :

$${}_1F_1(a, b, z) = \frac{\Gamma(b)}{\Gamma(b-a)\Gamma(a)} \int_0^1 e^{zt} t^{a-1} (1-t)^{b-a-1} e^{zt} \frac{\Gamma(1-a)\Gamma(b)}{\Gamma(b-a)} dt, \quad (50)$$

Puis :

$$\frac{e^{-\lambda r_{01}}}{r_{01}} = \frac{1}{2\pi^2} \int \frac{d\vec{q}}{q^2 + \lambda^2} e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_0} e^{-i\vec{q} \cdot \vec{r}_1}, \quad (51)$$

On obtient :

$$I = \int_0^1 dt_0 \int_0^1 dt_1 \frac{t_0^{i\alpha_s-1} (1-t_0)^{-i\alpha_s} t_1^{i\alpha_e-1} (1-t_1)^{-i\alpha_e}}{\Gamma(1-i\alpha_s)\Gamma(i\alpha_s)\Gamma(1-i\alpha_e)\Gamma(i\alpha_e)} \frac{1}{2\pi^2} \int \frac{d\vec{q}}{q^2 + \lambda^2} \times \\ \iint d\vec{r}_0 d\vec{r}_1 \frac{e^{-\vec{r}_1 \cdot (a - ik_e t_1)}}{r_1} \frac{e^{-\vec{r}_0 \cdot (c - ik_s t_0)}}{r_0} e^{i\vec{r}_0 \cdot [\vec{v} - \vec{k}_s(1-t_0) + \vec{q} + \vec{p}]} e^{i\vec{r}_1 \cdot [\vec{v} - \vec{k}_e(1-t_1) - \vec{q} + \vec{w}]}, \quad (52)$$

Soit

$$K = \iiint \frac{d\vec{q} d\vec{r}_0 d\vec{r}_1}{q^2 + \lambda^2} \frac{e^{-\vec{r}_1 \mu_1}}{r_1} \frac{e^{-\vec{r}_0 \mu_0}}{r_0} e^{i(\vec{q} - \vec{q}_0) \cdot \vec{r}_0} e^{-i(\vec{q} - \vec{q}_1) \cdot \vec{r}_1}, \quad (53)$$

Avec $\mu_0 = c - ik_s t_0$; $\mu_1 = a - ik_e t_1$; $\vec{q}_0 = \vec{k}_s(1-t_0) - \vec{v} - \vec{p}$ et $\vec{q}_1 = \vec{v} - \vec{k}_e(1-t_1) + \vec{w}$

L'intégrale de Lewis [73] donne :

$$L = \int \frac{d\vec{q}}{(q^2 + \lambda^2)[(q - \vec{q}_1)^2 + \mu_1^2][(q - \vec{q}_0)^2 + \mu_0^2]} = 2\pi^2 \int_0^\infty \frac{dv}{\alpha v^2 + 2\beta v + \gamma}, \quad (54)$$

Avec

$$y = [(\vec{q}_1 - \vec{q}_0)^2 + (\mu_0 + \mu_1)^2][q_1^2 + (\lambda + \mu_1)^2][q_0^2 + (\lambda + \mu_0)^2], \quad (55)$$

Et

$$\beta = \lambda[(\vec{q}_1 - \vec{q}_0)^2 + (\mu_1 + \mu_0)^2] + \mu_0[q_1^2 + \mu_1^2 + \lambda^2] + \mu_1[q_0^2 + \mu_0^2 + \lambda^2], \quad (56)$$

D'où

$$K = 32\pi^4 \int_0^1 \frac{dv}{\alpha v^2 + 2\beta v + \gamma}, \quad (57)$$

En suivant la méthode de Roy, Roy et Sil [74] ;

$$\alpha = (\vec{q}_0 - \vec{q}_1)^2 + (\mu_0 + \mu_1)^2 \text{ et } \gamma = [q_0^2 + (\lambda + \mu_0)^2][q_1^2 + (\lambda + \mu_1)^2] \quad (58)$$

d'où :

$$I = \int_0^1 dt_0 \int_0^1 dt_1 \frac{t_0^{i\alpha_s-1} (1-t_0)^{-i\alpha_s} t_1^{i\alpha_e-1} (1-t_1)^{-i\alpha_e} 16\pi^2}{\Gamma(1-i\alpha_s)\Gamma(i\alpha_s)\Gamma(1-i\alpha_e)\Gamma(i\alpha_e)} \int_0^\infty \frac{dv}{\alpha v^2 + 2\beta v + \gamma}, \quad (59)$$

Et

$$\begin{aligned} \alpha v^2 + 2\beta v + \gamma = & x_1 v^2 t_0 t_1 + x_2 v^2 t_0 - x_3 v^2 t_1 - x_4 v^2 \\ & + 2v(y_1 t_0 t_1 + y_2 t_0 - y_3 t_1 - y_4) + z_1 t_0 t_1 + z_2 t_0 - z_3 t_1 - z_4, \end{aligned} \quad (60)$$

Pour les valeurs de $(x_1, x_2, x_3, y_1, y_2, y_3, z_1, z_2, z_3)$ voir l'annexe A.

On pose :

$$\alpha v^2 + 2\beta v + \gamma = \sigma_{01} t_0 t_1 + \sigma_0 t_0 + \sigma_1 t_1 + \sigma \quad (61)$$

avec

$$\begin{aligned} \sigma_{01} &= x_1 v^2 + 2y_1 v + z_1 \\ \sigma_0 &= x_2 v^2 + 2y_2 v + z_2 \\ \sigma_1 &= -x_3 v^2 - 2y_3 v - z_3 \\ \sigma &= -x_4 v^2 - 2y_4 v - z_4 \end{aligned} \quad (62)$$

Et

$$\frac{1}{\sigma_{01} t_0 t_1 + \sigma_0 t_0 + \sigma_1 t_1 + \sigma} = \left(\frac{1}{\sigma_0 t_0 + \sigma} \right) \left[\frac{1}{1 - \frac{t_1 (-\sigma_{01} t_0 - \sigma_1)}{\sigma_0 t_0 + \sigma}} \right] \quad (63)$$

Puis, en utilisant

$${}_2F_1(a, b, c; z) = \frac{\Gamma(c)}{\Gamma(b)\Gamma(c-b)} \int_0^1 t^{b-1} (1-t)^{c-b-1} (1-tz)^{-a} dt \quad (64)$$

on obtient

$$\begin{aligned} I = & \frac{16\pi^2}{\Gamma(1-i\alpha_s)\Gamma(i\alpha_s)\Gamma(1-i\alpha_e)\Gamma(i\alpha_e)} \int_0^\infty dv \int_0^1 \frac{t_0^{i\alpha_s-1} (1-t_0)^{-i\alpha_s} dt}{\sigma_0 t_0 + \sigma} \times \\ & \int_0^1 \frac{t_1^{i\alpha_e-1} (1-t_1)^{-i\alpha_e} \left[1 - \frac{t_1 (-\sigma_{01} t_0 - \sigma_1)}{\sigma_0 t_0 + \sigma} \right]^{-1}}{\sigma_0 t_0 + \sigma} \end{aligned} \quad (65)$$

Soit :

$$I = \frac{16\pi^2}{\Gamma(1-i\alpha_s)\Gamma(i\alpha_s)} \int_0^\infty dv \int_0^1 \frac{t_0^{i\alpha_s-1} (1-t_0)^{-i\alpha_s} dt_0}{\sigma_0 t_0 + \sigma} {}_2F_1(1, i\alpha_e, 1; z) \quad (66)$$

Et

$$z = \frac{-\sigma_0 t_0 - \sigma_1}{\sigma_0 t_0 + \sigma} \quad (67)$$

Car :

$${}_2F_1(1, \alpha', 1; z) = 1 + \frac{\alpha' z}{1!} + \frac{\alpha'(\alpha'+1)}{2!} z^2 + \dots = (1-z)^{-\alpha'} \quad (68)$$

donc

$${}_2F_1(1, i\alpha_e, 1; z) = \left[1 + \frac{\sigma_0 t_0 + \sigma_1}{\sigma_0 t_0 + \sigma} \right]^{-i\alpha_e} \quad (69)$$

On pose : $A = \frac{\sigma}{\sigma_0}$; $B = \frac{\sigma + \sigma_1}{\sigma_0 + \sigma_01}$; $t_0 = \frac{B}{B + (1+B)y}$ et $dt_0 = \frac{-B(1+B)dy}{[B + (1+B)y]^2}$

d'où : $t_0^{i\alpha_s-1} = \frac{B^{i\alpha_s-1}}{[B + (1+B)y]^{i\alpha_s-1}}$; $1-t_0 = \frac{y(1+B)}{B + (1+B)y}$

donc

$$(1-t_0)^{-i\alpha_s} = \frac{[(1+B)y]}{[B + (1+B)y]^{-i\alpha_s}} \quad (70)$$

$$\sigma_0 t_0 + \sigma = \sigma_0 t_0 + A\sigma_0 = \sigma_0 \left[A + \frac{B}{B + (1+B)y} \right] \quad (71)$$

$$\sigma_0 t_0 + \sigma = \frac{\sigma_0}{B + (1+B)y} [AB + A(1+B)y + B] \quad (72)$$

donc

$$\sigma_0 t_0 + \sigma = B(1+A) \left[\frac{\sigma_0}{B + (1+B)y} \right] \left[1 + \frac{A(1+B)y}{B(1+A)} \right] \quad (73)$$

et

$$\left[\frac{\sigma_0 t_0 + \sigma}{\sigma_0 t_0 + \sigma + \sigma_01 t_0 + \sigma_1} \right]^{i\alpha_e} \left(\frac{1}{\sigma_0 t_0 + \sigma} \right) = \frac{(\sigma_0 t_0 + \sigma)^{i\alpha_e-1}}{(\sigma_0 t_0 + \sigma_01 t_0 + \sigma_1 + \sigma_0)^{i\alpha_e}} \quad (74)$$

et

$$\begin{aligned}
 \sigma_0 t_0 + \sigma + \sigma_{01} t_0 + \sigma_1 &= (\sigma_0 + \sigma_{01}) t_0 + \sigma + \sigma_1 \\
 &= (v_0 + v_{01})(t_0 + B) \\
 &= \frac{(v_0 + v_{01})B(1+B)(1+y)}{B + (1+B)y}
 \end{aligned} \tag{75}$$

Finalement

$$\begin{aligned}
 I &= \frac{16\pi^2}{\Gamma(1-i\alpha_s)\Gamma(i\alpha_s)} \int_0^\infty dv \int_{-\infty}^0 \frac{-B(1+B)dy}{[B+(1+B)y]^2} \frac{B^{i\alpha_s-1}}{[B+(1+B)y]^{i\alpha_s-1}} \times \\
 &\frac{[(1+B)y]^{-i\alpha_s}}{[B+(1+B)y]^{-i\alpha_s}} \frac{[\sigma_0 B(1+A)]^{i\alpha_e-1}}{[B+(1+B)y]^{i\alpha_e-1}} \times \\
 &\left[1 + \frac{A(1+B)y}{B(1+A)}\right]^{i\alpha_e-1} \frac{[B+(B+1)y]^{i\alpha_e}}{[(\sigma_0 + \sigma_{01})B(1+B)(1+y)]^{i\alpha_e}}
 \end{aligned} \tag{76}$$

et avec

$${}_2F_1(a, b, c; 1-z) = \frac{\Gamma(c)}{\Gamma(b)\Gamma(c-b)} \int_0^\infty t^{b-1} (1+t)^{a-c} (1+zt)^{-a} dt \tag{77}$$

$$\begin{aligned}
 I &= 16\pi^2 \int_0^\infty dv B^{i\alpha_s-1} (1+B)^{1-i\alpha_s-i\alpha_e} (1+A)^{i\alpha_e-1} \sigma_0^{i\alpha_e-1} (\sigma_0 + \sigma_{01})^{-i\alpha_e} \times \\
 &{}_2F_1\left(1-i\alpha_e, 1-i\alpha_s, 1; 1 - \frac{A(1+B)}{B(1+A)}\right)
 \end{aligned} \tag{78}$$

Puis, en utilisant :

$${}_2F_1(a, b, c; z) = (1-z)^{c-a-b} {}_2F_1(c-b, c-a, c; z) \tag{79}$$

On obtient :

$${}_2F_1\left(1-i\alpha_e, 1-i\alpha_s, 1; 1 - \frac{A(1+B)}{B(1+A)}\right) = \left[\frac{A(1+B)}{B(1+A)}\right]^{-i\alpha_s+i\alpha_e-1} {}_2F_1\left(i\alpha_s, i\alpha_e, 1; \frac{B-A}{B(1+A)}\right) \tag{80}$$

d'où l'expression finale

$$I = 16\pi^2 \int_0^\infty dv \left(\frac{1}{\sigma}\right) \left(\frac{\sigma}{\sigma+\sigma_1}\right)^{i\alpha_e} \left(\frac{\sigma}{\sigma+\sigma_0}\right)^{i\alpha_s} {}_2F_1(i\alpha_s, i\alpha_e, 1; z) \tag{81}$$

avec

$$z = \frac{\sigma_0 \sigma_1 - \sigma \sigma_{01}}{(\sigma + \sigma_0)(\sigma + \sigma_1)} \quad (82)$$

De façon pratique on procède généralement à un changement de variable :

$$s_y = \frac{1}{1+v} \quad \text{et} \quad dv = \frac{-ds_y}{s_y^2} \quad (83)$$

L'élément de matrice M_{2cW} (expression 48) pour $\varphi_i(\vec{r}_1) = Ae^{-\alpha r_1}$ se calcule à l'aide de I.

$$\begin{aligned} M_{2cW} &= \frac{\delta^2}{\delta a \delta c} I(\vec{u} = \vec{k}_i, \vec{v} = \vec{p} = \vec{w} = \vec{0}, \lambda = c = 0) \\ &\quad - \frac{\delta^2}{\delta \lambda \delta a} I(\vec{u} = \vec{k}_i, \vec{v} = \vec{p} = \vec{w} = \vec{0}, \lambda = c = 0) \end{aligned} \quad (84)$$

Lorsque $\varphi_i(\vec{r}_1)$ comporte des termes relatifs à $r_1^n e^{-\alpha r_1}$ ou $z_1^{n_1} x_1^{n_2} y_1^{n_3} e^{-\alpha r_1}$ il faut alors dériver l'expression de I obtenue $n+2$ fois ou $n_1 + n_2 + n_3 + 2$ fois.

Examinons par exemple le cas de $z_1 e^{-\alpha r_1}$ (correspondant à $2p_0(\vec{r}_1)$)

$$\begin{aligned} M_{2cW} &= \frac{\delta^3}{i \delta a \delta c \delta w_z} I(\vec{u} = \vec{k}_i, \vec{v} = \vec{p} = \vec{w} = \vec{0}, \lambda = c = 0) \\ &\quad - \frac{\delta^3}{i \delta \lambda \delta a \delta w_z} I(\vec{u} = \vec{k}_i, \vec{v} = \vec{p} = \vec{w} = \vec{0}, \lambda = c = 0) \end{aligned} \quad (85)$$

Notons que les dérivées de la fonction hypergéométrique s'obtiennent à partir de :

$$\frac{d}{dz} F(a, b, c; z) = \frac{ab}{c} F(a+1, b+1, c+1; z) \quad (86)$$

Le programme écrit pour calculer les éléments de matrice a été conçu au départ pour les collisions simplement ionisantes et doublement ionisantes. C'est pour cette raison que figurent les vecteurs \vec{v} et \vec{p} qui peuvent être utilisés pour générer les parties angulaires d'une fonction d'onde initiale dépendant de deux variables.

Actuellement le programme permet de calculer les dérivées sixièmes par rapport à n'importe quelle variable ($\lambda, c, a; p_x, p_y, p_z; w_x, w_y, w_z$). Il est à noter que les dérivées septième et huitième peuvent être obtenues par simple (ou double) dérivation numérique à

partir des dérivées sixièmes. Les dérivées d'ordre supérieur à 8 nécessiteraient l'utilisation d'un logiciel dérivant ligne par ligne le programme FORTRAN.

Bien que le calcul de M_{2CW} se ramène à une seule intégrale numérique il faut noter le temps de calcul bien plus important que pour l'élément de matrice du modèle FBA-CW.

Ce temps est généralement 20 à 30 fois supérieur, ceci étant du à la lente convergence de la fonction hypergéométrique ${}_2F_1$.

I.3.3 le modèle BBK

Développé par Brauner, Briggs et Klar [26] dans le cas de l'ionisation de l'atome d'hydrogène pour un électron ou positron, ce modèle BBK prend en compte l'interaction électron éjecte-cible ionisée, l'interaction particule diffusée-cible ionisée et enfin l'interaction électron éjecté-particule diffusée. La fonction d'onde de l'état final (qui décrit l'électron éjecté et la particule diffusée) s'écrit :

$$\begin{aligned}
\psi_{f1}(\vec{k}_s, \vec{r}_0, \vec{k}_e, \vec{r}_1) &= \frac{\exp(i\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0)}{(2\pi)^{3/2}} {}_1F_1 \left[i\mu z_s / k_s, 1, -i(\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0 + k_s r_0) \right] \\
&\times \exp\left(\frac{-\pi z_s \mu}{2k_s}\right) \Gamma(1 - iz_s \mu / k_s) \times \frac{\exp(i\vec{k}_e \cdot \vec{r}_1)}{(2\pi)^{3/2}} {}_1F_1 \left[-iz_e / k_e, 1, -i(\vec{k}_e \cdot \vec{r}_1 + k_e r_1) \right] \\
&\times \exp\left(\frac{\pi z_e}{2k_e}\right) \Gamma(1 + iz_e / k_e) {}_1F_1 \left[-i\mu / |\vec{k}_s - \mu \vec{k}_e|, 1, -i \left\{ \frac{(\vec{k}_s - \mu \vec{k}_e) \cdot (\vec{r}_0 - \vec{r}_1)}{\mu + 1} + \left| \frac{\vec{k}_s - \mu \vec{k}_e}{\mu + 1} \right| r_{01} \right\} \right] \quad (87) \\
&\times \exp\left(\frac{\pi \mu}{2|\vec{k}_s - \mu \vec{k}_e|}\right) \Gamma(1 + i\mu / |\vec{k}_s - \mu \vec{k}_e|)
\end{aligned}$$

Cette fonction a une forme asymptotique exacte. L'élément de matrice nécessaire s'écrit aussi :

$$M_{BBK}(\vec{k}_s, \vec{k}_e) = \left\langle \varphi_{(p,e)}^{BBK} \left| \frac{-1}{r_0} + \frac{1}{r_{01}} \right| e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \varphi_i(\vec{r}_1) \right\rangle \quad (88)$$

Il nécessite le calcul de l'intégrale générale :

$$\begin{aligned}
I_{BBK} = & \iint d\vec{r}_0 d\vec{r}_1 \frac{e^{-\lambda r_{01}}}{r_{01}} \frac{e^{-cr_0}}{r_0} \frac{e^{-ar_1}}{r_1} e^{i(\vec{u}-\vec{k}_s) \cdot \vec{r}_0} e^{i(\vec{v}-\vec{k}_e) \cdot \vec{r}_1} e^{i\vec{w} \cdot \vec{r}_1} \times \\
& {}_1F_1(-i\alpha_s, 1, i(k_s r_0 + \vec{k}_0 \cdot \vec{r}_0)) {}_1F_1(i\alpha_e, 1, i(k_e r_1 + \vec{k}_e \cdot \vec{r}_1)) \times \\
& {}_1F_1(-i\alpha_3, 1, i(k_z r_{01} + \vec{k}_3 \cdot \vec{r}_{01}))
\end{aligned} \tag{89}$$

avec dans notre cas :

$$\alpha_3 = \frac{\mu}{|\vec{k}_s - \mu \vec{k}_e|} \text{ et } \vec{k}_3 = \frac{\vec{k}_s - \mu \vec{k}_e}{\mu + 1} \tag{90}$$

En utilisant :

$${}_1F_1(-i\alpha_3, 1, i(k_z r_{01} + \vec{k}_3 \cdot \vec{r}_{01})) = \frac{-1}{2\pi i} \int_{0,1}^{-i\alpha_3-1} (-t_3)^{-i\alpha_3-1} (1-t_3)^{i\alpha_3} e^{ik_z r_{01} t_3} e^{i\vec{k}_3 \cdot \vec{r}_{01} t_3} dt_3 \tag{91}$$

On obtient :

$$I_{BBK} = N(t_3) - \frac{1}{2\pi i} \int_{0^+, 1^+} (-t_3)^{-i\alpha_3-1} (1-t_3)^{i\alpha_3} [N(t_3) - N(t_3=0)] dt_3 \tag{92}$$

avec

$$\begin{aligned}
N(t_3) = & \frac{\int_0^1 t_0^{i\alpha_s-1} (1-t_0)^{-i\alpha_s} dt_0 \int_0^1 t_1^{i\alpha_e-1} (1-t_1)^{-i\alpha_e} dt_1}{2\pi^2 \Gamma(1-i\alpha_s) \Gamma(i\alpha_s) \Gamma(1-i\alpha_e) \Gamma(i\alpha_e)} \int \frac{d\vec{q}}{q^2 + \lambda'^2} \times \\
& \int d\vec{r}_1 \frac{e^{-ar_1}}{r_1} e^{i(\vec{v}-\vec{k}_1) \cdot \vec{r}_1} e^{i\vec{w} \cdot \vec{r}_1} e^{-i\vec{q} \cdot \vec{r}_1} e^{i\vec{k}_e \cdot \vec{r}_1 t_1} e^{ik_1 r_1 t_1} e^{-i\vec{k}_3 \cdot \vec{r}_1 t_3} \times \\
& \int d\vec{r}_0 \frac{e^{-cr_0}}{r_0} e^{i(\vec{u}-\vec{k}_s) \cdot \vec{r}_0} e^{i\vec{p} \cdot \vec{r}_0} e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_0} e^{-\vec{k}_s \cdot \vec{r}_0 t_0} e^{ik_s r_0 t_0} e^{i\vec{k}_3 \cdot \vec{r}_0 t_3}
\end{aligned} \tag{93}$$

Avec $\lambda' = \lambda - ik_3 t_3$. L'expression de K s'écrit ici :

$$K_{BBK} = \iiint \frac{d\vec{q}}{q^2 + \lambda'} \frac{e^{-\mu_0 r_0}}{r_0} \frac{e^{-\mu_1 r_1}}{r_1} e^{i(\vec{q}-\vec{q}'_0) \cdot \vec{r}_0} e^{-i(\vec{q}-\vec{q}'_1) \cdot \vec{r}_1} \tag{94}$$

avec

$$\begin{aligned}\mu_0 &= c - ik_s t_0 ; \mu_1 = a - ik_e t_1 \\ \vec{q}'_0 &= \vec{k}_s(1-t_0) - \vec{u} - \vec{p} - \vec{k}_3 t_3 = \vec{q}_0 - \vec{k}_3 t_3 \\ \vec{q}'_1 &= \vec{v} - \vec{k}_e(1-t_1) + \vec{w} - \vec{k}_3 t_3 = \vec{q}_1 - \vec{k}_3 t_3\end{aligned}\quad (95)$$

L'intégrale de Lewis [74] s'écrit dans ce cas :

$$L_{BBK} = \int \frac{d\vec{q}}{(q^2 + \lambda'^2) [(\vec{q} - \vec{q}'_0)^2 + \mu_0^2] [(\vec{q} - \vec{q}'_1)^2 + \mu_1^2]} \quad (96)$$

$$L_{BBK} = \int_0^\infty \frac{dv}{\alpha' v^2 + 2\beta' v + \gamma'} \quad (97)$$

où α, β et γ sont donnés par :

$$\begin{aligned}\alpha' \gamma' &= [(\vec{q}'_0 - \vec{q}'_1)^2 + (\mu_0 + \mu_1)^2] [q_0'^2 + (\lambda' + \mu_0)^2] [q_1'^2 + (\lambda' + \mu_1)^2] \\ \beta' &= \lambda' [(\vec{q}'_0 - \vec{q}'_1)^2 + (\mu_0 + \mu_1)^2] + \mu_1 [q_0'^2 + \mu_0^2 + \lambda'^2] + \mu_0 [q_1'^2 + \mu_1^2 + \lambda'^2]\end{aligned}\quad (98)$$

d'où

$$L_{BBK} = 32\pi^4 \int_0^\infty \frac{dv}{\alpha' v^2 + 2\beta' v + \gamma'} \quad (99)$$

On peut noter que $\alpha' = \alpha$ et on pose :

$$\begin{aligned}\gamma' &= [q_0'^2 + (\lambda' + \mu_0)^2] [q_1'^2 + (\lambda' + \mu_1)^2] \\ \beta' &= \lambda' [(\vec{q}'_0 - \vec{q}'_1)^2 + (\mu_0 + \mu_1)^2] + \mu_1 [q_0'^2 + \mu_0^2 + \lambda'^2] + \mu_0 [q_1'^2 + \mu_1^2 + \lambda'^2]\end{aligned}\quad (100)$$

De façon générale les expressions de $\beta', \gamma', x'_1, x'_2, x'_3, x'_4, y'_1, y'_2, y'_3, y'_4, z'_1, z'_2, z'_3$ et z'_4 seront obtenues pour :

$$\begin{aligned}
\lambda &\rightarrow \lambda' = \lambda - ik_3 t_3 \\
\vec{u} &\rightarrow \vec{u} + \vec{k}_3 t_3 \\
\vec{v} &\rightarrow \vec{v} - \vec{k}_3 t_3
\end{aligned} \tag{101}$$

Finalement

$$N(t_3) = 16\pi^2 \int_0^\infty dv \frac{1}{\sigma'} \left(\frac{\sigma'}{\sigma' + \sigma_1'} \right)^{i\alpha_s} \left(\frac{\sigma'}{\sigma' + \sigma_0'} \right)^{i\alpha_s} {}_2F_1(i\alpha_s, i\alpha_e, 1; z') \tag{102}$$

et

$$I_{BBK} = N(t_3 = 0) + \left(\frac{e^{\pi\alpha_3} - e^{-\pi\alpha_3}}{2\pi i} \right) \int_{-\infty}^\infty \frac{dy e^y}{1 + e^y} e^{i\alpha_3 y} [N(t_3) - N(t_3 - 0)] \tag{103}$$

$$\text{avec } t_3 = \frac{1}{1 + e^y}$$

L'élément de matrice M_{BBK} pour $\varphi_i(\vec{r}_1) = A e^{-\alpha r_1}$ se calcule à l'aide de I_{BBK} :

$$\begin{aligned}
M_{BBK} &= \frac{\delta^2}{\delta a \delta c} I_{BBK} (\vec{u} = \vec{k}_i, \vec{v} = \vec{p} = \vec{w} = \vec{0}, \lambda = c = 0) \\
&\quad - \frac{\delta^2}{\delta \lambda \delta a} I_{BBK} (\vec{u} = \vec{k}_i, \vec{v} = \vec{p} = \vec{w} = \vec{0}, \lambda = c = 0)
\end{aligned} \tag{104}$$

De même que pour le modèle 2CW lorsque $\varphi_i(\vec{r})$ comporte des termes relatifs à $r_1^n e^{-\alpha r_1}$ ou $z_1^{n_1} x_1^{n_2} y_1^{n_3} e^{-\alpha r_1}$ il faut alors dériver l'expression de I_{BBK} obtenue $n + 2$ fois ou $n_1 + n_2 + n_3 + 2$ fois.

Dans le cas du modèle BBK le programme a aussi été conçu pour des collisions simplement ionisantes et doublement ionisantes. Le programme permet de calculer aussi les dérivées à l'ordre six par rapport à n'importe quelle variable $(\lambda, c, a; p_x, p_y, p_z; w_x, w_y, w_z)$.

Bien que le calcul de M_{BBK} se ramène à une double intégrale numérique le temps de calcul est de l'ordre de 500 fois supérieur à celui correspondant au modèle FBA-CW. Il sera alors

difficile d'envisager de calculer des sections simplement différentielles (puisqu'elles exigent un intégrale quadruple supplémentaire) et les sections totales correspondantes.

I.4 Calcul explicite de l'élément de matrice

Après avoir décrit l'état initial et l'état final il nous reste à calculer la quantité T_{fi} (équations (10) et (11)). Nous allons d'abord utiliser l'approximation du cœur gelé qui consiste à supposer que les fonctions d'ondes décrivant les électrons de l'ion sont les mêmes que celles décrivant la molécule d'eau dans son état initial. Puis, considérant que la simple ionisation est un processus en une étape c'est-à-dire un processus à un électron actif nous pouvons alors écrire :

$$T_{fi}^j = \frac{-z_p}{2\pi} \left\langle \psi_f(\vec{k}_s, \vec{r}_0; \vec{k}_e, \vec{r}_1) \left| \frac{1}{r_{01}} - \frac{1}{r_0} \right| \phi(\vec{k}_i, \vec{r}_0) \nu_j(\vec{r}_1) \right\rangle \quad (105)$$

pour l'élément de matrice relatif à une orbitale moléculaire j.

Chaque élément de matrice peut alors être calculé suivant la modélisation de l'état final.

Il est important de noter que les fonctions d'ondes $\nu_j(\vec{r}_1)$ correspondent à une orientation particulière de la molécule d'eau donnée par les angles d'Euler (α, β, γ) [31,32]. La section efficace différentielle calculée par l'élément de matrice précédent correspond alors à l'ionisation de la molécule d'eau pour cette orientation particulière. Nous devons alors moyenner suivant les angles d'Euler cette section efficace différentielle afin de pouvoir comparer à l'expérience (dans laquelle les molécules d'eau n'ont pas une orientation particulière). Le fait de moyenner suivant les angles d'Euler consiste à calculer une intégrale triple supplémentaire sur $d\alpha dy \sin \beta d\beta$ et à diviser le résultat obtenu par $\frac{1}{8\pi^2}$

En fait il a été montré que cette intégrale triple peut être effectuée analytiquement en utilisant les propriétés des matrices de rotation [31,32].

Les sections efficaces différentielles sont alors sommées sur toutes les 5 orbitales moléculaires de l'eau car les expériences réalisées ne distinguent pas une contribution particulière d'une orbitale (contrairement aux expériences de type (e,2 e)).

I.5 L'approximation de la collision binaire

Dans cette approximation on traite la collision entre le projectile et un électron de la cible dans le cadre de la mécanique classique. Le noyau et les autres électrons de la cible ne jouent aucun rôle sauf celui de fournir une énergie de liaison pour l'électron éjecté.

Dans les mesures de la section efficace doublement différentielle, la distribution en énergie et en angle de l'électron éjecté sont déterminées, alors que ces mêmes distributions pour la particule diffusée ne sont pas connues.

La distribution angulaire de l'électron rapide éjecté comporte généralement un pic proéminent connu comme le pic de la rencontre binaire.

Nous pouvons utiliser un modèle simple décrivant l'électron qui sera éjecté lors de la collision par un électron (libre) au repos afin d'estimer l'angle θ_{crit} qui donne la position du pic binaire.

Les conditions cinématiques sont : une énergie élevée pour les particules incidente et diffusée et généralement une énergie des électrons éjectés supérieure au moins à l'énergie d'ionisation de la couche étudiée (car l'électron éjecté est décrit dans cette modélisation par une onde plane). La collision binaire se manifeste par l'existence d'un pic nommé crête de Bethe tel que (en utilisant la conservation des quantités de mouvement) :

$$|q| = |k_i - k_s| = k_e \Rightarrow k_e^2 = k_i^2 + k_s^2 - 2k_i k_s \cos(\theta_e) \quad (106)$$

on obtient alors :

$$\cos(\theta_e)_{crit} = \frac{k_i^2 + k_e^2 - k_s^2}{2k_i k_e} \quad (107)$$

tel que

$$\begin{aligned} k_i^2 &= 2mE_i, \\ k_e^2 &= 2m_e E_e, \\ k_d^2 &= 2mE_d = 2m(E_i - E_e). \end{aligned} \quad (108)$$

Cet angle doit correspondre au maximum de la DDCS si la collision est bien du type binaire.

Chapitre II

II Résultats et discussion

Dans ce chapitre nous nous proposons d'examiner la validité de nos modèles. Il est en effet important de savoir si le modèle le plus simple (FBA-CW) est capable de reproduire la plupart des résultats expérimentaux de la section efficace doublement différentielle à la section efficace totale. Si tel est le cas nous pourrions alors appliquer ce même modèle aux collisions de particules chargées massives à des molécules beaucoup plus complexes que l'eau telles que les bases de l'ADN.

II.1 Ionisation de la molécule d'eau par impact de protons

Il n'existe pas de résultats de sections efficaces triplement différentielles et nous commençons donc par étudier les sections efficaces doublement différentielles (DDCS)

II.1.1 Section efficace doublement différentielle (SDCS)

Les figures 3 à 6 permettent de comparer les résultats de notre modèle FBA-CW aux expériences de Toburen et Wilson [5]. Dans ces expériences les DDCS sont tracées en fonction de l'angle d'éjection de l'électron pour différentes énergies de cet électron. Les énergies des protons (particules incidentes) sont respectivement de 0.3, 0.5, 1 et 1.5 MeV. On remarque un excellent accord entre notre modèle (FBA-CW) et les résultats expérimentaux, sauf pour de faibles valeurs de l'angle d'éjection et pour certaines valeurs d'énergie de l'électron éjecté (100 eV, 250 eV et 750 eV). Dans ces cas notre modèle sous-estime largement les résultats expérimentaux (jusqu'à un facteur de 10) et est incapable d'expliquer le brusque accroissement de la DDCS. L'explication physique de cet accroissement brutal de la DDCS est relativement simple : l'électron éjecté a une vitesse proche de celle du proton diffusé (voir annexe B) et un processus de capture se produit à cause de l'interaction coulombienne attractive entre ces deux particules. Cette capture dans

le continuum de la particule diffusée (ECC) correspond aussi au processus décrit par Thomas [35]. Comme l'interaction électron éjecté-particule diffusée n'est pas prise en compte dans notre modèle FBA-CW le désaccord théorie-expérience n'est pas surprenant.

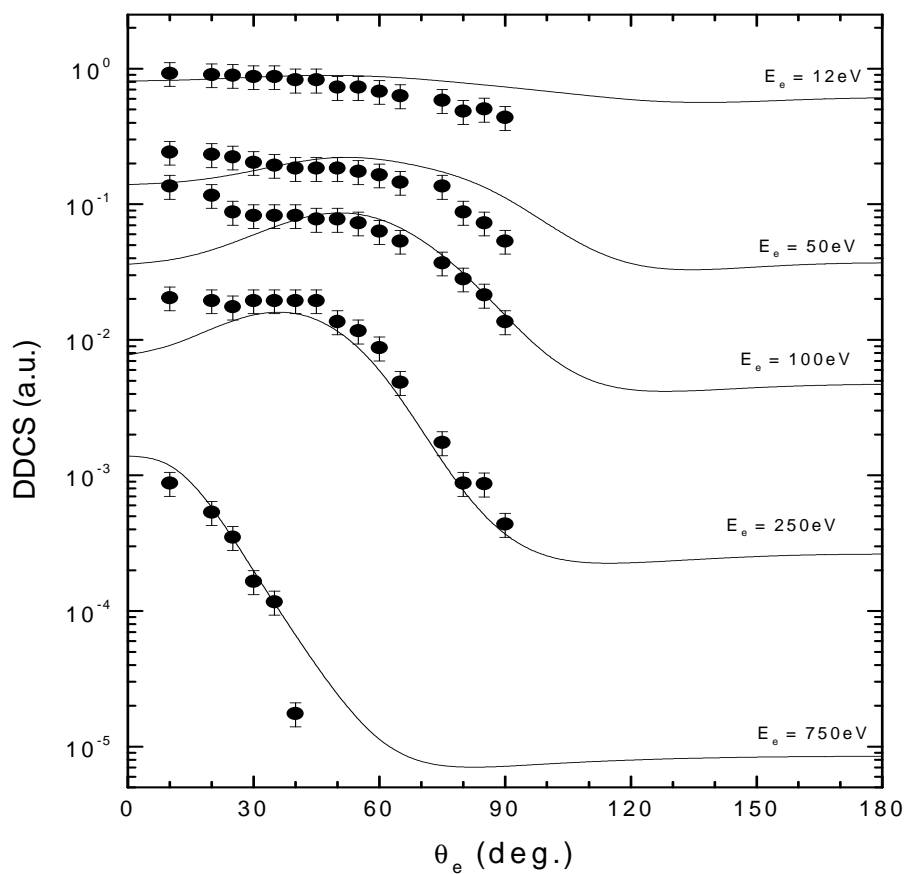


Fig. 3 Distribution angulaire de la section efficace doublement différentielle pour la simple ionisation de H_2O par impact d'un proton de 0.3 MeV pour différentes valeurs de l'énergie de l'électron éjecté.

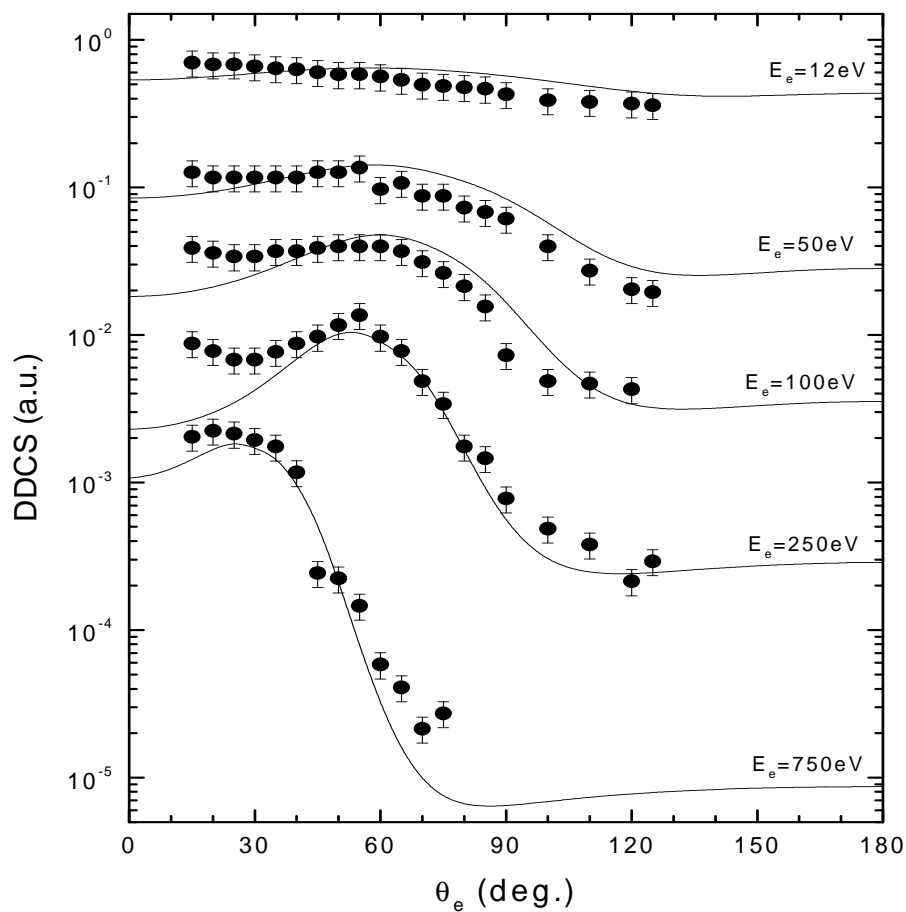


Fig. 4 Distribution angulaire de la section efficace doublement différentielle pour la simple ionisation de H_2O par impact d'un proton de 0.5 MeV pour différentes valeurs de l'énergie de l'électron éjecté.

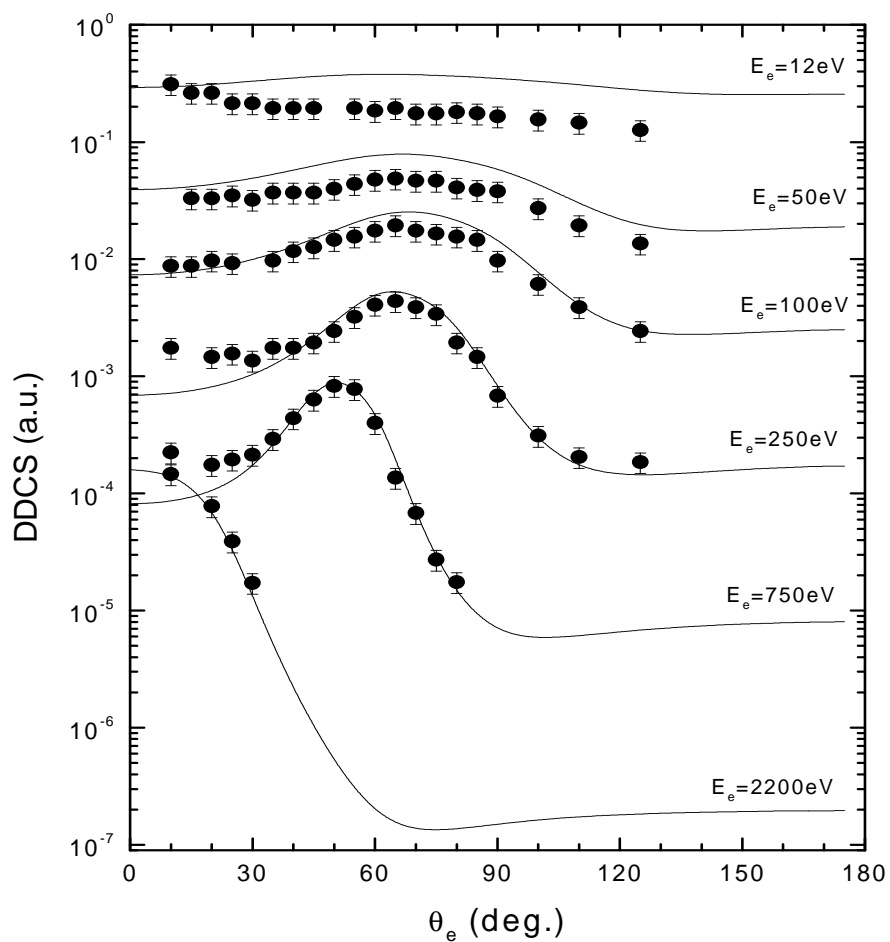


Fig. 5 Distribution angulaire de la section efficace doublement différentielle pour la simple ionisation de H_2O par impact d'un proton de 1 MeV pour différentes valeurs de l'énergie de l'électron éjecté

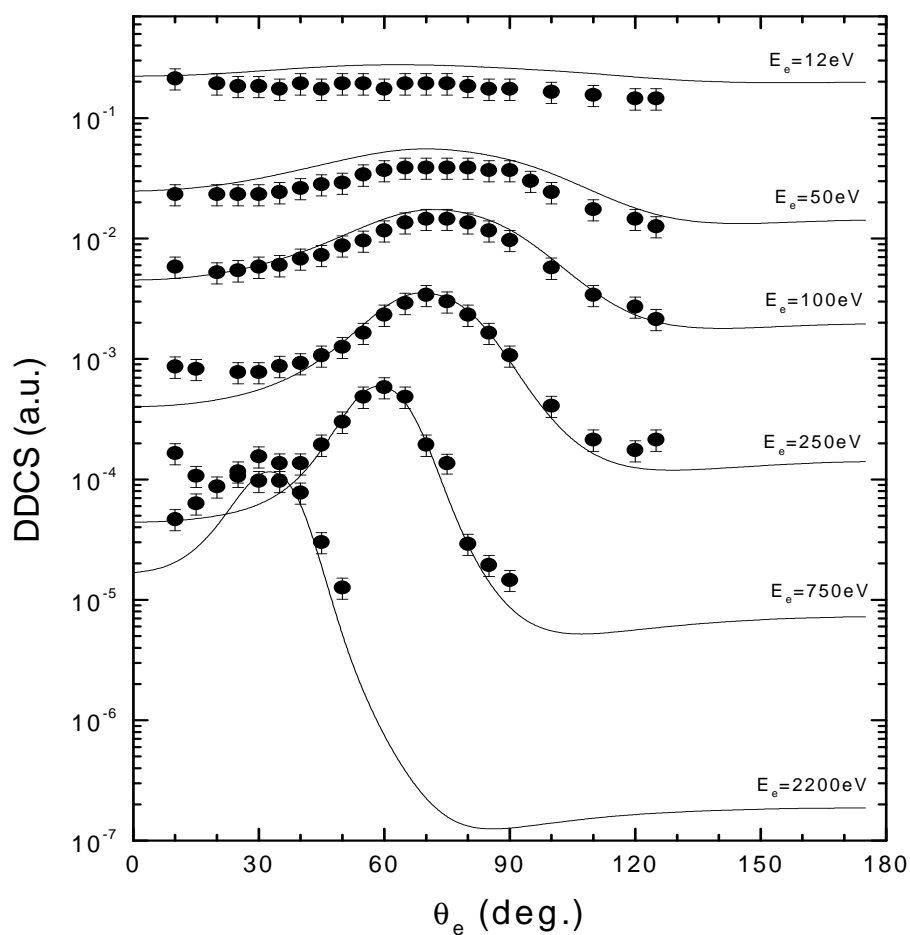


Fig. 6 Distribution angulaire de la section efficace doublement différentielle pour la simple ionisation de H_2O par impact d'un proton de 1.5 MeV pour différentes valeurs de l'énergie de l'électron éjecté

E_e (eV)	$E_i = 0.3$ MeV	$E_i = 0.5$ MeV	$E_i = 1$ MeV	$E_i = 1.5$ MeV
12	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 73.86^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 77.57^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 81.24^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 82.86^\circ$
	$[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 72.44^\circ$	$[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 76.49^\circ$	$[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 80.49^\circ$	$[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 82.24^\circ$
	$[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 69.85^\circ$	$[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 74.52^\circ$	$[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 79.12^\circ$	$[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 81.13^\circ$
	$[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 60.05^\circ$	$[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 67.25^\circ$	$[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 74.13^\circ$	$[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 77.10^\circ$
50	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 69.73^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 74.43^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 79.06^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 81.08^\circ$
	$[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 72.44^\circ$	$[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 73.89^\circ$	$[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 78.69^\circ$	$[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 80.78^\circ$
	$[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 67.72^\circ$	$[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 72.92^\circ$	$[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 78.01^\circ$	$[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 80.23^\circ$
	$[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 62.94^\circ$	$[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 69.36^\circ$	$[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 75.57^\circ$	$[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 78.26^\circ$
100	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 63.85^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 70.04^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 76.03^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 78.63^\circ$
	$[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 63.32^\circ$	$[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 69.65^\circ$	$[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 75.76^\circ$	$[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 78.41^\circ$
	$[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 62.37^\circ$	$[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 68.94^\circ$	$[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 75.28^\circ$	$[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 78.03^\circ$
	$[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 58.84^\circ$	$[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 66.37^\circ$	$[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 73.54^\circ$	$[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 76.62^\circ$
250	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 49.46^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 59.77^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 69.14^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 73.10^\circ$
	$[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 49.06^\circ$	$[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 59.50^\circ$	$[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 68.97^\circ$	$[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 72.96^\circ$
	$[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 48.35^\circ$	$[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 59.01^\circ$	$[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 68.65^\circ$	$[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 72.71^\circ$
	$[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 45.69^\circ$	$[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 57.24^\circ$	$[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 67.50^\circ$	$[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 71.79^\circ$
750		$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 32.41^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 53.35^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 60.83^\circ$
		$[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 32.16^\circ$	$[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 53.23^\circ$	$[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 60.74^\circ$
		$[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 31.71^\circ$	$[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 53.02^\circ$	$[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 60.58^\circ$
		$[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 30.02^\circ$	$[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 53.24^\circ$	$[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 60.00^\circ$
2200				$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 34.34^\circ$
				$[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 34.26^\circ$
				$[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 34.12^\circ$
				$[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 33.59^\circ$

Tableau 3 Les valeurs théoriques des angles d'éjections correspondant au pic de la collision binaire pour des énergies du proton incident de 0.3, 0.5, 1 et 1.5 MeV pour différentes valeurs d'énergie de l'électron éjecté : 12, 50, 100, 250, 750 et 2200 eV

E_e (eV)	$E_i=0.5$ MeV		$E_i=1.5$ MeV	
	Théorique	Expérience	théorique	Expérience
12				
50	55.54°		74.66°	79.76°
100	54.89°	49.84°	75.95°	74.71°
250	53.36°	54.35°	69.56°	69.56°
750	25.71°	19.42°	59.70°	59.70°
2200			33.24°	29.67°

Tableau 4 Comparaison entre les angles d'éjection critiques théoriques et Expérimentaux correspondant à une collision binaire pour différentes énergies incidentes du proton et pour différentes énergies de l'électron éjecté.

Les tableaux 3 et 4 correspondent au cas où la collision proton-molécule eau peut être traitée comme une collision binaire.

Le tableau 3 donne les valeurs calculées analytiquement de l'angle correspondant au pic binaire pour chacune des orbitales moléculaires les plus externes et pour chacune des énergies incidentes du proton.

On remarque que certaines fois on ne peut pas avoir de pic binaire car la vitesse de l'électron éjecté est supérieure à celle du proton diffusé. On observe ce cas pour un électron éjecté de 750 eV et un proton diffusé de 0.5 MeV pour lesquels la vitesse de l'électron est de 7.42 u.a. et celle du proton diffusé de 4.47 u.a.

On remarque la même chose pour l'électron éjecté de 2200 eV qui a une vitesse de 12.71 u.a. avec un proton incident de 1.5 MeV qui a une vitesse 7.74 u.a..

Le tableau 4 permet de comparer les valeurs théoriques de l'angle d'éjection correspondant au maximum de la section efficace doublement différentielle avec les valeurs expérimentales pour deux valeurs de l'énergie du proton incident 0.5 et 1.5 MeV.

Comme prévu l'accord se révèle très bon pour le proton incident avec 1.5 MeV et moins bon pour le proton de 0.5 MeV.

Théoriquement on obtient une variation de la position du pic binaire de $[\theta_e]_{crit} = 55.54$ degrés pour un électron de 50 eV à $[\theta_e]_{crit} = 25.71$ degrés pour un électron de 750 eV.

Expérimentalement le pic binaire se décale de $[\theta_e]_{crit} = 49.84$ degrés pour un électron de 100 eV à $[\theta_e]_{crit} = 19.42$ degrés pour un électron de 750 eV (l'énergie du proton est de 0.5 MeV).

Pour un proton de 1.5 MeV on remarque un décalage du pic binaire théorique de $[\theta_e]_{crit} = 74.66$ degrés pour un électron de 50 eV à $[\theta_e]_{crit} = 33.24$ degrés pour un électron de 2200 eV. Le décalage du pic binaire expérimental est lui de $[\theta_e]_{crit} = 79.76$ degrés à 50 eV à $[\theta_e]_{crit} = 29.67$ degrés à 2200 eV.

Les figures 7 et 8 permettent de comparer les résultats de plusieurs modèles avec deux expériences de Toburen et Wilson [5] pour lesquelles le processus ECC se manifeste. Les modèles FBA-CW et 2CW ne peuvent reproduire l'accroissement de la DDCS de 20 degrés à 0 degré. Par contre le modèle BBK, qui inclut l'interaction électron éjecté-particule diffusée reproduit cette augmentation tout en la surestimant. Cette surestimation est peut-être due au fait que nous n'avons pas utilisé de charges effectives. Nous avons toujours considéré ici $Z_s=Z_e=1$. Il faut néanmoins noter l'excellent accord de notre modèle BBK pour des angles d'éjection entre 50 degrés et 120 degrés. Si maintenant on considère le modèle FBA-CW avec le facteur de Salin on observe un excellent accord pour les petits angles mais ce modèle sous-estime la DDCS pour des angles d'éjection supérieurs à 80 degrés. Ce modèle consiste à multiplier les résultats du modèle FBA-CW par un facteur S :

$$S = \frac{2\pi / k_{ie}}{1 - e^{-2\pi / k_{ie}}}$$

Avec

$$k_{ie} = \left| \vec{k}_i - \vec{k}_e \right|$$

Ce facteur S dépend de k_i et ne prend donc pas en compte directement l'interaction électron éjecté-particule diffusée. En fait, comme la particule incidente est diffusée généralement avec un angle θ_s très faible on peut effectivement considérer que

$$\vec{k}_s = \vec{k}_i$$

Dans la figure 8 nous avons tracé les résultats du modèle CDW-EIS [22,23] qui prend aussi en compte l'interaction électron éjecté-particule diffusée. Ce modèle n'utilise pas une fonction d'onde initiale de qualité et sous-estime largement la DDCS pour des angles d'éjection supérieurs à 80 degrés. Par contre il reproduit mieux la DDCS pour de faibles valeurs de l'angle d'éjection.

La figure 9 permet de comparer les résultats théoriques des modèles FBA-CW (avec et sans facteur de Salin) ainsi que ceux de Senger [15-16] et les expériences de Bolorizadeh et Rudd [9] pour des protons incidents de 100 keV. Aucun modèle ne reproduit complètement les résultats expérimentaux. La prise en compte du facteur de Salin permet d'expliquer l'augmentation de la DDCS pour des angles d'éjection inférieurs à 30 degrés mais sous-estime largement l'expérience pour θ_e supérieur à 70 degrés. Le modèle FBA-CW de Senger sous-estime encore plus largement l'expérience que notre modèle FBA-CW avec le facteur de Salin. La différence de résultats entre ces deux derniers modèles provient sûrement du fait que nous avons utilisé une bien meilleure fonction d'onde pour représenter l'état initial de la molécule d'eau.

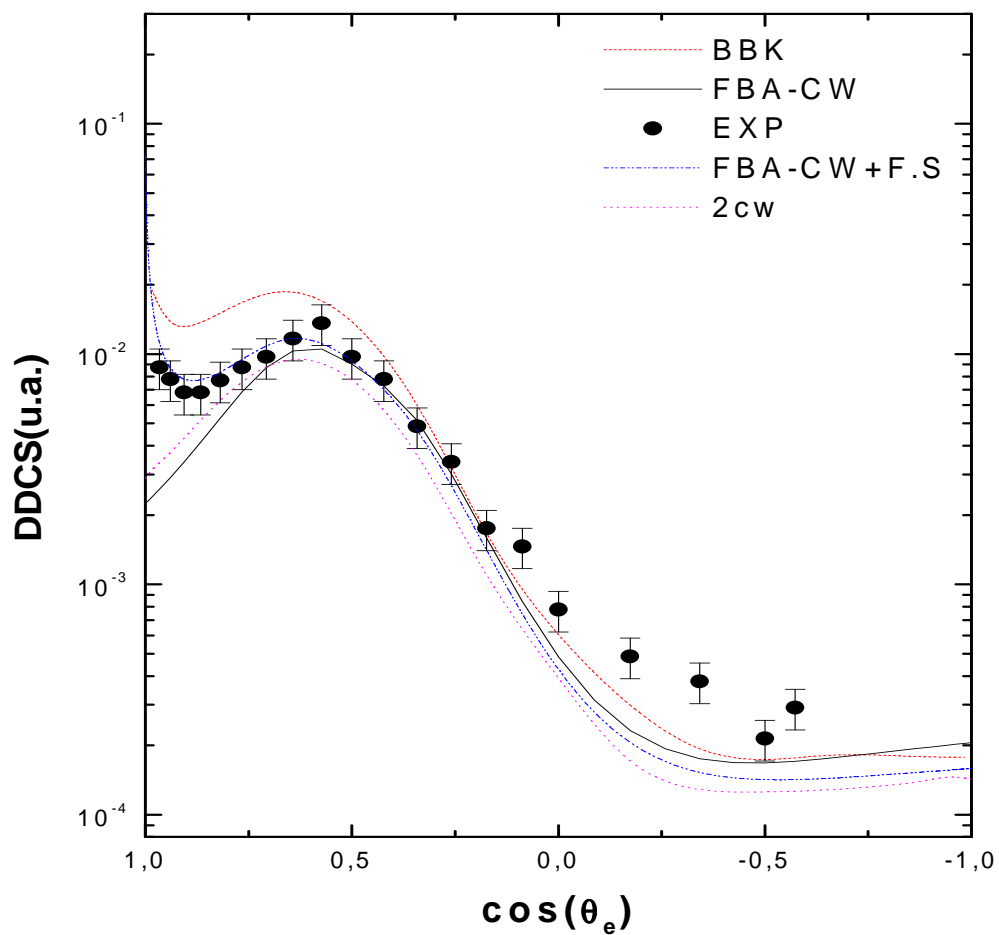


Fig. 7 Distribution angulaire de la section efficace doublement différentielle pour la simple ionisation de la molécule d'eau par impact d'un proton de 0.5 MeV. L'énergie de l'électron éjecté est de 250 eV.

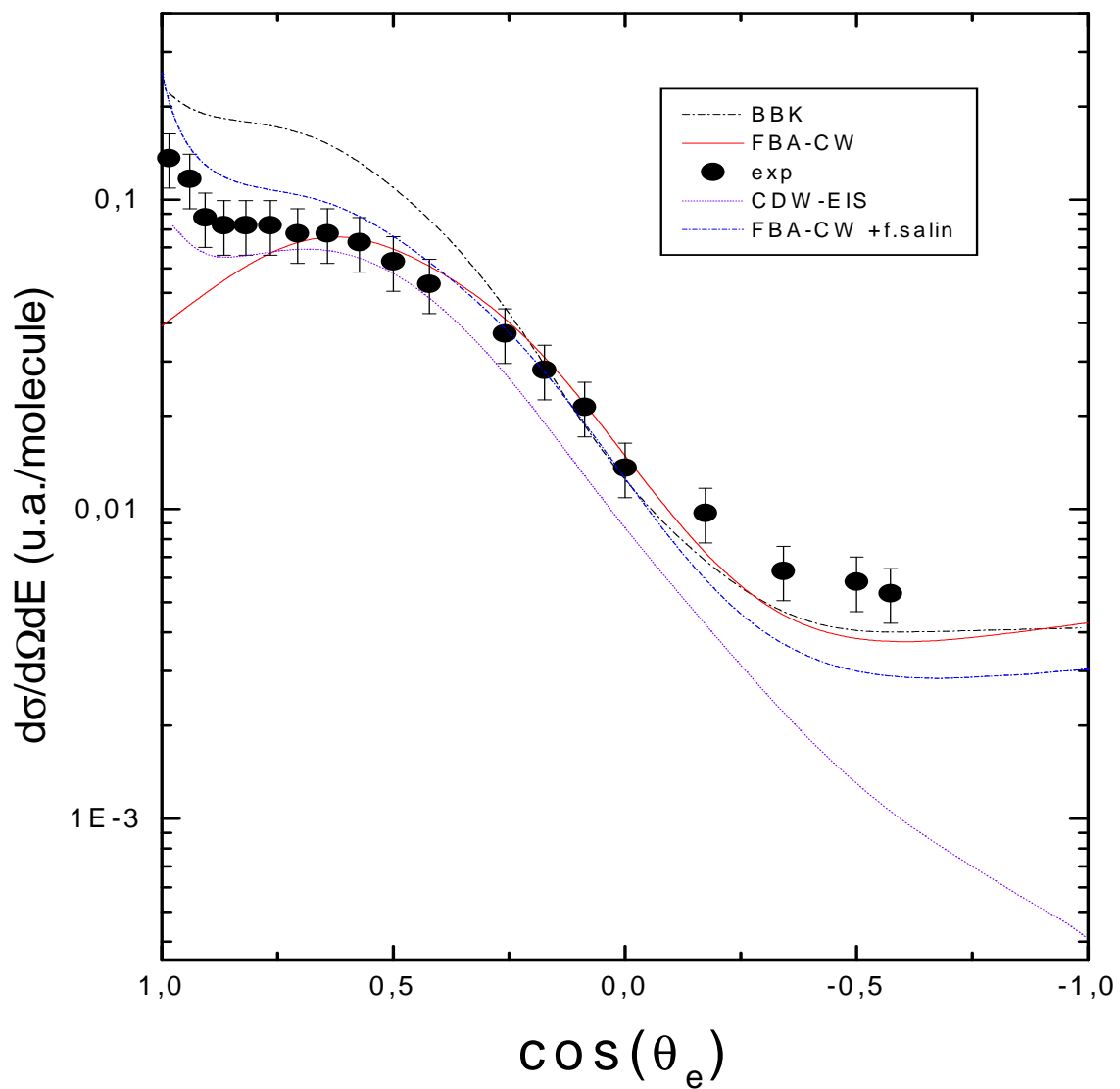


Fig. 8 Distribution angulaire de la section efficace doublement différentielle pour la simple ionisation de la molécule d'eau par impact d'un proton de 0.3 MeV. L'énergie de l'électron éjecté est de 100 eV.

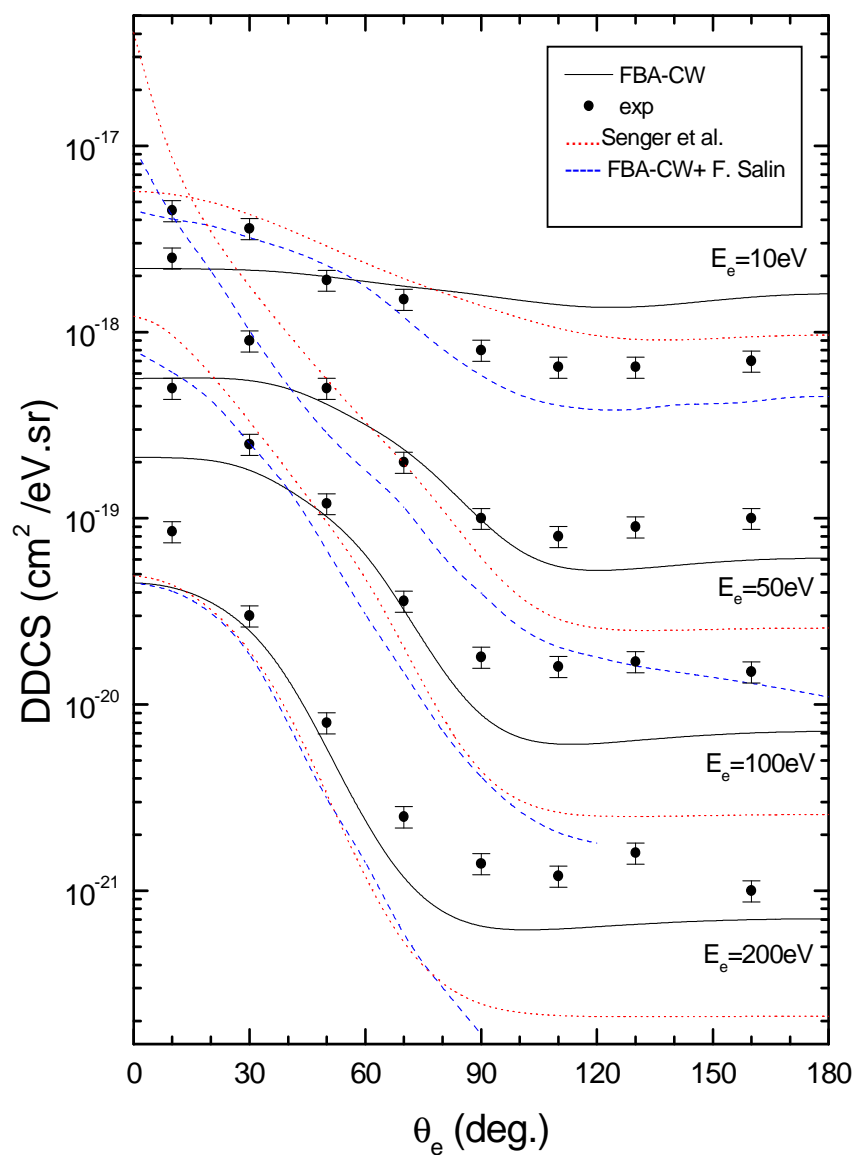


Fig. 9 Distribution angulaire de la section efficace doublement différentielle pour la simple ionisation de H_2O par impact d'un proton de 100 keV pour différentes valeurs de l'énergie de l'électron éjecté.

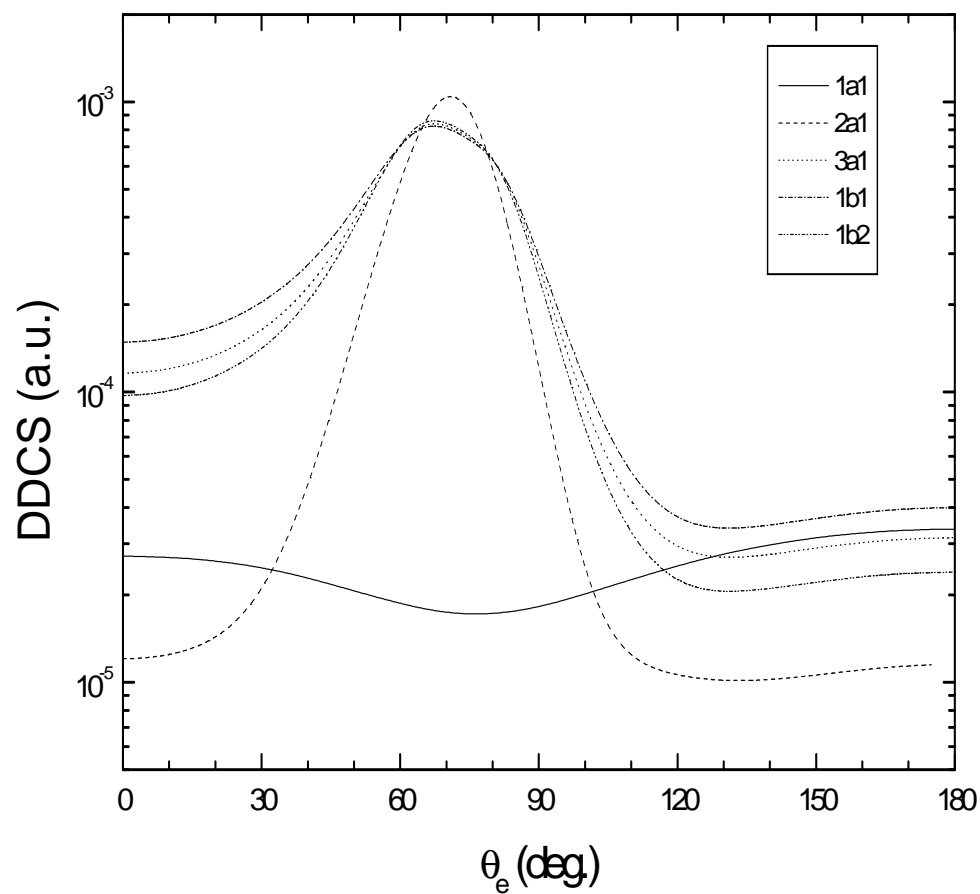


Fig. 10 Contribution de chaque orbitale moléculaire de la molécule d'eau à la DDCS pour un proton de 1.5 MeV et une énergie de l'électron éjecté de 250 eV.

La figure 10 montre la contribution de chaque orbitale moléculaire à la section efficace doublement différentielle. Contrairement à ce que l'on pourrait penser la contribution de l'orbitale la plus interne ($1a_1$) est loin d'être négligeable lorsque l'angle d'éjection varie de 130 degrés à 180 degrés. Par contre entre 30 degrés et 90 degrés elle est effectivement négligeable.

En conclusion à cette étude des DDCS on peut en déduire que le modèle FBA-CW reproduit la plupart des résultats expérimentaux sauf lorsque la vitesse de l'électron éjecté approche celle du proton diffusé. Dans ce dernier cas on peut utiliser le facteur de Salin bien qu'il sous-estime les DDCS pour des angles d'éjection supérieurs à 90 degrés, ou le modèle BBK bien qu'il surestime les DDCS pour des angles d'éjection inférieurs à 30 degrés.

II.1.2 Section efficace simplement différentielle (SDCS)

Lorsque l'on intègre les DDCS par rapport à l'angle solide relatif à l'électron éjecté on obtient les sections efficaces simplement différentielles (SDCS).

Les figures 9a et 9b permettent de comparer les résultats de notre modèle FBA-CW (sans le facteur de Salin) avec les résultats expérimentaux de Toburen et Wilson [5] (fig. 9a) et ceux de Bolorizadeh et Rudd [9] (fig. 9b). On constate un excellent accord sauf pour des énergies de l'électron éjecté inférieures à 5 eV. Dans ce cas l'expérience montre une décroissance de la SDCS au fur et à mesure que l'énergie de l'électron éjecté décroît, alors que notre modèle prédit un accroissement de la SDCS. Notons la présence d'un pic pour 1.5 MeV et pour une énergie de l'électron éjecté proche de 400 eV. Ce pic est dû au processus Auger, lequel n'est pas pris en compte dans notre modèle théorique.

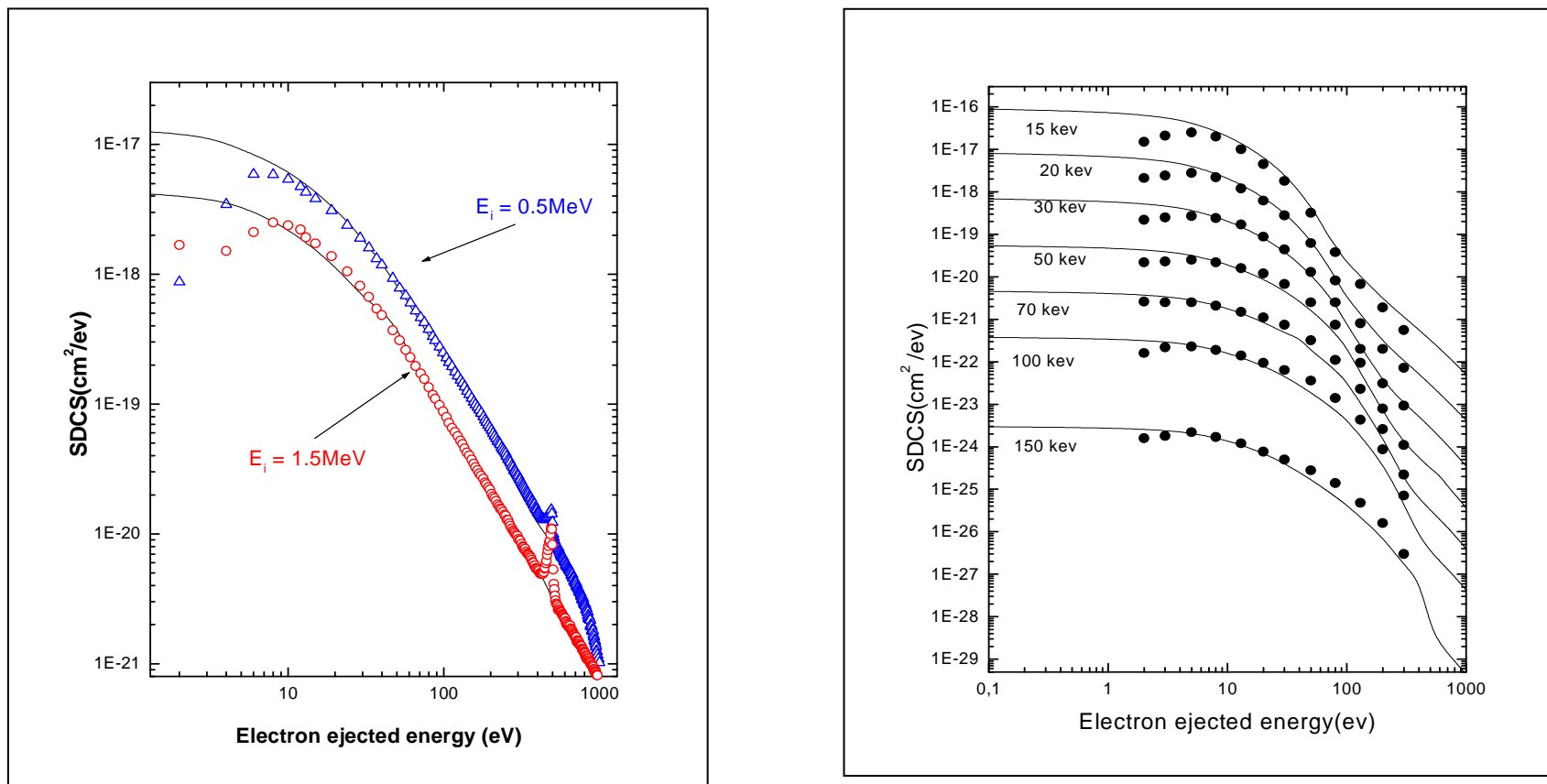


Fig. 11 La section efficace simplement différentielle de la simple ionisation de la molécule d'eau en fonction de l'énergie de l'électron éjecté pour différentes valeurs d'énergies du proton incident

II .1.3 Section efficace totale

Si on intègre les SDCS par rapport à l'énergie des électrons éjectés on obtient la section efficace totale. Nous avons représenté cette dernière à partir d'une énergie incidente supérieure à 100 keV car l'approximation de Born n'est plus valable pour des valeurs inférieures à celle-ci.

L'accord de notre modèle FBA-CW (sans facteur de Salin) avec les divers résultats expérimentaux est excellent, ainsi qu'avec les résultats théoriques de Gervais et al.[39].

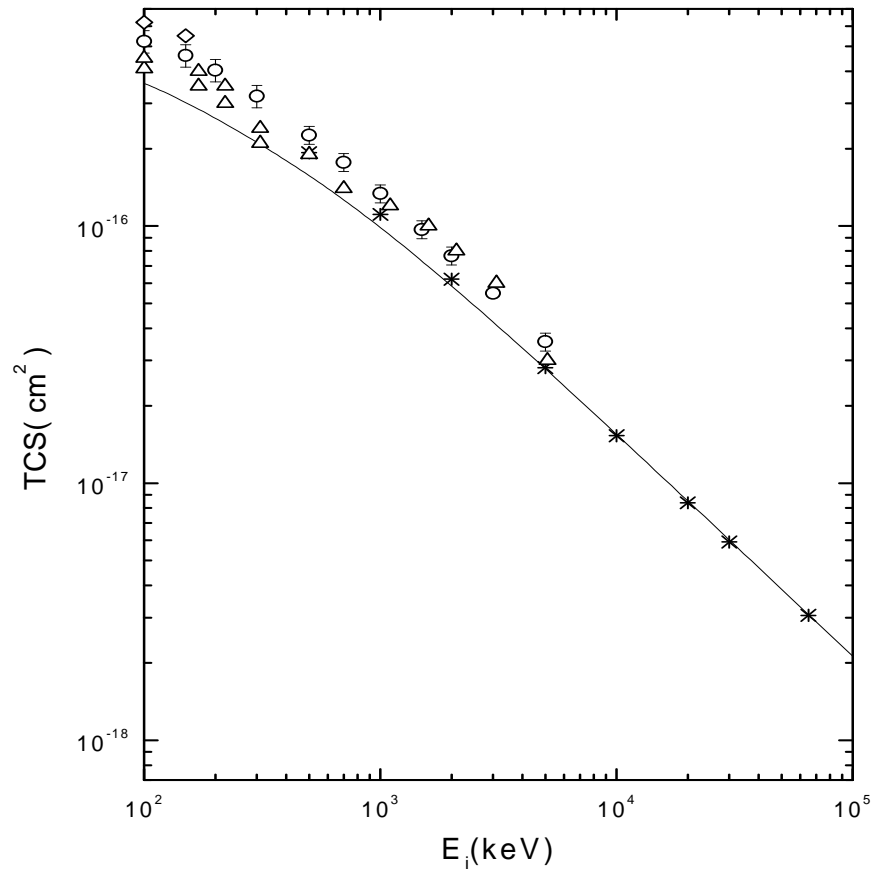


Fig. 12 La section efficace totale en fonction de l'énergie du proton incident. Les résultats théoriques (modèle FBA-CW) sont comparés à des données expérimentales : cercles et triangles Rudd et al. [7,40], diamants Bolorizadeh et Rudd [9]. Les étoiles représentent les résultats théoriques de Gervais et al. [39]

II.2 Ionisation de la molécule d'eau par impact de particules alpha

L'étude de l'ionisation de la molécule d'eau par des protons a montré la validité de notre modèle FBA-CW pour des énergies incidentes supérieures à 100 keV, des énergies de l'électron éjecté supérieures à 5 eV et des vitesses de l'électron éjecté différentes de celles du proton diffusé. Notons que dans ce dernier cas l'application (coûteuse en temps de calcul) du modèle BBK ou du modèle FBA-CW avec le facteur de Salin (moins coûteuse en temps de calcul) permet d'expliquer une partie des résultats expérimentaux. Il nous reste maintenant à vérifier ces résultats dans le cas de l'ionisation de la molécule d'eau par des particules alpha [76].

II.2.1 Section efficace doublement différentielle (SDCS)

Comme dans le cas de l'ionisation par impact de protons il n'existe pas de résultats expérimentaux de section efficace triplement différentielle.

Les figures 11,12 et 13 permettent de comparer les résultats de notre modèle FBA-CW avec ceux de l'expérience récente de Oshawa et al. [14] pour trois valeurs de l'énergie des particules alpha incidentes : 6 MeV/u, 10 MeV/u et 15 MeV/u. L'accord se révèle excellent sauf pour des énergies de l'électron éjecté de 19.2 eV (figures 11 et 12) et 38.5 eV pour la figure 13. Dans ces derniers cas l'accord est moins bon pour des angles d'éjection inférieurs à 30 degrés et supérieurs à 130 degrés. Notons également un autre désaccord pour une énergie de 385 eV (figure 13). Dans ce dernier cas il semble que l'expérience ne soit pas fiable vu les oscillations très fortes décrites par les points expérimentaux.

La vitesse des particules alpha étant beaucoup plus grande que celle des électrons éjectés, le processus de capture dans le continuum ne se manifeste pas ici.

La figure 14 représente la DDCS en fonction de l'énergie des électrons éjectés, pour des angles d'éjection fixés à 15 degrés, 30 degrés et 45 degrés. On note un bon accord entre les résultats de notre modèle FBA-CW et les expériences réalisées par Toburen et al. [9] pour une énergie des électrons éjectés supérieure à 5 eV (rappelons que cette limite de 5 eV avait aussi été trouvée pour le cas de l'ionisation par protons). On remarque également que la théorie sous-estime l'expérience pour une énergie des électrons éjectés comprise

entre 50 eV et 500 eV pour un angle d'éjection de 15 degrés. L'explication de ce désaccord est due à la présence du processus ECC qui se manifeste pour des petits angles d'éjection et pour une énergie des électrons éjectés proche de 200 eV (de sorte que la vitesse de l'électron éjecté soit égale à celle de la particule alpha diffusée). On aurait pu le vérifier en appliquant le modèle BBK ou le modèle FBA-CW avec le facteur de Salin.

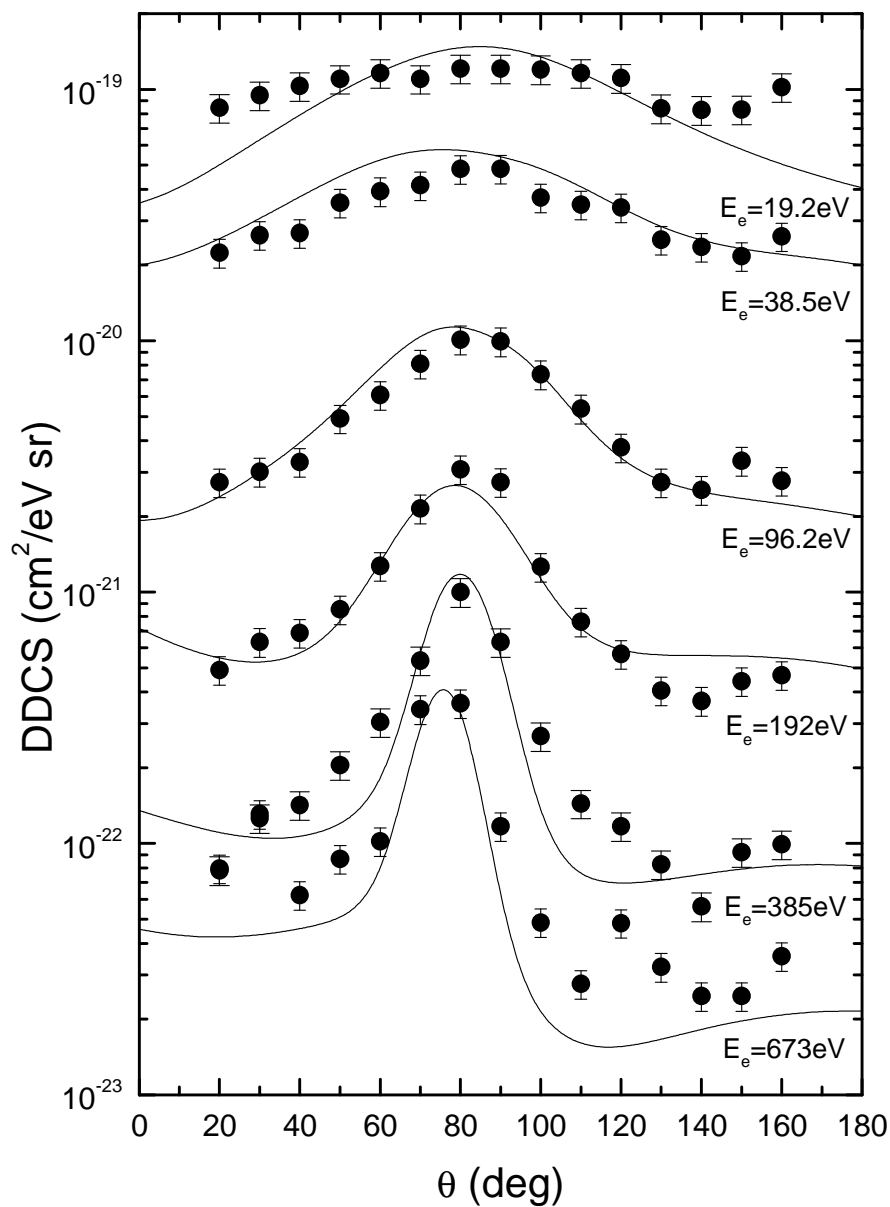


Fig. 13 Section efficace doublement différentielle pour la simple ionisation de la molécule d'eau par des particules alpha de 6 MeV /u en fonction de l'angle d'éjection et pour différentes valeurs de l'énergie de l'électron éjecté.

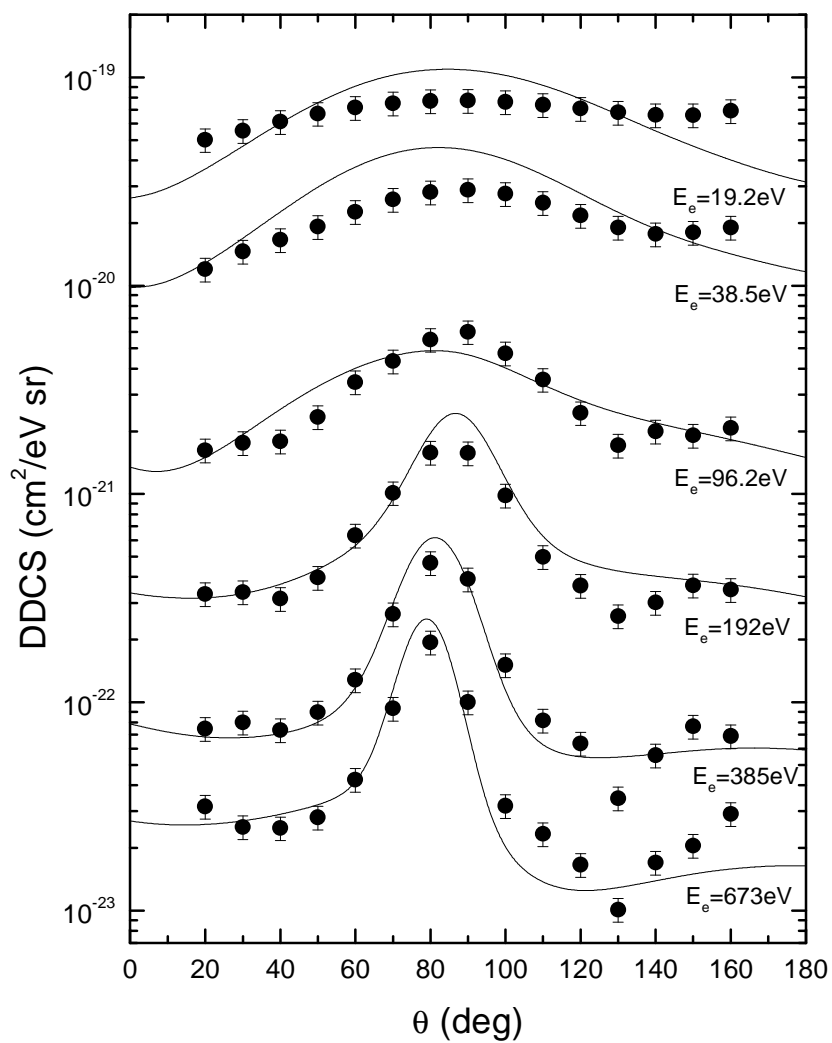


Fig. 14 Section efficace doublement différentielle pour la simple ionisation de la molécule d'eau par des particules alpha de 10 MeV /u en fonction de l'angle d'éjection et pour différentes valeurs de l'énergie de l'électron éjecté.

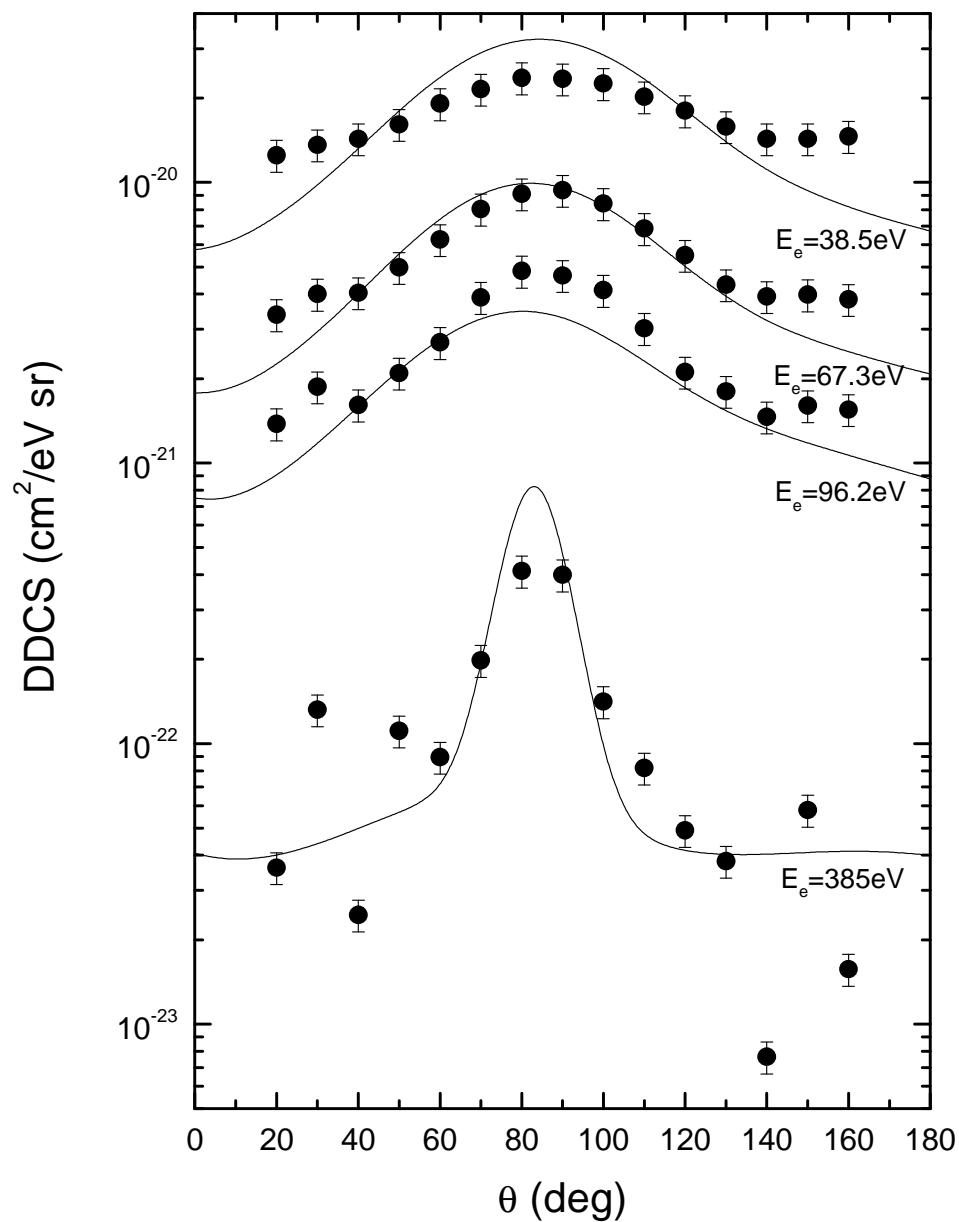


Fig. 15 Section efficace doublement différentielle pour la simple ionisation de la molécule d'eau par des particules alpha de 15 MeV /u en fonction de l'angle d'éjection et pour différentes valeurs de l'énergie de l'électron éjecté.

E_e (eV)	$E_i= 6$ MeV /u	$E_i= 10$ MeV /u	$E_i= 15$ MeV /u
19.2	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 86.26^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 86.07^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 85.68^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 83.66^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 87.10^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 86.96^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 86.65^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 85.10^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 87.64^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 87.52^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 87.27^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 86.00^\circ$
38.5	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 85.79^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 85.66^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 85.39^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 83.96^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 86.75^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 86.64^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 86.43^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 85.33^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 87.34^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 87.26^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 87.08^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 86.19^\circ$
96.2	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 84.39^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 84.30^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 84.13^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 83.22^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 85.65^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 85.59^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 85.45^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 84.76^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 86.45^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 86.40^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 86.29^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 85.72^\circ$
192	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 82.55^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 82.49^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 82.36^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 81.72^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 84.23^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 84.19^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 84.10^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 83.60^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 85.29^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 85.26^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 85.18^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 84.78^\circ$
385	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 79.77^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 79.72^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 79.64^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 79.18^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 82.10^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 82.06^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 81.99^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 81.64^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 83.55^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 83.52^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 83.47^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 83.18^\circ$
673	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 76.62^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 76.58^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 76.52^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 76.17^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 79.67^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 79.65^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 79.59^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 79.33^\circ$	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 81.58^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 81.56^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 81.52^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 81.30^\circ$

Tableau 5 Les valeurs théoriques des angles d'éjections correspondant au pic de la collision binaire pour des énergies des ions incidents de 6.0, 10.0 et 15.0 MeV /u He^{2+} et pour différentes valeurs d'énergies de l'électron éjecté : 19.2, 38.5, 96.2, 192, 385, et 673 eV.

E_e (eV)	$E_i=6$ MeV/u		$E_i=10$ MeV/u		$E_i=15$ MeV/u	
	Théorique	Expérience	Théorique	Expérience	Théorique	Expérience
19.2	85.3°	85°	84.6°	90°		
38.5	76.3°	85°	81.1°	90°	84.3°	85°
96.2	79.6°	85°	80.5°	90°	80.1°	85°
192	79°	80°	86.6°	85°		
385	80.1°	80°	81.2°	80°	82.8°	85°
673	75.8°	75°	79.2°	80°		

Tableau 6 Comparaison entre les angles d'éjections critiques théoriques et expérimentaux correspondant à une collision binaire pour différentes énergies des particules alpha et pour différentes énergies des électrons éjectés.

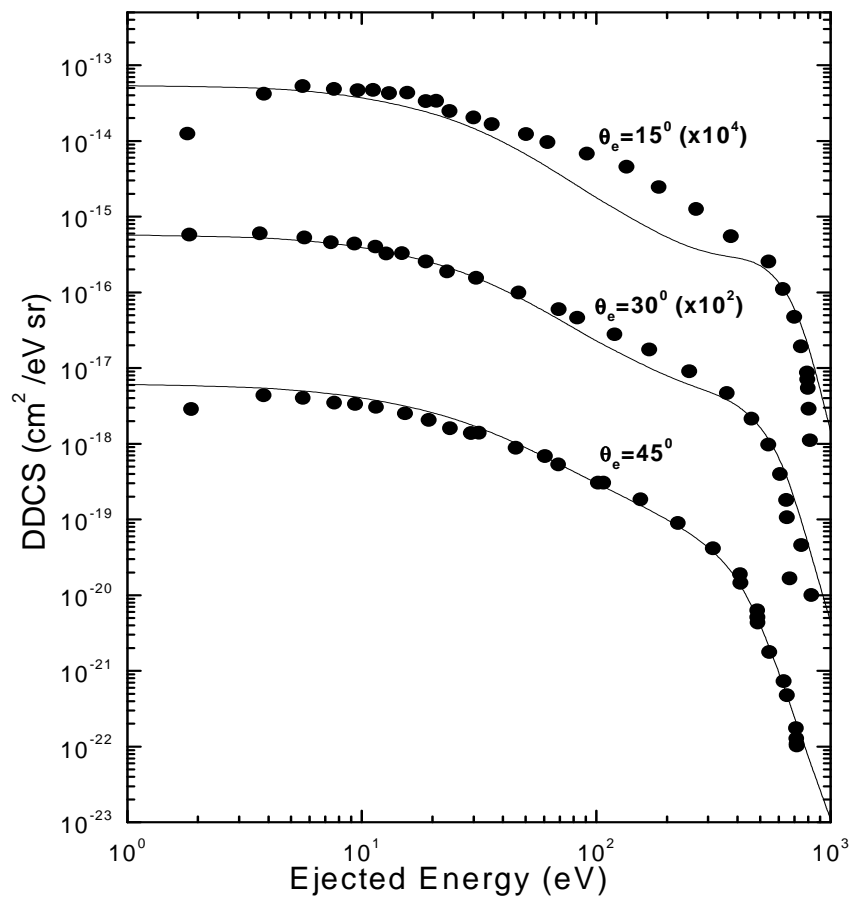


Fig.16 Section efficace doublement différentielle pour l'ionisation de l'eau par des particules alpha de 1.2 MeV en fonction de l'énergie de l'électron éjecté pour trois angles d'éjection fixés à $\theta_e = 15^\circ$ et $\theta_e = 30^\circ$, et $\theta_e = 45^\circ$. Les résultats théoriques (ligne continue) obtenus par le modèle FBA-CW sont comparés aux expériences de Toburen et al. [6]

Les tableaux 5 et 6 correspondent au cas où la collision particule alpha-molécule d'eau peut être traitée comme une collision binaire.

Le tableau 5 donne les valeurs de cet angle pour chacune des 4 orbitales moléculaires de l'eau (nous avons exclu l'orbitale la plus interne) pour chacune des énergies incidentes de la particule alpha. On peut noter que les variations de cet angle sont très faibles et dépendent fort peu de l'orbitale moléculaire. On peut donc en déduire que l'angle d'éjection correspondant au maximum de la courbe théorique (donnée par le modèle FBA-CW) devrait alors être très proche de celle de l'angle critique calculé dans le tableau 5 et de celui fourni par la courbe expérimentale.

Le tableau 6 permet de comparer les différentes valeurs de l'angle d'éjection correspondant au maximum de la DDCS (théorique et expérimental).

Comme attendu l'accord se révèle être très bon pour l'énergie la plus élevée des électrons éjectés 673 eV : le tableau 5 donne 76.5 degrés, la théorie 75.8 degrés et l'expérience 75 degrés pour une énergie incidente de 6 MeV/u. L'accord est également excellent pour une énergie incidente de 10 MeV/u. Pour 385 eV l'accord est aussi très bon mais il devient moins bon pour 192 eV et pour les valeurs plus faibles de l'énergie des électrons éjectés. On peut effectivement limiter à au moins 100 eV l'énergie des électrons éjectés afin que le modèle de la collision binaire soit applicable.

Les figures 17a et 17 b montrent les résultats obtenus par l'expérience (Toburen et al. [6]) et ceux des modèles FBA-CW, 2CW et BBK. Nous remarquons des cas pour lesquels la présence du processus ECC est visible : pour des énergies de l'électron éjecté comprises entre 10 eV et 400 eV. Dans le cas de la figure 17a les résultats du modèle FBA-CW sont comparés à ceux de l'expérience de Toburen et al [6]. L'accord est globalement bon sauf pour des angles d'éjection inférieurs à 30 degrés. Notons également que l'accord n'est pas bon pour une énergie des électrons éjectés de 10 eV et moins bon pour 20 eV. Dans ces deux derniers cas la théorie surestime l'expérience. La figure 17 b permet une comparaison de nos trois modèles avec une expérience de Toburen et al [6] pour laquelle le processus ECC est présent. Le modèle BBK reproduit bien l'accroissement de la DDCS pour les faibles valeurs de l'angle d'éjection au contraire des modèles FBA-CW et 2CW. Mais, comme dans le cas de l'ionisation par protons, il surestime l'expérience. On remarque que le modèle 2CW déplace le maximum de la DDCS vers les angles d'éjection plus petits, ce qui correspond bien à l'expérience. Ce dernier résultat montre bien l'importance d'une

bonne description de la particule diffusée ici (une onde coulombienne au lieu d'une onde plane).

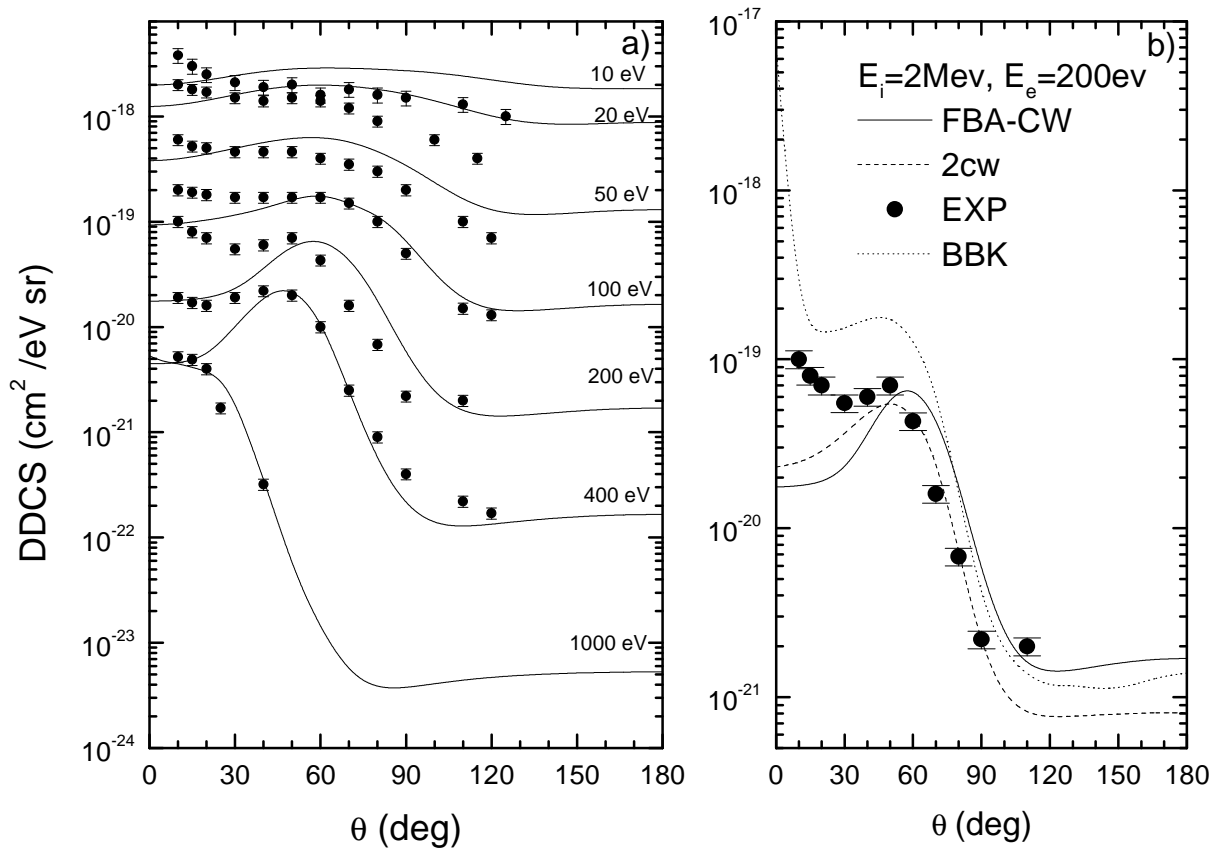


Fig. 17 a) Comparaison des résultats du modèle FBA-CW aux résultats expérimentaux de Toburen et al. [6] pour une énergie incidente des particules alpha de 2 MeV en fonction de l'angle d'éjection, pour différentes valeurs de l'énergie de l'électron éjecté.

Fig. 17 b) Comparaison entre les DDCS obtenues par les trois modèles théoriques étudiés dans ce travail (FBA-CW, 2CW et BBK) aux expériences de Toburen et al. pour une énergie des particules alpha de 2 MeV en fonction de l'angle d'éjection, pour une valeur fixe de l'énergie éjecté de 200 eV.

II.2.2 Section efficace simplement différentielle (SDCS)

Nous avons étudié deux séries de section efficace simplement différentielle : l'une réalisée pour des énergies incidentes élevées (figure 18a), l'autre pour des énergies incidentes faibles (figure 18b). Curieusement l'accord entre notre modèle FBA-CW et l'expérience est meilleur pour de faibles valeurs de l'énergie incidente (figure 18b). Pour le cas des hautes énergies incidentes notre modèle surestime l'expérience pour une énergie des électrons éjectés inférieure à 100 eV et la sous-estime pour une énergie supérieure à 3000 eV. Nous n'avons pas d'explications quant à l'origine de ce désaccord. Notons que notre modèle donne des résultats très proches de ceux du modèle semi-empirique de Rudd [40], surtout pour des énergies de l'électron éjecté élevées.

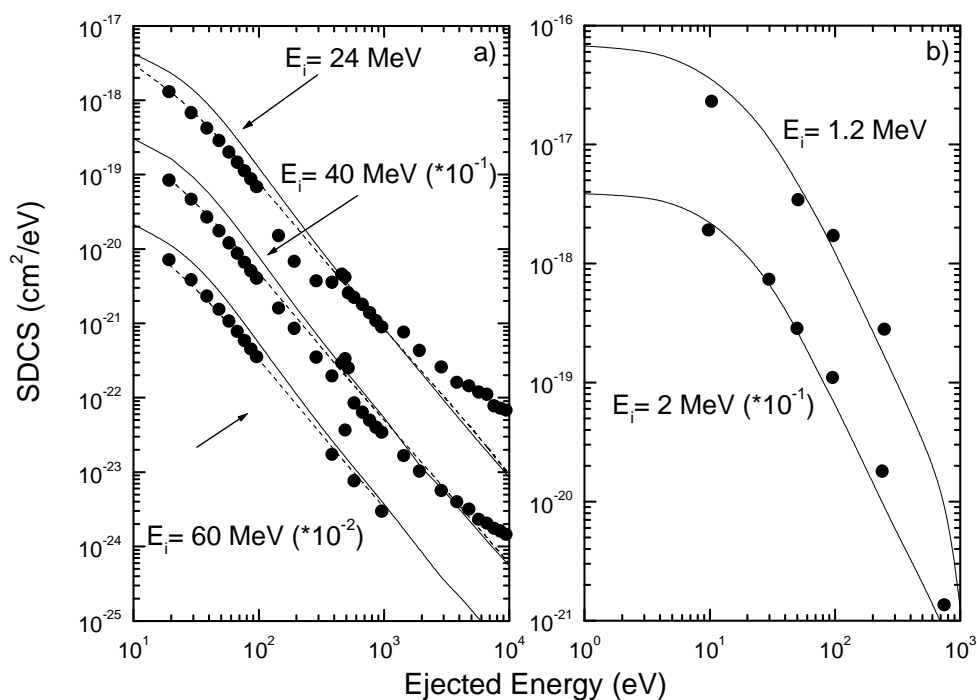


Fig. 18 La section efficace simplement différentielle de la simple ionisation de la molécule d'eau en fonction de l'énergie de l'électron éjecté pour différentes valeurs de l'énergie incidente des particules alpha. Comparaison entre les résultats théoriques obtenus par le modèle FBA-CW et les données expérimentales.

- a) à haute énergie Oshawa et al. [14] ($E_i = 6, 10$ et 15 MeV/u)
- b) à basse énergie Toburen et al. [6] ($E_i = 1.2$ et 2 MeV).

II .2.3 Section efficace totale

La figure 19 regroupe divers résultats expérimentaux : Rudd et al. [48] pour des ions ${}^3\text{He}^{2+}$, Toburen et al. [6] pour des ions ${}^4\text{He}^{++}$, Rudolph et Melton (${}^4\text{He}^{++}$). Y figure également un fit analytique de Uehara et Nikjoo [47]. Notre modèle FBA-CW donne un excellent accord avec les résultats expérimentaux et le fit. On remarque que cet accord est bon même pour de faibles valeurs de l'énergie de l'électron éjecté de 50 eV à 500 eV, contrairement au cas de l'ionisation de la molécule d'eau par impact de protons.

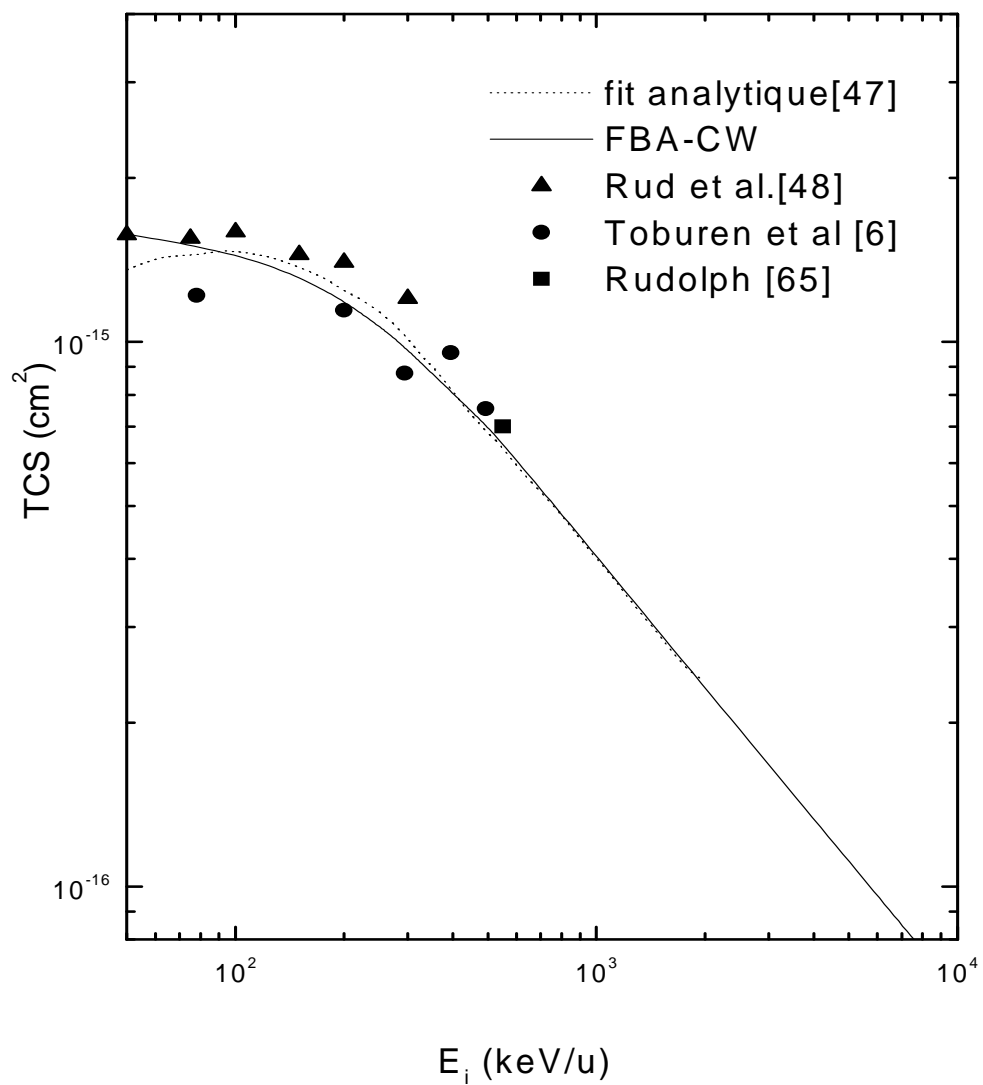


Fig. 19 Section efficace totale en fonction de l'énergie des particules alpha incidentes

II.3 Ionisation de la molécule d'eau par impact de particules C^{6+}

Le succès de notre modèle (FBA-CW) pour décrire successivement les sections efficaces doublement différentielles, les sections efficaces simplement différentielles et les sections efficaces totales, aussi bien pour l'ionisation de la molécule d'eau par impact de protons que par impact de particules alpha nous incite à l'appliquer pour un troisième cas : celui de l'ionisation par des particules C^{6+} .

Oshawa et al. (non publié) ont réalisé cette année les premières expériences pour les DDCS, SDSCS et TCS.

II. 3.1 Section efficace doublement différentielle (SDCS)

Oshawa et al. ont réalisé une première série d'expériences pour une énergie de 72 MeV/u pour les ions C^{6+} et pour différentes valeurs d'énergie des électrons éjectés (de 9.6 eV à 384 eV, figure 20). On remarque un excellent accord entre l'expérience et notre modèle FBA-CW, sauf pour le cas de 384 eV pour lequel le minimum à 40 degrés ne peut être expliqué par notre modèle. Le bon accord à 9.6 eV est surprenant car ce n'était pas le cas pour les DDCS correspondant à l'ionisation de l'eau par des particules alpha. Notons que le processus ECC n'est pas présent ici car les vitesses de l'électron éjecté et de la particule diffusée sont très différentes.

Oshawa et al. ont aussi mesuré des DDCS (figure 21) en fonction de l'énergie des électrons éjectés pour trois valeurs de l'angle d'éjection (30 degrés, 80 degrés et 150 degrés). L'accord entre notre modèle FBA-CW et l'expérience est excellent pour une énergie des électrons éjectés de 10 eV à 80 eV et devient moins bon pour des énergies plus élevées surtout pour des angles d'éjection de 30 degrés et de 80 degrés. Curieusement notre modèle sous-estime l'expérience à 80 degrés et la surestime à 30 degrés. Il serait intéressant de confronter ces résultats à d'autres expériences afin de bien vérifier si ce n'est pas du à des barres d'erreur expérimentales sous-estimées.

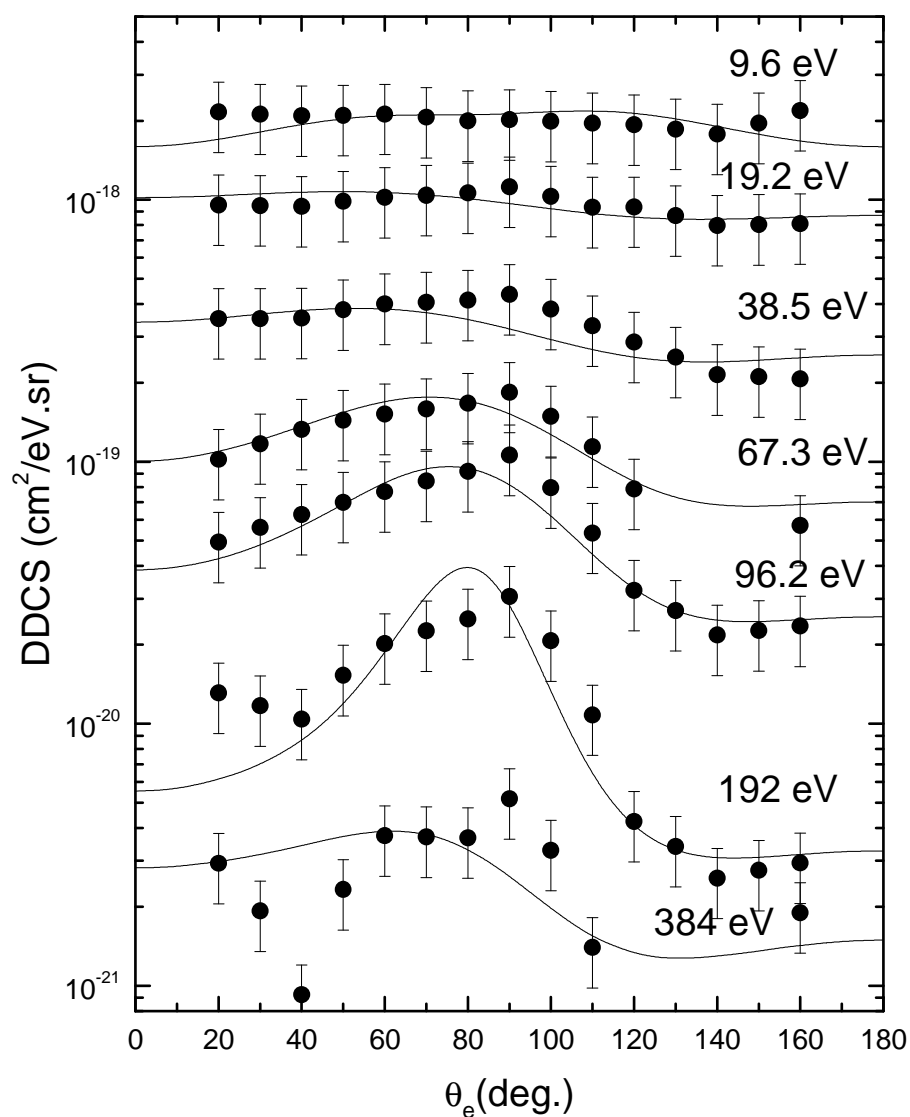


Fig. 20 La section efficace doublement différentielle de l'ionisation de la molécule d'eau par des ions C^{6+} de 72 MeV/u pour différentes valeurs de l'énergie des électrons éjectés en fonction de l'angle d'éjection.

E_c (eV)	$E_i = 6 \text{ MeV /u}$
9.6	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 86.40^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 86.06^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 85.45^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 83.22^\circ$
19.2	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 86.36^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 86.11^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 85.68^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 84.11^\circ$
38.5	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 85.86^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 85.69^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 85.39^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 84.28^\circ$
67.3	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 85.11^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 84.98^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 84.75^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 83.91^\circ$
96.2	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 84.43^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 84.32^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 84.12^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 83.42^\circ$
192	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 82.57^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 82.50^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 82.36^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 81.86^\circ$
384	$[\theta_e(^1B_1)]_{crit} = 79.80^\circ$ $[\theta_e(^3A_1)]_{crit} = 79.74^\circ$ $[\theta_e(^1B_2)]_{crit} = 79.65^\circ$ $[\theta_e(^2A_1)]_{crit} = 79.29^\circ$

Tableau 7 Les valeurs théoriques des angles d'éjections correspondant au pic de la collision binaire pour des énergies des ions incidents de 6.0 MeV /u C^{6+} et pour différentes valeurs d'énergies de l'électron éjecté : 9.6, 19.2, 38.5, 67.3, 96.2, 192, et 384 eV.

E_e (eV)	$E_i=6$ MeV/u	
	Théorique	Expérience
19.2		82.19°
38.5		90.12°
67.3	73.57°	90.07°
96.2	80.75°	89.92°
192	81.70°	91.11°

Tableau 8 Comparaison entre les angles d'éjection critiques théoriques et expérimentaux correspondant à une collision binaire pour différentes énergies incidentes des ions C^{6+} et pour différentes énergies de l'électron éjecté.

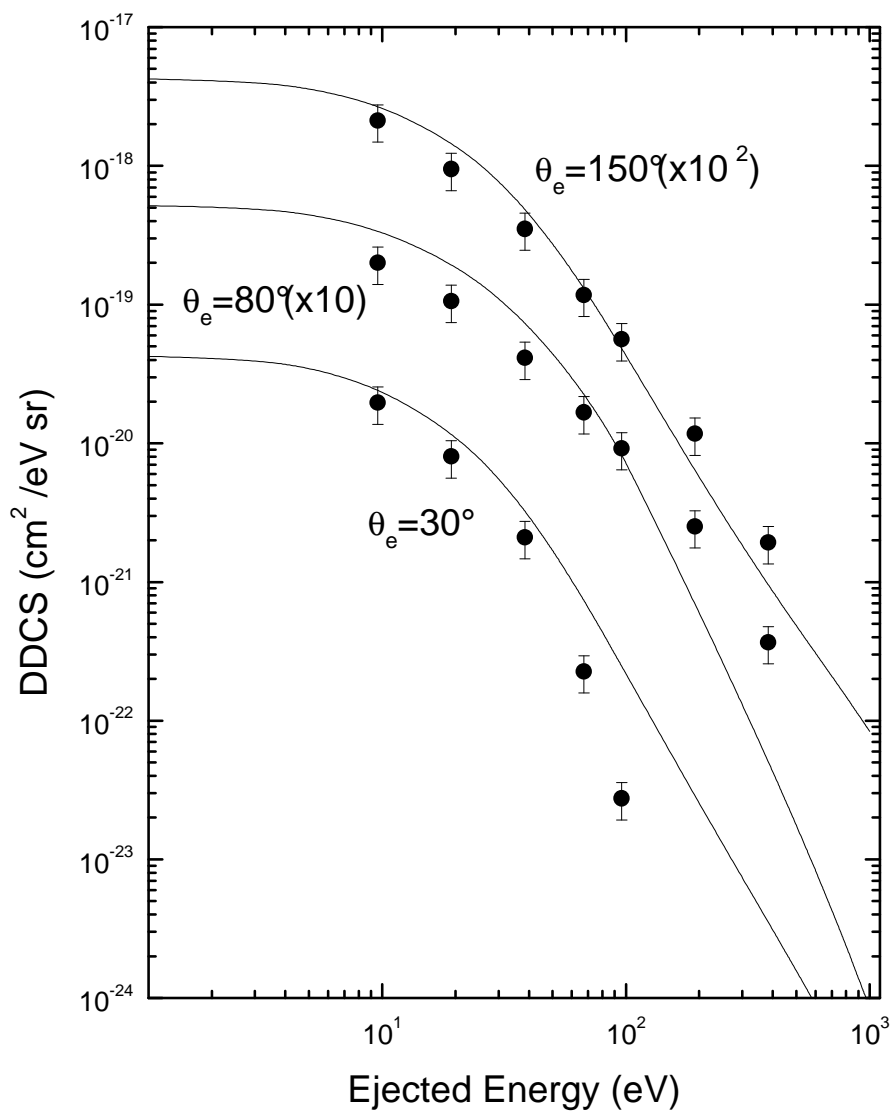


Fig. 21 Section efficace doublement différentielle pour l'ionisation de la molécule d'eau par des ions C^{6+} de 72 MeV/u en fonction de l'énergie des électrons éjectés pour trois angles d'éjection $\theta_e = 30^\circ$ et $\theta_e = 80^\circ$ et $\theta_e = 150^\circ$. Les résultats théoriques obtenus par le modèle FBA-CW sont comparés aux expériences de Oshawa et al.

Dans le tableau 7 nous avons rapporté les valeurs de $[\theta_e]_{crit}$ calculées analytiquement à partir de l'équation (107) pour les quatre orbitales moléculaire les plus externes de la molécule d'eau. Puis nous avons comparé les valeurs théoriques avec les valeurs expérimentales dans le tableau 8.

Le pic binaire est prédit par la théorie à partir de 67.3 eV pour l'électron éjecté alors que l'expérience le prédit à partir de 19.2 eV.

On peut prévoir théoriquement le décalage du pic binaire de $[\theta_e]_{crit} = 73.57^\circ$ pour l'électron de 67.3 eV à $[\theta_e]_{crit} = 81.70^\circ$ pour l'électron de 192 eV alors que l'expérience indique un décalage de $[\theta_e]_{crit} = 82.19^\circ$ à $[\theta_e]_{crit} = 91.11^\circ$.

II.3.2 Section efficace simplement différentielle (SDCS)

Oshawa et al. (non publié) ont aussi mesuré la section simplement différentielle toujours pour une énergie incidente de 72 MeV/u en fonction de l'énergie des électrons éjectés (figure 22). Notre modèle FBA-CW donne un excellent accord avec l'expérience sauf pour les faibles énergies (inférieures à 40 eV) pour lesquelles notre modèle surestime un peu l'expérience.

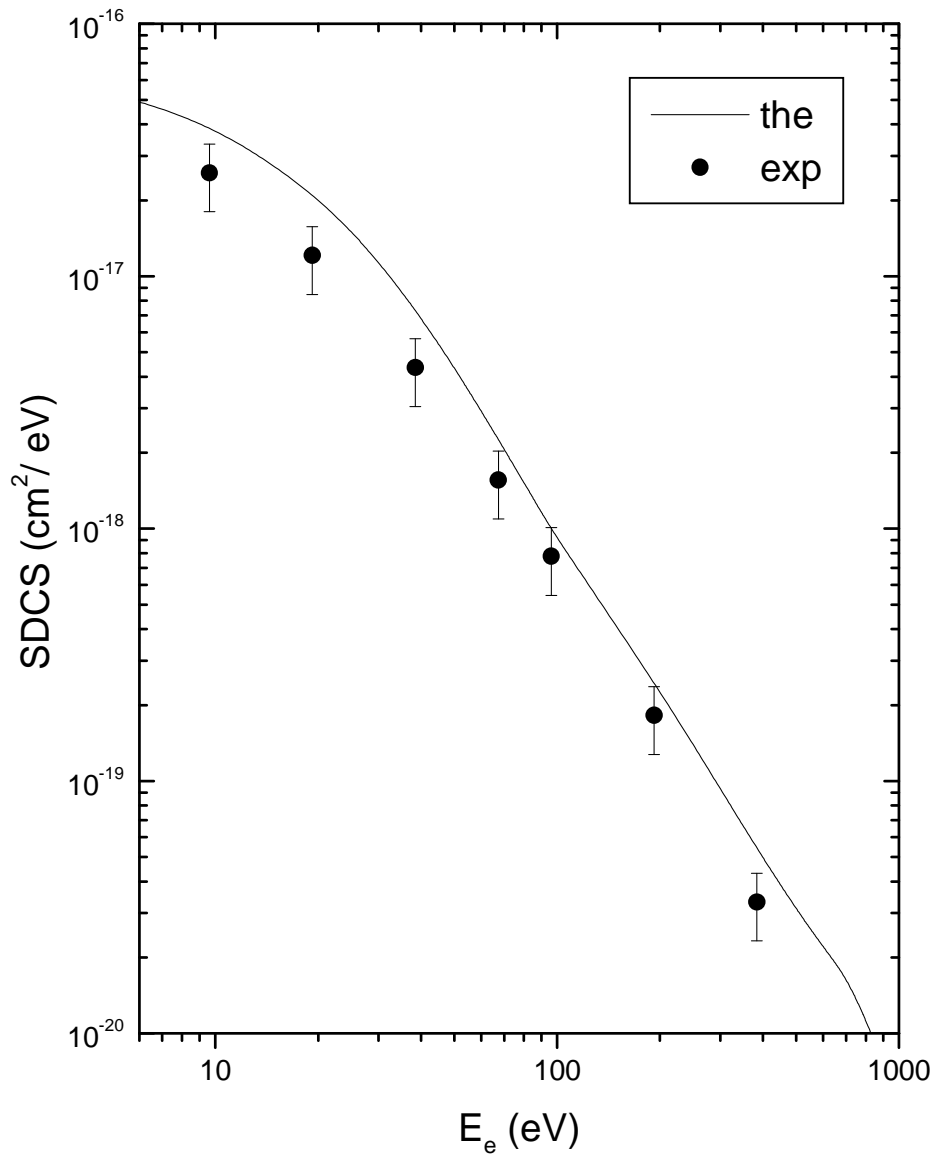


Fig. 22 La section efficace simplement différentielle pour la simple ionisation de la molécule d'eau en fonction de l'énergie de l'électron éjecté pour des ions C⁶⁺ de 72 MeV /u . Comparaison entre les résultats théoriques obtenus par le modèle FBA- CW et l'expérience de Oshawa et al.

II .3.3 Section efficace totale

La figure 23 représente la section efficace totale de l'ionisation de la molécule d'eau par l'ion C^{6+} calculé théoriquement par intégration des sections efficaces simplement différentielles par rapport à l'énergie des électrons éjectés. Il n'y a pas de résultats expérimentaux disponibles actuellement qui auraient permis une comparaison avec les résultats théoriques.

Nous avons aussi tracé les deux courbes théoriques (obtenues par le modèle FBA-CW) de la section efficace totale divisée par le carré de la charge de la particule incidente correspondant à l'ionisation de la molécule d'eau par des ions (H^+ , He^{2+}) dans la figure 24. On remarque un bon accord entre les deux courbes obtenues pour le proton et la particule alpha.

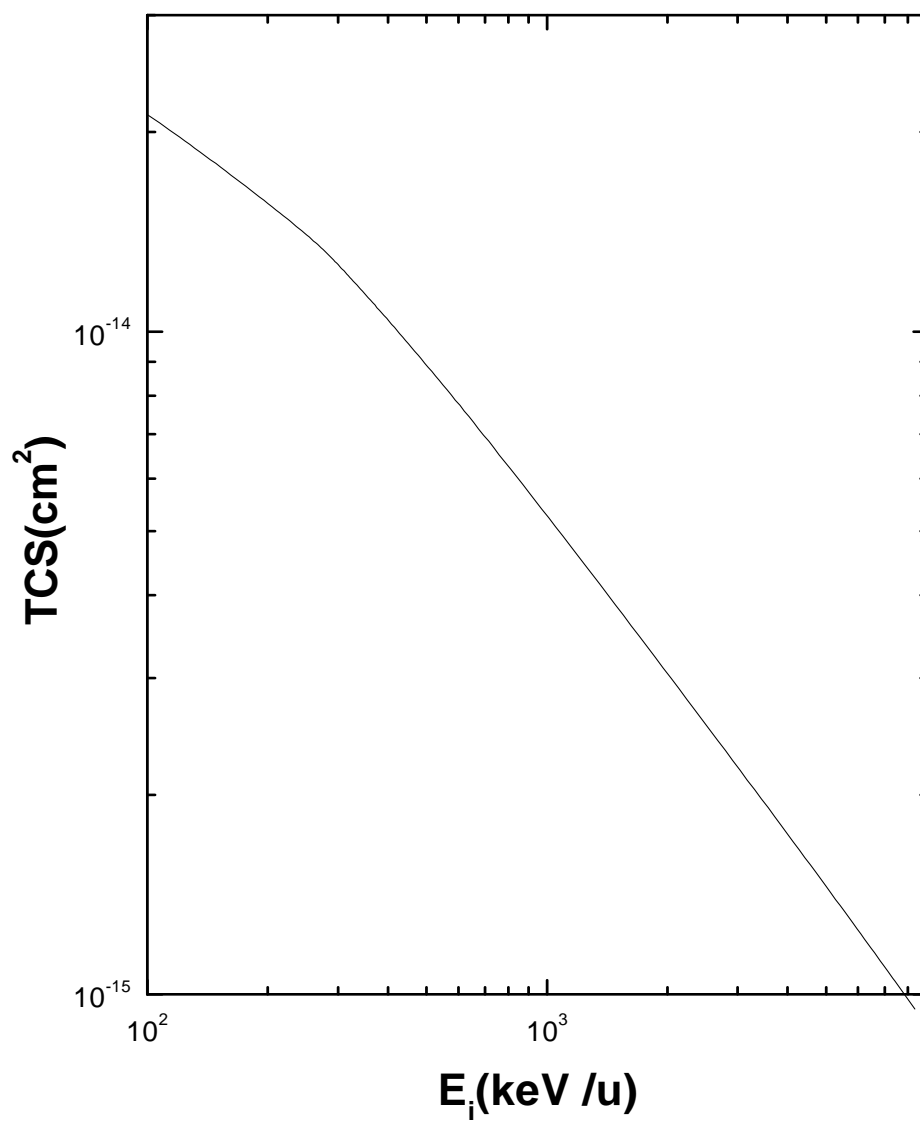


Figure 23 La section efficace totale calculée par le modèle FBA-CW en fonction de l'énergie de l'ion C⁶⁺ incident.

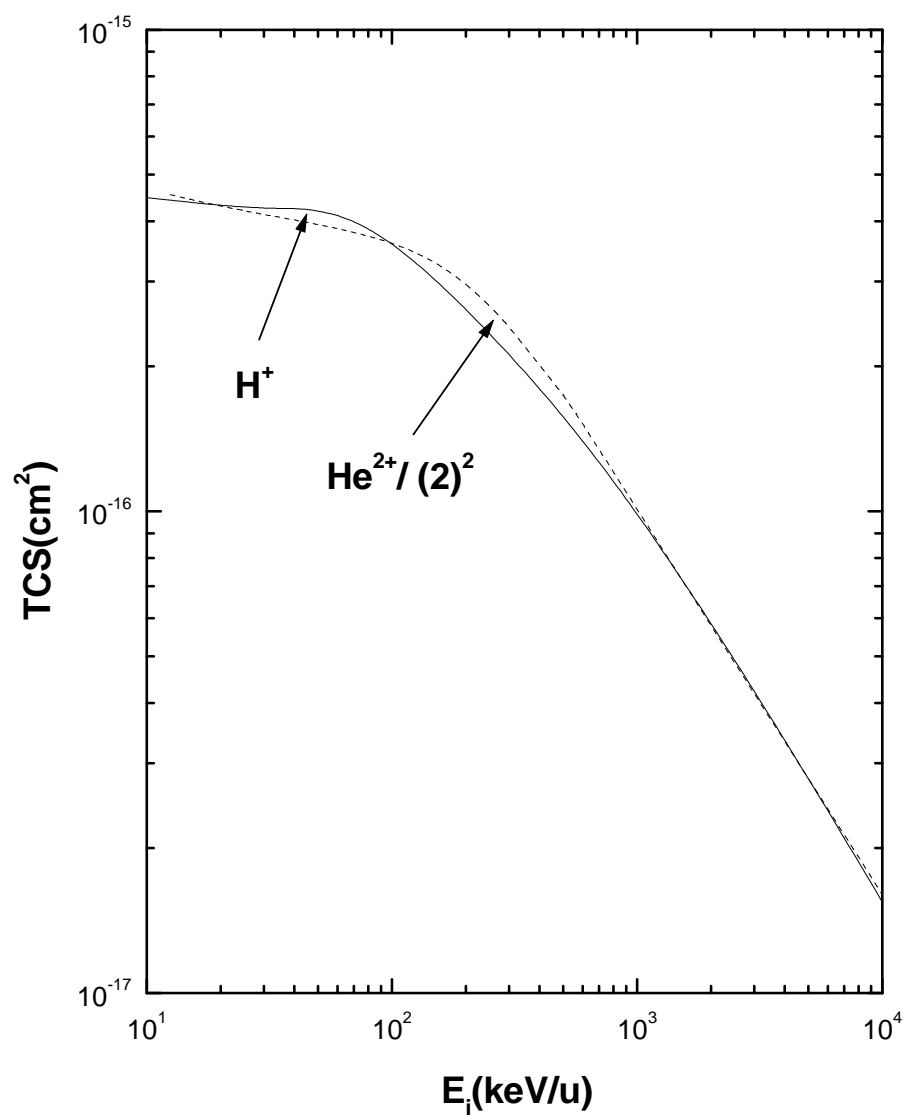


Figure 24 Comparaison entre les deux sections efficace totale pour l'ionisation de la molécule d'eau par impact des trois ions (H⁺, He²⁺)

III CONCLUSION ET PERSPECTIVES FUTURES

L'utilisation d'une fonction d'ondes mono-centrique pour décrire l'état initial de la molécule d'eau en phase vapeur nous a permis d'appliquer sans grande difficulté des modèles généralement utilisés dans les collisions particules chargées-atomes. Ainsi le modèle FBA-CW suffit dans la plupart des cas à reproduire les données expérimentales, de la section efficace doublement différentielle à la section efficace totale lorsque la vitesse de la particule incidente est plus grande que celle des électrons de la cible (condition de validité de l'approximation de Born). Ceci montre que la description de l'électron éjecté par une simple onde coulombienne est suffisante, ainsi que la description de la particule incidente et diffusée par une onde plane. Lorsque la vitesse de l'électron éjecté est proche de celle de la particule diffusée, la section efficace différentielle augmente rapidement. Cet accroissement est dû à la capture de l'électron dans le continuum de la cible (ECC) et ce processus ne peut être décrit par le modèle FBA-CW. Il faut effectivement prendre en compte l'interaction coulombienne attractive électron éjecté-particule diffusée pour pouvoir expliquer cette augmentation brutale de la section efficace différentielle. Ainsi le modèle BBK, qui inclut une telle interaction, décrit bien l'allure des résultats expérimentaux tout en surestimant l'amplitude. L'utilisation d'un modèle BBK à charges effectives pourrait peut-être corriger ce défaut. Ce processus ECC n'est pratiquement plus présent dans les sections totales et on peut donc conclure que le modèle FBA-CW est bien suffisant dans la plupart des cas.

La validité de notre modélisation de la collision particule chargée massive-molécule d'eau étant établie, il est donc raisonnable d'envisager une application à des molécules plus complexes telles que l'uracile (il existe des données expérimentales (DDCS et SDCS) concernant les collisions protons-uracile [75] et les bases de l'ADN (adénine, guanine, thymine et cytosine). Pour cela il suffira d'utiliser les programmes GAUSSIAN capables de générer des fonctions d'ondes multicentriques de l'état initial de ces molécules dans le cadre de l'approximation de Hartree-Fock, puis de redévelopper ces fonctions sur une base mono-centrique. La simplicité des expressions analytiques présentes dans le modèle FBA-CW nous permet d'envisager de calculer les sections différentielles et totales correspondant à des collisions particules chargées-molécules complexes.

Conclusion

Une autre application possible de ce travail serait aussi de calculer les sections efficaces de la collision molécule d'eau avec des ions chargés C^+ et C^{++} pour une ionisation dissociative (avec formation d'espèces telles que H, O et OH (neutres et chargées)) qui va être entreprise prochainement à Louvain-la-Neuve par l'équipe du Professeur P. Defrance.

Références

- [1] H. A. Bethe, *Ann. Phys.* **5**, 325 (1930).
- [2] U. Fano, *Ann. Rev. Nucl. Sci.* **13**, 1 (1963).
- [3] M. Inokuti, *Rev. Mod. Phys.* **43**, 297 (1971).
- [4] T. Nakano, M. Suzuki, A. Abe, Y. Suzuki, S. Morita, J. Mizoe, S. Sato, T. Miyamoto, T. Kamada, H. Kato and H. Tsujii, *Cancer J. Sci. Am.* **5**(6), 369 (1999).
- [5] L.H. Toburen and W.E. Wilson, *J. Chem. Phys.* **66**, 5202 (1977).
- [6] L. H. Toburen, W.E. Wilson and R.J. Popowich, *Radiat. Res.* **82**, 27 (1980).
- [7] M.E. Rudd, T.V. Goffe, R. D. DuBois and L. H. Toburen, *Phys. Rev. A* **31**, 492 (1985).
- [8] M.E. Rudd, A. Itoh and T. V. Goffe, *Phys. Rev. A* **32**, 2499 (1985).
- [9] M.A. Bolorizadeh and M. E. Rudd, *Phys. Rev. A* **33**, 888 (1986).
- [10] U. Werner, K. Beckord, J. Becker and H. O. Lutz, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 1962 (1995).
- [11] F. Gobet, B. Farizon, M. Farizon, J. M. Gaillard, M. Carré, M. Lezius, P. Scheier and T. D. Mark, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 3751 (2001).
- [12] F. Gobet, S. Eden, B. Coupier, J. Tabet, B. Farizon, M. Farizon, M. J. Gaillard, M. carré, S. Ouaskit, T. D. Mark and P. Scheier, *Phys. Rev. A* **70**, 062716 (2004).
- [13] H.C Straub, B. G. Lindsay, K. A. Smith and R. F. Stebbings, *J. Chem. Phys.* **108**, 109 (1998).
- [14] D. Oshawa, Y. Sato, Y. Okada, V. P. Shevelko and F. Soga, *Phys. Rev. A* **72**, 062710 (2005).
- [15] B. Senger, E. Wittendorp-Rechenmann and R. V. Rechenmann, *Nucl. Instrum. Methods* **194**, 437 (1982).
- [16] B. Senger and R. V. Rechenmann, *Nucl. Instrum. Methods* **2**, 204 (1984).
- [17] C. E. Kuyatt and T. Jorgensen, *Phys. Rev.* **130**, 1444 (1963).

- [18] G. S. Khandelwal and E. Merzbacher, Phys. Rev. **151**, 12 (1966).
- [19] G. S. Khandelwal and E. Merzbacher, Phys. Rev. **144**, 349 (1966).
- [20] B. H. Choi, E. Merzbacher and G. S. Khandelwal, At. Data **5**, 291 (1973).
- [21] A. Salin, J. Phys. B **2**, 631 (1969).
- [22] G. H. Olivera, P. D. Fainstein and R. D. Rivarola, Phys. Med. Biol., **41**, 1633 (1996).
- [23] P. D. Fainstein, V. H. Ponce and R. D. Rivarola, J. Phys. B **24**, 3091 (1991).
- [24] K. Siegbahn, C. Nordling, J. Johansson, J. Hedman, P. F. Heden, K. Hamrin, U. Gelius, T. Bergmark, L. O. Werme, R. Manne and Y. Baer, ESCA applied to free molecules, ed. North Holland Publ. Comp., Amsterdam (1969).
- [25] R. Moccia, J. Chem. Phys. **40**, 2186 (1964).
- [26] M. Brauner, J.S. Briggs and H. Klar, J. Phys. B **22**, 2265 (1989).
- [27] H. S. W. Massey and C. B. O. Mohr, Proc. R. Soc. A **140** 613 (1933).
- [28] H. Trygve, P. Jorgensen, and J. Olsen, *In* Molecular Electronic-Structure Theory, John Wiley Sons, Inc., (2000).
- [29] C. Champion, C. Dal Cappello, S. Houamer, and A. Mansouri, Phys. Rev. A **73**, 012717 (2006).
- [30] A.O. Bawagan, C. E. Brion, E.R. Davidson and D. Feller, J. Chem. Phys. **113**, 19 (1987).
- [31] C. Champion, J. Hanssen and P.A. Hervieux, Phys. Rev. A **63**, 052720 (2001).
- [32] C. Champion, J. Hanssen, and P.-A. Hervieux, J. Chem. Phys. **121**, 9423 (2004).
- [33] M.J. Brothers and R.A. Bonham, J. Phys. B, **17**, 4235 (1984).
- [34] M. Schulz, J. Phys. B **6**, 2580 (1973).
- [35] L. H. Thomas, Proc. R. Soc., London, B **114**, 561 (1927)
- [36] L. Vriens, Proc. Phys. Soc. (London) **90**, 935 (1967).

- [37] M. Schulz, R. Moshhammer, D. Fisher, H. Kollmus, D. H. Madison, S. Jones, and J. Ullrich, *Nature (London)* **422** 48 (2003).
- [38] N. V. Maydanyuk, A. Hasan, M. Foster, B. Tooke, E. Nanni, D. H. Madison, and M. Schulz *Phys. Rev. Lett.* **94** 243201 (2005).
- [39] B. Gervais, M. Beuve, G. H. Olivera, M. E. Galassi *J. Radiat. Phys. Chem.* **75**, 493-513 (2006).
- [40] M. E. Rudd, Y. K. Kim, D. H. Madison, T. J. Gay, *Rev. Mod. Phys.* **64** (2), 441 (1992).
- [41] M. J. Berger, Report NISTIR-5113 (Gaithersburg, MD: National Institute of Standards and Technology) (1993).
- [42] J. Medin and P. Andreo, *Phys. Med. Biol.* **42**, 89 (1997).
- [43] A. Chatterjee and W. Holley, *Advances in Radiation Biology* **17**, 181 (1993).
- [44] M. Zaider, D. J. Brenner, and W. E. Wilson, *Rad. Res.* **95**, 231 (1983).
- [45] A. V. Lappa, E. A. Bigildeev, D. S. Burmistrov, and O. N. Vasilyev, *Radiat. Environ. Biophysics* **32**, 1 (1993).
- [46] S. Uehara, L. H. Toburen, and H. Nikjoo, *Int. J. Radiat. Biol.* **77**, 139 (2001).
- [47] S. Uehara and H. Nikjoo, *J. Phys. Chem.* **106**, 11051 (2002).
- [48] M.E. Rudd, T. V. Goffe, and A. Itoh, *Phys. Rev. A* **32**, 2128 (1985).
- [49] M. E. Rudd, *Nucl. Tracks Radiat. Meas.* **16**, 213 (1989).
- [50] ICRU. Secondary Electron Spectra from Charged Particle Interactions. Report 55; International Commission of Radiation Units and Measurements: Bethesda, MD (1996).

- [51] J. P. Hansen and L. Kocbach, *J. Phys. B* **22**, L71 (1989).
- [52] D. Ohsawa, H. Kawauchi, M. Hirabayashi, Y. Okada, T. Honma, A. Higashi, S. Amano, Y. Hashimoto, F. Soga, and Y. Sato, *Nucl. Instr. And Meth. B* **227**, 431 (2005).
- [53] G. H. Olivera, P. D. Fainstein, and R. D. Rivarola, *Phys. Med. Biol.* **41**, 1633 (1996).
- [54] G. H. Olivera, A. E. Martinez, R. D. Rivarola, and P. D. Fainstein, *Radiat. Res.* **144**, 241 (1995).
- [55] P. D. Fainstein, V. H. Ponce, and R. D. Rivarola, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **24**, 3091 (1991).
- [56] P. D. Fainstein, G. H. Olivera, and R. D. Rivarola, *Nucl. Instr. and Meth. B* **107**, 19 (1996).
- [57] M. E. Galassi, R.D. Rivarola, M. Beuve, G. H. Olivera, and P. D. Fainstein, *Phys. Rev. A* **62**, 022701 (2000).
- [58] B. Senger *Z. Phys. D* **9**, 79 (1988).
- [59] C. W. Scherr, *J. Chem. Phys.* **23**, 569 (1955).
- [60] C. Champion, J. Hanssen, and P.-A. Hervieux, *Phys. Rev. A.* **65**, 022710 (2002).
- [61] C. Champion, J. Hanssen, and P.-A. Hervieux, *J. Chem. Phys.* **117**, 197 (2002).
- [62] D.S. Milne-Brownlie, S.J. Cavanagh, B. Lohmann, C. Champion, P.-A. Hervieux, and J. Hanssen, *Phys. Rev. A.* **69**, 032701 (2004).
- [63] C. Champion, J. Hanssen, and P.-A. Hervieux, *J. Chem. Phys.* **121**, 9423 (2004).

- [64] O. Boudrioua, C. Champion, C. Dal Cappello, and Y. V. Popov, *Phys. Rev A* **75**, 022720 (2007)
- [65] P. S. Rudolph and C. E. Melton, *J. Chem. Phys.* **45**, 2227 (1966).
- [66] M. Schulz, *J. Phys. B* **6**, 2580 (1973).
- [67] M. Brauner, J. S. Briggs, and H. Klar, *J. Phys. B* **22**, 2265 (1989).
- [68] H. Trygve, P. Jorgensen, and J. Olsen, *In Molecular Electronic-Structure Theory*, John Wiley Sons, Inc., (2000).
- [69] D. Empfietzoglou, G. Papamichael, and M. Moscovitch, *J. Phys. D: Apl. Phys.* **33**, 932 (2000).
- [70] M. A. Coplan, J. H. Moore, and J. P. Doering, *Rev. Mod. Phys.*, **66**, 985 (1994).
- [71] N. F. Mott and H. S. W. Massey, in *The Theory of Atomic, Collisions*, 3rd ed., edited by W. Marshall and D. H. Wilkinson, Oxford, Clarendon Press (1971), p. 858.
- [72] M. E. Rudd, Y.-K Kim, D. H. Madison, and T. J. Gay, *Rev. Mod. Phys* , **64**, 441 (1992).
- [73] R. R. Lewis, *Phys. Rev. Vol. 102*, 537 (1956).
- [74] A. Roy, K. Roy, C. Sil, *J. Phys. B: Atom. Mol. Phys.* **13**, 3443-3450 (1980).
- [75] Moretto-Capelle et Le Padellec *Phys. Rev. A* **74**,062705 (2006)
- [76] C. Champion, O. Boudrioua, C. Dal Cappello, Y. Sato et D. Ohsawa *Phys. Rev. A* **75**, 032724 (2007)

ANNEXE A

$$\begin{aligned}
x_1 &= 2\vec{k}_s \cdot \vec{k}_e - 2k_s k_e \\
x_2 &= -2k_s^2 - 2\vec{k}_s \cdot \vec{k}_e + 2(\vec{u} + \vec{v} + \vec{p} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_s - 2i(a+c)k_s \\
x_3 &= 2k_e^2 + 2\vec{k}_e \cdot \vec{k}_s - 2(\vec{u} + \vec{v} + \vec{p} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_e + 2i(a+c)k_e \\
x_4 &= -[\vec{u} + \vec{v} + \vec{p} + \vec{w}]^2 - k_e^2 - k_s^2 - 2\vec{k}_e \cdot \vec{k}_s + 2(\vec{u} + \vec{v} + \vec{p} + \vec{w}) \cdot (\vec{k}_e + \vec{k}_s) - (a+c)^2
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
y_1 &= \lambda[2\vec{k}_s \cdot \vec{k}_e - 2k_s k_e] + 2ik_e k_s^2 - 2ik_e (\vec{u} + \vec{p}) \cdot \vec{k}_s - 2k_e k_s c + 2ik_s k_e^2 - 2ik_s (\vec{v} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_e - 2ak_s k_e \\
y_2 &= \lambda[-2k_s^2 - 2\vec{k}_s \cdot \vec{k}_e + 2(\vec{u} + \vec{v} + \vec{p} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_s - 2i(a+c)k_s] - 2ak_s^2 + 2a(\vec{u} + \vec{p}) \cdot \vec{k}_s \\
&\quad - 2iak_s k_e - ik_s (\vec{v} + \vec{w})^2 - ik_s k_1^2 + 2ik_s (\vec{v} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_e - ik_s a^2 - ik_s \lambda^2 \\
y_3 &= \lambda[2k_e^2 + 2\vec{k}_e \cdot \vec{k}_s - 2(\vec{u} + \vec{v} + \vec{p} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_e + 2i(a+c)k_e] + ik_e (\vec{u} + \vec{p})^2 + ik_e k_s^2 + ik_e c \\
&\quad - 2ik_e (\vec{u} + \vec{p}) \cdot \vec{k}_s + ik_e \lambda^2 + 2ck_e^2 - 2c(\vec{v} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_e + 2iak_e \\
y_4 &= \lambda[-(\vec{u} + \vec{v} + \vec{p} + \vec{w})^2 - k_0^2 - k_s^2 - 2\vec{k}_e \cdot \vec{k}_s + 2(\vec{u} + \vec{v} + \vec{p} + \vec{w}) \cdot (\vec{k}_e + \vec{k}_s) - (a+c)^2] \\
&\quad - a(\vec{u} + \vec{p})^2 - ck_s^2 + 2a(\vec{u} + \vec{p}) \cdot \vec{k}_s - ac^2 - c\lambda^2 - c(\vec{v} + \vec{w})^2 - ck_e^2 \\
&\quad 2c(\vec{v} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_e - ca^2 - c\lambda^2
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
z_1 &= 4k_e^2 k_s^2 - 4k_s^2 (\vec{v} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_e + 4ik_s^2 k_e (a + \lambda) - 4k_e^2 (\vec{u} + \vec{p}) \cdot \vec{k}_s + 4[(\vec{u} + \vec{p}) \cdot \vec{k}_s][(\vec{v} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_e] \\
&\quad - 4ik_e (a + \lambda)(\vec{u} + \vec{p}) \cdot \vec{k}_s + 4i(\lambda + c)k_s k_e^2 - 4i(\lambda + c)k_s (\vec{v} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_e - 4(\lambda + c)(a + \lambda)k_s k_e \\
z_2 &= -2k_s^2 (\vec{v} + \vec{w})^2 - 2k_s^2 k_1^2 + 4k_s^2 (\vec{v} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_e - 2k_s^2 (a + \lambda)^2 + 2(\vec{u} + \vec{p}) \cdot \vec{k}_s (\vec{v} + \vec{w})^2 \\
&\quad + 2k_e^2 (\vec{u} + \vec{p}) \cdot \vec{k}_s + 2(\vec{v} + \vec{p}) \cdot \vec{k}_e (a + \lambda)^2 - 4[(\vec{u} + \vec{p}) \cdot \vec{k}_s][(\vec{v} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_e] - 2i(\lambda + c)k_s (\vec{v} + \vec{w})^2 \\
&\quad - 2ik_s (\lambda + c)k_e^2 + 4ik_s (\lambda + c)(\vec{v} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_e - 2ik_s (\lambda + c)(a + \lambda)^2 \\
z_3 &= 2k_e^2 (\vec{u} + \vec{p})^2 + 2k_e^2 k_s^2 - 4k_e^2 (\vec{u} + \vec{p}) \cdot \vec{k}_s + 2k_e^2 (\lambda + c)^2 - 2[(\vec{v} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_e][\vec{u} + \vec{p}]^2 \\
&\quad - 2[(\vec{v} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_e]k_s^2 + 4[(\vec{v} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_e][(\vec{u} + \vec{p}) \cdot \vec{k}_s] - 2(\vec{v} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_e (\lambda + c)^2 \\
&\quad + 2ik_e (a + \lambda)k_s^2 - 4ik_e (a + \lambda)[(\vec{u} + \vec{p}) \cdot \vec{k}_s] + 2ik_e (a + \lambda)(\lambda + c)^2 \\
z_4 &= -(\vec{u} + \vec{p})^2 (\vec{v} + \vec{w})^2 - k_e^2 (\vec{u} + \vec{p})^2 + 2(\vec{u} + \vec{p})^2 [(\vec{v} + \vec{w}) + \vec{k}_e] - (a + \lambda)^2 (\vec{u} + \vec{p}) \\
&\quad - k_s^2 (\vec{v} + \vec{w})^2 - k_s^2 k_e^2 + 2k_s^2 [(\vec{v} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_e] - k_s^2 (a + \lambda)^2 + 2(\vec{v} + \vec{w})^2 [(\vec{u} + \vec{p}) \cdot \vec{k}_s] \\
&\quad + 2k_e^2 [(\vec{u} + \vec{p}) \cdot \vec{k}_s] - 4[(\vec{u} + \vec{p}) \cdot \vec{k}_s][(\vec{v} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_e] + 2(a + \lambda)^2 [(\vec{u} + \vec{p}) \cdot \vec{k}_s] \\
&\quad - (\lambda + c)^2 (\vec{v} + \vec{w}) - (\lambda + c)^2 k_e^2 + 2(\lambda + c)^2 (\vec{v} + \vec{w}) \cdot \vec{k}_e - (\lambda + c)^2 (\lambda + a)^2
\end{aligned}$$

ANNEXE B*Calculs des vitesses pour l'application du modèle BBK***I- cas du proton**

1-Vitesse du proton incident

L'énergie du proton incident est donnée par

$$\frac{k_i^2}{2m_p} = E_i = \frac{E_i}{27.21} (u.a.)$$

et le moment incident est donné par

$$k_i^2 = \frac{2m_p E_i}{27.21} \Rightarrow k_i = \left(\frac{2m_p E_i}{27.21} \right)^{1/2}$$

La vitesse du proton incident sera

$$v_i = \frac{k_i}{m_p} = \left(\frac{2m_p E_i}{27.21} \right)^{1/2} / m_p$$

avec $m_p = 1836u.a.$

Les résultats sont résumés dans le tableau suivant

E_i (eV)	300000	500000	1000000	1500000
v_i (u.a.)	3.4655	4.4740	6.3272	7.7492

2-Vitesse de l'électron éjecté.

On suit les mêmes étapes et on trouve la vitesse de l'électron éjecté avec $m_e = 1u.a.$

$$v_e = k_e = \left(\frac{2E_e}{27.21} \right)^{1/2}$$

Et les résultats des calculs sont :

E_c (eV)	12	50	100	250	750	2200
v_e (u.a.)	0.9391	1.9170	2.7111	4.2866	7.4247	12.7163

3- vitesse du proton diffusé

Pour calculer la vitesse du proton diffusé il faut prendre les cinq orbitales en compte.

La vitesse sera calculée de la même façon que pour le proton incident sauf que la valeur de k_d dépend de l'énergie d'ionisation de chaque orbitale. Dans le cas général

$$\frac{k_i^2}{2m_p} = \frac{k_d^2}{2m_p} + \frac{k_i^2}{2} + I \Rightarrow k_d = \left(\left(\frac{k_i^2}{2m_p} - \frac{k_i^2}{2} - I \right) / 2m_p \right)^{1/2}$$

Avec I l'énergie d'ionisation de chaque orbitale moléculaire de la molécule d'eau.

Si en prend par exemple l'orbitale moléculaire $1b_1$ l'énergie d'ionisation de cette orbitale est 12.6 eV.

Prenons par exemple deux cas où on a appliqué le modèle BBK et pour lesquels les vitesses doivent être proches.

On trouve :

	1a_1	2a_1	3a_1	1b_1	1b_2
$E_i = 0.5$ MeV $E_c = 250$ eV	4.4727	4.4728	4.4704	4.4728	4.4728
$E_i = 0.3$ MeV $E_c = 100$ eV	3.4648	3.4617	3.4649	3.4649	3.4648

II- Les particules alpha He^{2+}

Dans le cas des particules alpha il suffit de suivre les mêmes étapes pour calculer les vitesses des particules incidentes et diffusée et de l'électron éjecté en tenant compte de la masse différente de la particule alpha ($m_{\alpha} = 4m_p$).