



HAL
open science

Ionisation et excitation de l'atome de lithium par impact de particules chargées rapides : Identification des mécanismes de création de deux lacunes en couche K du lithium en fonction de la charge et de la vitesse du projectile.

Jimmy Rangama

► To cite this version:

Jimmy Rangama. Ionisation et excitation de l'atome de lithium par impact de particules chargées rapides : Identification des mécanismes de création de deux lacunes en couche K du lithium en fonction de la charge et de la vitesse du projectile.. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université de Caen, 2002. Français. NNT : . tel-00002125

HAL Id: tel-00002125

<https://theses.hal.science/tel-00002125>

Submitted on 13 Dec 2002

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.

UNIVERSITÉ de CAEN/BASSE-NORMANDIE

U.F.R. de SCIENCES
ÉCOLE DOCTORALE SIMEM

THÈSE

présentée par

Jimmy RANGAMA

et soutenue le 26 novembre 2002 en vue de l'obtention du

DOCTORAT de l'UNIVERSITÉ de CAEN

Spécialité : Milieux Dilués et Optique Fondamentale

(Arrêté du 30 mars 1992)

*Ionisation et excitation de l'atome de lithium par impact de
particules chargées rapides :
Identification des mécanismes de création de deux lacunes en
couche K du lithium en fonction de la charge et de la vitesse du
projectile.*

Directeur de thèse : Xavier HUSSON, Professeur, CAEN.

Jocelyn HANSSEN, Professeur, METZ

rapporteur

François J. WUILLEUMIER, Directeur de Recherche, CNRS, ORSAY

rapporteur

Jean-Yves CHESNEL, Maître de Conférences, CAEN

Dominique HENNECART, Chargé de Recherche, CNRS, CAEN

Xavier HUSSON, Professeur, CAEN

Patrick MORETTO CAPELLE, Chargé de Recherche, CNRS, TOULOUSE

Nikolaus STOLTERFOHT, Professeur, BERLIN

TABLE DES MATIERES

Introduction :	5
----------------	---

Chapitre I

Transitions multiélectroniques lors des collisions ions multichargés - atomes et électrons - atomes

I. Présentation de la collision :	11
I.1. Introduction :	11
I.2. Hamiltonien total :	12
I.3. Hamiltonien électronique :	14
I.4. Concept de corrélation électronique :	16
I.5. Traitement de la collision dans le cadre de l'approximation de born :	17
I.5.1. Hamiltonien du système :	17
I.5.2. Élément de matrice de transition et facteur de forme :	18
I.5.3. Expression de la section efficace :	19
II. Processus d'ionisation et d'excitation en couche <i>K</i> du lithium :	22
II.1. Ionisation - processus à trois corps et transitions dipolaires :	22
II.2. Excitation en couche interne :	24
II.2.1. Généralités :	24
II.3. Mécanismes de création de deux lacunes en couche interne :	25
II.3.1. TS2 : processus en deux étapes avec deux interactions projectile-électron indépendantes :	26
II.3.2. TS1 : processus en deux étapes avec une interaction projectile-électron accompagnée d'une interaction électron-électron :	27
II.3.3. Effets d'interférence :	32
II.3.4. Séparation des mécanismes et section efficace totale :	35

Chapitre II

Dispositif expérimental et analyse des spectres d'électrons Auger.

I. Dispositif expérimental :	38
I.1. Sources de particules chargées :	38
I.1.1. L'accélérateur d'ions lourds ganil :	38
I.1.2. Source d'électrons projectiles :	40
I.2. Chambre de collision :	44
I.3. La cible de lithium atomique :	45
I.3.1. Le four à lithium :	45
I.3.2. Système de refroidissement et piège à lithium :	47
I.4. Détection des électrons auger :	49
I.4.1. Spectromètre d'électrons :	49
I.4.2. Le "channeltron" :	52
I.4.3. Comptage et acquisition des électrons auger :	52
I.4.4. Bruits de fond et bruits parasites :	53
II. Analyse des spectres obtenus :	55
II.1. Détermination des sections efficaces d'émission auger :	55
II.1.1. Formulation générale :	55
II.1.2. Normalisation des sections efficaces mesurées :	56
II.1.3. Incertitudes sur les mesures :	57

Chapitre III

Collisions électrons + Li et ions + Li à haute énergie.

Simple excitation en couche K .

Étude en fonction du paramètre de perturbation.

I. Introduction :	59
II. Émission auger - dépendance en énergie de collision :	60
II.1. Spectres à basse résolution :	60
II.2. Spectres à haute résolution :	62
III. Distributions angulaires de l'émission auger et peuplement des sous-états magnétiques :	66
III.1. Analyse des distributions angulaires de l'émission auger :	66
III.2. Séparation des sous-états magnétiques $M_L = 0$ et ± 1 :	72
III.3. Alignement des états peuplés - discussion :	75
IV. Section efficace de simple excitation en couche K :	80
V. Conclusion :	86

Chapitre IV

Étude de mécanismes d'ionisation-excitation lors de
la production de deux lacunes en couche K du lithium

I. Introduction - motivation :	90
II. Production de deux lacunes en couche K :	93
II.1. Spectres d'émission auger à haute résolution :	93
II.2. Analyse de la distribution angulaire d'émission auger :	100
II.3. Sections efficaces totales de production :	103
III. Mécanismes de production des configurations $2lnl'$ ($n = 2 - 3$) :	105

III.1. Présentation des différents mécanismes :	105
III.1.1. Les états S :	105
III.1.2. Les états P :	109
III.2. Recherche des mécanismes prépondérants :	111
III.3. Séparation des contributions des différents mécanismes :	115
III.3.1. Méthode adoptée pour la séparation des contributions des mécanismes :	115
III.3.2. Séparation des mécanismes dans le cas des états P :	116
III.3.3. Séparation des mécanismes dans le cas des états S :	121
III.4. Mécanismes - comparaison entre le calcul PWBA et les contributions expérimentales :	122
III.4.1. Contribution du processus TS2 :	123
III.4.2. Contribution du processus TS1 shake :	128
IV. Conclusion :	131
Conclusion et perspectives	133
Annexe 1 : Excitation électronique dans l'approximation PWBA	139
Annexe 2 : Ionisation électronique dans l'approximation PWBA	151
Annexe 3 : Calcul des intégrales de recouvrement	159
Références	166

Introduction

Dans plusieurs domaines de la physique, l'étude des collisions entre des particules chargées et des atomes représente un intérêt aussi bien fondamental que pratique pour la compréhension de nombreux phénomènes naturels.

En astrophysique, les mécanismes élémentaires d'interaction (capture, ionisation, excitation) interviennent lors de la formation d'objets cosmologiques tels que les disques d'accrétion autour des trous noirs [Ballance *et al.* 2001, Whiteford *et al.* 2002]. La connaissance de ces mécanismes permet ainsi d'analyser les phénomènes galactiques. Dans le domaine de la fusion thermonucléaire, l'étude des phénomènes d'ionisation et d'excitation est fondamentale pour le développement de la physique des plasmas de fusion, dans lesquels les collisions conduisent à la production d'ions excités dont la désexcitation se traduit par l'émission de rayons X [Schroeder *et al.* 2001, Zeng *et al.* 2001]. Grâce à des méthodes avancées de spectroscopie, il est possible d'obtenir une estimation précise de la densité, de la température ainsi que la mise en évidence des processus de transfert d'énergie au sein de ces plasmas chauds [Inal and Dubau 1987].

Lors des collisions atomiques, l'importance des mécanismes élémentaires d'interaction (capture, ionisation, excitation) entre, par exemple une particule chargée et un atome dépend essentiellement de la vitesse v_p de collision par rapport à la vitesse v_i des électrons de la cible. En particulier, à haute vitesse de collision ($v_p \gg v_i$), les processus d'ionisation et d'excitation de la cible atomique sont dominants.

Dans le domaine des hautes vitesses de collision, la simple excitation (ou ionisation) est un phénomène bien connu et expliqué en terme d'interaction entre le projectile et un électron actif (interaction projectile-électron) [Bethe 1930]. En revanche, les processus à deux électrons (double ionisation, double excitation, l'ionisation-excitation), étant, quant à eux, moins connus, sont d'un intérêt croissant aussi bien au niveau expérimental [Andersen *et al.* 1986, Giese *et al.* 1990, Bordenave-Montesquieu *et al.* 1992, Tanis *et al.* 1999, Godunov *et al.* 2002] que théorique [McGuire 1982, McGuire *et al.* 1995, Chung and Gou 1995,

Zatsarinny 1999, Godunov *et al.* 2000, 2002]. Les processus collisionnels à deux électrons sont des processus en deux étapes [Andersen *et al.* 1986, 1987]. Deux grands types de processus peuvent être distingués. Le premier mécanisme fait intervenir deux interactions projectile-électron indépendantes [McGuire 1982, Pedersen and Hvelplund 1989, McGuire *et al.* 1995]. Le deuxième mécanisme fait intervenir une interaction projectile-électron suivie de l'interaction mutuelle des électrons actifs (interaction électron-électron) [Andersen *et al.* 1986, 1987, Stolterfoht 1990, 1993]. L'interaction électron-électron peut se manifester de diverses façons comme, par exemple, la diffusion mutuelle des deux électrons actifs (corrélation électronique) ou encore l'interaction électron-trou après ionisation du premier électron actif. L'interaction électron-électron joue un rôle déterminant lors des collisions entre des particules chargées et des atomes [McGuire 1982].

Lors des processus à deux électrons, les électrons affectés peuvent être aussi des électrons externes que des électrons internes de la cible. Dans le deuxième cas de figure, la cible, après la collision, peut présenter une couche électronique interne complètement vide : elle est communément appelée atome (ou ion) creux. Les mécanismes impliqués dans les processus à deux électrons diffèrent selon les états creux peuplés [Andersen *et al.* 1986, Tanis *et al.* 1999, 2000, Godunov *et al.* 2000, Chesnel *et al.* 2002]. Ainsi, l'identification [Rødbro *et al.* 1979, Kiernan *et al.* 1995, Cubaynes *et al.* 1996, Journal *et al.* 1996, Diehl *et al.* 1997, 2000] et la détermination des sections efficaces de production des états peuplés [Andersen *et al.* 1986, Pedersen and Hvelplund 1989, Tanis *et al.* 1999, 2000, Chesnel *et al.* 2002] fournissent des données essentielles pour une meilleure compréhension des mécanismes responsables de la création de lacunes en couche interne.

Les premiers états creux observés ont été les états atomiques doublement excités de l'hélium produits par impact électronique [Fano 1961 et références internes]. La mise en évidence des séries de Rydberg correspondant aux configurations électroniques $2snp$ et $2pns$ a été réalisée par photoabsorption de l'hélium [Madden and Codling 1963]. L'étude des systèmes héliumoïdes doublement excités (idéals pour aborder le problème coulombien à trois

corps) a permis de clarifier les discussions théoriques liées à la position en énergie des niveaux excités et de vérifier la fiabilité des calculs de type multiconfigurationnel [Ermolaev 1984, Fischer 1991, Bronk *et al.* 1998, Godunov *et al.* 2000]. Les systèmes comportant trois électrons excités (problème coulombien à quatre corps) sont plus difficiles à traiter. L'étude des états à trois électrons excités, d'abord réalisée sur l'ion He^- après diffusion d'électrons sur des atomes d'hélium [Kuyatt *et al.* 1965], a permis d'observer les états $2s^2 2p^2 P$ et $2s 2p^2^2 D$ identifiés à l'aide des résultats théoriques de Fano et Cooper [Fano and Cooper 1968]. Par la suite, il s'est avéré plus facile de partir de l'atome de lithium (à trois électrons) que de capturer préalablement un électron sur l'hélium [Skogvall *et al.* 1995, Diehl *et al.* 1997 et références internes]. En outre, l'atome de lithium constitue un excellent système pour étudier le problème coulombien à quatre corps. Avec cet atome, l'accent a été mis sur la création d'états ioniques creux par ionisation-excitation en couche K [Diehl *et al.* 1997, 2000, Tanis *et al.* 1999, 2000, Chesnel *et al.* 2002].

Même si, au vu des résultats expérimentaux, le rôle des interactions projectile-électron et électron-électron lors la production des états ioniques creux du lithium a été largement discuté [Tanis *et al.* 1999, 2000, Chesnel *et al.* 2002], il n'existe aucun résultat quantitatif quant à l'importance relative des différents mécanismes. La recherche de la contribution de chacun des mécanismes de production des différents états excités du lithium par ionisation-excitation, en fonction des paramètres de vitesse et de charge du projectile, constitue l'objectif essentiel de ce travail de thèse.

Les sections efficaces d'ionisation-excitation en couche K du lithium par impact d'électrons de vitesses comprises entre 6 et 20 u.a. et d'ions Kr^{34+} de vitesse de 50 u.a. sont mesurées par la méthode de spectroscopie d'électrons Auger. Nos résultats sont comparés avec ceux obtenus pour la collision $\text{Ar}^{18+} + \text{Li}$ à une vitesse de 60 u.a. [Tanis *et al.* 2000]. L'ensemble de ces mesures repose sur de larges domaines de charges Z_p et de vitesses v_p du projectile. Les paramètres de perturbation du projectile (définis comme étant le rapport $|Z_p|/v_p$) ainsi obtenus sont compris entre 0,05 et 0,7 u.a. L'exploration d'un large domaine de

paramètres de perturbation est essentielle pour l'identification et la séparation des différents mécanismes impliqués dans le processus d'ionisation-excitation.

Notre travail de recherche est présenté dans ce mémoire selon le plan suivant :

Au chapitre I, l'aspect théorique de la collision est développé. Après une description générale de la collision, les mécanismes responsables de l'ionisation et de l'excitation simples ou multiples sont introduits.

Au chapitre II, le canon à électron et le four à lithium, réalisés au laboratoire, ainsi que le dispositif expérimental de spectroscopie d'électron Auger sont décrits de façon détaillée. La méthode d'analyse des spectres d'électrons Auger est également explicitée.

Au chapitre III, l'étude de l'influence de l'énergie et de la charge du projectile sur le processus de simple excitation en couche K du lithium par impact de particules chargées à haute vitesse est exposée. Les résultats expérimentaux sont comparés aux calculs réalisés au sein du laboratoire à l'aide d'un code basée sur la théorie de Born. Cette étude préalable de la simple excitation s'avère très utile pour la compréhension des mécanismes plus complexes intervenant lors de l'ionisation-excitation en couche K .

Au chapitre IV, après une présentation des résultats expérimentaux concernant l'ionisation-excitation en couche interne du lithium, l'identification des mécanismes impliqués et la détermination de leur contribution relative sont entreprises. Un calcul *ab-initio* est effectué dans le cadre de l'approximation de Born afin de déterminer les probabilités d'ionisation et d'excitation en couche K . Les résultats théoriques alors obtenus sont comparés aux résultats expérimentaux et contribuent ainsi à l'analyse des mécanismes d'ionisation-excitation en fonction du paramètre de perturbation.

Chapitre I

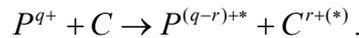
**Transitions multiélectroniques lors des collisions
ions multichargés - atomes et électrons - atomes**

I. Présentation de la collision :

I.1. Introduction :

Comme nous l'avons déjà mentionné dans l'introduction, lors de la collision entre une particule chargée P (électron e^- ou ion P^{q+}) et une cible atomique ou moléculaire C , les processus inélastiques susceptibles de se produire sont de plusieurs types :

- l'excitation : $P^{q+} + C \rightarrow P^{q+*} + C^*$,
- l'ionisation : $P^{q+} + C \rightarrow P^{q+} + C^{r+} + r e^-$,
- le transfert de charges (dans le cas d'un ion projectile) :



Selon la vitesse v_p de la particule chargée, l'importance relative de ces processus dynamiques diffèrent. Trois principaux domaines de vitesses sont définis en comparant v_p aux vitesses classiques $\{v_i\}$ des électrons actifs (c'est-à-dire les électrons qui changent d'état au cours de la collision) :

- le domaine des basses vitesses : $v_p < \text{Inf}\{v_i\}$,
- le domaine des vitesses intermédiaires : $v_p \approx \{v_i\}$,
- le domaine des hautes vitesses de collision : $v_p > \text{Sup}\{v_i\}$.

Le transfert de charges est le processus prédominant dans le régime des basses vitesses de collision. Au contraire, l'ionisation et l'excitation sont dominants aux hautes vitesses de collision.

À une vitesse incidente $v_p > 10 v_i$, où v_i est la vitesse de l'électron actif de l'atome cible, une théorie de perturbations au premier ordre telle que l'approximation PWBA (Plane-

Wave Born Approximation) [Fermi 1924, Bethe 1930, Weizsäcker 1937, Inokuti 1971] devient fiable, à condition que les fonctions d'ondes utilisées pour la cible soient correctes.

I.2. Hamiltonien total :

Considérons une cible à n électrons. Par rapport à un référentiel quelconque, le hamiltonien total décrivant le système S formé par le projectile, la cible et les n électrons s'écrit :

$$H_{tot} = T + V. \quad (I.1)$$

L'opérateur T décrit l'énergie cinétique de l'ensemble des constituants du système. V correspond à l'opérateur énergie potentielle incluant les interactions coulombiennes entre les diverses particules chargées du système, ainsi que les interactions de type spin-orbite et autres corrections relativistes.

Le centre de masse (CM) du système (Fig. 1) est choisi comme origine des coordonnées électroniques. De cette manière, il est possible de séparer le mouvement global du système du mouvement relatif des éléments qui le constituent. Le système est donc décrit par les coordonnées suivantes :

\vec{R}_{CM} : vecteur position du centre de masse par rapport au référentiel du laboratoire,

$\vec{R} = \overrightarrow{PC}$: vecteur distance projectile-noyau cible,

$\vec{r} = \{\vec{r}_i\}$: vecteur position des électrons par rapport au centre de masse de

l'ensemble projectile-noyau cible.

L'opérateur T s'écrit alors (en unité atomique) [Jouin 1986] :

$$T(\vec{R}_{CM}, \vec{R}, \vec{r}) = \frac{1}{2m} \vec{\nabla}_{\vec{R}_{CM}}^2 - \frac{1}{2\mu} \vec{\nabla}_{\vec{R}}^2 - \frac{1}{2} \sum_{i=1}^n \vec{\nabla}_{\vec{r}_i}^2 + \frac{1}{m} \sum_{i=1}^n \vec{\nabla}_{\vec{R}_{CM}}^2 \cdot \vec{\nabla}_{\vec{r}_i}^2, \quad (I.2)$$

où m représente la somme des masses m_p et m_c du projectile P et de la cible C , respectivement. La quantité μ est la masse réduite donnée par la relation :

$$\mu = \frac{m_p m_c}{m_p + m_c}. \quad (\text{I.3})$$

La masse nucléaire étant très grande par rapport à celle des électrons, le centre de masse nucléaire est quasiment confondu avec le centre de masse de l'ensemble du système S . Dans la relation (I.2), le terme $\frac{1}{m} \sum_{i=1}^n \vec{\nabla}_{\vec{R}_{CM}}^2 \cdot \vec{\nabla}_{\vec{r}_i}^2$ peut alors être négligé.

Ainsi, sachant que l'opérateur d'énergie potentielle V ne dépend que des coordonnées \vec{R} et \vec{r} et compte tenu de la relation (I.2), le hamiltonien total devient :

$$H_{tot}(\vec{R}_{CM}, \vec{R}, \vec{r}) = \frac{1}{2m} \vec{\nabla}_{\vec{R}_{CM}}^2 + H_{rel}(\vec{R}, \vec{r}) \quad (\text{I.4})$$

avec

$$H_{rel}(\vec{R}, \vec{r}) = -\frac{1}{2\mu} \vec{\nabla}_{\vec{R}}^2 - \frac{1}{2} \sum_{i=1}^n \vec{\nabla}_{\vec{r}_i}^2 + V(\vec{R}, \vec{r}) \quad (\text{I.5})$$

D'après l'expression (I.4), la fonction propre de H_{tot} peut se décomposer sous la forme :

$$\psi_{tot}(\vec{R}_{CM}, \vec{R}, \vec{r}) = \psi_{tr}(\vec{R}_{CM}) \psi_{rel}(\vec{R}, \vec{r}), \quad (\text{I.6})$$

de sorte que :

$$\frac{1}{2m} \vec{\nabla}_{\vec{R}_{CM}}^2 \psi_{tr}(\vec{R}_{CM}) = E_{tr} \psi_{tr}(\vec{R}_{CM}) \quad (\text{I.7})$$

et

$$H_{rel}(\vec{R}, \vec{r}) \psi_{rel}(\vec{R}, \vec{r}) = E_{rel} \psi_{rel}(\vec{R}, \vec{r}). \quad (\text{I.8})$$

Le mouvement de translation globale du système [relation (I.7)] peut donc être séparé du mouvement relatif de ses éléments constitutifs [relations (I.5) et (I.8)]. De ce fait, on ne s'intéresse désormais qu'au hamiltonien relatif $H_{rel}(\vec{R}, \vec{r})$.

I.3. Hamiltonien électronique :

Dans l'expression du hamiltonien relatif $H_{rel}(\vec{R}, \vec{r})$, il est possible de séparer le mouvement relatif des noyaux de celui des électrons [Jouin 1986].

À partir des relations (I.2) et (I.4), le hamiltonien relatif peut s'écrire sous la forme :

$$H_{rel}(\vec{R}, \vec{r}) = -\frac{1}{2\mu} \vec{\nabla}_{\vec{R}}^2 + H(\vec{R}, \vec{r}), \quad (\text{I.9})$$

où $H(\vec{R}, \vec{r})$ représente le hamiltonien électronique.

Grâce aux relations (I.5) et (I.9), le hamiltonien électronique est donné par :

$$H(\vec{R}, \vec{r}) = -\frac{1}{2} \sum_{i=1}^n \vec{\nabla}_{\vec{r}_i}^2 + V(\vec{R}, \vec{r}). \quad (\text{I.10})$$

Dans ce travail, la vitesse du projectile est suffisamment faible pour que les corrections relativistes soient négligeables. Le terme de couplage spin-orbite, dans le cas d'un atome léger (ici le lithium), est négligeable et n'est pas pris en compte dans notre calcul. Le hamiltonien électronique s'écrit alors :

$$H(\vec{R}, \vec{r}) = -\frac{1}{2} \sum_{i=1}^n \vec{\nabla}_{\vec{r}_i}^2 - \sum_{i=1}^n \left(\frac{Z_P}{r_{P_i}} + \frac{Z_C}{r_{C_i}} \right) + \sum_{i < j} \frac{1}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} + \frac{Z_P Z_C}{R}. \quad (\text{I.11})$$

Dans l'expression (I.11), Z_P et Z_C sont les charges respectives du projectile P et du noyau cible C . Le premier terme du hamiltonien H représente l'opérateur énergie cinétique des électrons. Le deuxième terme traduit les interactions coulombiennes projectile-électron et noyau cible-électron : r_{P_i} et r_{C_i} sont respectivement les distances entre l'électron i et les centres P et C (Fig. 1).

Les deux derniers termes de l'expression (I.11) représentent respectivement les interactions entre paires d'électrons et entre le projectile et le noyau cible. Dans la suite, la distance $|\vec{r}_i - \vec{r}_j|$ entre les électrons i et j est notée r_{ij} .

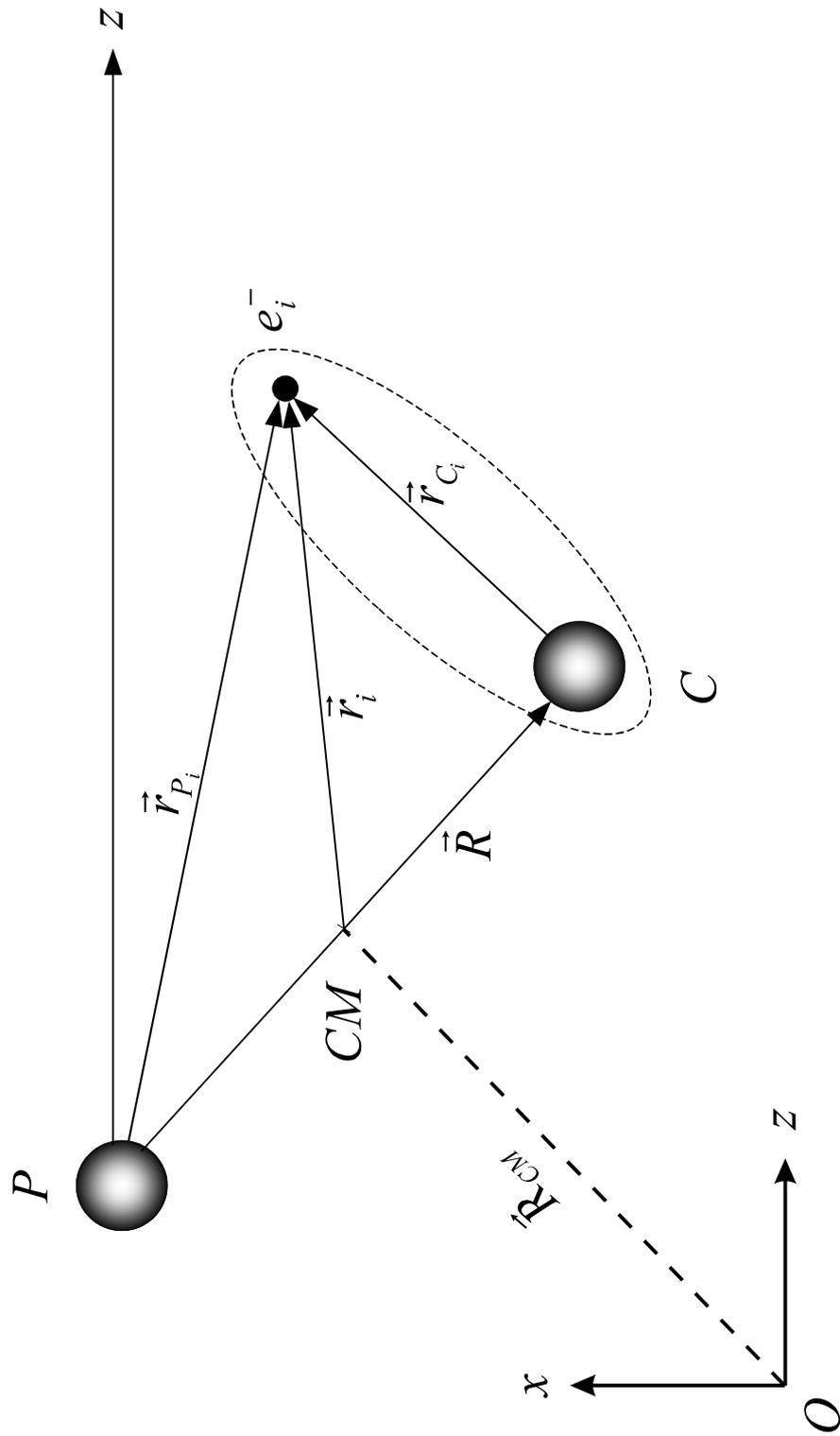


Figure 1. : Schéma de la collision

I.4. Concept de corrélation électronique :

Avant d'introduire la corrélation électronique, il est utile de rappeler que le modèle à particules indépendantes postule que chaque électron se déplace indépendamment des autres dans un potentiel représentant l'interaction avec le projectile, l'attraction du noyau cible et l'effet moyen dû à la répulsion de tous les autres électrons (électrons spectateurs).

Le concept de corrélation électronique est basé sur la décomposition de l'interaction électron-électron $V^e \equiv \sum_{i<j} r_{ij}^{-1}$ [relation (I.11)] en un champ moyen et une interaction résiduelle entre paires d'électrons, appelée *interaction diélectronique*.

De manière formelle, l'interaction électron-électron V^e est décomposée en termes d'opérateurs à un et deux corps :

$$V^e = W^e + V^{corr}. \quad (\text{I.12})$$

Le potentiel W^e représente le champ moyen du modèle à particules indépendantes et est associé à des opérateurs à un corps w_i . La corrélation électronique (interaction diélectronique) correspond au potentiel V^{corr} qui est associé à des opérateurs à deux corps q_{ij} :

$$W^e = \sum_{i=1}^n w_i \quad \text{et} \quad V^{corr} = \sum_{i<j} q_{ij}. \quad (\text{I.13})$$

Alors que l'opérateur W^e peut être exprimé analytiquement, le potentiel W^e peut être déterminé indirectement par la méthode Hartree-Fock [Hartree 1927, Fock 1930]. L'interaction diélectronique V^{corr} est alors extraite de l'expression :

$$V^{corr} = V^e - W^e. \quad (\text{I.12.bis})$$

Dans le hamiltonien électronique H , la corrélation électronique est la seule interaction qui comporte des opérateurs à deux corps. Il en résulte que l'opérateur H peut se décomposer de la façon suivante :

$$H = H^0 + V^{corr} . \quad (\text{I.14})$$

Le hamiltonien du modèle à particules indépendantes H^0 est une somme d'opérateurs à un corps :

$$H^0 = \sum_{i=1}^n h_i . \quad (\text{I.15})$$

Dans la suite, le rôle de la corrélation électronique sera étudié pour le cas particulier de la création de deux lacunes en couche interne intervenant lors des collisions à haute vitesse entre un projectile chargé (ion ou électron) et une cible neutre à trois électrons, l'atome de lithium. Il s'agira de séparer les mécanismes à électrons indépendants de ceux faisant intervenir la corrélation électronique. Les mécanismes à électrons indépendants seront traités dans le cadre de l'approximation de Born.

I.5. Traitement de la collision dans le cadre de l'approximation de Born

I.5.1. Hamiltonien du système

Pour commencer, nous nous limitons à un processus à un électron actif (simple excitation ou simple ionisation). Dans le chapitre IV, nous verrons comment étendre les résultats au cas de plusieurs électrons actifs.

L'atome cible est donc, pour l'instant, schématisé par un ion C^+ de charge $1+$ lié à l'électron actif situé à la distance r de C^+ . La masse de l'ion cible C^+ est grande devant celle de l'électron, de sorte que l'on peut confondre le centre de masse du système électron - C^+ avec celui du noyau de la cible C . Dans le référentiel du centre de masse du système projectile-cible, le hamiltonien total [hamiltonien relatif de la relation (I.9)] s'écrit alors :

$$H_{rel} = H_{cible} + H_{proj} + V_{int} . \quad (\text{I.16})$$

Cet hamiltonien se compose de trois parties :

- le hamiltonien atomique qui décrit le mouvement, non perturbé par le projectile, de l'électron actif autour de la cible. Ce hamiltonien atomique s'écrit :

$$H_{cible} = -\frac{1}{2}\nabla_{\vec{r}}^2 + V_{cible}(\vec{r}), \quad (\text{I.17})$$

où $V_{cible}(\vec{r})$ est le potentiel induit par la cible sur l'électron actif.

- le hamiltonien H_{proj} décrivant le mouvement relatif du projectile par rapport à la cible et qui s'écrit :

$$H_{proj} = -\frac{1}{2\mu}\nabla_{\vec{R}}^2. \quad (\text{I.18})$$

- le potentiel V_{int} d'interaction entre le projectile et les constituants de la cible (ion C^+ et électron actif) qui s'exprime de la façon suivante :

$$V_{int}(\vec{R}, \vec{r}) = \frac{Z_p}{R} - \frac{Z_p}{|\vec{R} - \vec{r}|}. \quad (\text{I.19})$$

Dans l'approximation de Born, le potentiel d'interaction est supposé suffisamment petit pour être traité comme une perturbation. Cette approximation est valable si le rapport $|Z_p|/v_p$ est petit devant 1.

I.5.2. Élément de matrice de transition et facteur de forme :

Soient $\phi_i(\vec{r})$ et $\phi_f(\vec{r})$ les fonctions d'onde électroniques initiale et finale, fonctions propres de H_{cible} . Soient $(2\pi)^{-3/2} e^{i\vec{K}_i \cdot \vec{R}}$ et $(2\pi)^{-3/2} e^{i\vec{K}_f \cdot \vec{R}}$ les fonctions propres initiale et finale de H_{proj} décrivant l'onde plane associée au projectile (\vec{K}_i et \vec{K}_f sont les vecteurs quantités de mouvement initial et final du projectile). Dans le cadre de l'approximation de Born au premier ordre, l'élément de matrice de transition est donné par l'expression suivante [Messiah 1959, Mott and Massey 1965, Mac Dowell and Coleman 1970] :

$$T_{if}^{(B)} = \frac{1}{(2\pi)^3} \left\langle e^{i\vec{K}_f \cdot \vec{R}} \phi_f(\vec{r}) \left| V_{int} \right| e^{i\vec{K}_i \cdot \vec{R}} \phi_i(\vec{r}) \right\rangle. \quad (\text{I.20})$$

On montre que (voir Annexe 1) :

$$T_{if} = -\frac{2Z_p}{(2\pi)^2 q^2} F_{if}(\vec{q}). \quad (\text{I.21})$$

Le facteur de forme F_{if} représente le terme intégral de l'élément de matrice de transition, c'est-à-dire :

$$F_{if}(\vec{q}) = \int e^{-i\vec{q} \cdot \vec{r}} \phi_f^*(\vec{r}) \phi_i(\vec{r}) d^3 r. \quad (\text{I.22})$$

Le vecteur \vec{q} représente la quantité de mouvement transférée à la cible. La conservation de la quantité de mouvement impose que :

$$\vec{q} = \vec{K}_f - \vec{K}_i. \quad (\text{I.23})$$

I.5.3. Expression de la section efficace

D'après la règle d'or de Fermi, la densité de probabilité de transition s'écrit :

$$w_{if} = 2\pi |T_{if}|^2 \rho(E), \quad (\text{I.24})$$

où $\rho(E)$ représente la densité d'états finals dans l'espace des énergies accessibles au projectile diffusé. La section efficace différentielle de diffusion $d\sigma/d\Omega$ est définie comme étant le nombre de particules diffusées dans l'élément d'angle solide $d\Omega$, pendant l'unité de temps et par unité de courant de probabilité ("flux" de particules incidentes) [Messiah 1959]. Pour une particule incidente décrite par l'onde plane $\Psi(\vec{R}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} e^{-i\vec{K}_i \cdot \vec{R}}$, le courant de probabilité est

donné par [Cohen-Tannoudji *et al.* 1973, chapitre III] :

$$\vec{J}_i = \frac{1}{(2\pi)^3} \frac{\vec{K}_i}{m_p} = \frac{1}{(2\pi)^3} \vec{v}_i, \quad (\text{I.25})$$

où $\vec{v}_i = \vec{v}_p$ est la vitesse du projectile incident. La section efficace $d\sigma / d\Omega = w_{if} / |\vec{J}_i|$ s'écrit alors :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{(2\pi)^4}{v_p} |T_{if}|^2 \rho(E). \quad (\text{I.26})$$

La densité $\rho(E)$ se rapporte aux états d'énergie des projectiles diffusés qui sont décrits par l'onde plane $\Psi_f(\vec{R}) = (2\pi)^{-3/2} e^{i\vec{K}_f \cdot \vec{R}}$. Lorsque l'impulsion \vec{K} du projectile diffusé pointe dans l'angle solide $d\Omega$ autour de \vec{K}_f , l'énergie de cette particule est comprise dans un intervalle dE_f centré en $E_f = \vec{K}_f^2 / 2m_p$. L'élément de volume d^3K dans l'espace des impulsions s'écrit :

$$d^3K = K^2 dK d\Omega. \quad (\text{I.27})$$

En remplaçant la variable K par l'énergie E qui lui est reliée ($E = K^2 / 2m_p$), on a :

$$d^3K = \rho(E) dE d\Omega. \quad (\text{I.28})$$

Sachant que $dK / dE = m_p / K$, on en déduit l'expression de $\rho(E)$ [relations (I.27) et (I.28)] :

$$\rho(E) = m_p K. \quad (\text{I.29})$$

Ainsi, la section efficace de diffusion avec une impulsion pointant autour de \vec{K}_f peut se réécrire [d'après les relations (I.21), (I.26) et (I.29)] :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = 4m_p^2 \frac{v_f}{v_p} \frac{Z_p^2}{q^4} |F_{ij}(\vec{q})|^2, \quad (\text{I.30})$$

avec v_f la vitesse du projectile diffusé.

Pour accéder à la section efficace totale de diffusion, il est utile de déterminer au préalable la section efficace différentielle en q , module du vecteur quantité de mouvement transférée \vec{q} .

D'après la relation (I.23), nous avons :

$$q^2 = K_i^2 + K_f^2 - 2K_i K_f \cos \theta . \quad (\text{I.31})$$

La dérivée de cette expression nous donne :

$$\sin \theta d\theta = \frac{q}{K_i K_f} dq . \quad (\text{I.32})$$

Avec la relation (I.32), la quantité $d\Omega = \sin \theta d\theta d\varphi$ est remplacée par un terme en $dq d\varphi$ dans l'expression de la section efficace différentielle [relation (I.30)]. L'intégration sur l'angle azimutal φ est égale à 2π car le système est à symétrie cylindrique. Nous obtenons alors une expression simplement différentielle en q de la section efficace :

$$\frac{d\sigma}{dq} = 8\pi \frac{Z_p^2}{v_p^2} \frac{|F_{ij}(q)|^2}{q^3} . \quad (\text{I.33})$$

Pour obtenir la section efficace totale, nous intégrons cette relation sur q de la façon suivante :

$$\sigma = 8\pi \frac{Z_p^2}{v_p^2} \int_{q_{\min}}^{q_{\max}} \frac{|F_{ij}(q)|^2}{q^3} dq . \quad (\text{I.34})$$

La borne inférieure d'intégration q_{\min} est obtenue en considérant la conservation de l'énergie, c'est-à-dire $K_f^2 - K_i^2 = 2m_p(E_f - E_i)$. La valeur minimale de q s'écrit alors :

$$q_{\min} = \frac{E_f - E_i}{v_p} . \quad (\text{I.35})$$

La valeur maximale q_{\max} de q est obtenue en considérant la collision binaire avec des particules lourdes, c'est-à-dire $q_{\max} = 2v_p$.

L'intégrale [relation (I.34)] sur q présente une dépendance asymptotique en $\ln v_p$ [McGuire 1982] à grande vitesse de collision. La section efficace totale de transition du niveau E_i vers le niveau E_f dépend donc fortement de la nature du projectile : elle varie avec sa charge Z_p et sa vitesse v_p de façon quasi proportionnelle à $(Z_p / v_p)^2$ (lorsque l'on néglige la faible dépendance en $\ln v_p$). Ce résultat sera très important pour décrire les mécanismes mettant en jeu plusieurs électrons actifs.

II. Processus d'ionisation et d'excitation en couche K du lithium :

II.1. Ionisation - Processus à trois corps et transitions dipolaires :

Lors des collisions entre un projectile chargé et un atome cible, l'ionisation correspond à la transition de l'électron actif d'un état initialement lié à un état du continuum. L'étude de l'ionisation est particulièrement importante pour la compréhension des processus à plusieurs corps. Le problème de l'interaction coulombienne à deux corps peut être considéré comme résolu dans le cadre de la mécanique quantique, alors que les processus à trois corps ne sont décrits que par des méthodes approximatives. Pour décrire les processus à plusieurs corps, il est nécessaire de séparer la partie à deux corps avant de traiter les effets à plusieurs corps.

Lors d'une collision à faible paramètre d'impact, l'un des électrons de la cible (électron actif) peut être éjecté avec une grande quantité de mouvement. Lors d'une telle collision dite binaire, l'interaction entre le projectile et l'électron actif est suffisamment forte pour pouvoir négliger l'interaction entre cet électron et le reste de l'atome cible. Dans ce cas, le processus à deux corps est susceptible d'être dominant lors de l'ionisation.

Par contre, à grand paramètre d'impact, le transfert de quantité de mouvement entre la particule incidente et l'électron actif est faible (lorsque la vitesse de la particule incidente est suffisamment élevée). Lors d'une telle collision, la quantité de mouvement transférée par le projectile peut être nettement inférieure à la quantité de mouvement de l'électron éjecté [Bethe 1930]. Pour qu'il y ait conservation de la quantité de mouvement, il est nécessaire qu'un troisième corps interagisse. Si aucun autre électron n'est éjecté, c'est alors le noyau cible qui prend part au processus d'ionisation. La simple ionisation, lors de ces collisions, peut être attribuée à un processus à trois corps (le projectile, l'électron actif de l'atome cible, l'ion cible résiduel).

Une étude récente [Stolterfoht *et al.* 1998, 1999] a permis de séparer et de dégager l'importance relative des effets à deux corps et à trois corps lors d'une collision ion-atome. Des ions d'argon complètement épluchés et de très grande vitesse ($v_p = 0,4 c$) ont été envoyés sur une vapeur atomique de lithium. L'utilisation du lithium comme cible présente de sérieux avantages. Cet atome ne contient que trois électrons dont deux fortement liés ($1s$) et un faiblement lié ($2s$). Les extensions spatiales des orbitales électroniques sont très différentes. La conclusion de cette étude est que les effets à trois corps jouent un rôle prépondérant pour l'ionisation d'un électron $1s$, alors que, dans le cas de l'ionisation de l'électron $2s$ les effets à deux corps deviennent dominants.

L'ionisation d'un électron $1s$ par processus à trois corps est généralement accompagnée d'un faible transfert de quantité de mouvement entre le projectile et l'électron. Dans ces conditions, comme l'ont souligné plusieurs auteurs [Bethe 1930, Williams 1934, Fano 1963, Inokuti 1971], l'ionisation par interaction avec un ion rapide est analogue à l'ionisation par photoabsorption. La photoabsorption est un processus à trois corps (photon, électron actif, ion résiduel) qui se manifeste par transition dipolaire (transfert d'une unité de moment cinétique $\Delta\ell = 1$). De manière analogue, l'ion rapide responsable de l'ionisation de l'électron $1s$ du lithium peut être vu comme étant essentiellement une source de photons virtuels donnant lieu à des transitions dipolaires [Williams 1934, Weizsäcker 1937, Stolterfoht *et al.* 1998, 1999 et références internes]. Cette analogie entre photon et ion rapide peut s'étendre au cas de l'excitation de l'électron $1s$ du lithium, au cours de laquelle le transfert de quantité de mouvement entre le projectile et l'électron est faible. Dans la suite, l'importance des transitions dipolaires sera clairement illustrée dans le cas de l'excitation.

En ce qui concerne maintenant la dépendance en charge et en vitesse du projectile des sections efficaces de simple ionisation, McGuire a montré [McGuire 1982] que la section efficace totale de la simple ionisation de l'hélium suit, de façon asymptotique (à grande vitesse), une dépendance du type $(Z_p/v_p)^2 \ln(v_p/v_{\text{Bohr}})$. Il s'agit de la dépendance exprimée

dans la relation (I.34). La section efficace totale présente donc une assez forte dépendance en Z_p et v_p par le terme $(Z_p/v_p)^2$ et une faible dépendance en v_p par le terme $\ln v_p$ (avec $v_{\text{Bohr}} = 1$ u.a.).

II.2. Excitation en couche interne :

II.2.1. Généralités

Lorsqu'une particule chargée entre en collision avec un atome cible, la transition d'un électron actif de la cible, d'un état fondamental stable (d'énergie minimale) vers un état lié d'énergie plus élevée, est appelée simple excitation.

Plusieurs travaux tant expérimentaux que théoriques ont été menés sur la simple excitation du lithium. L'excitation de l'électron $2s$ par impact de particules chargées a été l'objet de nombreuses études [Shuttleworth *et al.* 1979, Ermolaev *et al.* 1987a, Ermolaev *et al.* 1987b, Baum *et al.* 1989, Schweinzer *et al.* 1999] et ne sera pas abordée dans ce travail. Dans la suite, seule l'excitation des électrons de la couche interne du lithium et les mécanismes qui s'y rapportent seront étudiés. En ce qui concerne la simple excitation en couche K du lithium, des spectres à très haute résolution ont été mesurés après impact d'électrons de vitesse incidente comprise entre 2,4 et 6,6 u.a., et d'ions légers et monochargés de vitesse inférieure à 3 u.a. [Ziem *et al.* 1975, Prömpeler 1976, Rassi *et al.* 1977, Pejčev *et al.* 1977]. Les états autoionisants issus de la simple excitation ont été identifiés [Ederer *et al.* 1970, Bruch *et al.* 1975, Ziem *et al.* 1975, McIlrath and Lucatoro 1977, Rødbro *et al.* 1979].

L'étude de la simple excitation en couche K du lithium lors de collisions avec des ions multichargés et de haute vitesse ($v_p > 50$ u.a.) a récemment été entreprise [Tanis *et al.* 2000]. La section efficace totale de simple excitation a été mesurée pour la collision $\text{Ar}^{18+} + \text{Li}$ à 95 MeV/uma. Le résultat expérimental est en bon accord avec les prédictions de l'approximation

de Born. Il est à souligner que, lors d'une telle collision, la vitesse du projectile ($v_p = 60$ u.a.) est très grande devant celle des électrons $1s$ de la cible. Dans ces conditions, l'impulsion transférée par le projectile est généralement faible (processus à trois corps) et l'interaction est similaire à celle d'un photon avec la cible. L'observation de la prédominance des transitions de type dipolaire $1s \rightarrow np$ signe le caractère "photo-induit" de la simple excitation. Ce résultat, analogue à celui de l'ionisation d'un électron $1s$, s'avérera de première importance lors de l'étude des mécanismes faisant intervenir les deux électrons $1s$ (ionisation + excitation ou double excitation).

De manière analogue à la simple ionisation, la section efficace de simple excitation est susceptible de dépendre de la charge Z_p et de la vitesse v_p du projectile selon la relation :

$$\sigma_{exc} \propto \left(\frac{Z_p}{v_p} \right)^2 \ln v_p. \quad (\text{I.36})$$

Cette relation donne le comportement asymptotique (à grande vitesse de collision) de la section efficace totale d'excitation. On vérifiera cette dépendance en ajustant cette fonction [relation (I.36)] sur les sections efficaces expérimentales obtenues avec différents projectiles (voir Chapitre III).

II.3. Mécanismes de création de deux lacunes en couche interne

En plus des transitions à un électron décrites précédemment, l'excitation et l'ionisation peuvent intervenir dans des transitions multiélectroniques. Si une transition multiélectronique mène à une couche K complètement vide, un atome creux est créé. On distingue parmi les états produits les états ioniques (l'atome de lithium est à la fois ionisé et excité en couche interne) et les états atomiques (l'atome de lithium est doublement excité en couche interne). Cette production de deux lacunes en couche K dans une cible atomique de lithium peut être causée soit par deux interactions projectile-électron, soit par une interaction projectile-

électron suivie d'une interaction électron-électron (Fig. 2). Dans le premier cas, le processus est communément appelé TS2 (de l'anglais "two-step with *two* projectile interactions") et dans le second cas, c'est le processus TS1 (de l'anglais "two-step with *one* projectile interaction"). La double ionisation, la double excitation et l'ionisation-excitation sont généralement décrits par ces processus TS1 et TS2 exposés dans les paragraphes suivants.

II.3.1. TS2 : processus en deux étapes avec deux interactions projectile-électron indépendantes

La création de deux lacunes en couche interne peut résulter de deux interactions distinctes projectile-électron (TS2). Le projectile interagit de façon indépendante avec chacun des deux électrons de l'orbitale $1s$ de l'atome de lithium. Suite à ces interactions, trois possibilités existent :

- les deux électrons $1s$ sont ionisés (double ionisation),
- les deux électrons $1s$ sont excités (double excitation),
- un électron $1s$ est ionisé alors que l'autre est excité (ionisation+excitation).

Les transitions dues aux interactions projectile-électron indépendantes sont majoritairement dipolaires (Fig. 2 et cf. II.2). Dans le cas de l'excitation, elles conduisent au peuplement d'orbitales np . On s'attend donc à ce que la double excitation en couche K *via* TS2 produise majoritairement des états atomiques du type $2snpn'p$ ($n, n' \geq 2$). De manière analogue, après ionisation et excitation en couche K par interactions projectile-électron indépendantes, les états ioniques du type $2snp$ (avec $n \geq 2$) sont préférentiellement peuplés.

Comme dans le cas des sections efficaces de double ionisation *via* TS2 [McGuire 1982, 1987], on s'attend à ce que la section efficace σ_{TS2} de double excitation ou d'ionisation-excitation suite à deux interactions projectile-électron indépendantes, ait un comportement asymptotique (à grande vitesse de collision) du type :

$$\sigma_{TS2} = c_{TS2} \left(\frac{Z_p}{v_p} \right)^4, \quad (\text{I.37})$$

avec c_{TS2} un coefficient constant.

La section efficace σ_{TS2} varie fortement avec le rapport Z_p / v_p caractérisant la perturbation du projectile. Une variation d'un facteur 3 du rapport Z_p / v_p suffit pour faire évoluer σ_{TS2} de deux ordres de grandeur. Il est clair que pour un paramètre de perturbation très faible la contribution de TS2 à la section efficace est négligeable. Notons que le rapport entre la section efficace σ_{TS2} et la section efficace de simple excitation dépend également assez fortement de Z_p / v_p , c'est-à-dire en $(Z_p / v_p)^2$.

II.3.2. TS1 : processus en deux étapes avec une interaction projectile-électron accompagnée d'une interaction électron-électron

Les deux lacunes en couche K peuvent être produites après une interaction projectile-électron de la cible suivie d'une interaction électron-électron (TS1) [Andersen *et al.* 1986]. Durant ces dernières années, l'importance de l'interaction électron-électron a été largement reconnue lors des processus de multi-excitation et de multi-ionisation [McGuire 1982, Craseman 1987, Reading and Ford 1988, Stolterfoht 1991, Martín and Salin 1996]. Les effets de corrélation dynamique lors la double ionisation de l'hélium par impact d'ions rapides ou de photons ont attiré l'attention de quelques auteurs [McGuire *et al.* 1995, Moshhammer *et al.* 1997]. Deux aspects de l'interaction électron-électron, correspondant à l'émission rapide ou lente du premier électron, peuvent être considérés. Ces cas limites correspondent alors respectivement au processus *shake* et au processus *diélectronique*. Ces processus seront étudiés dans les paragraphes suivants.

Le processus TS1 ne dépend que d'une seule interaction projectile-électron. Sa section efficace σ_{TS1} est susceptible de présenter un comportement asymptotique similaire à celui de la simple excitation ou de la simple ionisation [relation (I.36)] :

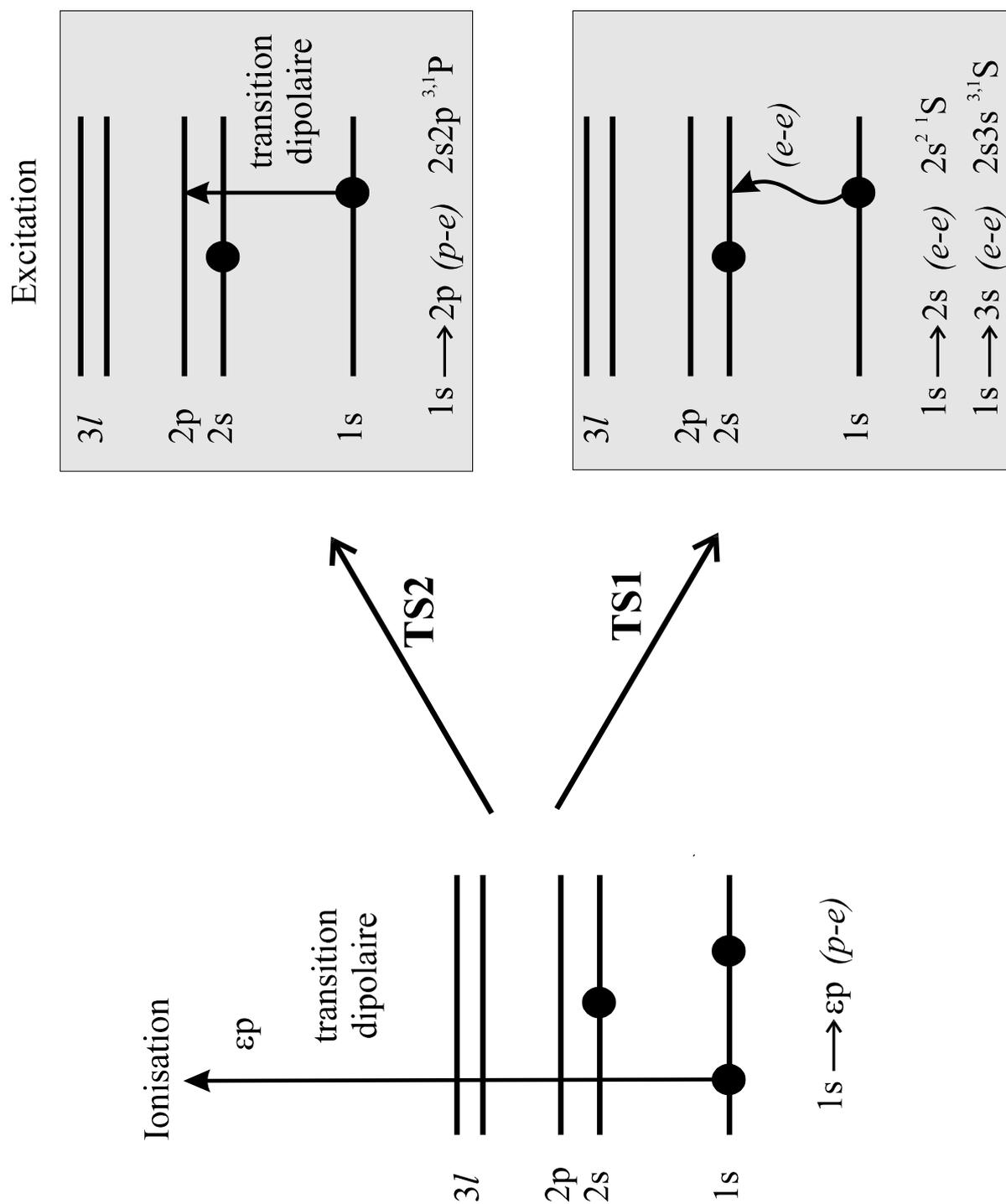


Figure 2. : Schémas des mécanismes TS1 et TS2.

$$\sigma_{TS1} = c_{TS1} \left(\frac{Z_p}{v_p} \right)^2 \ln v_p \quad (\text{I.38})$$

où c_{TS1} est un coefficient constant. Si on compare les sections efficaces σ_{TS1} [relation (I.38)] et σ_{TS2} [relation (I.37)], lorsque le paramètre de perturbation Z_p / v_p augmente, σ_{TS2} croît plus rapidement que σ_{TS1} . Les dépendances respectives de σ_{TS1} et σ_{TS2} en fonction du paramètre de perturbation sont très différentes. Le rapport $\sigma_{TS2} / \sigma_{TS1}$ dépend fortement des paramètres du projectile. Il est proportionnel à $(Z_p / v_p)^2$ en négligeant le terme en $\ln v_p$. Nous nous appuyerons sur cette forte différence de variation pour séparer les contributions des processus TS1 et TS2.

- *Le processus shake*

Suite à l'interaction projectile-électron, un électron $1s$ peut être ionisé ($1s \rightarrow \varepsilon p$) ou excité ($1s \rightarrow np, n \geq 2$) de façon soudaine (Fig. 3). Le potentiel vu par les électrons restants change alors brutalement. Dans ce cas de figure, c'est seulement *après* cette première transition soudaine que s'effectue le réarrangement du cortège électronique de la cible [Carlson and Krause 1965]. Au cours de ce réarrangement, le deuxième électron $1s$ peut alors être excité (*shake-up*), c'est-à-dire $1s \rightarrow n's$ avec $n' \geq 2$, ou ionisé (*shake-off*). Lorsque le projectile est rapide ($v_p \gg \text{Sup} \{v_i\}$), le processus *shake* correspond à un réarrangement *interne* de la cible *isolée*, après la collision. Le moment cinétique orbital total L du système isolé que constitue la cible résiduelle ne peut pas changer. Il en est de même pour les moments cinétiques individuels ℓ_i des électrons de la cible résiduelle. La transition due au processus *shake* est donc du type $\Delta \ell_i = 0$ et $\Delta L = 0$, c'est-à-dire monopolaire uniquement. Aucune transition dipolaire n'est possible. Si, après ionisation soudaine, le deuxième électron $1s$ est également ionisé, alors les états peuplés dans le cas du lithium ($\text{Li}^{2+*} (ns)$) se dés excitent par émission radiative. Par contre, si le deuxième électron $1s$ est excité, les états peuplés suite au processus *shake-up* sont du type $nsn's$ avec $n, n' \geq 2$. Ces états se dés excitent par émission Auger.

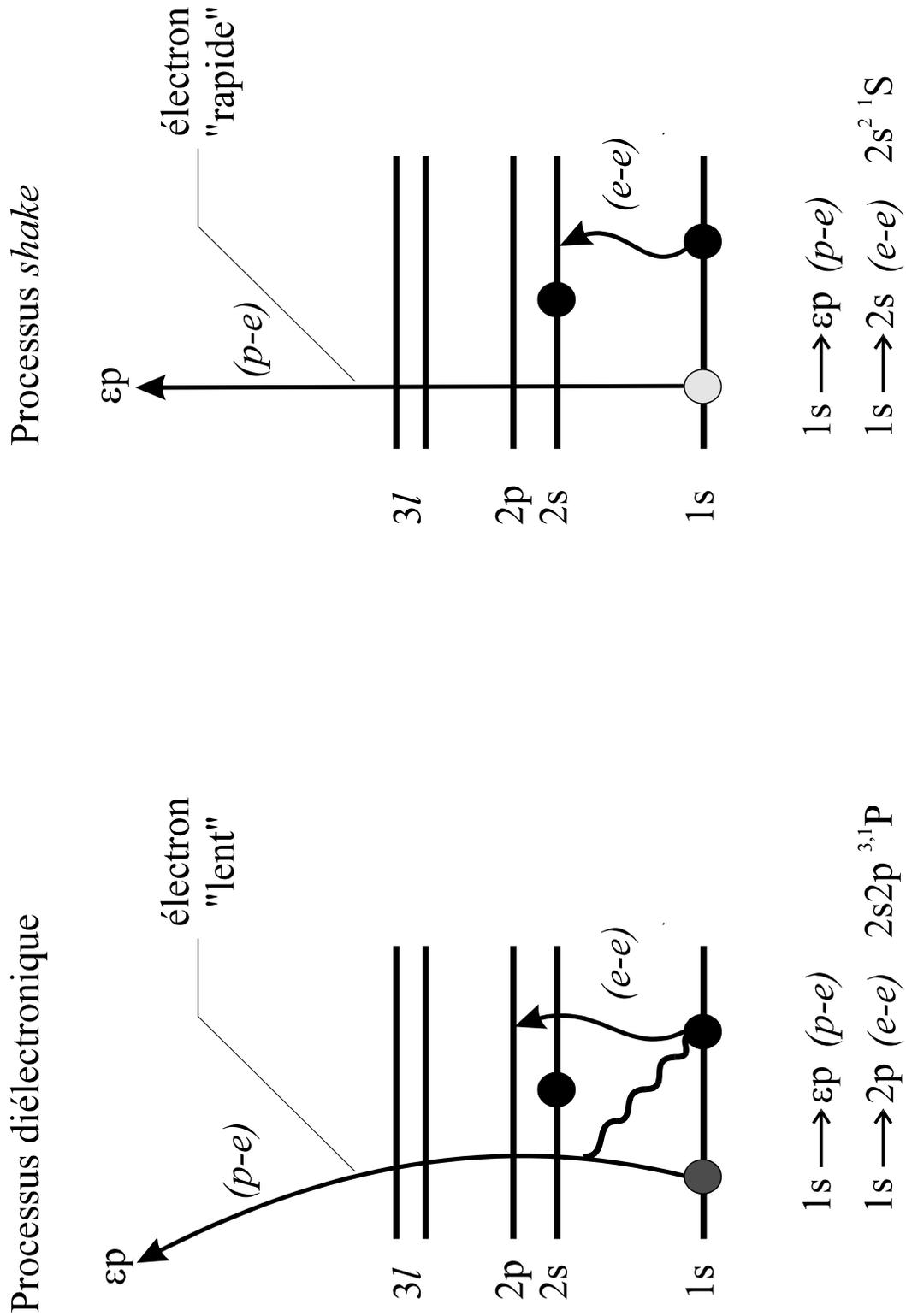


Figure 3. : Schémas des processus *shake* et diélectronique. Les interactions électron-électron ($e-e$) et projectile-électron ($p-e$) sont symboliquement représentées. On suppose ici que l'interaction ($p-e$) donne lieu à une ionisation $1s \rightarrow \varepsilon p$.

Sur la figure 3, les transitions ($1s + 1s \rightarrow \varepsilon p + 2s$ et $1s + 1s \rightarrow \varepsilon p + 3s$) peuplant les états $2s^2 \ ^1S$ et $2s3s \ ^3S$ ont été représentées comme exemple. Les états peuplés par le processus *shake* seront détaillés lors de l'analyse des spectres d'émission Auger (voir Chapitre IV).

- *Le processus diélectronique*

Lorsque l'interaction projectile-électron a eu lieu, le premier électron actif $1s$ (celui qui a subit l'interaction avec le projectile) peut être ionisé, c'est-à-dire $1s \rightarrow \varepsilon p$, (ou excité, c'est-à-dire $1s \rightarrow np$ avec $n \geq 2$) avec une vitesse comparable à la vitesse des électrons restants (Fig. 3). Ce premier électron actif peut alors interagir directement avec l'électron $1s$ restant. Suite à cette interaction, le deuxième électron est excité (ou ionisé) donnant lieu ainsi à une transition $1s \rightarrow n'\ell'$. C'est le processus *diélectronique*. Cette interaction diélectronique est la manifestation de la corrélation électronique dynamique [Stolterfoht 1991, Tanis *et al.* 1999, Tanis *et al.* 2000].

Sur la figure 3, l'exemple de transition représentée est la transition dipolaire $1s \rightarrow 2p$. Cette transition peut avoir lieu si l'électron εp quittant l'atome, interagit avec l'électron $1s$ restant et l'excite vers l'orbitale $2p$. L'électron εp échange alors son moment cinétique $\ell = 1$ avec l'électron $1s$ et devient ainsi un électron $\varepsilon's$ du continuum. Pour résumer, ce processus diélectronique implique les transitions $1s \rightarrow \varepsilon p$ et $\varepsilon p + 1s \rightarrow \varepsilon's + 2p$. Les états ainsi peuplés sont $2s2p \ ^{1,3}P$. Les états $2s^2 \ ^1S$ et $2s3s \ ^{1,3}S$ peuvent également être peuplés par ce processus.

La contribution du processus *diélectronique* à la section efficace de production des différents états peuplés par ionisation-excitation en couche K du lithium sera détaillée dans le chapitre IV.

II.3.3. Effets d'interférence

- *Effet du signe de la charge sur le phénomène d'interférence*

Plusieurs auteurs [McGuire 1982, Reading and Ford 1987, Végh 1988] ont étudié l'effet du signe de la charge du projectile sur les sections efficaces relatives à un processus en deux étapes et à deux électrons (double ionisation, double excitation, ionisation+excitation) lors des collisions atomiques à haute vitesse. McGuire est l'un des premiers à suggérer que, dans le cas de la double ionisation de l'hélium, les interférences entre les amplitudes de probabilité pour les processus TS1 (shake-off) et TS2 donnent naissance à un terme en Z_p^3 dans l'expression de la section efficace totale [McGuire 1982]. Les amplitudes de probabilités relatives aux processus TS1 shake-off et TS2 s'expriment approximativement de la façon suivante :

$$a_{\text{TS1(SO)}} = c_1 \frac{Z_p}{v_p} \quad \text{et} \quad a_{\text{TS2}} = c_2 \left(\frac{Z_p}{v_p} \right)^2, \quad (\text{I.39})$$

où c_1 et c_2 représentent des coefficients indépendants des paramètres du projectile.

La probabilité de transition totale s'écrit alors :

$$P = |a_{\text{TS1(SO)}} + a_{\text{TS2}}|^2 = |c_1|^2 \left(\frac{Z_p}{v_p} \right)^2 + |c_2|^2 \left(\frac{Z_p}{v_p} \right)^4 + 2\text{Re}(c_1 c_2^*) \left(\frac{Z_p}{v_p} \right)^3. \quad (\text{I.40})$$

Le terme croisé en $(Z_p / v_p)^3$ représente la contribution des interférences entre les processus TS1 and TS2. Ce terme dépend évidemment du signe de la charge. Par conséquent, la section efficace totale est susceptible d'en dépendre également.

Des expérimentateurs [Andersen *et al.* 1986, 1987, Pedersen and Hvelplund 1989] ont recherché les différences entre les sections efficaces totales obtenues avec des protons et des antiprotons lors de la double ionisation et la double excitation de l'hélium. Dans le cas de la double ionisation, les sections efficaces obtenues avec les antiprotons sont approximativement

2 fois plus grandes que celles obtenues avec les protons. Des théoriciens [Reading and Ford 1987, Ford and Reading 1994] prévoient en effet que, dans le cas de la double ionisation de l'hélium, le rôle du terme en Z_p^3 est important dans l'expression de la section efficace totale. Cependant, même si leurs calculs sont en bon accord avec l'expérience, ils ne permettent pas de séparer clairement les contributions des différents mécanismes à la section efficace totale. Pour ce qui est de la double excitation de l'hélium par impact d'électrons et de protons, l'expérience [Pedersen and Hvelplund 1989, Giese *et al.* 1990, Moretto-Capelle *et al.* 1997] montre que, contrairement au cas de la double ionisation, les sections efficaces ne dépendent pratiquement pas du signe de la charge du projectile. La comparaison entre les résultats obtenus pour la double ionisation et la double excitation montre que la manifestation d'éventuelles interférences entre les processus TS1 et TS2 n'est pas évidente *a priori*. Notons néanmoins que ces interférences sont d'autant plus marquées que les amplitudes sont toutes les deux réelles, toutes les deux imaginaires ou, plus généralement, lorsqu'elles sont en phase. Au contraire, les interférences disparaissent si les amplitudes sont en quadrature de phase.

- *Effet de l'ordre temporel sur le phénomène d'interférence*

Dans la théorie des perturbations dépendantes du temps, l'amplitude de probabilité associée à un processus à deux électrons peut être exprimée en terme de séries de Dyson [Messiah 1959]. Le terme du premier ordre, qui correspond à l'amplitude de probabilité pour TS1, ne dépend pas du temps. Par contre, tout terme d'ordre supérieur ou égal à 2 traduit une succession d'interactions à différents instants de la collision [Stolterfoht 1993 et références internes]. C'est le terme d'ordre 2 qui décrit les deux interactions successives intervenant dans le processus TS2. Étant donné que les opérateurs associés à ces interactions dépendantes du temps ne peuvent commuter [Messiah 1959], l'ordre temporel (communément appelé *time ordering*) propre à ces interactions doit nécessairement être pris en compte. On définit alors un opérateur *temps* T qui tient compte de la chronologie de ces interactions [Messiah 1959].

Un processus en deux étapes est ordonné dans le temps si l'une des étapes doit intervenir avant l'autre. Les processus TS1 et TS2 permettent d'illustrer assez clairement le

phénomène de *time ordering*. Le processus TS1 comporte un *time ordering* évident puisque le processus monoélectronique dû à l'interaction projectile-électron doit nécessairement avoir lieu avant le processus diélectronique (ou shake) gouverné par l'interaction électron-électron. Le processus TS2 peut, selon les cas, s'effectuer avec ou sans *time ordering*. Le *time ordering* est inexistant si la transition de l'un des électrons s'effectue indépendamment de la transition de l'autre électron. Cependant, il a été montré par la théorie que, le *time ordering* dans les processus en deux pas constitue généralement une condition nécessaire pour observer des phénomènes d'interférences [McGuire and Straton 1991].

Les termes de la série de Dyson ont été analysés en détail dans le cas des processus en deux pas (TS1 et TS2) [Stolterfoht 1993]. Cette analyse montre que les termes du premier ordre (TS1) de l'amplitude de probabilité sont, selon la transition considérée, soit réelles, soit imaginaires. Lorsque les termes de second ordre (TS2) de l'amplitude de probabilité sont évalués dans le cadre du modèle à particules indépendantes, et en supposant les orbitales gelées (modèle IPM-FO), on a une perte du *time ordering*. Ces termes du deuxième ordre se réduisent en effet à un simple produit de deux termes du premier ordre, indépendants du temps et traduisant des transitions monoélectroniques indépendantes [McGuire and Weaver 1977, Stolterfoht 1990, 1993]. Ainsi, tout comme les termes du premier ordre, les termes du second ordre exprimés dans le cadre du modèle IMP-FO sont soit réels, soit imaginaires. Dans le cadre de ce modèle, les amplitudes des processus TS1 et TS2 sont en général en quadrature de phase [Stolterfoht 1993, Nagy *et al* 1997] et ne peuvent donc interférer. Conformément aux conclusions de McGuire et Straton [McGuire and Straton 1991], on comprend ici que l'absence de *time ordering* dans le cas du processus TS2 peut annuler les interférences entre TS1 et TS2.

L'étude expérimentale du processus d'ionisation-excitation, réalisée avec des projectiles de charge différente (électrons et ions), sera présentée au chapitre IV. Nous examinerons ainsi l'existence ou non des interférences entre les mécanismes TS1 et TS2. L'importance du *time ordering* dans le processus TS2 sera également discutée.

II.3.4. Séparation des mécanismes et section efficace totale

Dans ce paragraphe, nous allons proposer une expression de la section efficace totale de production de deux lacunes en couche interne en fonction des paramètres du projectile Z_p et v_p .

Cette section efficace est la somme des contributions des mécanismes TS1 et TS2 et d'un éventuel terme d'interférence :

$$\sigma_{exc}^{DK} = \sigma_{TS1} + \sigma_{TS2} + \sigma_{int}, \quad (I.41)$$

où $\sigma_{TS1} = c_{TS1} p_1$ et $\sigma_{TS2} = c_{TS2} p_2$ avec $p_1 = \left(\frac{Z_p}{v_p}\right)^2 \ln v_p$ et $p_2 = \left(\frac{Z_p}{v_p}\right)^4$ [relations (I.37) et

(I.38)]. La quantité σ_{int} correspond aux effets d'interférence entre les processus TS1 et TS2.

La dépendance de σ_{int} en fonction des paramètres du projectile n'est *a priori* pas évidente.

Cependant σ_{int} est susceptible de varier en $(Z_p / v_p)^3$ [relation (I.40)]. Pour des raisons de

commodité, nous considérerons que σ_{int} est proportionnelle à $\sqrt{p_1 p_2}$ afin de l'écrire de la

manière suivante :

$$\sigma_{int} = c_{int} \sqrt{p_1 p_2} = c_{int} \left(\frac{Z_p}{v_p}\right)^3 \sqrt{\ln v_p}. \quad (I.42)$$

Avec une telle expression, on retrouve la dépendance en $(Z_p / v_p)^3$. Étant donné que le rapport Z_p / v_p est élevé à la puissance 3, le signe de la charge Z_p joue un rôle essentiel sur

la nature (destructive ou constructive) des interférences. Dans cette expression de σ_{int} , le

terme $\sqrt{\ln v_p}$ est, contrairement au terme $(Z_p / v_p)^3$, une fonction qui varie faiblement avec

v_p . Pour le domaine de vitesses explorées dans ce travail ($6 \text{ u.a.} \leq v_p \leq 60 \text{ u.a.}$), $\sqrt{\ln v_p}$ ne

varie que d'un facteur 1.5, alors que $(1/v_p)^3$ varie d'un facteur 1000. De ce fait, l'introduction

de $\sqrt{\ln v_p}$ dans l'expression de σ_{int} n'est pas critique.

A partir des relations (I.41) et (I.42), on obtient l'expression suivante pour la section efficace σ_{exc}^{DK} :

$$\sigma_{exc}^{DK} = c_{TS2} \left(\frac{Z_p}{v_p} \right)^4 + c_{TS1} \left(\frac{Z_p}{v_p} \right)^2 \ln v_p + c_{int} \left(\frac{Z_p}{v_p} \right)^3 \sqrt{\ln v_p} \quad (I.43)$$

C'est en ajustant cette expression de σ_{exc}^{DK} sur les valeurs expérimentales que l'on tentera, dans le cas de la création de deux lacunes en couche K du lithium, de déterminer les contributions correspondant aux processus TS1 et TS2 et au terme d'interférence entre ces processus.

Chapitre II

Dispositif expérimental et analyse des spectres d'électrons Auger.

I. Dispositif expérimental :

Plusieurs éléments composent le dispositif expérimental:

- la source de particules chargées qui est soit l'accélérateur d'ions lourds du GANIL, soit un canon à électrons (§ I.1),
- la chambre de collision (§ I.2) avec en son centre un four destiné à fournir la cible gazeuse de lithium (§ I.3),
- le cylindre de Faraday pour la mesure des courants de faisceau projectile après traversée de la zone de collision, afin de normaliser les mesures de sections efficaces,
- le spectromètre situé dans la chambre de collision et analysant en énergie les électrons Auger émis après collision (§ I.4.1),
- le détecteur (§ I.4.2) et la chaîne électronique d'acquisition (§ I.4.3).

Nous allons maintenant décrire plus en détail ces divers éléments.

I.1. Sources de particules chargées :

I.1.1. L'accélérateur d'ions lourds GANIL :

Les ions accélérés au GANIL proviennent d'une source ECR (Electron Cyclotron Resonance) dans laquelle les atomes de l'élément à accélérer sont généralement introduits sous forme gazeuse, puis ionisés. Les ions de charges diverses ainsi formés sont extraits et triés en état de charge par un dipôle magnétique. Les ions sélectionnés sont ensuite introduits dans un premier cyclotron (Fig. 1) à secteurs plats (C_{01}), de manière à les pré-accélérer avant d'être injectés sur la première orbite d'un cyclotron à secteurs séparés (CSS1). A ce stade, les ions ont acquis une énergie allant de 4 à 13 MeV/uma (moyenne énergie). Ils sont ensuite épiluchés par une cible mince de carbone, augmentant ainsi leur charge d'un facteur 2,5 environ. Le faisceau peut alors être injecté dans un second cyclotron à secteurs séparés (CSS2), identique au premier, multipliant l'énergie des ions par un facteur 6,5 environ.

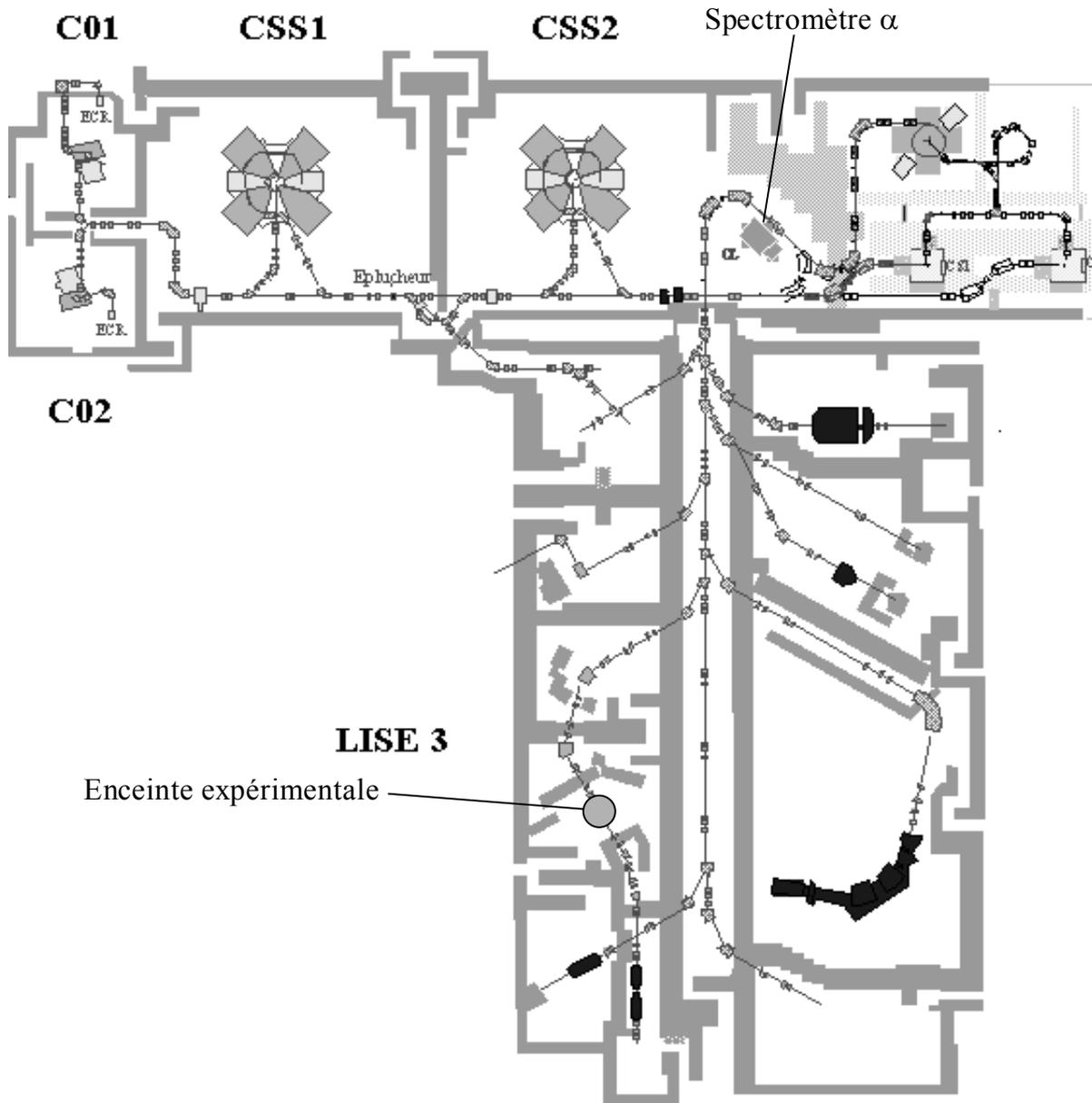


Figure 1. : Schéma de principe du GANIL (Grand Accélérateur National d'Ions Lourds).

Les énergies maximales pouvant ainsi être délivrées vont de 24 MeV/uma pour l'ion $^{238}\text{U}^{58+}$ (l'ion le plus lourd accéléré au GANIL) à 96,4 MeV/uma pour l'ion $^{12}\text{C}^{6+}$ (l'ion le plus léger). Avant d'être distribué dans les aires expérimentales, le faisceau d'ions est analysé et défini (énergie et émittance) dans un spectromètre α . Pour notre expérience, la chambre de collisions se situe sur la ligne L.I.S.E (Ligne d'Ions Super Epluchés) où un faisceau d'ions projectiles Kr^{34+} à 60 MeV/uma nous est délivré.

I.1.2. Source d'électrons projectiles :

Le canon à électrons a été conçu et réalisé au laboratoire. Des expériences avec des électrons projectiles ayant une énergie cinétique comprise entre 0,5 et 5 keV ont été réalisées.

- *Caractéristiques requises et contraintes :*

Le canon à électrons doit répondre à certaines caractéristiques. Elles sont d'ordre mécanique, géométrique et électrique.

Tout d'abord, ce canon doit être facile d'emploi, offrant la possibilité d'être utilisé pour d'autres tests et expériences. Il doit être robuste afin de supporter de nombreuses remises à l'air. Un filament de tungstène est donc choisi comme source émettrice d'électrons.

L'installation du canon à l'intérieur de la chambre implique des contraintes géométriques. Pour être installé dans la chambre aux côtés du spectromètre, du four et du piège à lithium, le canon à électrons doit être suffisamment petit. Notons que l'intérêt de placer le canon directement dans la chambre est de pouvoir profiter du blindage magnétique en " μ -métal" de la chambre (§ I.2).

Le canon à électrons doit être capable de produire des faisceaux de plusieurs keV. De ce fait, il est le siège de différences de potentiels de plusieurs kilovolts. Toutefois, il faut éviter les claquages et toute existence de champ électrique à l'extérieur du canon pour ne pas

perturber les électrons observés. Cela conditionne la disposition et la géométrie des électrodes ainsi que le blindage électrique du canon.

Les sections efficaces doublement différentielles attendues dans les expériences sont très faibles ($\leq 10^{-20} \text{ cm}^2 \text{ eV}^{-1} \text{ sr}^{-1}$). Afin de pouvoir les mesurer, le canon doit être capable de fournir un faisceau ayant une intensité de plusieurs dizaines de microampères.

- *Schéma adopté pour le canon à électrons :*

Le schéma suivant (Fig. 2) a été adopté pour le canon à électrons. Il est constitué de quatre parties :

- un filament en tungstène, qui émet les électrons,
- une électrode, appelé électrode de Wehnelt, dont le réglage du potentiel fait varier le débit et la concentration des électrons (de faible énergie) émis par le filament,
- une électrode qui accélère les électrons,
- une lentille électrostatique, formée par trois électrodes, pour le réglage de la focalisation du faisceau d'électrons.

Entre chaque électrode, une distance de 8 mm est maintenue par des entretoises en céramique.

a) Le filament

Le filament est identique à ceux utilisés en microscopie électronique. C'est un fil de tungstène plié en forme de pointe (Fig. 2) et ayant un diamètre de 3/10 mm. Cette pointe permet d'obtenir une source ponctuelle et ainsi de localiser l'émission des électrons. Le filament est traversé par un courant maximum de 2,4 A. Il est porté à un potentiel négatif par rapport à la masse.

b) L'électrode de Wehnelt

L'électrode de Wehnelt (Fig. 2) est une électrode munie d'un diaphragme de 2 mm de diamètre et portée à un potentiel plus négatif que celui du filament. Le potentiel de cette électrode permet d'optimiser la trajectoire des électrons émis par le filament et par conséquent, minimise la dispersion angulaire du faisceau. La forme conique et la taille du diaphragme de l'électrode sont choisies de manière à réduire autant que possible la dispersion angulaire du faisceau d'électrons. L'électrode de Wehnelt sert aussi de support (Fig. 2) au filament. Un fonctionnement optimal est obtenu lorsque la pointe du filament est disposée au raz du diaphragme (Fig. 2).

c) L'électrode accélératrice

L'électrode accélératrice (Fig. 2) est à un potentiel nul (connectée à la masse). La différence de potentiel entre cette électrode et le filament détermine l'énergie cinétique des électrons projectiles. Cette électrode est percée en son centre d'un trou de 3 mm de diamètre. Ce diamètre est suffisamment petit pour assurer une homogénéité satisfaisante du champ électrique accélérateur, mais aussi suffisamment grand pour ne pas perturber de façon significative tout faisceau de diamètre inférieur ou égal à 2 mm.

d) La lentille électrostatique

La lentille électrostatique est formée de trois électrodes possédant une ouverture centrale de 3 mm de diamètre (Fig. 2). Deux électrodes de potentiel nul sont disposées symétriquement de part et d'autre d'une électrode portée à un potentiel négatif réglable. Le "bâti" du canon (Fig. 2) joue le rôle d'une des électrodes de potentiel nul. La géométrie (épaisseur et diamètre) du diaphragme du "bâti" a été optimisée de manière à éviter l'existence de champ électrique significatif à l'extérieur du canon.

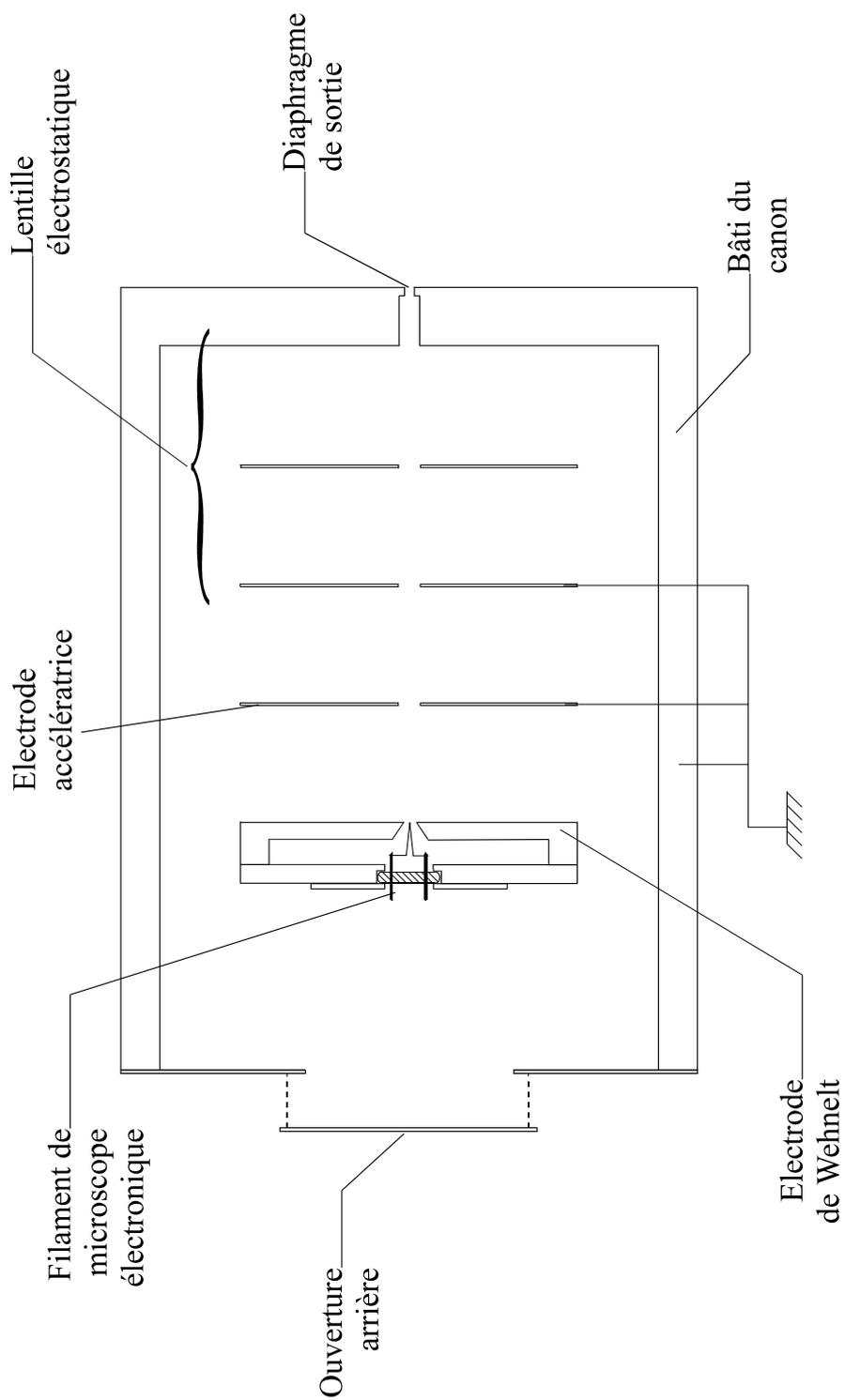


Figure 2. : Schéma du canon à électrons. La partie hachurée représente la partie isolante.

- *Caractéristiques du faisceau d'électrons :*

Actuellement, l'énergie du faisceau d'électrons produit par ce canon varie de 0,5 keV à 8 keV. Pour une énergie incidente de 0,5 keV, nous avons typiquement une intensité de faisceau de 10 μ A, et pour une énergie supérieure ou égale à 3 keV, l'intensité du faisceau est de 100 μ A environ. Son diamètre, en sortie du canon, est au maximum de 2 mm et à une distance de 200 mm, il est inférieur ou égal à 3 mm. La dispersion angulaire du faisceau est donc inférieur à 0,3°. Le faisceau peut être considéré parallèle. Les fluctuations en intensité du faisceau d'électrons restent inférieures à 10 % pendant 48 heures de fonctionnement.

I.2. Chambre de collision :

La chambre de collision est une cuve métallique cylindrique de diamètre intérieur de 55 cm (Fig. 3). Selon l'axe de révolution de la chambre, à une distance réglable de l'axe du faisceau, un four fournit un jet effusif gazeux de lithium avec laquelle interagit le faisceau projectile. Le débit est de 4×10^{18} atomes/s. La température à l'intérieur du four est d'environ 490° C. La pression moyenne alors estimée pour le jet gazeux est de l'ordre de 10^{-3} mbar à la sortie du four et de 10^{-4} mbar dans la zone de collision (soit une densité atomique de quelques 10^{14} atomes/cm³). La pression résiduelle de la chambre reste inférieure à $1,5 \times 10^{-6}$ mbar. Ces pressions sont suffisamment basses pour maintenir un régime où généralement chaque projectile chargé entre en collision avec un seul atome cible (condition de simple collision).

Un blindage magnétique en " μ -métal" (Alliage Ni77/Fe14/Cu5/Mo4) est inséré dans la chambre afin d'atténuer l'influence du champ magnétique extérieur qui risqueraient de perturber la trajectoire des électrons émis suite à la collision.

Un spectromètre électrostatique, servant ici à la détection d'électrons, est fixé sur une couronne circulaire mobile autour de l'axe de révolution de la chambre. Ce spectromètre

permet la détection sous un angle donné θ par rapport à la direction incidente du faisceau. L'angle d'observation θ accessible par ce spectromètre est compris entre 16° et 164° . Cependant, lorsque le canon à électrons est installé dans la chambre, le domaine angulaire accessible est de 30° à 135° .

Après collision avec la cible gazeuse, les projectiles sont recueillis dans un cylindre de Faraday. La mesure des courants de projectiles chargés collectés sur le diaphragme (I_D) et sur le cylindre de Faraday (I_{CF}) est indispensable pour le diagnostic du faisceau dans la chambre de collision. En particulier, pour qu'un faisceau soit le plus fin (pour être "vu" par le spectromètre) et le plus parallèle possible (pour les distributions angulaires) il faut minimiser le rapport I_D/I_{CF} .

I.3. La cible de lithium atomique :

I.3.1. Le four à lithium :

La cible gazeuse de lithium atomique est produite par un four. Afin de minimiser, d'une part la contamination de la chambre de collision, du canon à électrons et du spectromètre, et d'autre part de disposer d'un four d'une grande autonomie (en le préservant de toute occlusion), l'amélioration du dispositif préexistant [Husson et Lecler 1992 (non publiée), Skogvall *et al.* 1995] était nécessaire.

Le four à lithium est constitué de deux cylindres en molybdène (amagnétique, stable en température et non réactif avec le lithium) (Fig. 4). Dans le cylindre intérieur, un barreau de lithium y est inséré. Le deuxième cylindre de diamètre légèrement supérieur possède une buse percée d'un trou de 2,4 mm de diamètre et fait office de couvercle s'emboîtant sur le précédent. La capacité du four est d'environ 20 cm^3 . Pour une puissance de chauffage de 50 W, le four fonctionne pendant une centaine d'heures environ avant de se boucher.

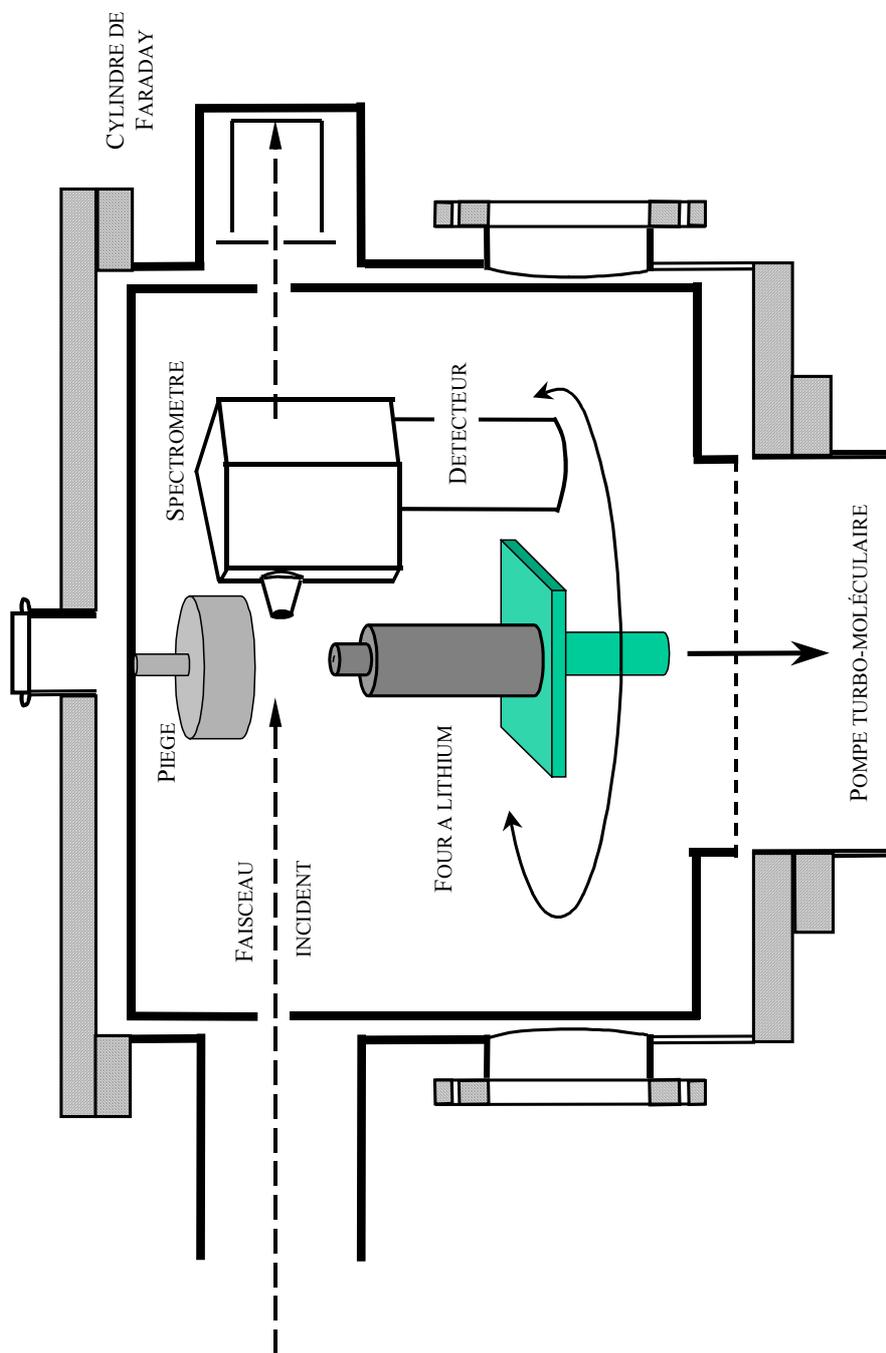


Figure 3. : Chambre de collision.

L'élément chauffant est constitué d'un fil thermocoaxial (Fig. 4) de 1 mm de diamètre. Ce fil est enroulé de façon bifilaire (aller et retour) autour du four afin de minimiser la création de champs magnétiques induits par le courant de chauffage relativement intense (environ 0,8 A).

La température du four est contrôlée en réglant l'intensité de ce courant de chauffage. Une mesure préalable de la température à l'intérieur du four est effectuée en l'absence de lithium en introduisant un thermocouple de type chrome-alumel dans l'orifice de la buse. Cette température est d'environ 490° C. Cependant, lors des expériences en présence de lithium, une telle mesure n'est plus possible. Par conséquent, on mesure la température en un point de la paroi extérieure du four. Cette température est d'environ 470° C. Même si cette mesure ne donne pas directement accès à la température du lithium, elle est utile pour vérifier que le four est stable en température (fluctuations inférieures à 5° C).

Une feuille de tantale placée autour du four améliore l'efficacité de chauffage du four, en réfléchissant vers l'intérieur le rayonnement thermique du fil thermocoaxial.

I.3.2. Système de refroidissement et piège à lithium :

Un réservoir en cuivre, refroidi par une circulation d'eau, entoure le four et l'isole thermiquement du spectromètre à électrons et du reste de la chambre. Un couvercle en cuivre avec une ouverture de 12 mm de diamètre (Fig. 4), s'emboîtant sur le système de refroidissement est placé au-dessus du four, à une distance de 4 mm. On limite ainsi la contamination du reste de la chambre par le jet de lithium. Ce couvercle laisse passer uniquement les atomes de lithium issus du four et ayant un angle de diffusion inférieur à 70° par rapport à la direction verticale. Les autres atomes sont piégés par la surface inférieure froide du couvercle.

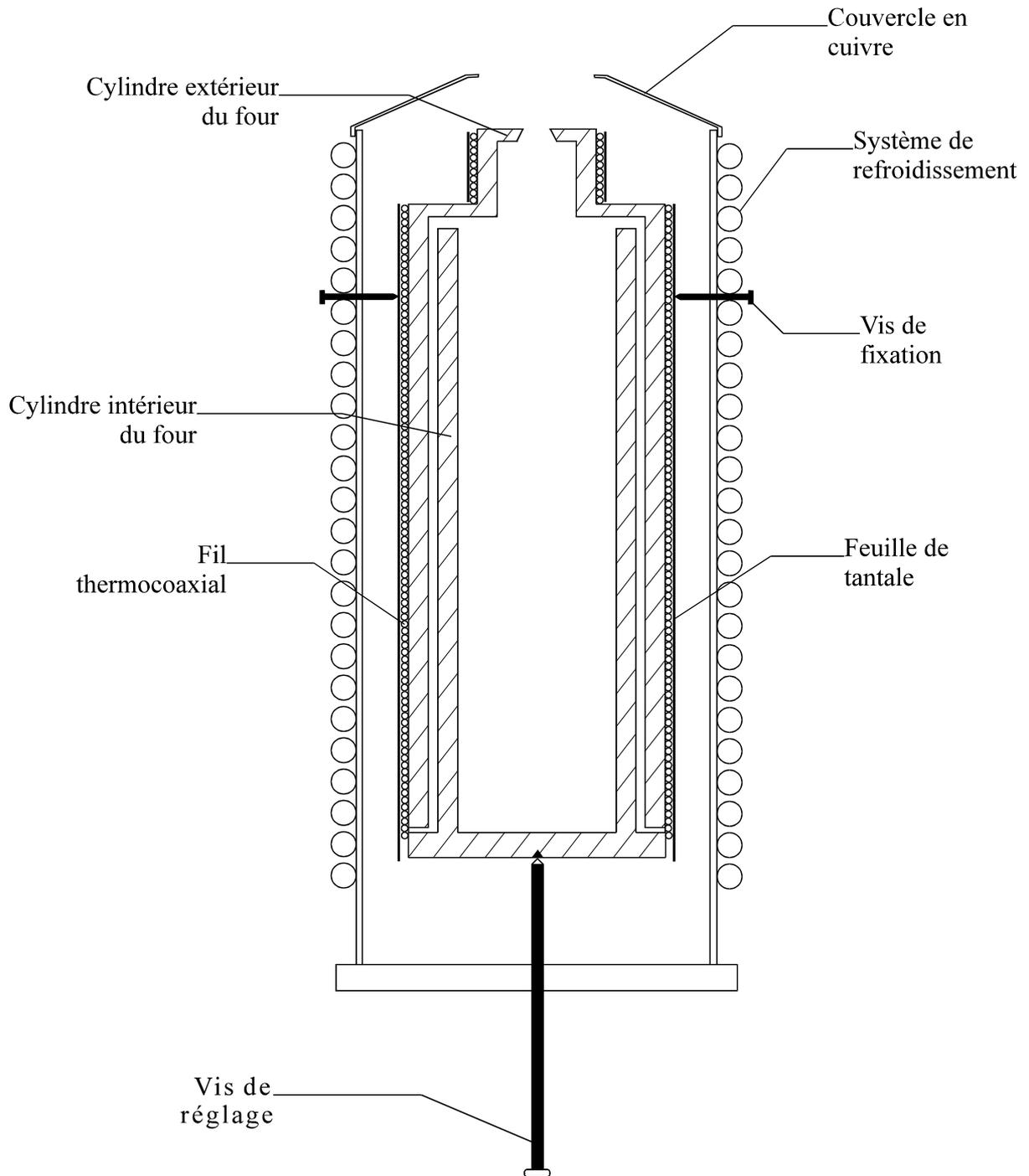


Figure 4. : Four à lithium et système de refroidissement.

Une cavité métallique, située au-dessus du four et également refroidie par une circulation d'eau, piège les atomes de lithium par dépôt sur les parois froides. Ainsi la contamination de la chambre de collision par le lithium est considérablement réduite.

I.4. Détection des électrons Auger :

I.4.1. Spectromètre d'électrons :

- *Présentation générale du spectromètre utilisé :*

Dans le spectromètre électrostatique, un champ électrique défecteur est créé afin de sélectionner en énergie les électrons Auger incidents.

Le spectromètre utilisé est constitué de deux plaques parallèles inclinées à un angle de 45° par rapport à la direction incidente des électrons détectés. Le schéma de principe de ce spectromètre est présenté sur la figure 5. Après avoir traversé les deux grilles d'entrée, les électrons détectés pénètrent dans l'analyseur en passant par une fente taillée sur la plaque inférieure (Fig. 5).

Entre les deux plaques, un champ électrique uniforme \vec{E} , créé par une différence de potentiel ($U-V$) négative, défléchit les électrons selon un angle qui dépend de leur énergie cinétique. Seuls les électrons, dont l'angle de déflexion est égal à (ou très voisin de) 90° , peuvent sortir de l'analyseur par la deuxième fente de l'électrode inférieure et atteindre ainsi le détecteur (Fig. 5). Dans ces conditions, l'analyse en énergie des électrons Auger incidents s'effectue en faisant varier l'intensité du champ défecteur \vec{E} . Nous verrons plus loin que ce spectromètre est adapté pour une détection à basse et haute résolution en énergie des électrons.

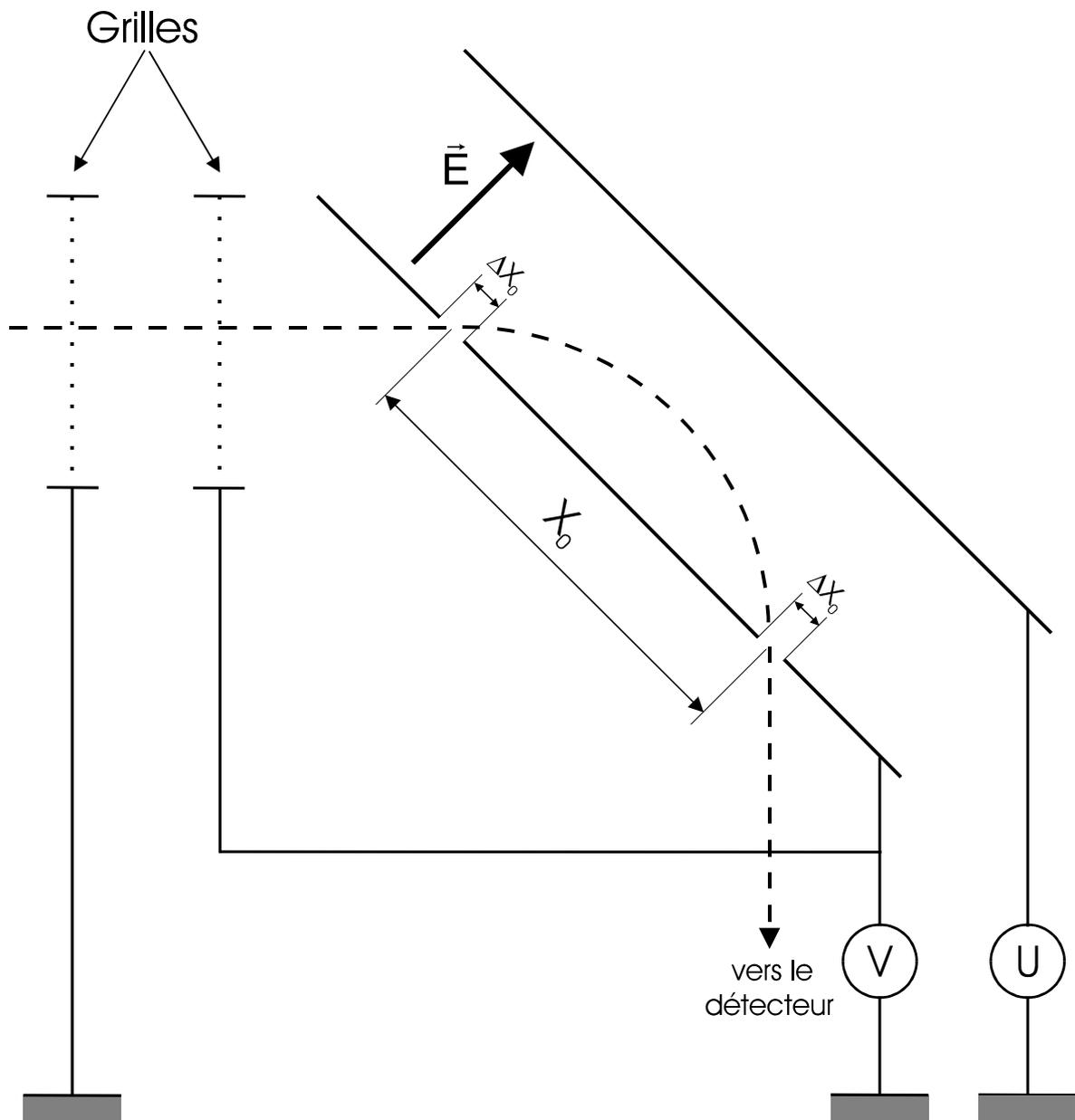


Figure 5. : Schéma de principe du spectromètre.

- *Paramètres caractéristiques du spectromètre d'électrons :*

Dans l'analyseur, sous l'action de la différence de potentiel ΔU appliquée entre les plaques, la trajectoire d'un électron d'énergie incidente ε_A est une parabole (Fig. 5). L'électron d'énergie ε_A est sélectionné par l'analyseur si ΔU est choisie de sorte qu'il puisse ressortir en $X = X_0$. La condition sur ΔU pour une énergie donnée s'exprime alors selon la relation de proportionnalité suivante :

$$\Delta U = -k\varepsilon_A. \quad (\text{II.1})$$

Le paramètre k caractérise complètement l'analyseur. Des tests au moyen d'un canon à électrons d'énergie connue ont permis d'estimer [Stolterfoht 1971] la constante k du spectromètre :

$$k = 0,595 \text{ V/eV}.$$

- *Résolution :*

L'énergie mesurée des électrons Auger ε_A n'est connue qu'à $\Delta\varepsilon_A$ près car les fentes d'entrée et de sortie du spectromètre ont une largeur ΔX_0 non nulle (Fig. 5). La résolution géométrique R du spectromètre est donnée par [Stolterfoht 1971]:

$$R = \frac{\Delta\varepsilon_p}{\varepsilon_p} \approx 5\% \quad (\text{II.2})$$

où ε_p est l'énergie de l'électron lors de son passage entre les plaques de l'analyseur. La largeur en énergie $\Delta\varepsilon_p$ est donc proportionnelle à l'énergie ε_p mesurée :

$$\Delta\varepsilon_p = R \varepsilon_p. \quad (\text{II.3})$$

À basse résolution, les électrons détectés traversent le spectromètre avec une énergie cinétique ε_p égale à leur énergie incidente ε_A . Dans ce cas, les grilles (Fig. 5) sont à la masse et la tension V est nulle. D'après la relation (II.3), pour obtenir une meilleure résolution en énergie, il est astucieux de diminuer l'énergie ε_p afin de réduire la largeur en énergie $\Delta\varepsilon_p$. Ainsi, lors des mesures à haute résolution, les électrons sont décélérés avant leur entrée dans l'analyseur grâce à un champ électrique entre les deux grilles d'entrée (Fig. 5). La première

grille rencontrée par les électrons est maintenue à la masse, alors que la deuxième est portée à une tension V négative. La décélération fait légèrement éclater le faisceau d'électrons et, par conséquent, donne lieu à une baisse d'efficacité du spectromètre qui s'accroît au fur et à mesure que la décélération est forte. Cependant, lors de l'enregistrement des spectres à haute résolution, nous avons exploré des petits domaines d'énergie Auger pour lesquels l'efficacité reste pratiquement constante. De cette manière, il a été possible de s'affranchir de l'effet de l'efficacité sur la forme des spectres. Pour tenir compte de la baisse d'efficacité due à la décélération des électrons à l'entrée du spectromètre, les spectres enregistrés à haute résolution sont normalisés sur les spectres enregistrés à basse résolution (sans décélération).

I.4.2. Le "Channeltron" :

Un channeltron (type Sjutts KBL25RS), multiplicateur tubulaire d'électrons, est placé en sortie du spectromètre. La surface conique réceptrice du channeltron utilisé est de 490 mm^2 . Une collision entre un électron et la paroi interne du multiplicateur provoque l'émission d'électrons secondaires. Grâce à une différence de potentiel de 3 kV appliquée entre les extrémités du multiplicateur tubulaire, ces électrons sont accélérés vers le fond du tube. Le gain d'amplification ainsi obtenu est de l'ordre de $10^6 - 10^7$. À l'extrémité du tube multiplicateur, les électrons secondaires produisent une impulsion électrique qui constitue le signal de détection.

L'efficacité du channeltron dépend de l'énergie cinétique des électrons détectés. Pour des énergies incidentes comprises entre 100 et 1000 eV, cette efficacité est optimale et constante à 10 % près. Pour bénéficier d'une efficacité maximale dans le domaine d'énergie exploré, la surface conique réceptrice est alors portée à un potentiel d'environ 300 V.

I.4.3. Comptage et acquisition des électrons Auger :

La figure 6 donne le schéma de principe de la chaîne d'acquisition utilisée dans nos expériences. Un micro-ordinateur couplé à un système CAMAC commande les tensions U et V appliquées sur le spectromètre. Un balayage de ces tensions permet de faire varier l'énergie des électrons Auger sélectionnés par le spectromètre. L'ordinateur commence par imposer une valeur donnée à chacun des potentiels U et V , puis déclenche le comptage dans le canal d'acquisition numéro i . Les impulsions électriques négatives recueillies en sortie du channeltron sont amplifiées (amplificateur rapide à filtre ORTEC). Ensuite, un discriminateur à seuil (D) (Fig. 6) élimine les impulsions d'amplitude trop faible dues à des déclenchements parasites et normalise les autres impulsions sous la forme de signaux NIM d'amplitude 0,8 V. Les signaux sont enfin comptés et enregistrés dans le canal i du micro-ordinateur.

En parallèle, le courant de faisceau projectile collecté sur le cylindre de Faraday (CF) est convertit en fréquence. Le signal TTL résultant est recueilli par l'ordinateur et sert à la normalisation des mesures. Dans chaque canal, le comptage s'effectue pour une charge *constante* de projectiles recueillie sur le cylindre de Faraday. Ainsi lorsque la charge atteint une valeur préalablement choisie Q , l'ordinateur stoppe le comptage des électrons Auger dans le canal i . Il incrémente d'une valeur définie les tensions U et V et déclenche le comptage dans le canal $(i + 1)$. L'acquisition se répète ainsi de canal en canal. Les spectres obtenus représentent alors le nombre d'électrons détectés en fonction de leur d'énergie.

I.4.4. Bruits de fond et bruits parasites :

Il existe deux principales origines pour le bruit de fond :

- les électrons émis ou diffusés après interaction du faisceau avec les surfaces qu'il est susceptible de rencontrer dans la chambre de collision. Ce bruit, qui est très intense pour le domaine d'énergies inférieures à 10 eV, décroît tel une fonction exponentielle avec l'énergie des électrons. Il n'affecte pas le résultat final des spectres après analyse.

- les électrons provenant des collisions sur les surfaces internes du spectromètre. Le bruit de fond correspondant est presque constant avec l'énergie des électrons. Il peut donc être assez facilement retranché des spectres.

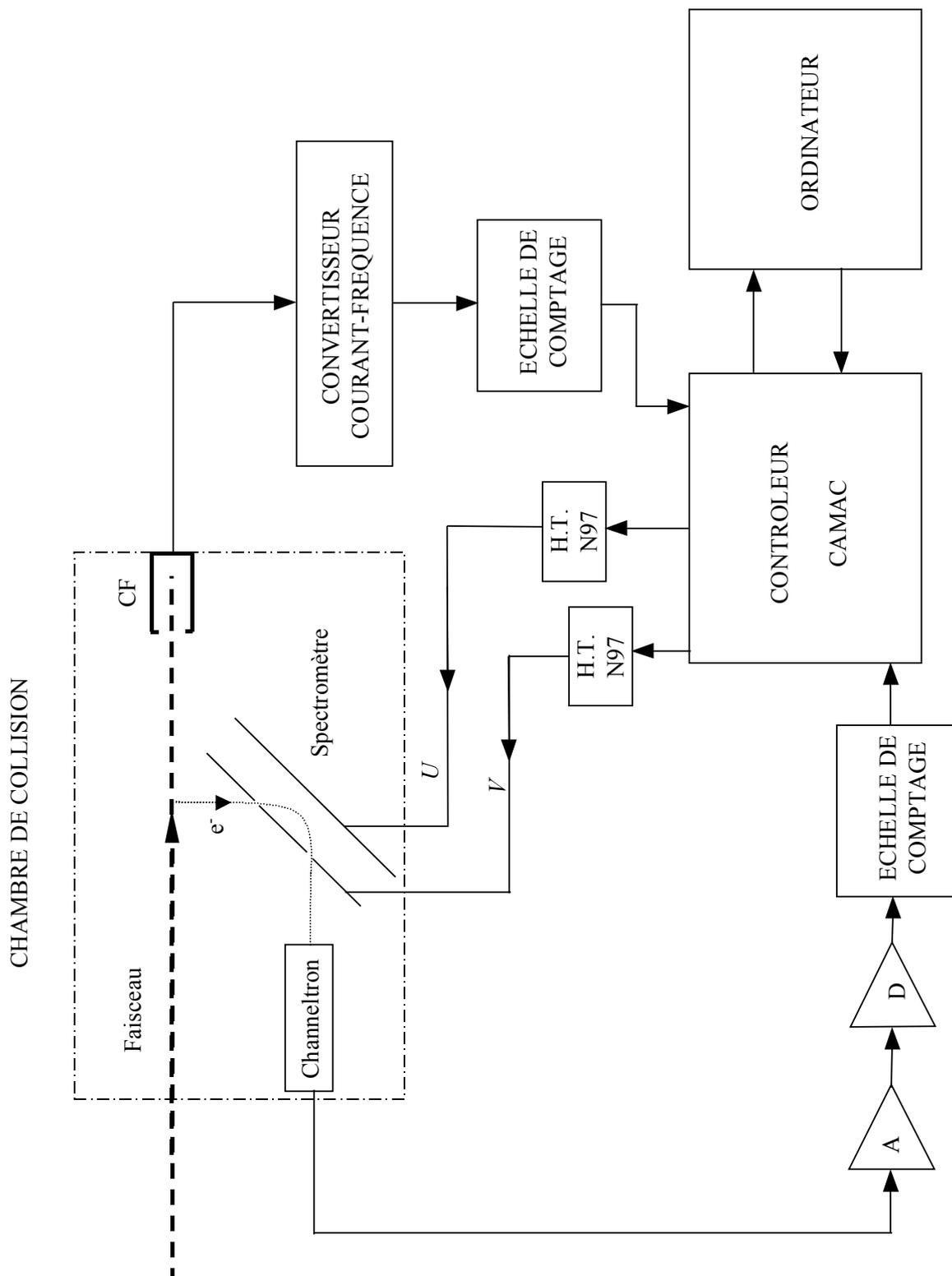


Figure 6. : Chaîne électronique pour l'acquisition des spectres d'électrons Auger.

Au bruit de fond s'ajoutent des bruits parasites issus du bruit propre du détecteur et de la chaîne électronique. Ils sont considérablement atténués en réglant le seuil du discriminateur D (Fig. 6) de telle sorte, qu'en l'absence de faisceau, le comptage soit nul ou d'une unité par seconde.

II. Analyse des spectres obtenus :

II.1. Détermination des sections efficaces d'émission Auger :

II.1.1. Formulation générale :

Les sections efficaces d'émission Auger sont obtenues après intégration en énergie des spectres.

Soit N_e le nombre d'électrons Auger émis par la cible par unité de temps,

$$N_e = \frac{d^2 \sigma^a}{d\varepsilon d\Omega} N_i n_c L(\theta) \eta \Delta\varepsilon_p \Delta\Omega. \quad (\text{II.4})$$

Dans la relation (II.4),

N_i est le nombre de projectiles chargés (ions ou électrons) traversant la cible gazeuse par unité de temps. Ce nombre est déterminé à partir de la mesure du courant sur le cylindre de Faraday,

n_c est le nombre d'atomes cibles par unité de volume,

$L(\theta)$ est la longueur effective de faisceau "vue" par le spectromètre à un angle de détection θ , "déduite" de la mesure d'une raie isotrope.

η est l'efficacité du système {spectromètre - channeltron - chaîne électronique} et est approximativement de 30% avec le spectromètre utilisé,

$\Delta\varepsilon_p$ est l'intervalle d'énergie dans lequel s'effectue la détection ($\Delta\varepsilon_p = R \varepsilon_p$),

$\Delta\Omega$ est l'angle solide de détection, égal à environ 2×10^{-3} sr pour le spectromètre utilisé [Stolterfoht 1971],

$\frac{d^2\sigma^a}{d\varepsilon d\Omega}$ est la section efficace différentielle en angle et en énergie d'émission Auger (en $cm^2 eV^{-1} sr^{-1}$).

La connaissance du nombre n_c d'atomes cibles par unité de volume est nécessaire pour la détermination de la section efficace différentielle $\frac{d^2\sigma^a}{d\varepsilon d\Omega}$ au moyen de l'expression (II.4).

Dans le cas du lithium, il est difficile de connaître ce nombre car la température du lithium gazeux n'a pu être directement mesurée. Toutefois, n_c est estimée à 8×10^{14} atomes/cm³. L'estimation de la section efficace différentielle $\frac{d^2\sigma^a}{d\varepsilon d\Omega}$ au moyen de l'expression (II.4) est

compatible avec la valeur obtenue en effectuant les normalisations suivantes.

II.1.2. Normalisation des sections efficaces mesurées :

En supposant que l'émission suite à la production d'un état S lors de la simple excitation du lithium, est isotrope, nous pouvons déterminer la section efficace différentielle relative à chaque angle θ . Pour analyser les spectres obtenus, nous normalisons la section efficace différentielle de l'état $1s2s^2 \ ^2S$ obtenue à chaque angle de détection θ , pour une énergie de projectiles donnée, sur celle obtenue à $\theta = 90^\circ$. Grâce au facteur de normalisation, obtenu à chaque angle, les sections efficaces différentielles relatives aux autres états sont déterminées.

Par ailleurs, pour obtenir les sections efficaces absolues dans le cas d'un faisceau d'électrons projectiles, nous avons utilisé un calcul dans le cadre de l'approximation de Born au premier ordre (cf. Chapitre I) pour normaliser la section efficace totale de simple excitation en couche K du lithium (prise dans sa globalité) obtenue avec des électrons rapides d'énergie de 5 keV (c'est à cette énergie que l'utilisation de l'approximation de Born est la plus justifiée puisque la perturbation est faible). Le même facteur de normalisation a ensuite été appliqué aux sections efficaces obtenues aux autres énergies de collision. Des précisions seront apportées sur la méthode de normalisation lors du traitement de la simple excitation en couche K .

En ce qui concerne le degré de confiance du calcul, nos valeurs théoriques de sections efficaces totales ont été comparées à celles obtenues à l'aide d'une méthode de calcul multiconfigurationnel [Nagy and Fritzsche 2000, Nagy 2002 (comm. privée)]. De manière générale, les sections efficaces théoriques obtenues par Nagy sont de 1,2 à 1,3 fois plus grandes que les nôtres. De cette façon, l'incertitude absolue sur nos sections efficaces absolues est estimée comprise entre 30 à 50 %.

II.1.3. Incertitudes relatives sur les mesures :

L'incertitude sur les sections efficaces différentielles *relatives* vient essentiellement de l'alignement et des conditions de focalisation du faisceau. La section du faisceau doit être suffisamment faible (i.e., inférieure à 3 mm de diamètre) pour être complètement "vue" par le spectromètre. La section du faisceau est minimisée en réduisant le rapport I_D/I_{CF} (inférieur à 1/10). Les fluctuations spatiales du faisceau provoquent une variation de l'intensité des pics et conduisent à une incertitude relative sur les sections efficaces de simple excitation en couche K estimée à 5-10 % pour un faisceau d'électrons projectiles et de 10-20 % pour la création de deux trous en couche interne par impact d'électrons. Avec le faisceau de Kr^{34+} , on a une incertitude relative légèrement supérieure, c'est-à-dire typiquement de 20 à 30 %.

Chapitre III

Collisions électrons + Li et ions + Li à haute énergie.

Simple excitation en couche K .

Étude en fonction du paramètre de perturbation.

I. Introduction :

La simple excitation en couche K du lithium a été abondamment étudiée durant ces quarante dernières années [Pietenpol 1961, Garcia and Mack 1965, Ziem *et al.* 1975, Rødbro *et al.* 1979, Tanis *et al.* 2000, Nagy and Fritzsche 2000].

Quelques auteurs se sont intéressés aux états peuplés lors d'une excitation en couche interne suite aux radiations UV [Ederer *et al.* 1970] ou par des sources laser [McIlrath and Lucatorto 1977]. La photoexcitation produit des états excités essentiellement par transitions dipolaires électriques.

Les expériences de collisions ion-atome ont apporté des informations plus complètes concernant les états autoionisants du lithium. Certains auteurs [Pegg *et al.* 1975] ont obtenu un spectre d'électrons Auger du lithium après interaction d'un faisceau de Li^+ à 70 keV avec une cible gazeuse d'hélium contenue dans une cellule. Rødbro et collaborateurs [Rødbro *et al.* 1979] ont enregistré des spectres de meilleure résolution lors des collisions entre des ions Li^+ à 200 keV et à 300 keV sur du méthane et de l'hélium, respectivement. La position en énergie des différents états autoionisants peuplés a pu être ainsi déterminée. D'autres expériences, par impact de protons de 100 keV, d'ions He^+ de 200 keV et d'électrons d'énergie incidente de 80, 200, 500 et 550 eV sur une cible atomique de lithium [Ziem *et al.* 1975, Pejčev *et al.* 1977, Rassi *et al.* 1977], ont permis d'identifier les états peuplés lors de la simple excitation en couche K du lithium.

Pour une analyse approfondie de la simple excitation en couche interne, plusieurs développements théoriques ont été réalisés pour le calcul des énergies d'émission Auger, des durées de vie et des sections efficaces des états peuplés [Pietenpol 1961, Garcia and Mack 1965, Parks and Sampson 1975, Ermolaev *et al.* 1987a, Ermolaev *et al.* 1987b, Tayal and Henry 1991]. À partir de ces travaux, certains auteurs se sont intéressés au rôle de la corrélation électronique entre les états issus de la simple excitation. Très récemment, les effets

d'interactions de configuration ont été mis en évidence par Nagy et Fritzsche en comparant nos données expérimentales [Tanis *et al.* 2000] avec leur résultat théorique [Nagy and Fritzsche 2000].

Dans la suite seront analysés les spectres d'émission Auger après simple excitation en couche K du lithium par impact d'ions Kr^{34+} à 60 MeV/uma, Ar^{18+} à 95 MeV/uma et d'électrons d'énergie comprise entre 0,4 et 5 keV. Ces spectres nous donneront accès aux distributions angulaires d'émission Auger associée aux différents états peuplés. De ces distributions angulaires, nous distinguerons le peuplement des différents sous-états magnétiques. Les résultats obtenus seront discutés en terme d'alignement des états peuplés. La dépendance des sections efficaces de simple excitation en charge et en vitesse du projectile sera comparée à la théorie *Plane Wave Born Approximation* (PWBA).

II. Émission Auger - Dépendance en énergie de collision :

II.1. Spectres à basse résolution :

Nous avons enregistré des spectres d'émission Auger en utilisant des électrons projectiles ayant une énergie incidente comprise entre 0,4 keV et 5 keV, correspondant à des vitesses de projectiles dans le domaine 5,4 - 19,2 u.a. Les spectres de simple excitation du lithium obtenus à basse résolution avec des électrons projectiles de 0,5 keV, 1,5 keV et 5 keV sont présentés sur la figure 1. Pour ces spectres, l'angle d'observation par rapport à la direction du faisceau incident est de 90° .

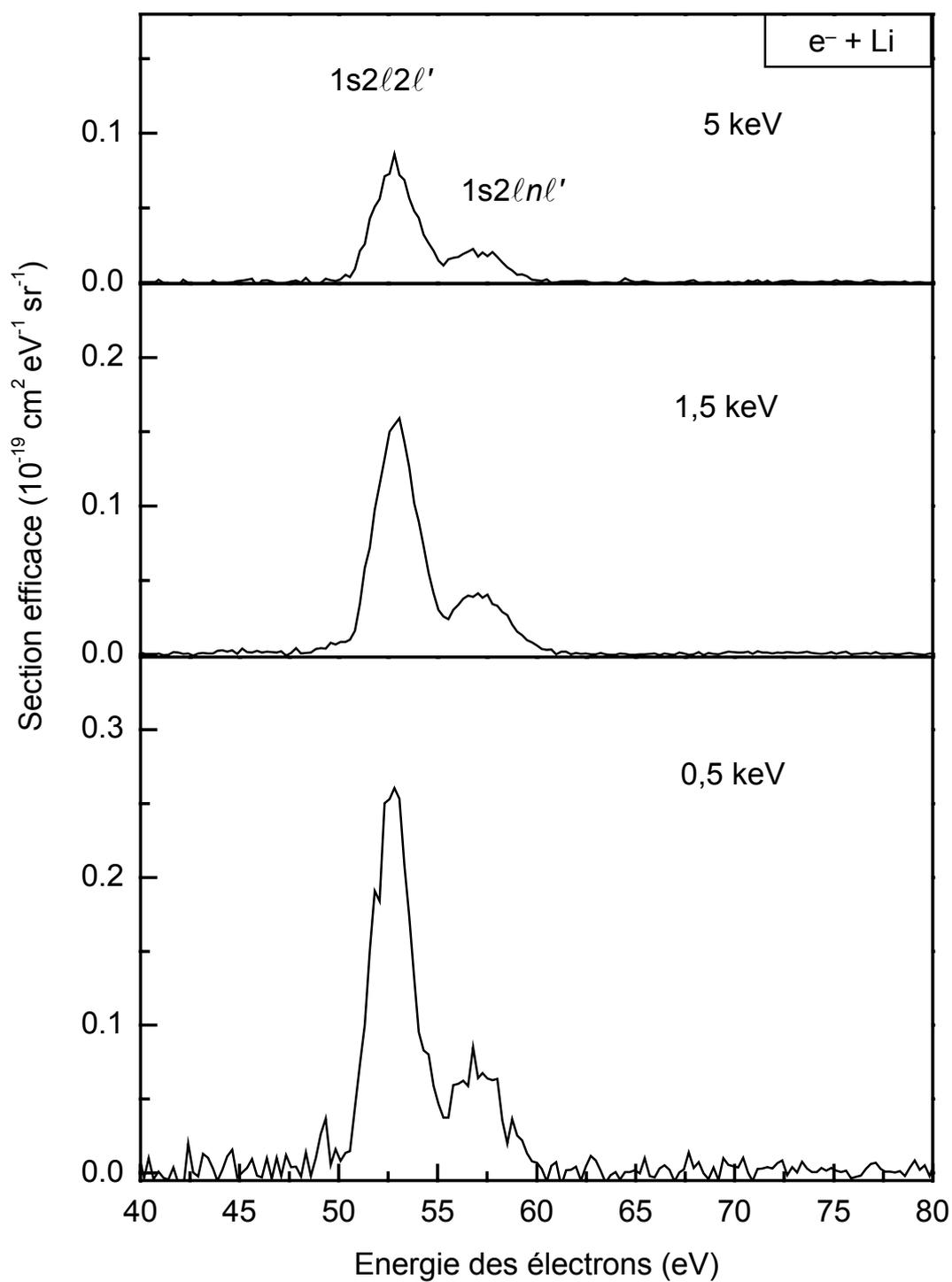


Figure 1. : Spectres d'électrons Auger mesurés à basse résolution dans le cas du système $e^- + \text{Li}$. L'angle d'observation est de 90° .

Les électrons Auger émis, suite à la création d'une lacune en couche K du lithium, ont une énergie cinétique allant de 50 à 60 eV environ. Les configurations $1s2\ell n\ell'$ de la simple excitation ne sont pas séparées dans ces spectres. Néanmoins, nous distinguons deux groupes de pics. Celui de plus grande intensité correspond à l'excitation vers les configurations $1s2\ell 2\ell'$ et celui de plus petite intensité à l'excitation vers les configurations $1s2\ell n\ell'$ ($n \geq 3$).

Comme cela a été indiqué au chapitre I, on s'attend à ce que l'intensité des spectres dépende fortement du paramètre de perturbation $|Z_p|/v_p$. Conformément aux prévisions, lorsque ce paramètre augmente (c'est-à-dire lorsque v_p diminue, la charge étant ici constante, *i.e.* $|Z_p|=1$), l'intensité des spectres de simple excitation augmente.

Pour connaître de façon plus détaillée les états peuplés lors de la simple excitation en couche K , des spectres ont également été enregistrés à haute résolution.

II.2. Spectres à haute résolution :

Sur les figures 2 et 3, nous présentons des spectres enregistrés à haute résolution à un angle d'observation de 90° par rapport à la direction incidente du faisceau, pour des électrons projectiles de 0,5 et 5 keV (Fig. 2) et des ions Kr^{34+} à 60 MeV/uma (Fig. 3). À l'intérieur du spectromètre, l'énergie de passage ε_p (Chap. II, § I.4.1.3) est égale à 8 eV dans le cas des électrons et à 10 eV dans le cas des ions Kr^{34+} . La résolution en énergie pour chacun des pics est alors de 0,4 eV pour les électrons projectiles et de 0,5 eV lorsque les ions Kr^{34+} sont utilisés. Ces projectiles, très différents, nous donnent accès à un domaine particulièrement large en terme de paramètre de perturbation $|Z_p|/v_p$. Le plus petit rapport $|Z_p|/v_p$ correspond aux électrons projectiles ayant une énergie de 5 keV et est égal à 0,05 u.a. Le plus grand paramètre $|Z_p|/v_p$ correspond aux ions Kr^{34+} à 60 MeV/uma et vaut environ 0,7 u.a. Avec les électrons de 0,5 keV, nous avons accès à une valeur de 0,17 u.a. pour le paramètre de perturbation.

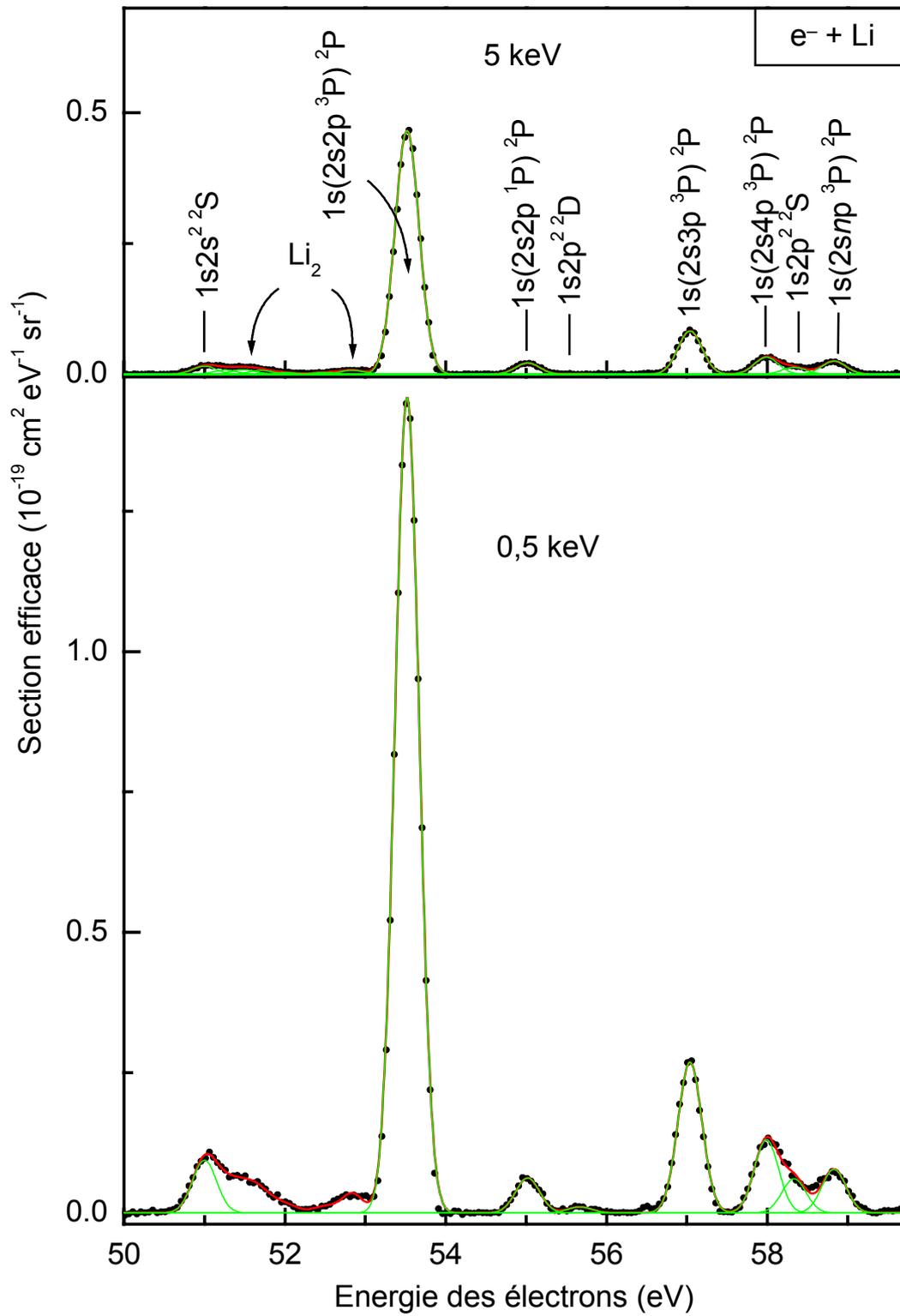


Figure 2. : Sections efficaces doublement différentielles $d^2\sigma_{1s2lnl'}^a / d\varepsilon d\Omega$ pour

l'émission Auger à partir des configurations $1s2lnl'$ ($n \geq 2$).

L'angle d'observation est de 90° .

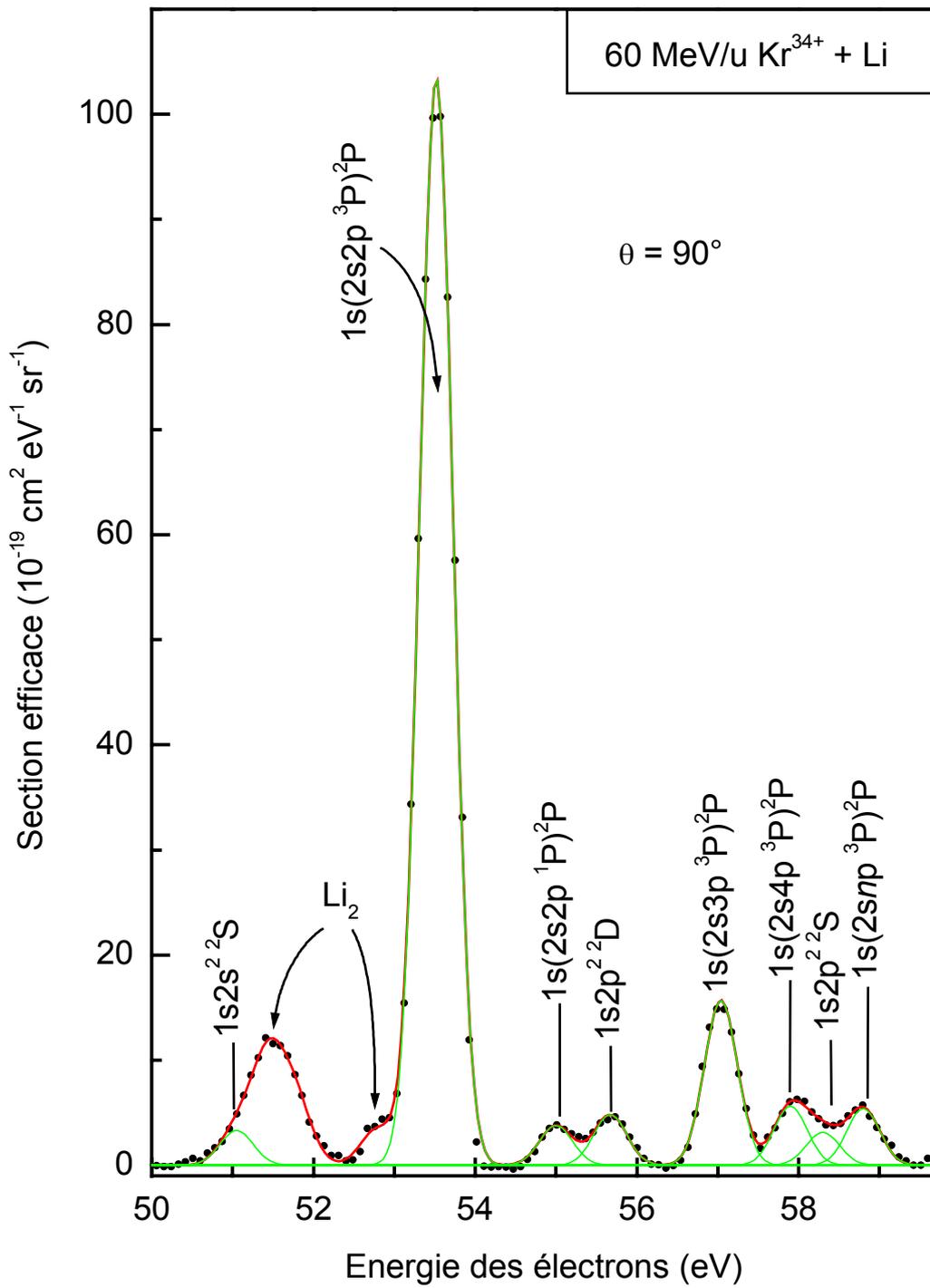


Figure 3. : Sections efficaces doublement différentielles $d^2\sigma_{1s2\ell n\ell'}/d\varepsilon d\Omega$ pour l'émission Auger à partir des configuration $1s2\ell n\ell'$ ($n \geq 2$).

L'angle d'observation est de 90° .

Les spectres obtenus avec les électrons projectiles (Fig. 2) sont très similaires à ceux obtenus avec les ions Kr^{34+} à 60 MeV/uma (Fig. 3) et Ar^{18+} à 95 MeV/uma [Tanis *et al.* 1999, 2000]. Nous observons exactement les mêmes états peuplés quelque soit le projectile, et ce, dans quasiment les mêmes proportions. Comme dans le cas des ions projectiles, des états fortement excités $1s(2snp\ ^3P)^2P$ sont produits avec des électrons projectiles. La majorité des états peuplés lors de la simple excitation en couche interne du lithium sont des états P , aussi bien avec des électrons qu'avec des ions projectiles. En particulier, la simple excitation est fortement dominée par l'état $1s(2s2p\ ^3P)^2P$. Les états $1s(2snp\ ^3P)^2P$ sont produits lors de transitions de type dipolaire $1s \rightarrow np$. En revanche, l'état $1s2s^2\ ^2S$ est produit par la transition monopolaire $1s \rightarrow 2s$. Notons que, au vue des intensités relatives observées sur les spectres, la transition monopolaire $1s \rightarrow 2s$ lors des collisions à hautes vitesses étudiées ici apparaît 20 fois moins probable que la transition dipolaire dominante $1s \rightarrow 2p$.

Sur les spectres (Figs. 2 et 3), il apparaît des raies attribuées au lithium dimère (Li_2). Ces raies correspondent à l'émission Auger suite à l'excitation d'un électron de cœur de la molécule Li_2 . L'intensité associée aux raies de Li_2 augmente avec la température du four. Avec les électrons projectiles, des tests ont été effectués en faisant varier la température. Les spectres à plus haute température montrent clairement la position des raies associées au Li_2 . Les résultats observés sont en accord avec des expériences antérieures [Schwarz *et al.* 1978].

La simple excitation est gouvernée par l'interaction projectile-électron. Par conséquent, l'observation d'une forte prédominance des transitions dipolaires lors de la simple excitation indique clairement que l'interaction projectile-électron engendre essentiellement des transitions dipolaires. Dans la mesure où l'interaction projectile-électron intervient également dans les processus multiélectroniques, ce résultat sera essentiel lors de la description des mécanismes de production de deux lacunes en couche interne (Chap. IV).

Il est intéressant de remarquer que la simple excitation en couche K peut être accompagnée de l'excitation de l'électron $2s$. On observe clairement le peuplement des états $1s2p^2\ ^2S$ et $1s2p^2\ ^2D$. Ces états sont produits suite aux transitions dipolaires $1s \rightarrow 2p$ et $2s \rightarrow 2p$. Les intensités relatives associées à ces états dépendent fortement du projectile impliqué dans la collision. Elles augmentent au fur et à mesure que le rapport $|Z_p|/v_p$ augmente et deviennent significatives après impact de Kr^{34+} à 60 MeV/uma ($|Z_p|/v_p \approx 0,7$ u.a.).

Les sections efficaces obtenues avec les ions Kr^{34+} sont deux à trois ordres de grandeur plus grandes que celles obtenues avec les électrons projectiles. Ce résultat s'explique essentiellement par la forte charge des ions de krypton. Lorsque l'on considère les collisions par impact d'électrons, on constate que le nombre d'électrons Auger émis à un angle de 90° à partir des configurations $1s(2snp\ ^3P)^2P$ ($n \geq 2$) est environ 3 fois plus grand pour une énergie incidente de 0,5 keV que pour 5 keV. On s'attend pourtant à ce que les sections efficaces soient pratiquement proportionnelles à $(Z_p/v_p)^2$ (Chap. I, § II.2.2). Le facteur attendu est donc plus proche de 9 que de 3. Une telle différence laisse entrevoir le fait que l'émission Auger à 90° ne constitue pas un reflet direct de l'ensemble de l'émission Auger, mais qu'au contraire, la distribution angulaire de l'émission Auger est anisotrope et évolue de façon significative avec l'énergie de collision.

III. Distributions angulaires de l'émission Auger et peuplement des sous-états magnétiques :

III.1. Analyse des distributions angulaires de l'émission Auger :

Des spectres à basse résolution similaires à ceux de la figure 1 ont été enregistrés à différents angles d'observation pour des électrons projectiles. La section efficace différentielle

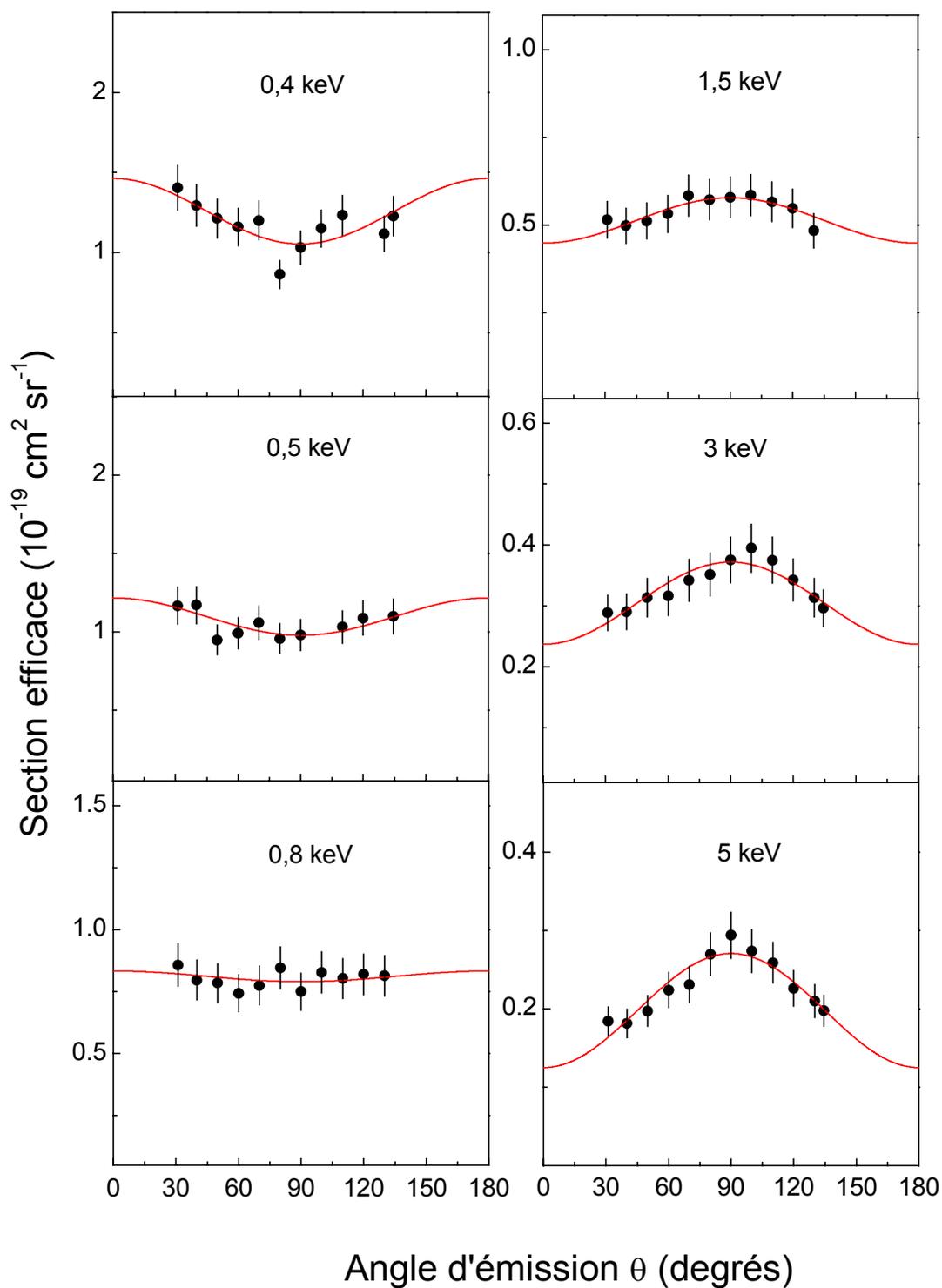


Figure 4. : Sections efficaces simplement différentielles d'émission Auger $d\sigma^a / d\Omega$ associées à la simple excitation. Les incertitudes reportées sont les incertitudes relatives. Les courbes en trait continu sont des ajustements sur les points expérimentaux.

en angle d'émission Auger est obtenue en intégrant les spectres sur le domaine d'énergie des électrons Auger. Ces sections efficaces simplement différentielles sont représentées sur la figure 4. Sur cette figure, les sections efficaces obtenues aux énergies de collisions allant de 0,4 keV à 5 keV sont données en fonction de l'angle d'émission Auger θ (par rapport à la direction du faisceau). Les incertitudes relatives sont estimées à 10 % (voir Chap. II, § II.1.3).

Lors de la simple excitation en couche interne, la cible atomique est excitée vers un état discret caractérisé par son moment cinétique L et sa section efficace d'excitation σ_L . Cet état est constitué de $2L + 1$ sous-états dégénérés associés au nombre quantique magnétique M_L (on prendra ici l'axe du faisceau comme axe de quantification). Si l'atome excité se désexcite par transition Auger, la distribution angulaire des électrons Auger éjectés est donnée par [Cleff and Mehlhorn 1974a]:

$$\frac{d\sigma_L^a}{d\Omega}(\theta) = \sum_{M_L=-L}^L \sigma_{LM_L} |Y_{LM_L}(\theta, \varphi)|^2. \quad (\text{III.1})$$

Les $Y_{LM_L}(\theta, \varphi)$ représentent les harmoniques sphériques et σ_{LM_L} est la section efficace de peuplement d'un état caractérisé par le moment cinétique L et le nombre quantique magnétique M_L . Par des considérations de symétrie, $\sigma_{L,M_L} = \sigma_{L,-M_L}$ et $|Y_{L,M_L}(\theta)|^2 = |Y_{L,-M_L}(\theta)|^2$. De plus, le module au carré des harmoniques sphériques ne dépend pas de l'angle azimutal φ . La relation (III.1) devient :

$$\frac{d\sigma_L^a}{d\Omega}(\theta) = \sigma_{L0} |Y_{L0}(\theta)|^2 + 2 \sum_{M_L=1}^L \sigma_{LM_L} |Y_{LM_L}(\theta)|^2. \quad (\text{III.2})$$

Si $L=0$ (peuplement de l'état $1s2s^2 \ ^2S$), la section efficace $d\sigma_S^a/d\Omega$ vaut $\sigma_{00}/4\pi$ et l'émission Auger est isotrope, respectant ainsi la symétrie sphérique de l'état S . Par contre, pour les états P dominants, la relation (III.2) s'écrit :

$$\frac{d\sigma_P^a}{d\Omega}(\theta) = \sigma_{10} |Y_{10}(\theta)|^2 + 2\sigma_{11} |Y_{11}(\theta)|^2. \quad (\text{III.3})$$

Sachant que les quantités $|Y_{10}(\theta)|^2$ et $|Y_{11}(\theta)|^2$ sont respectivement fonction de $\cos^2 \theta$ et de $\sin^2 \theta$, la relation (III.3) s'écrit :

$$\frac{d\sigma_p^a}{d\Omega}(\theta) = Q_{1,0} \cos^2 \theta + Q_{1,\pm 1} \sin^2 \theta. \quad (\text{III.4})$$

Dans cette relation, les quantités $Q_{1,0}$ et $Q_{1,\pm 1}$ sont les paramètres d'ajustement. Le terme $Q_{1,0} \cos^2 \theta$ est la section efficace simplement différentielle en angle d'émission Auger après peuplement du sous-état magnétique $M_L = 0$, alors que le terme $Q_{1,\pm 1} \sin^2 \theta$ correspond aux sous-états $M_L = \pm 1$.

Sur la figure 5, les distributions angulaires correspondant à l'état $1s(2s2p^3P)^2P$ sont représentées en fonction de l'angle d'émission Auger pour des électrons projectiles de 0,5 et 5 keV. Les points expérimentaux ont été obtenus en intégrant en énergie les spectres à haute résolution (Fig. 2) enregistrés pour trois angles d'observation : 90° , 120° et 135° . Le choix des angles d'observation se justifie par le fait que la distribution angulaire est symétrique par rapport à 90° (Fig. 4). L'incertitude relative sur les points expérimentaux est estimée à 10 % (Chap. II, § II.1.3).

La distribution angulaire de l'état $1s(2s2p^3P)^2P$ est identique (à un facteur de proportionnalité près) à celle observée pour la simple excitation prise dans sa globalité (Fig. 4). Ce constat se généralise aux autres énergies de collision étudiées ici. Ce résultat est cohérent avec le fait que la simple excitation est largement dominée par le peuplement de l'état $1s(2s2p^3P)^2P$.

Sur la figure 6, les distributions angulaires correspondant aux états $1s2s^2^2S$ et $1s(2s2p^3P)^2P$ ont été représentées en fonction de l'angle d'émission Auger, pour la collision $\text{Kr}^{34+} + \text{Li}$ à 60 MeV/uma. L'incertitude relative expérimentale est estimée à 20 %. Les courbes en trait plein représentent les ajustements théoriques sur les points expérimentaux. Pour l'état $1s2s^2^2S$, nous avons effectué un ajustement linéaire (émission isotrope) et, pour

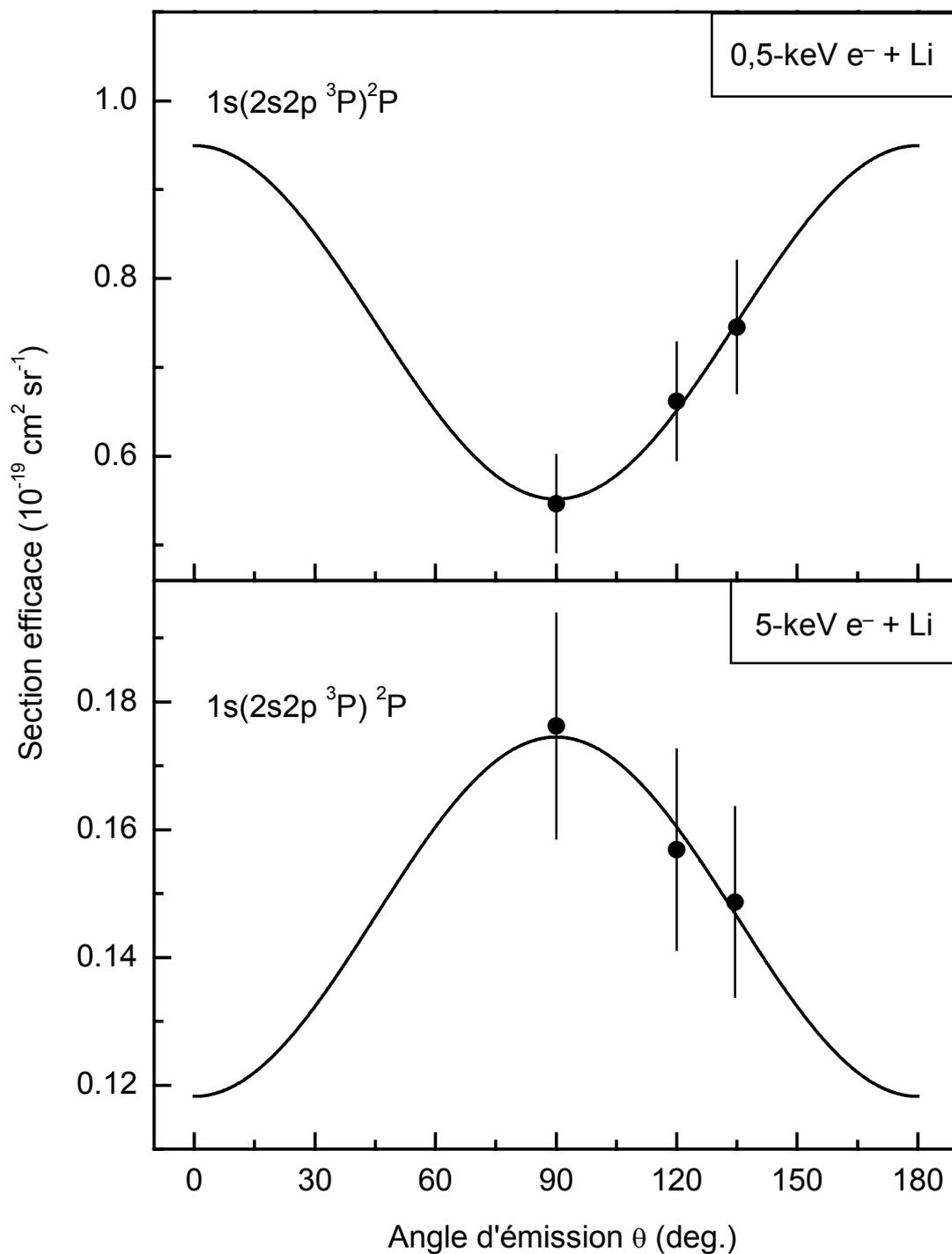


Figure 5. : Sections efficaces simplement différentielles d'émission Auger $d\sigma_{1s2s2p}^a / d\Omega$ associées aux états $1s(2s2p\ ^{1,3}P)\ ^2P$.

Les incertitudes relatives sont également reportées.

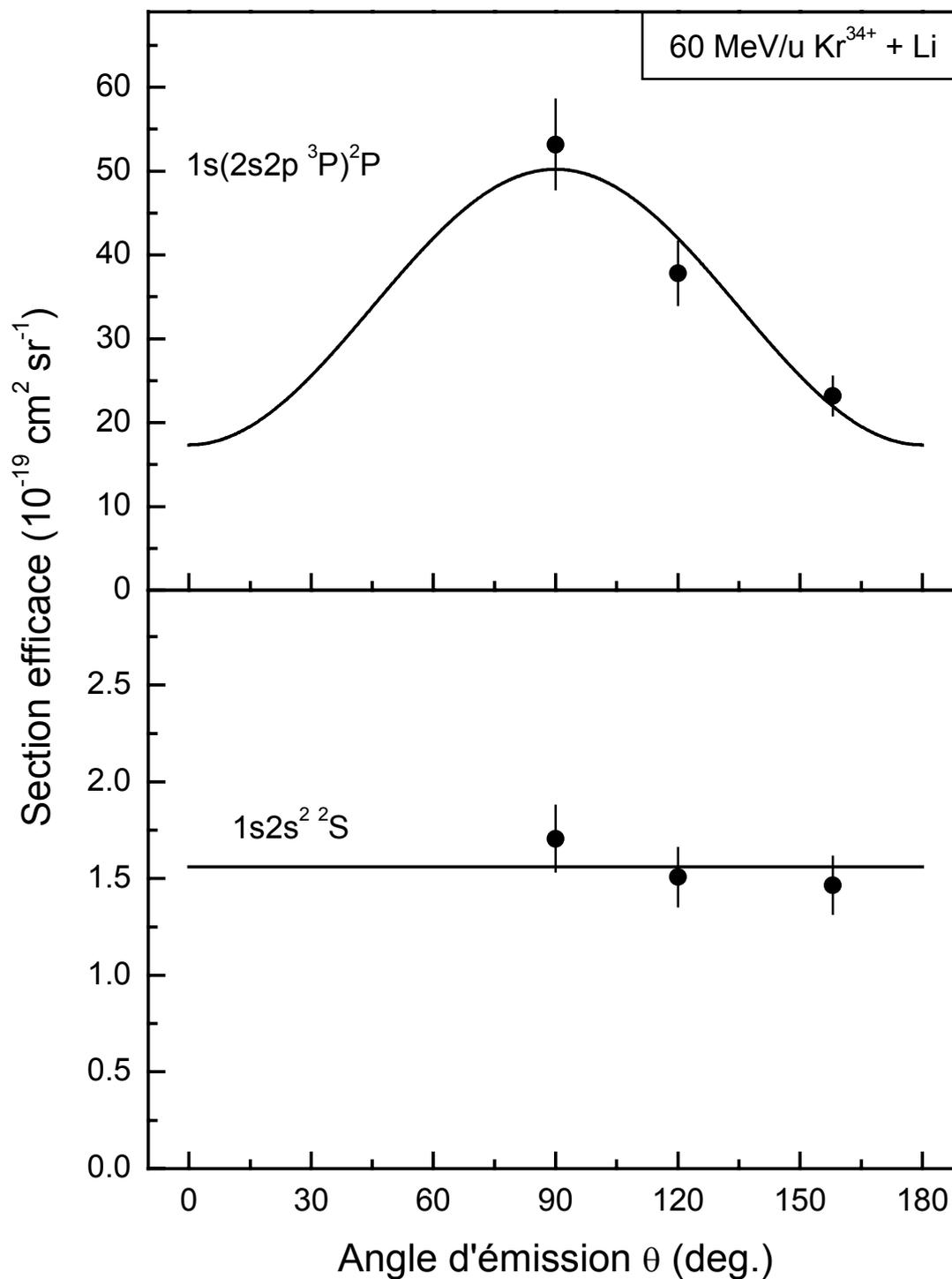


Figure 6. : Sections efficaces différentielles d'émission Auger $d\sigma_{1s2s2\ell}^a / d\Omega$ associées aux états $1s2s2\ell$. L'énergie du projectile est de 60 MeV/uma. Les incertitudes relatives sont également reportées

l'état $1s(2s2p^3P)^2P$, nous avons ajusté une fonction du même type que celle de la relation (III.4).

Contrairement au cas de l'état $1s2s^2^2S$, l'émission des électrons Auger après le peuplement de l'état $1s(2s2p^3P)^2P$, est fortement anisotrope, aussi bien dans le cas des électrons de 0,5 et 5 keV que dans celui des ions Kr^{34+} à 60 MeV/uma. Pour les électrons de 0,5 keV, la distribution angulaire présente un minimum à 90° . L'émission à 0° (et 180°) est environ 1,7 fois plus grande qu'à 90° . Au contraire, pour les électrons de 5 keV et pour les ions Kr^{34+} , la distribution angulaire est maximale à 90° . Dans le cas des électrons de 5 keV, l'émission Auger est environ 1,3 fois plus importante à 90° qu'à 0° (et 180°). Avec les ions Kr^{34+} , le maximum de la distribution angulaire est plus marqué puisque le rapport n'est plus de 1.3, mais de 3. Le même type de distributions angulaires a été observé pour les états $1s2snp$ avec $n \geq 3$. Dans la suite, l'analyse des distributions angulaires permettra de déterminer les sections efficaces de production des composantes $M_L = 0$ et $M_L = \pm 1$.

III.2. Séparation des sous-états magnétiques $M_L = 0$ et ± 1 :

La désexcitation des états peuplés par simple excitation en couche K du lithium s'effectue exclusivement par émission Auger, la désexcitation par voie radiative étant, selon les états, soit interdite soit négligeable [Krause 1979, Cremer 2002 comm. privée]. Les sections efficaces d'excitation sont alors égales aux sections efficaces d'émission Auger. En analysant la distribution angulaire des sections efficaces simplement différentielles d'émission Auger après peuplement de l'état $1s(2s2p^3P)^2P$ par simple excitation en couche K , nous avons alors accès, grâce à la relation (III.4), aux sections efficaces $\sigma_{1,0}$ et $\sigma_{1,1}$ ($=\sigma_{1,-1}$) de peuplement des sous-états magnétiques associés à $M_L = 0$ et $M_L = 1$, respectivement. Nous avons en effet :

$$\sigma_{1,0} = 2\pi \int_0^\pi (Q_{1,0} \cos^2 \theta) \sin \theta d\theta, \quad (\text{III.5.a})$$

$$\sigma_{1,\pm 1} = 2\sigma_{1,1} = 2\sigma_{1,-1} = 2\pi \int_0^\pi (Q_{1,\pm 1} \sin^2 \theta) \sin \theta d\theta. \quad (\text{III.5.b})$$

Les résultats ainsi obtenus sont présentés sur la figure 7. Les cercles pleins correspondent aux sections efficaces $\sigma_{1,0}$ et les cercles vides représentent les sections efficaces $\sigma_{1,1} = \sigma_{1,-1}$ (on peut noter que $\sigma_{tot} = \sigma_{1,0} + 2\sigma_{1,1}$). Les valeurs correspondantes sont reportées dans le tableau 1. Les incertitudes relatives sur ces valeurs sont estimées à 20 %.

Dans le cas des énergies inférieures à 0,8 keV, le sous-état magnétique associé à $M_L = 0$ domine par rapport à $M_L = 1$ (ou à $M_L = -1$). À l'énergie de collision de 0,8 keV, on observe un peuplement quasi-statistique des différents sous-états magnétiques. Pour les énergies supérieures à 0,8 keV ($v_p \approx 7,7$ u.a.), les sous-états magnétiques associés à $M_L = 1$ (ou à $M_L = -1$) sont préférentiellement peuplés. La contribution de ces différentes composantes sera discutée dans le paragraphe 0.

Énergie (keV)	0,4	0,5	0,8	1,5	3	5
$\sigma_{1,0}$ (10^{-20} cm ²)	44 ± 9	37 ± 7	25 ± 5	13 ± 3	7 ± 2	4 ± 1
$\sigma_{1,1} = \sigma_{1,-1}$ (10^{-20} cm ²)	31 ± 6	29 ± 6	24 ± 5	17 ± 4	11 ± 2	8 ± 2

Tableau 1. : Sections efficaces totales de production des sous-états magnétiques correspondants à $M_L = 0$ et $M_L = 1$ pour $1s(2s2p^3P)^2P$

lors des collisions électrons + Li.

Les incertitudes reportées dans le tableau sont les incertitudes relatives (~20 %).

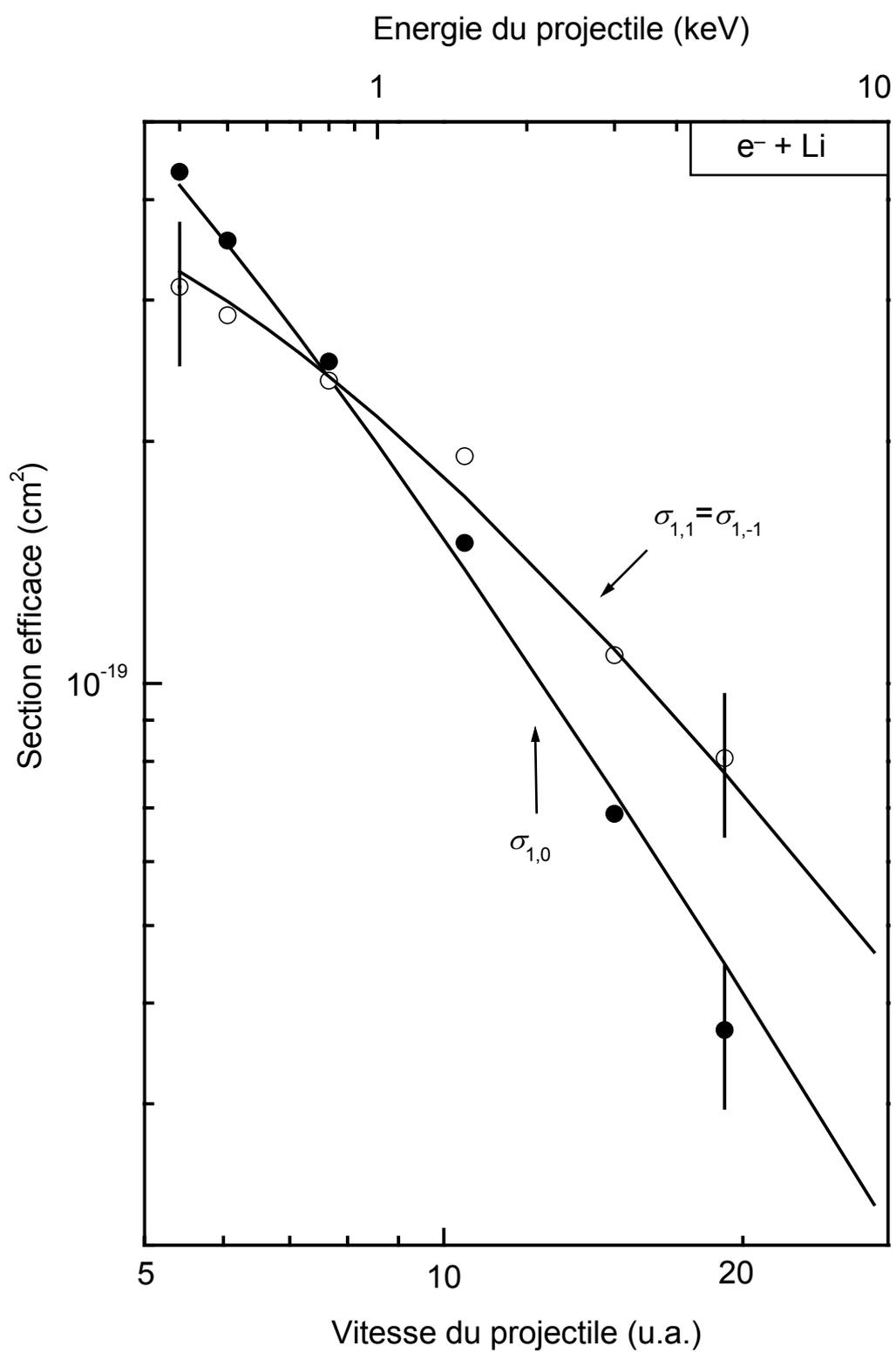


Figure 7. : Sections efficaces de production des sous-états magnétiques

$M_L = 0$ et $M_L = \pm 1$.

Sur la figure 7, ces résultats sont comparés avec un calcul effectué dans le cadre de l'approximation de Born par la méthode PWBA (courbes en trait continu). Il est à noter que la perturbation induite par des électrons d'énergie supérieure à 1 keV est suffisamment faible pour que l'approximation de Born soit valide. La vitesse de ces projectiles est suffisamment élevée pour que leur trajectoire soit peu perturbée lors de la collision. Par conséquent, les électrons projectiles peuvent être décrits comme des ondes planes avant et après la collision, et leur trajectoire est assimilable à une droite. Le traitement de la collision en terme de paramètre d'impact est alors possible, et l'utilisation de la méthode PWBA est justifiée pour des collisions faisant intervenir des électrons projectiles rapides. Ceci est confirmé par le bon accord entre les valeurs théoriques et expérimentales.

III.3. Alignement des états peuplés - Discussion :

Comme nous venons de le montrer, les anisotropies observées pour les distributions angulaires d'émission Auger proviennent d'une sélectivité dans le peuplement des sous-états magnétiques M_L . Cette sélectivité donne lieu à un alignement des états produits lors de la simple excitation en couche interne. Lorsque le sous-état $M_L = 0$ est dominant dans le cas du peuplement de $1s2s2p$, l'orbitale $2p$ est alignée sur l'axe du faisceau incident. Par contre, lorsque les sous-états $M_L = \pm 1$ sont préférentiellement peuplés, l'orbitale $2p$ est "alignée perpendiculairement" à l'axe du faisceau.

Pour tenter d'expliquer l'alignement des états peuplés, il est utile d'examiner la dépendance en paramètre d'impact b de la section efficace différentielle $d\sigma/db$ de transition d'un électron $1s$ du lithium neutre $1s^2 2s$ vers l'orbitale $2p$ du lithium excité $1s2s2p$. Les sections efficaces $d\sigma/db$ calculées par la méthode PWBA sont présentées sur la figure 8 pour des électrons projectiles de 0,5, 1,5 et 5 keV.

Lorsque les collisions s'effectuent à petits paramètres d'impact $b < 3$ u.a., la section efficace $d\sigma/db$ augmente au fur et à mesure que l'énergie de collision diminue. Par contre, lors de collisions à grands paramètres d'impact, la dépendance en énergie des sections efficaces $d\sigma/db$ est loin d'être aussi simple. Contrairement au cas des collisions à petits paramètres d'impact, lorsque $b > 5$ u.a., $d\sigma/db$ est plus grande pour une énergie de collision de 5 keV que pour 0,5 keV.

Afin d'analyser de manière plus quantitative l'effet du paramètre d'impact b , nous avons complété la figure 8 en représentant la "section efficace cumulée (et normalisée)" $r(b)$, croissante en b , définie comme suit :

$$r(b) = \frac{1}{\sigma_{tot}} \int_0^b \frac{d\sigma}{db'} db', \quad (\text{III.6})$$

avec $\sigma_{tot} = \int_0^\infty \frac{d\sigma}{db} db$. Sur la figure 8, cette section cumulée $r(b)$ est calculée pour le peuplement de la configuration $1s2s2p$ par transition dipolaire $1s \rightarrow 2p$. (La quantité $r(b)$ signifie que $r(b)$ % des collisions donnant lieu à la transition $1s \rightarrow 2p$ s'effectuent à des paramètres d'impact inférieurs ou égaux à b).

Le calcul prévoit qu'à une énergie de collision de 0,5 keV, 50 % des transitions $1s \rightarrow 2p$ s'effectuent lors de collisions à paramètres d'impact inférieurs à 1,5 u.a. Il apparaît que quasiment la totalité des transitions interviennent à des paramètres d'impact inférieurs à 4 u.a. Au contraire, lors de collisions à 5 keV, au moins un quart des transitions $1s \rightarrow 2p$ ont lieu sous des conditions de grands paramètres d'impact ($b \geq 4$ u.a.). Par conséquent, à une énergie de collision de 5 keV, le peuplement de la configuration $1s2s2p$ par transition de type dipolaire $1s \rightarrow 2p$ se fait à des paramètres d'impact généralement plus grands que dans le cas de 0,5 keV.

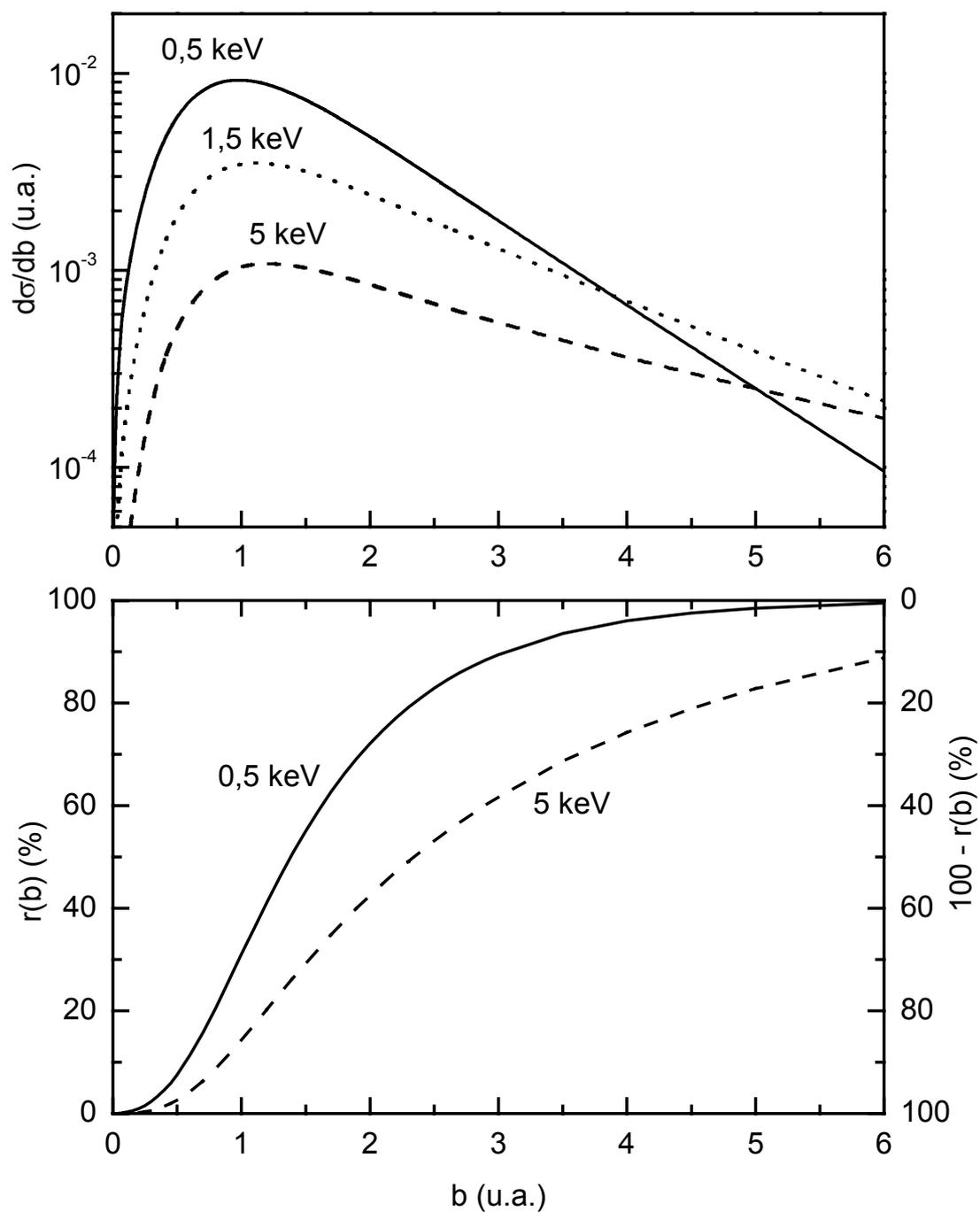
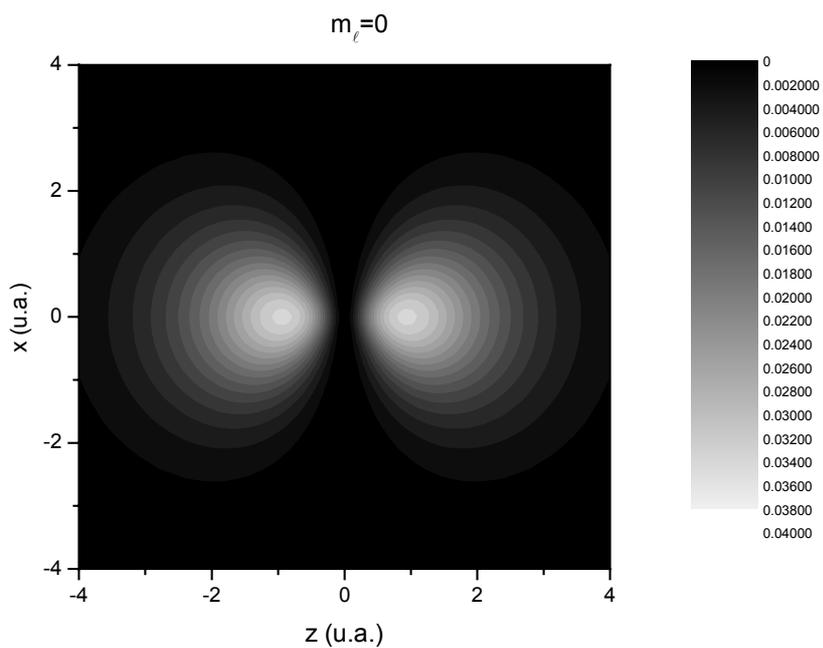
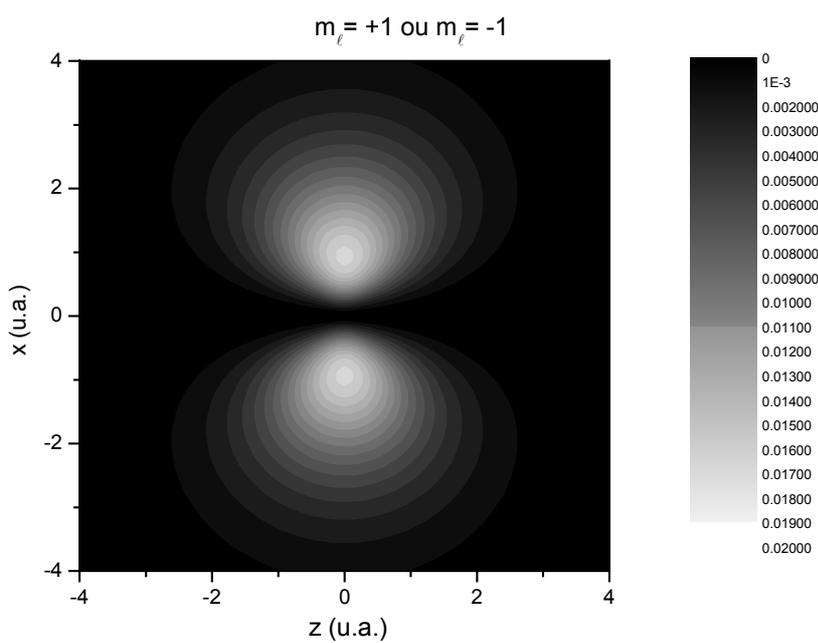


Figure 8. : Distribution en paramètre d'impact de la probabilité d'excitation lors des collisions électron+Li pour la transition dipolaire $1s \rightarrow 2p$. La quantité $r(b)$ représente la "section efficace cumulée" de la configuration $1s2s2p$.

Pour essayer de comprendre les effets du paramètre d'impact lors du peuplement des sous-états magnétiques, nous considérons l'image classique de l'extension spatiale de l'orbitale $2p$ à un électron mise en jeu dans la production de la configuration $1s2s2p$ du lithium. Sur la figure 9, nous avons tracé les densités de probabilités de présence de l'électron par unité de volume $|\Psi|^2 = |R_{n\ell}|^2 |Y_\ell^{m_\ell}|^2$ correspondant aux sous-états magnétiques $m_\ell = 0$ (Fig. 9.a.) et $m_\ell = \pm 1$ (Fig. 9.b) de l'orbitale $2p$. Plus les couleurs sont claires, plus la densité de probabilité est grande. Ces orbitales monoélectroniques présentent une symétrie cylindrique autour de l'axe de quantification z , confondu avec la direction incidente du faisceau. L'extension spatiale du sous-état magnétique $m_\ell = 0$ de l'orbitale $2p$ se caractérise donc par 2 "lobes" alignés le long de l'axe z . Pour $m_\ell = 1$, l'orbitale $2p$ associée ressemble à un tore dont l'axe de révolution est confondu avec l'axe z . La direction de la force exercée par le projectile sur les électrons $1s$ de la cible est, en moyenne, confondue avec l'axe projectile-noyau cible. Cet axe tend donc à devenir un axe de symétrie pour le mouvement des électrons. On s'attend alors à ce que l'orbitale $2p$ soit alignée suivant l'axe projectile-cible. Lors de collisions à très faible paramètre d'impact, cet axe correspond asymptotiquement (en voie d'entrée et de sortie de la collision) à la direction du faisceau. Au contraire, dans le cas de collisions à très grand paramètre d'impact, l'action du projectile sur l'électron cible ne devient significative que lorsque l'axe projectile-cible est (pratiquement) perpendiculaire à l'axe du faisceau. En rapprochant ces considérations faites sur des cas limites avec la géométrie des sous-états $m_\ell = 0$ et $m_\ell = \pm 1$ de l'orbitale $2p$ (Fig. 9), on peut comprendre que le peuplement des sous-états $m_\ell = \pm 1$ soit de plus en plus favorisé (par rapport à celui de $m_\ell = 0$) lorsque les paramètres d'impact impliqués lors de la transition $1s \rightarrow 2p$ sont de plus en plus grands. Aussi, le peuplement relatif des sous-états $m_\ell = \pm 1$ augmente lorsque l'énergie de collision augmente.



(a)



(b)

Figure 9. : Densités de probabilité par unité de volume des composantes $m_\ell = 0$ et $m_\ell = \pm 1$ de l'orbitale $2p$ pour la configuration $1s2s2p$.

Ces résultats sont similaires à ceux observés lors des collisions électrons + He [Godunov *et al.* 2001]. Les auteurs séparent les contributions associées au peuplement des sous-états magnétiques $m_\ell = 0$ et $m_\ell = \pm 1$ lors de la simple excitation de He($1s^2$) vers He*($1s2p\ ^1P$).

IV. Section efficace de simple excitation en couche K :

Les sections efficaces de simple excitation en couche K du lithium sont obtenues en intégrant les distributions angulaires présentées sur les figures 4 et 5 :

$$\sigma_{tot} = 2\pi \int_0^\pi \frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta) \sin\theta d\theta. \quad (\text{III.7})$$

- *Dépendance en vitesse de collision*

Dans un premier temps, nous nous focalisons sur les résultats obtenus avec les électrons afin d'illustrer la dépendance en vitesse de collision des sections efficaces de simple excitation en couche K , la charge du projectile étant alors constante. Les résultats expérimentaux sont reportés sur la figure 10. Les points représentent les sections efficaces expérimentales. L'incertitude relative sur les points expérimentaux est de 10 %.

Du fait qu'expérimentalement, nous n'avons accès qu'aux sections efficaces relatives, nous avons utilisé le résultat du calcul PWBA pour déterminer les probabilités de simple excitation en couche K , permettant ainsi de normaliser la section efficace obtenue à l'énergie d'impact la plus élevée (5 keV), énergie pour laquelle l'approximation PWBA est la mieux adaptée. Le facteur de normalisation* ainsi obtenu a été appliqué aux résultats expérimentaux mesurés aux autres énergies de collision. Cette procédure de normalisation permet de

* Le facteur de normalisation obtenu est utilisé pour calibrer le système de détection. Ce facteur sera également employé pour la détermination des sections efficaces d'ionisation-excitation en couche K (chapitre IV).

comparer la dépendance en vitesse de projectile de la section efficace expérimentale avec la dépendance prévue par le calcul PWBA (courbe en trait plein sur la figure 10). Il apparaît clairement que les sections efficaces expérimentales ont la même dépendance, en fonction de la vitesse du projectile, que celle prévue par la théorie de Born. Cet excellent accord entre théorie et expérience illustre la validité de la méthode PWBA lors du traitement des collisions étudiées dans ce travail. On vérifie également que dans la limite des grandes vitesses les sections efficaces de simple excitation varient en $v_p^{-2} \ln v_p$ (courbe en pointillés sur la figure 10).

- *Dépendance en charge et en vitesse du projectile*

Jusqu'à maintenant, nous nous sommes focalisés sur la dépendance en vitesse de projectile de la section efficace de simple excitation. Or, la charge du projectile est également un paramètre essentiel qui influe sur la section efficace d'excitation. Comme il a été précédemment mentionné (chapitre I), on s'attend à ce que les dépendances en charge et en vitesse du projectile de la section efficace de simple excitation soient similaires à celles de la simple ionisation [Bethe 1930, Inokuti 1971]. La section efficace de simple excitation est donc susceptible d'être proportionnelle au carré de la charge du projectile (Z_p^2). Par conséquent, pour visualiser sur une même figure les résultats obtenus avec des projectiles de charges et de vitesses différentes, il semble astucieux de représenter, en fonction de la vitesse, la section efficace divisée par le carré de la charge du projectile. (Dans la suite, pour abrégé, on qualifiera cette section efficace divisée par Z_p^2 de section efficace "réduite en charge"). D'après les dépendances en charge et en vitesse attendues, tous les points expérimentaux devraient alors se placer sur une courbe caractérisée par une fonction en $v_p^{-2} \ln v_p$.

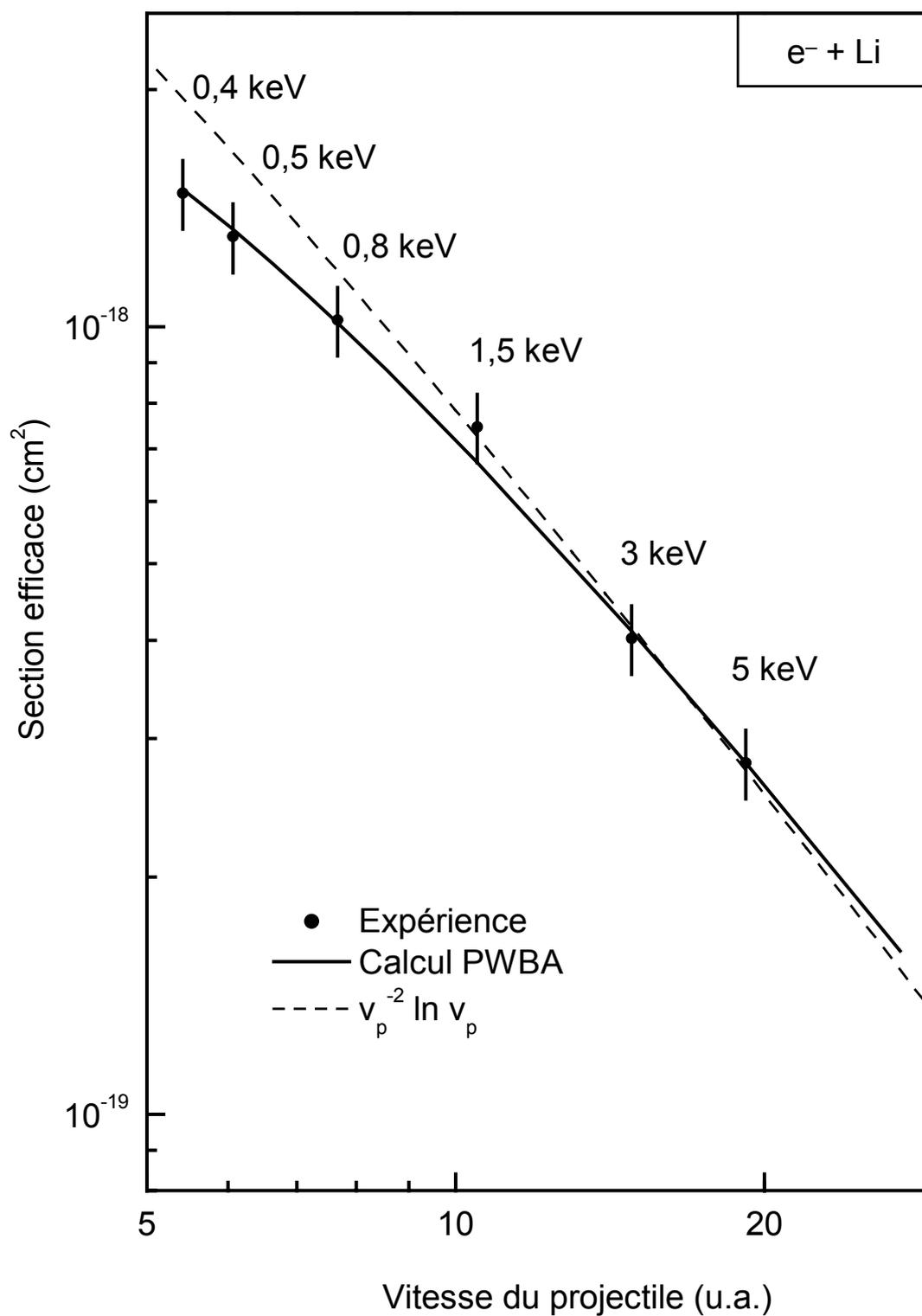


Figure 10. : Section efficace totale de simple excitation en couche K du lithium σ_{SK} par impact d'électrons rapides.

Sur la figure 11, nous avons représenté la section efficace "réduite en charge" de production de la configuration $1s2s2p$ (incluant les états $1s(2s2p\ ^3P)^2P$ et $1s(2s2p\ ^1P)^2P$) par impact d'électrons et d'ions Ar^{18+} . Les cercles pleins correspondent aux sections efficaces absolues obtenues lors des collisions avec des électrons projectiles de 0,5, 1,5 et 5 keV et le cercle vide la section efficace suite aux collisions $\text{Ar}^{18+} + \text{Li}$ à 95 MeV/uma [Tanis *et al.* 2000]. Pour déterminer les sections efficaces absolues après impact d'ions Ar^{18+} à 95 MeV/uma sur du lithium, les auteurs [Tanis *et al.* 2000] ont préalablement normalisé les spectres d'ionisation aux résultats de la théorie des perturbations [Stolterfoht *et al.* 1998, Stolterfoht *et al.* 1999] et ont utilisé le facteur de normalisation ainsi obtenu pour analyser les pics Auger résultants de l'excitation. Le trait continu est le résultat du calcul PWBA.

Les sections efficaces expérimentales sont en bon accord avec les résultats obtenus par le calcul PWBA (Fig. 11). Le fait que l'accord soit observé aussi bien pour les électrons que pour les ions Ar^{18+} montre que notre calcul PWBA est fiable, non seulement pour la dépendance en v_p , mais aussi pour la dépendance en Z_p des sections efficaces. Par conséquent, le calcul PWBA est utilisé pour normaliser la section efficace expérimentale de simple excitation dans le cas des collisions avec des ions Kr^{34+} 60 MeV/uma (flèche sur la figure 11). Pour récapituler, les sections efficaces absolues de simple excitation en couche K du lithium sont répertoriées dans le tableau 2.

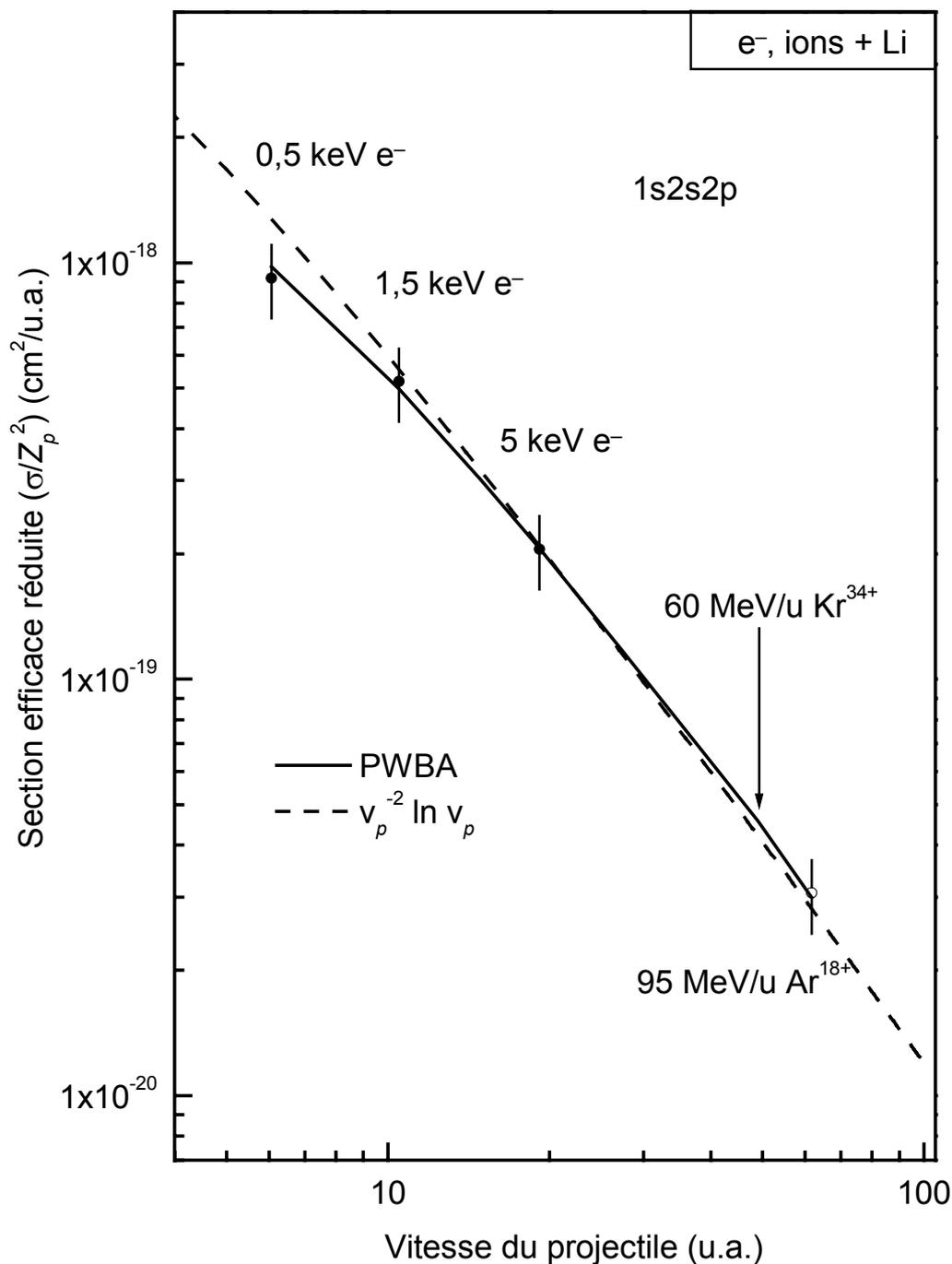


Figure 11. : Section efficace σ_{1s2s2p} (divisée par le carré de la charge du projectile) de peuplement de la configuration $1s2s2p$ du lithium après simple excitation en couche K.

La flèche indique la valeur sur laquelle nous normalisons la section efficace obtenue pour le système $\text{Kr}^{34+} + \text{Li}$ à 60 MeV/uma.

États	Électrons			Ions	
	0,5 keV	1,5 keV	5 keV	Ar ¹⁸⁺ à 95 MeV/uma	Kr ³⁴⁺ à 60 MeV/uma
$1s2s^2\ ^2S$	$5,6 \pm 0,6$	$2,2 \pm 0,3$	$0,6 \pm 0,1$	$13 \pm 2,6$	200 ± 40
$1s(2s2p\ ^3P)^2P$	$88 \pm 8,8$	$50 \pm 5,0$	$20 \pm 2,0$	950 ± 190	5100 ± 1100
$1s(2s2p\ ^1P)^2P$	$4 \pm 0,4$	$2,2 \pm 0,3$	$0,9 \pm 0,1$	$44 \pm 8,8$	210 ± 42
$1s(2s3p\ ^3P)^2P$	$16 \pm 1,6$	$9,0 \pm 0,9$	$3,6 \pm 0,4$	170 ± 34	840 ± 170
$1s(2s4p\ ^3P)^2P$	$11 \pm 1,1$	$3,4 \pm 0,4$	$1,5 \pm 0,2$	67 ± 14	380 ± 80
$1s(2snp\ ^3P)^2P$	$5,3 \pm 0,6$	$2,9 \pm 0,3$	$1,2 \pm 0,2$	57 ± 12	270 ± 54

Tableau 2. : Sections efficaces totales de production des états de la simple excitation en couche *K* du lithium. Les valeurs sont données en 10^{-20} cm². Les incertitudes reportées dans le tableau sont les incertitudes relatives (10 % pour les électrons et 20 % pour les ions).

- *Interactions de configurations*

Comme le montrent les résultats donnés dans le tableau 2, Pour chaque projectile, la section efficace de production de l'état $1s(2s2p^3P)^2P$ est fortement dominante. Pour les électrons comme pour les ions, la section efficace associée à l'état $1s(2s2p^3P)^2P$ est environ 22 fois plus grande que celle associée à l'état $1s(2s2p^1P)^2P$. Des théoriciens se sont intéressés aux états $1s(2s2p^{1,3}P)^2P$ peuplés par impact d'ions Ar^{18+} à 95 MeV/uma [Nagy and Fritzsche 2000] et par impact d'électrons [Nagy 2002, communication privée]. Pour étudier l'effet de l'interaction de configurations sur les sections efficaces, ces auteurs ont effectué des calculs dans le cadre de trois approximations différentes. Dans la première, ils utilisent des fonctions d'onde initiale et finale à un électron (modèle à électrons indépendants) calculées par la méthode Hartree-Fock. Dans les deux autres approximations, ils prennent en compte des fonctions d'ondes multiélectroniques. La première approximation ne prend pas en compte les interactions de configurations et donne un rapport de 3 entre les sections efficaces de production des états $1s(2s2p^3P)^2P$ et $1s(2s2p^1P)^2P$. Ce rapport correspond à un peuplement purement statistique des états $1s(2s2p^{1,3}P)^2P$. En revanche, lorsque les interactions de configurations sont prises en compte, ce rapport devient supérieur à 15. Ce résultat théorique est en assez bon accord avec l'expérience. Par conséquent, quel que soit le projectile utilisé, le rapport entre les sections efficaces de production des états $1s(2s2p^3P)^2P$ et $1s(2s2p^1P)^2P$ est fortement affecté par les interactions de configurations.

V. Conclusion :

Les sections efficaces de production de simple excitation en couche interne du lithium ont été mesurées pour les collisions électron + Li à des énergies comprises entre 0,5 et 5 keV et Kr^{34+} + Li à 60 MeV/uma. Les résultats sont comparés avec ceux obtenus lors de la collision Ar^{18+} + Li à 95 MeV/uma [Tanis *et al.* 2000].

L'analyse des spectres d'émission Auger montre que les transitions dipolaires $1s \rightarrow np$ avec $n \geq 2$ sont très largement majoritaires devant les transitions monopolaires $1s \rightarrow ns$. L'état $1s(2s2p \ ^3P) \ ^2P$ peuplé après transition $1s \rightarrow 2p$ est fortement dominant par rapport aux autres états. Par conséquent, aux vitesses de collisions étudiées dans ce travail, l'interaction projectile-électron, responsable de la simple excitation, provoque très préférentiellement des transitions de type dipolaire.

En intégrant les sections efficaces doublement différentielles, les distributions angulaires ont été tracées pour chaque système de collision. La distribution angulaire de l'état $1s2s^2 \ ^2S$ est isotrope quel que soit le système de collision étudié. Celle associée à l'état $1s(2s2p \ ^3P) \ ^2P$ est isotrope pour des électrons projectiles à une vitesse de collision de 7,7 u.a. environ. Pour des vitesses supérieures, la distribution angulaire est anisotrope avec un maximum à un angle d'émission de 90° . Pour des vitesses inférieures à 7,7 u.a., la distribution angulaire est également anisotrope, mais cette fois-ci, présente un minimum à 90° .

Ces distributions angulaires nous donnent accès aux contributions des différents M_L à la section efficace totale de production des états de simple excitation. Pour des électrons projectiles de vitesse inférieure à 7,7 u.a., la production de sous-états magnétiques associés à $M_L = 0$ est favorisée par rapport à $M_L = 1$. À ces vitesses, les états produits par transition dipolaire sont alignés selon la direction du faisceau. Au contraire, pour des vitesses supérieures, alors que les paramètres d'impact impliqués sont plus grands, la production des sous-états magnétiques associés à $M_L = 1$ est plus importante. Dans ces conditions, les états peuplés s'alignent préférentiellement selon un axe perpendiculaire au faisceau projectile.

L'approximation de Born étant valide pour les différents projectiles utilisés dans ce travail, un calcul PWBA a été effectué. Le calcul PWBA reproduit non seulement les sections efficaces totales, mais aussi les sections efficaces de peuplement des sous-états magnétiques. Les sections efficaces d'excitation présentent une dépendance asymptotique proportionnelle à

$(Z_p / v_p)^2 \ln v_p$, à grande vitesse de collision. Cette dépendance est identique à celle prévue par la théorie dans le cas de l'ionisation [McGuire 1982].

Dans la suite, les sections efficaces absolues de production de deux lacunes en couche interne du lithium seront déterminées. Leur dépendance en fonction du paramètre de perturbation du projectile sera étudiée et les différents mécanismes de production seront séparés.

Chapitre IV

Étude de mécanismes d'ionisation-excitation lors de la production de deux lacunes en couche *K* du lithium

I. Introduction - Motivation

Aux vitesses de collision étudiées dans ce travail, nous venons de voir que, lors de la simple excitation en couche K du lithium par impact d'électrons ou d'ions multichargés, les interactions projectile-électron donnent lieu, de façon largement majoritaire, à des transitions dipolaires $1s \rightarrow np$ avec $n \geq 2$. Un calcul effectué dans le cadre de l'approximation de Born, à l'aide de la méthode PWBA, reproduit de manière très satisfaisante la dépendance en Z_p et en v_p des sections efficaces totales obtenues expérimentalement. De plus, les résultats de ce calcul sont en excellent accord avec les résultats obtenus par d'autres théoriciens [Ziem *et al.* 1980, Nagy 2002 comm. privée]. Les résultats tant expérimentaux que théoriques montrent que les sections efficaces de production des états P peuplés suite à une interaction projectile-électron suivent une dépendance asymptotique en $(Z_p / v_p)^2 \ln v_p$.

En ce qui concerne les mécanismes produisant deux lacunes en couche interne du lithium, nous avons invoqué, au chapitre I, les processus à deux étapes faisant intervenir soit deux interactions projectile-électron indépendantes (TS2) soit une interaction projectile-électron suivie d'une interaction électron-électron (corrélations électroniques) [Craseman 1987, Reading and Ford 1988, Stolterfoht 1991]. Dans le cas du processus TS2, une dépendance asymptotique en $(Z_p / v_p)^4$ est prévue pour les sections efficaces de production (car le processus TS2 met en jeu deux interactions projectile-électron). Pour le processus TS1 à une interaction projectile-électron, on s'attend à ce que la dépendance asymptotique des sections efficaces de production soit similaire à celle des sections efficaces de la simple excitation, c'est-à-dire proportionnelle à $(Z_p / v_p)^2 \ln v_p$.

Les contributions de ces mécanismes ont été séparées dans le cas de la double ionisation de l'hélium [McGuire *et al.* 1995 et références internes]. La technique de séparation repose sur la mesure du rapport $R = \sigma^{++} / \sigma^+$ entre les sections efficaces de la double et de la

simple ionisation pour divers paramètres de perturbation Z_p / v_p . Les résultats montrent qu'aux faibles valeurs de Z_p / v_p ($< 0,05$ u.a.) le rapport R devient constant, ce qui signe la prédominance du processus shake-off (TS1) [McGuire *et al.* 1995 et références internes]. En ce qui concerne la double excitation de l'hélium, les mécanismes TS1 et TS2 n'ont pas encore été clairement séparés. Les principales expériences ont porté sur la dépendance en charge Z_p des sections efficaces de double excitation, la vitesse du projectile ayant été prise constante et égale à environ 7-8 u.a. [Pedersen and Hvelplund 1989, Giese *et al.* 1990]. Alors que Pedersen et Hvelplund observent une dépendance en Z_p^4 pour des ions incidents $C^{Z_p^+}$ ($Z_p = 4-6$), Giese *et al.* obtiennent une dépendance beaucoup moins prononcée (entre Z_p^2 et Z_p^3) avec des protons et des ions $C^{Z_p^+}$ ($Z_p = 4-6$) et $F^{Z_p^+}$ ($Z_p = 7-9$). Ces différences, liées en grande partie à de fortes incertitudes expérimentales [Giese *et al.* 1990], ne permettent pas de conclure quant aux contributions relatives des mécanismes. En particulier, d'autres auteurs [Moretto-Capelle *et al.* 1997] ont montré que, lors de la double excitation de l'hélium, les interférences entre l'amplitude d'ionisation directe et l'amplitude d'ionisation *via* l'état doublement excité altèrent significativement le profil des raies Auger et, par voie de conséquence, la précision sur la mesure des sections efficaces. La détermination précise du rôle respectif de TS1 et de TS2 lors de la double excitation de l'hélium n'a été effectuée que dans le cas particulier de la collision proton + He à 100 keV ($v_p \approx 2$ u.a.) [Moretto-Capelle *et al.* 1997, Godunov *et al.* 2000].

Dans le cas d'une cible de lithium, une première tentative d'identification des mécanismes de création de deux lacunes en couche interne a été récemment entreprise en explorant la collision $Ar^{18+} + Li$ à 95 MeV/uma [Tanis *et al.* 1999, 2000]. La comparaison des données expérimentales avec les résultats d'un calcul de probabilités de transitions shake suggère que le processus TS1 joue un rôle prépondérant [Tanis *et al.* 2000]. Dans ce chapitre, nous nous proposons d'étendre cette étude sur le lithium à d'autres systèmes collisionnels. L'objectif est de déterminer quantitativement, en fonction de la vitesse et de la charge du projectile, l'importance relative des mécanismes de création de deux lacunes en couche K (par ionisation-excitation) du lithium.

Comme nous l'avons souligné au chapitre I, l'interaction électron-électron (processus TS1) peut se manifester sous la forme d'un processus shake ou d'un processus diélectronique. Ces deux aspects de l'interaction électron-électron n'ont jamais été séparément identifiés et, dans la littérature, sont souvent considérés comme impossibles à séparer. Nous essaierons pourtant de tirer profit du fait que la cible est à trois électrons pour mettre en évidence des contributions de nature soit principalement diélectronique soit essentiellement shake. Nous tenterons de relever ce défi expérimental en explorant un domaine de paramètre de perturbation Z_p / v_p le plus étendu possible.

Des effets d'interférences entre les divers mécanismes peuvent également contribuer à la section efficace d'ionisation-excitation. Deux types d'interférences sont à distinguer : les interférences entre processus du premier ordre (TS1) et du second ordre (TS2) qui dépendent de la charge et de la vitesse du projectile (quasi-) proportionnellement à $(Z_p / v_p)^3$ et les interférences relatives au réarrangement interne après ionisation du premier électron $1s$ (c'est-à-dire les interférences entre le processus shake et diélectronique) et qui ne dépendent pas des paramètres du projectile. Si ces effets existent, la question se pose de savoir quelle est leur influence sur les sections efficaces totales ?

Dans ce chapitre, les sections efficaces d'ionisation-excitation en couche K du lithium sont mesurées pour les systèmes électron + Li à des énergies comprises entre 0,5 et 5 keV et $\text{Kr}^{34+} + \text{Li}$ à 60 MeV/uma. Les données expérimentales ainsi recueillies sont comparées aux résultats obtenus antérieurement pour le système $\text{Ar}^{18+} + \text{Li}$ à 95 MeV/uma [Tanis *et al.* 1999, 2000]. De plus, les résultats expérimentaux sont comparés avec le calculs des contributions des processus TS2 et TS1 shake.

II. Production de deux lacunes en couche K :

II.1. Spectres d'émission Auger à haute résolution :

Des spectres d'émission Auger suite à la création de deux lacunes en couche K du lithium ont été mesurés à divers angles d'observation par rapport à la direction du faisceau. Sur les figures 1 et 2, nous présentons quelques spectres représentatifs, enregistrés à un angle $\theta = 120^\circ$. Ces spectres donnent accès aux sections efficaces d'émission Auger $d^2\sigma_{2\ell n\ell'}^a / d\varepsilon d\Omega$, doublement différentielles en énergie et en angle d'émission des électrons Auger. Ces spectres ont été obtenus pour des ions projectiles Kr^{34+} à 60 MeV/uma et Ar^{18+} à 95 MeV/uma [Tanis *et al.* 1999] (Fig. 1) et pour des électrons projectiles de 0,5 et 5 keV (Fig. 2).

Les spectres à très haute résolution existants dans la littérature [Rødbro *et al.* 1979, Diehl 1998] nous ont permis d'identifier les états peuplés et de déterminer leur position en énergie. L'énergie cinétique des électrons Auger émis après création de deux lacunes en couche K du lithium est généralement comprise entre 70 et 90 eV environ. Notre résolution, instrumentale en énergie, qui est de 0,5 eV (respectivement 0,4 eV) pour les ions (respectivement pour les électrons projectiles), est très supérieure à la largeur naturelle (typiquement $\ll 0,1$ eV) des pics Auger observés. Pour visualiser clairement la contribution des principales transitions Auger, nous avons donc ajusté les spectres avec des fonctions gaussiennes centrées sur les énergies correspondantes et de largeur à mi-hauteur égale à la largeur expérimentale.

Comme le montrent les spectres des figures 1 et 2, les principales transitions Auger interviennent après production des états ioniques $\text{Li}^+(2\ell 2\ell')$ et $\text{Li}^+(2\ell 3\ell')$ par ionisation-excitation en couche K du lithium. Les pics Auger associés aux états ioniques $\text{Li}^+(2\ell 2\ell')$ sont situés entre 70 et 76 eV, alors que ceux relatifs aux états ioniques $\text{Li}^+(2\ell 3\ell')$ sont identifiés entre 82 et 86 eV. Sont également observés, entre 76 et 82 eV, quelques pics de faible intensité associés aux états atomiques $\text{Li}(2\ell 2\ell' 2\ell'')$ peuplés par double excitation en couche

K. Les intensités relatives observées pour l'émission Auger reflètent l'importance relative des différents états peuplés car, pour ces états, l'émission Auger domine très largement la désexcitation radiative, de sorte que les taux Auger sont très proches de un. Par conséquent, en comparant l'intensité des pics observés, il apparaît clairement que le processus d'ionisation-excitation en couche *K* domine largement le processus de création de deux lacunes en couche *K*, que le projectile soit un ion ou un électron rapide.

Sur les figures 1 et 2, nous distinguons, d'une part, les états *P* [$2s2p\ ^{1,3}P$ et $(2s,sp\pm)\ ^{1,3}P$] peuplés par transitions dipolaires et, d'autre part, les états *S* ($2s^2\ ^1S$ et $2s3s\ ^3S$) dont le peuplement requiert une transition monopolaire $1s \rightarrow ns$ ($n = 2; 3$). Alors que les transitions monopolaires sont largement minoritaire dans le cas de la simple excitation en couche *K*, il est surprenant de constater que l'intensité des pics associés aux états *S* soit aussi forte, au point d'être comparable à celle des états *P*. On peut également s'étonner que le pic associé à l'état $2s3s\ ^3S$ soit, pour chaque projectile, plus intense que celui de l'état $2s^2\ ^1S$, alors qu'on s'attend à ce que la transition $1s \rightarrow 2s$ soit plus probable que la transition $1s \rightarrow 3s$. Pour comprendre ces observations, une analyse détaillée des mécanismes de peuplement de ces états *S* est nécessaire (§ III).

Sur les spectres des figures 1 et 2, il est difficile de distinguer la contribution du singulet $2s3s\ ^1S$, attendue à une énergie Auger d'environ 84 eV [Diehl 1998] et de la comparer à celle du triplet $2s3s\ ^3S$. Pour séparer cette contribution, il est nécessaire d'opérer à plus haute résolution. Sur les figures 3 et 4, sont représentés des spectres d'émission Auger obtenus avec une résolution de 0,25 eV et pour des énergies Auger comprises entre 82 et 85 eV. Dans ce domaine d'énergie, nous avons accès aussi bien à l'état $2s3s\ ^3S$ qu'à l'état $2s3s\ ^1S$ et pouvons comparer les intensités correspondantes. Sur la figure 3, les spectres ont été obtenus avec des électrons projectiles de 0,5 et 5 keV, à un angle d'observation de 120°,

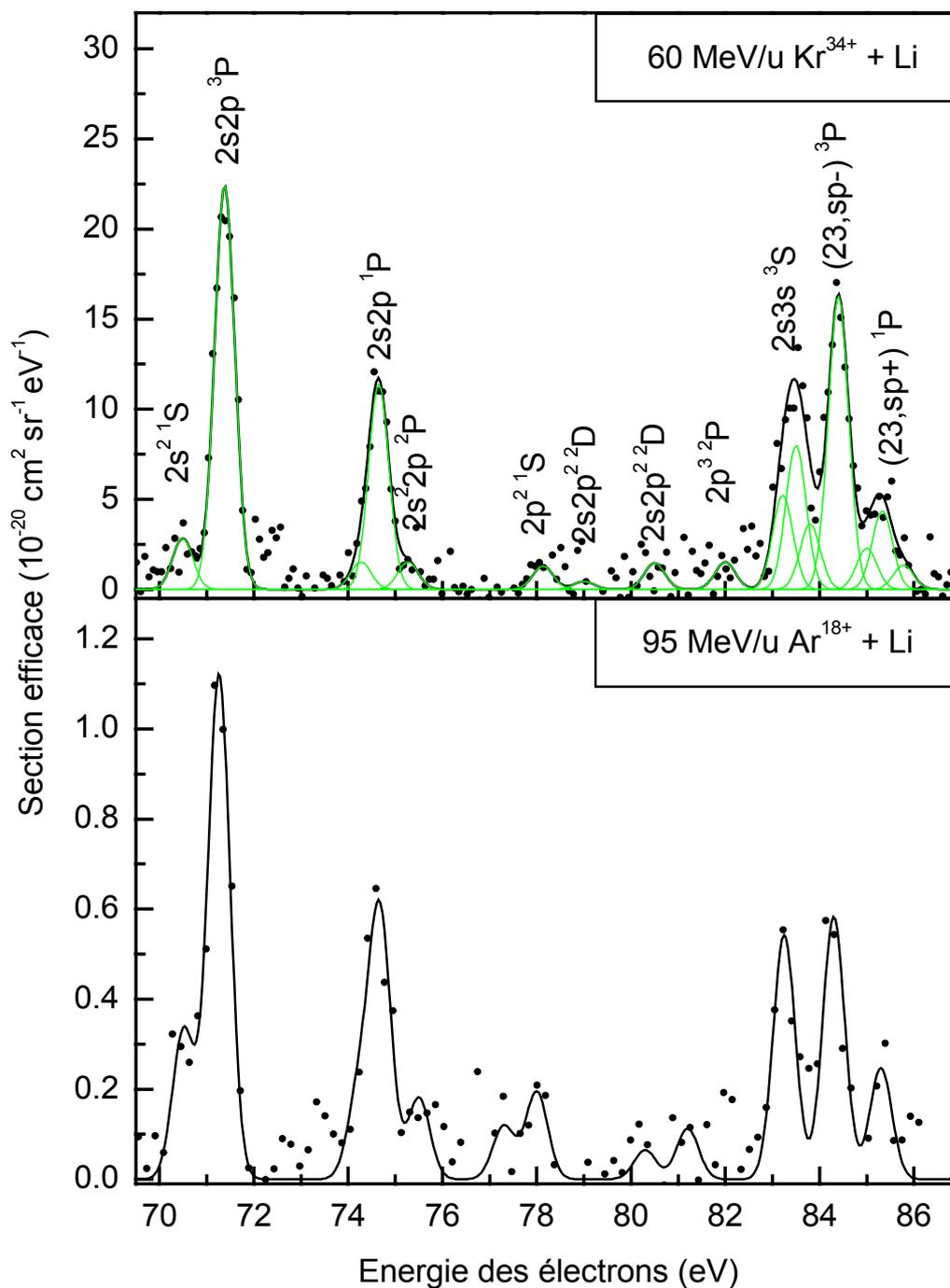


Figure 1. : Sections efficaces doublement différentielles $d^2\sigma_{2\ell n\ell'}^a / d\varepsilon d\Omega$ pour l'émission Auger à partir des configurations $2\ell n\ell'$ ($n \geq 2$) du Li^+ produit après ionisation-excitation en couche interne par impact d'ions rapides. L'angle d'observation est de 120° .

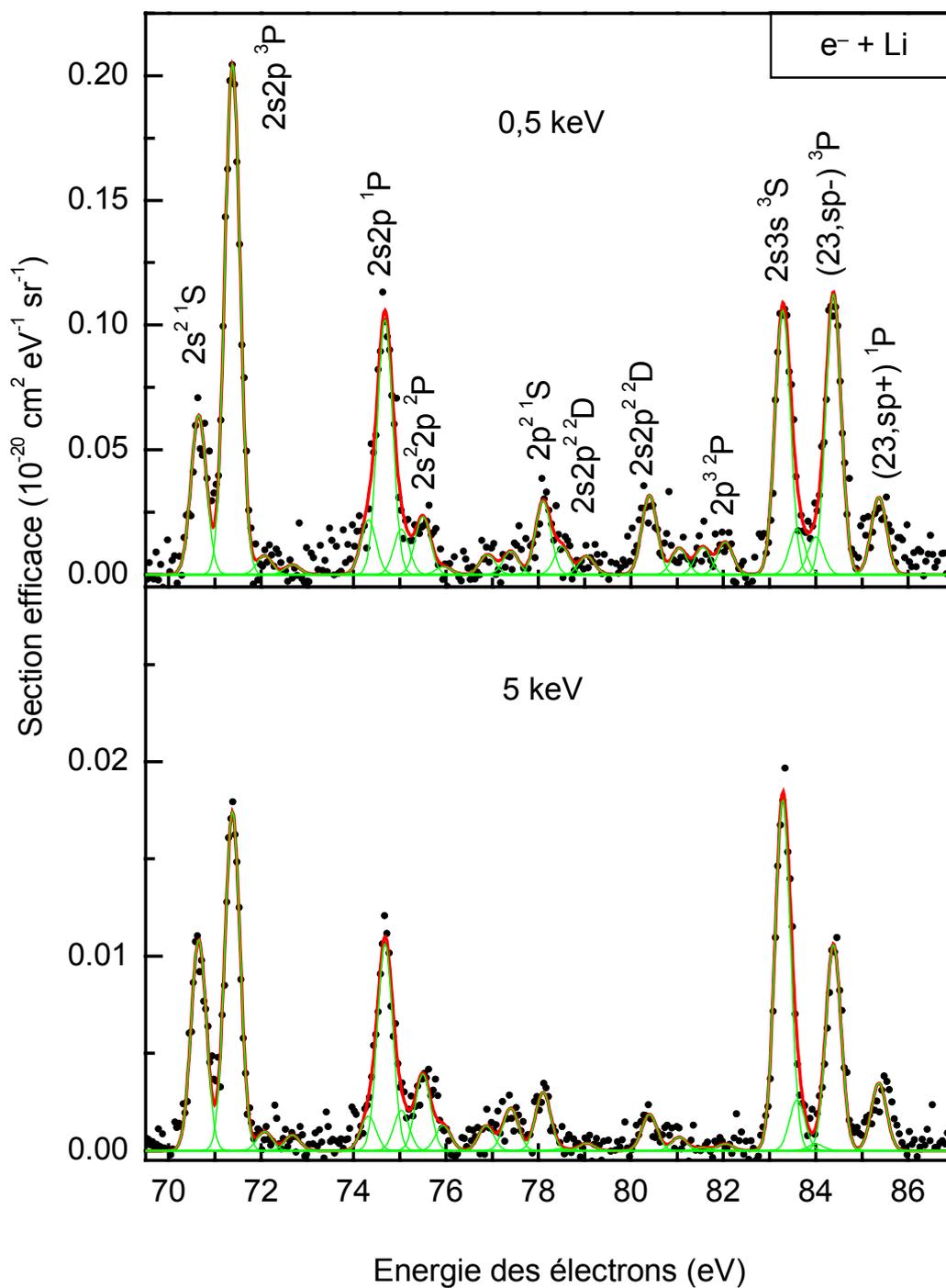


Figure 2. : Sections efficaces doublement différentielles $d^2\sigma_{2\ell n\ell'}^a/d\varepsilon d\Omega$ pour l'émission Auger à partir des configurations $2\ell n\ell'$ ($n \geq 2$) du Li^+ produit après ionisation-excitation en couche interne par impact d'électrons rapides.

L'angle d'observation est de 120° .

alors que sur la figure 4, le spectre a été enregistré à un angle d'observation de 158° avec des ions Kr^{34+} à 60 MeV/uma. De la même façon que précédemment, des fonctions gaussiennes ont été ajustées aux pics Auger. Contrairement au cas du Kr^{34+} , la séparation de l'état singulet $2s3s\ ^1S$ est sans ambiguïté dans le cas des électrons projectiles. On constate que le rapport d'intensité entre $2s3s\ ^3S$ et $2s3s\ ^1S$ est largement supérieur à 3. Cette déviation par rapport au peuplement statistique sera discutée lors de l'examen des mécanismes de création de deux lacunes en couche K (§ III).

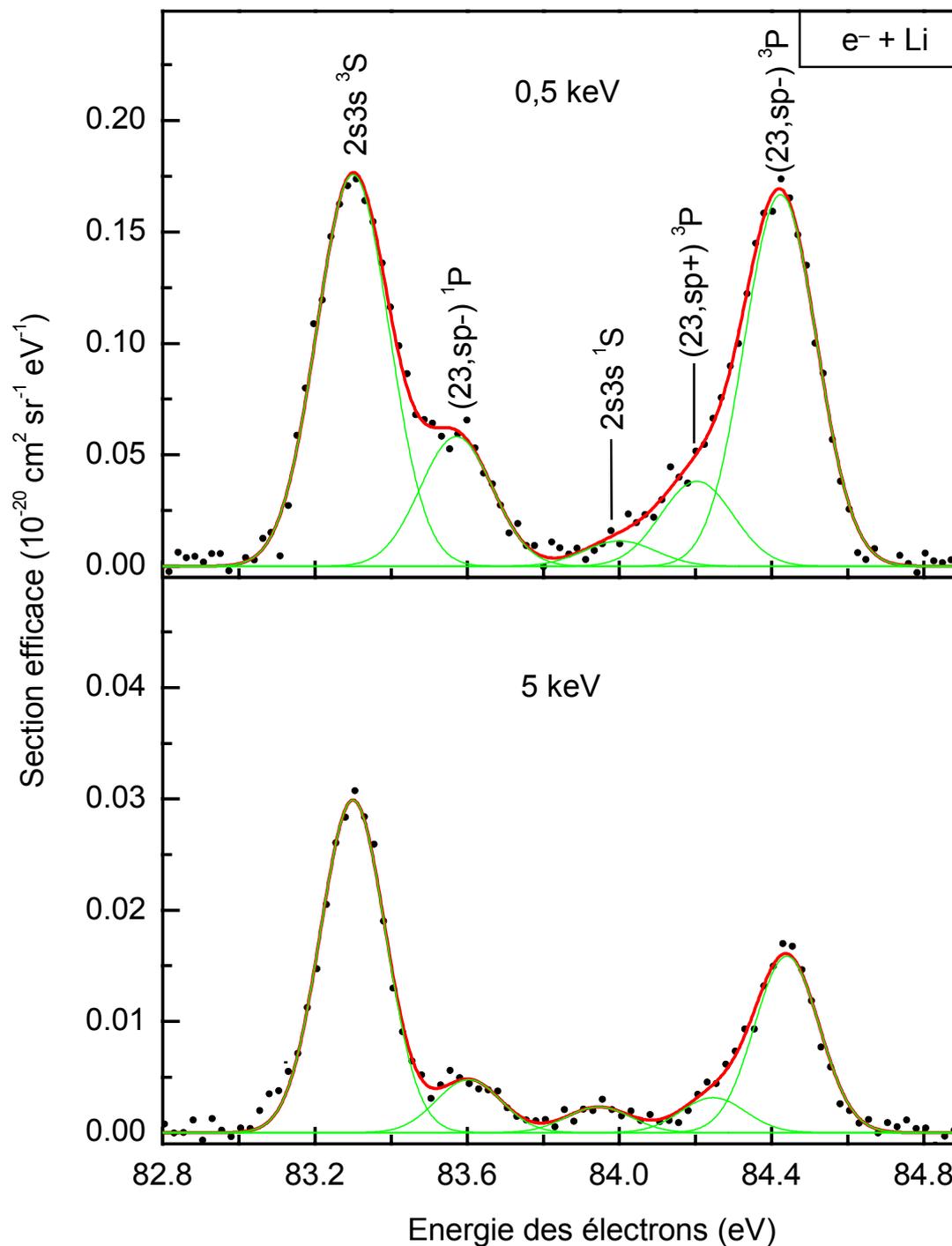


Figure 3. : Sections efficaces doublement différentielles $d^2\sigma_{2sn\ell}^a/d\varepsilon d\Omega$ pour l'émission Auger à partir des configuration $2s n\ell'$ ($n > 2$) du Li^+ produit après ionisation-excitation en couche interne par impact d'électrons rapides.

L'angle d'observation est de 120° .

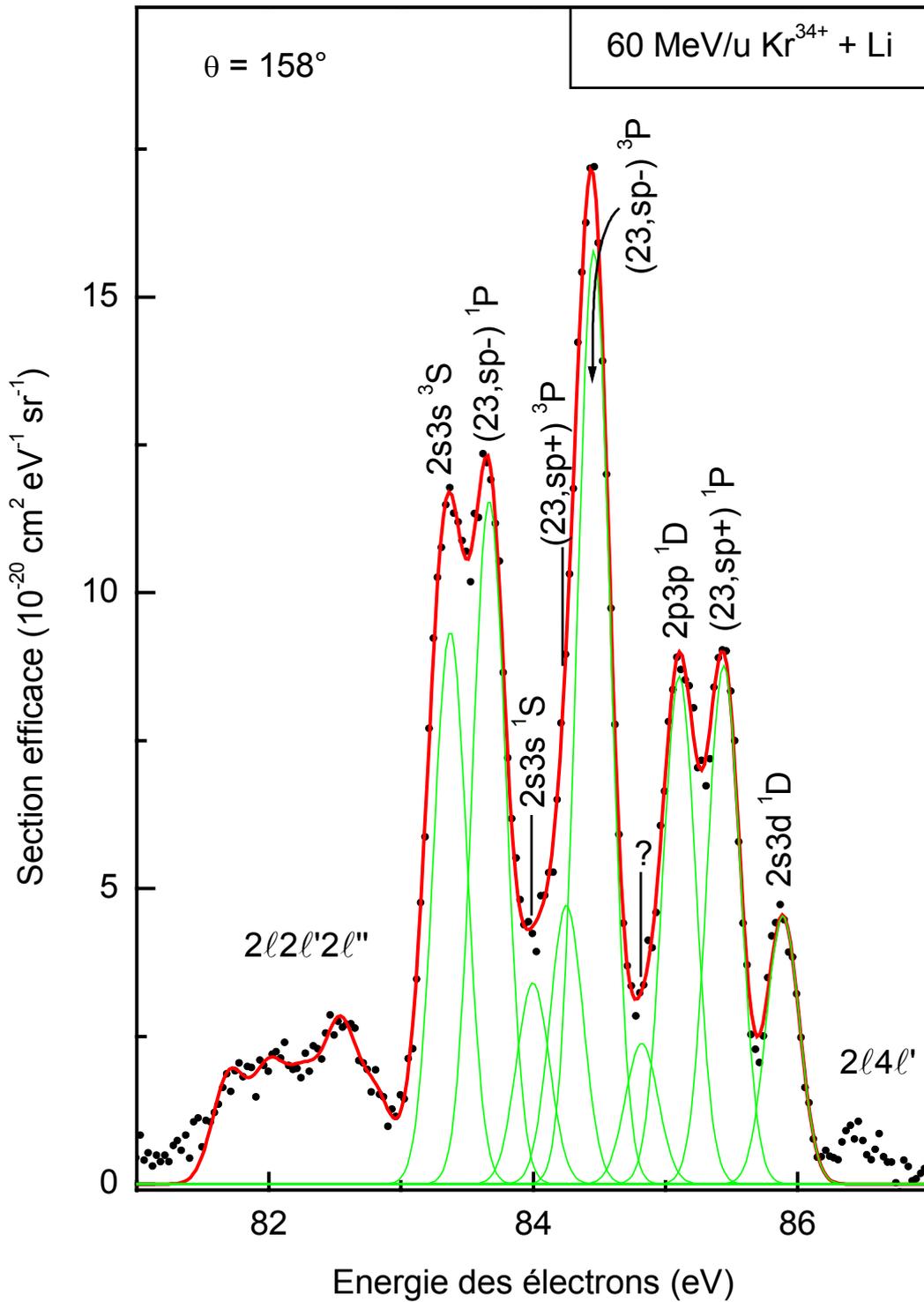


Figure 4. : Sections efficaces doublement différentielles $d^2\sigma_{2snl'}^a/d\varepsilon d\Omega$ pour l'émission Auger à partir des configuration $2s nl'$ ($n > 2$) du Li^+ produit après ionisation-excitation en couche interne par impact d'ions Kr^{34+} à 60MeV/uma. L'angle d'observation est de 158° .

II.2. Analyse de la distribution angulaire d'émission Auger

De la même façon que pour la simple excitation en couche K , les sections efficaces simplement différentielles ont été obtenues après intégration sur l'énergie Auger des spectres à haute résolution présentés précédemment (§ II.1). Sur les figures 5 et 6, sont reportées les distributions angulaires correspondant aux états $2s2p\ ^{1,3}P$ et $2s^2\ ^1S$ en fonction de l'angle d'émission Auger pour des électrons projectiles ayant une énergie cinétique de 0,5 keV et 5 keV et des ions Kr^{34+} à 60 MeV/uma. Les incertitudes relatives sur les points expérimentaux sont de 10-15 % pour les électrons projectiles et de 15-20 % pour les ions Kr^{34+} .

Pour les états $2s2p\ ^{1,3}P$ (Figs. 5 et 6), nous avons ajusté une fonction du même type que celle de la relation (III.4) du chapitre précédent et, pour l'état $2s^2\ ^1S$ (Fig. 6), nous avons effectué un ajustement linéaire (émission isotrope). Les probabilités de production relatives à ces états sont 50 à 100 fois plus faibles que celles associées aux états de la simple excitation en couche K . Par conséquent, le temps d'acquisition étant particulièrement long (de 24 à 48 heures par spectre), la distribution angulaire n'a été effectuée que pour trois angles d'observation. Dans la mesure où les distributions angulaires sont symétriques par rapport à 90° , notre choix s'est porté sur les angles arrières de 120° et 135° , et sur l'angle de 90° . Lors de la détermination des sections efficaces totales, il faut donc tenir compte des incertitudes liées au fait que l'ajustement effectué pour les distributions angulaires repose sur seulement trois points expérimentaux. Notons cependant que la section efficace totale dépend essentiellement des résultats obtenus aux angles voisins de 90° ($50^\circ \leq \theta \leq 130^\circ$) et est donc très peu sensible aux angles manquants et proches de 0° ou de 180° (ceci à cause de la multiplication par $\sin \theta$ de $d\sigma/d\Omega$ avant intégration sur l'angle θ [relation (III.4)]).

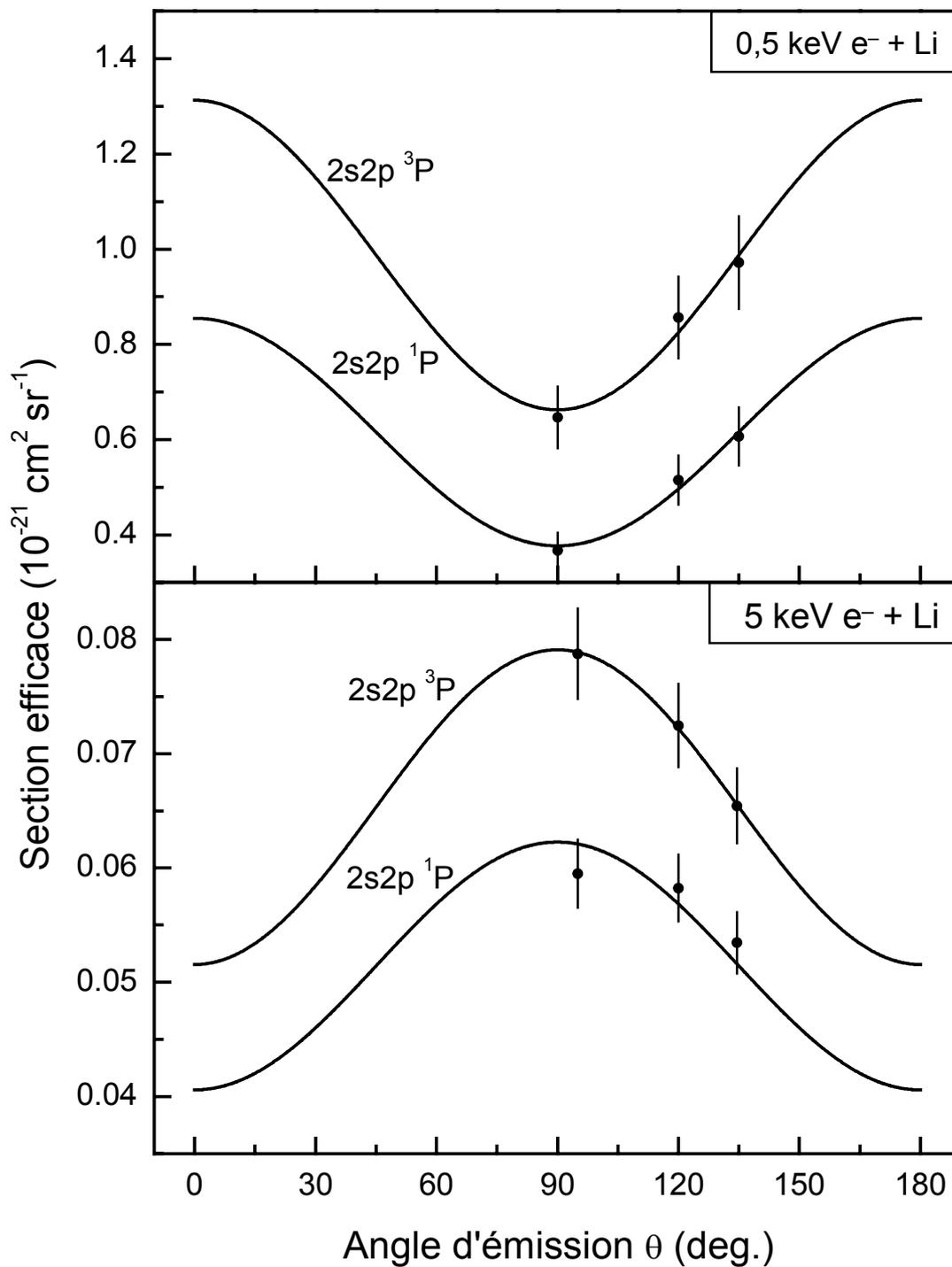


Figure 5. : Sections efficaces simplement différentielles d'émission Auger $d\sigma_{2s2p}^a / d\Omega$ associées aux états $2s2p \ ^{1,3}P$ pour les électrons projectiles. Les incertitudes relatives sont de 10-15 %.

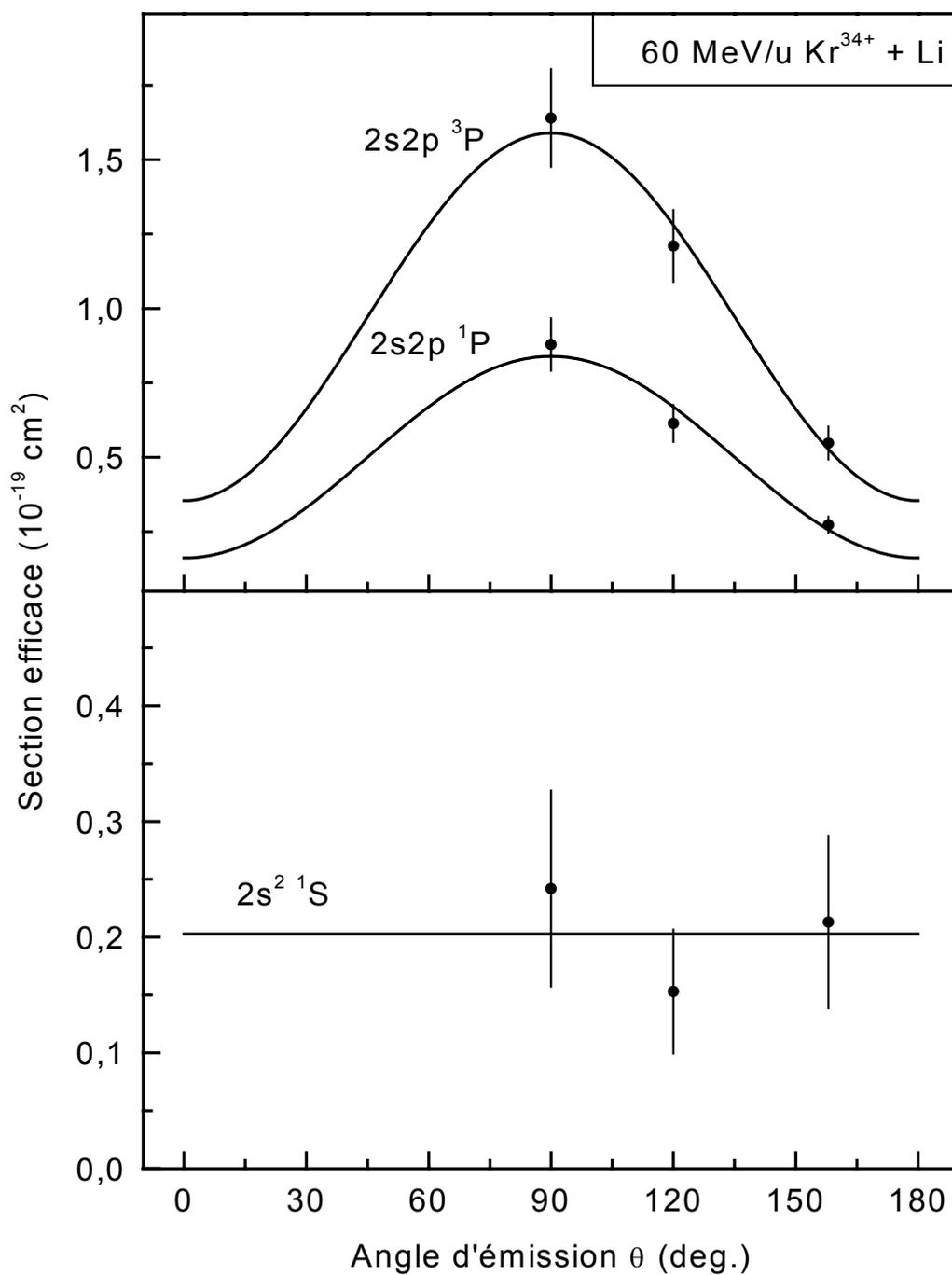


Figure 6. : Sections efficaces simplement différentielles d'émission Auger $d\sigma_{2s2p}^a / d\Omega$ associées aux états $2s2p\ ^{1,3}P$ et $2s^2\ ^1S$ après impact d'ions Kr^{34+} à 60 MeV/uma.

Les incertitudes relatives sont de 15-20 %.

Contrairement au cas de l'état $2s^2\ ^1S$ (Fig. 6), l'émission Auger après peuplement des états $2s2p\ ^1,3P$, est fortement anisotrope, aussi bien dans le cas des électrons projectiles de 0,5 keV et 5 keV que dans celui des ions Kr^{34+} à 60 MeV/uma. Pour les électrons projectiles de 0,5 keV, la distribution angulaire présente un minimum à 90° . L'émission à cet angle est apparemment environ 2 fois plus petite qu'à 0° (et 180°). Au contraire, pour les électrons projectiles de 5 keV et pour les ions Kr^{34+} , la distribution angulaire est maximale à 90° . Le maximum à 90° est beaucoup plus marqué dans le cas du Kr^{34+} que dans celui des électrons projectiles de 5 keV.

De manière analogue au cas de la simple excitation (chap. III), les anisotropies observées pour les distributions angulaires d'émission Auger dans le cas du peuplement des états $2s2p\ ^1,3P$, proviennent d'une sélectivité en M_L . Pour les électrons projectiles les plus lents (0,5 keV), le peuplement du sous-état magnétique $M_L = 0$ est favorisé par rapport à celui de la composante $M_L = 1$ (ou $M_L = -1$). Au contraire, pour les électrons projectiles les plus rapides (5 keV) et pour les ions Kr^{34+} à 60 MeV/uma, le peuplement de la composante $M_L = 1$ (ou $M_L = -1$) est dominant. Donc, de façon similaire à la simple excitation (chap. III), à basse vitesse de collision, les états P produits lors de l'ionisation + excitation tendent à s'aligner le long de la direction du faisceau projectile. Au contraire, à haute vitesse de collision, lorsque les paramètres d'impact impliqués sont plus grands, les états P s'alignent perpendiculairement à la direction du faisceau.

II.3. Sections efficaces totales de production

Les sections efficaces totales de production des états spécifiques à l'ionisation + excitation en couche K du lithium sont listées dans le tableau 1. Les sections efficaces correspondent à l'impact d'électrons projectiles rapides (0,5, 1,5 et 5 keV), d'ions Ar^{18+} à 95 MeV/uma et Kr^{34+} à 60 MeV/uma sur du lithium. L'incertitude relative sur les valeurs expérimentales est de 20 % pour les électrons projectiles et de 25 % pour les ions

projectiles, et cela, en prenant en compte l'incertitude liée à l'ajustement sur seulement trois points lors de l'analyse de la distribution angulaire.

La section efficace associée à chaque état augmente fortement lorsque le paramètre de perturbation $|Z_p|/v_p$ augmente. Pour les électrons projectiles de 5 keV ($|Z_p|/v_p \approx 0,05$ u.a.), les sections efficaces de production sont inférieures à 10^{-21} cm², alors qu'elles sont de l'ordre de 10^{-19} cm² pour les ions Kr³⁴⁺ à 60 MeV/uma ($|Z_p|/v_p \approx 0,7$ u.a.). Lorsque le paramètre de perturbation augmente d'un facteur 10, les sections efficaces augmentent d'au moins un facteur 100.

États	Électrons			Ions	
	5 keV	1,5 keV	0,5 keV	Ar ¹⁸⁺ à 95	Kr ³⁴⁺ à 60
	(0,052 u.a.)	(0,095 u.a.)	(0,165 u.a.)	MeV/uma (0,292 u.a.)	MeV/uma (0,694 u.a.)
$2s^2 \ ^1S$	$0,64 \pm 0,13$	$1,9 \pm 0,4$	$3,8 \pm 0,8$	36 ± 9	250 ± 63
$2s2p \ ^3P$	$0,88 \pm 0,18$	$2,9 \pm 0,6$	$11 \pm 2,2$	93 ± 24	1500 ± 380
$2s2p \ ^1P$	$0,70 \pm 0,14$	$2,2 \pm 0,5$	$6,7 \pm 1,4$	46 ± 12	770 ± 200
$2p^2 \ ^1S$	$0,15 \pm 0,03$	$0,4 \pm 0,1$	$2,2 \pm 0,4$	15 ± 4	210 ± 53
$2s3s \ ^3S$	$0,85 \pm 0,17$	$2,1 \pm 0,5$	$4,7 \pm 1,0$	44 ± 11	310 ± 78
$(23, sp-) \ ^1P$	$0,14 \pm 0,03$	$0,8 \pm 0,2$	$1,5 \pm 0,3$	16 ± 4	530 ± 140
$(23, sp-) \ ^3P$	$0,58 \pm 0,12$	$2,2 \pm 0,5$	$6,2 \pm 1,3$	54 ± 14	960 ± 240
$(23, sp+) \ ^1P$	$0,23 \pm 0,05$	$0,8 \pm 0,2$	$2,2 \pm 0,4$		390 ± 98

Tableau 1 : Sections efficaces totales de peuplement des configurations $2snl$ par ionisation-excitation en couche K du lithium. La valeur du paramètre de perturbation $|Z_p|/v_p$ est indiquée entre parenthèses. Pour des raisons typographiques, les valeurs sont en unité de 10^{-21} cm² (cependant, le nombre de chiffres significatifs n'est pas supérieur à deux). Les incertitudes relatives sont de 20 % pour les électrons projectiles et de 25 % pour les ions projectiles.

III. Mécanismes de production des configurations $2\ell n\ell'$ ($n = 2 - 3$)

III.1. Présentation des différents mécanismes

III.1.1. Les états S

Le résultat marquant de l'analyse précédente est que les états S représentent quasiment un tiers des états produits par ionisation + excitation en couche K du lithium. D'après les conclusions résultant de l'analyse de la simple excitation en couche K , les interactions projectile-électron, à grande vitesse de collision, conduisent de façon majoritaire à des transitions dipolaires du type $1s \rightarrow np$ ($n \geq 2$). Par conséquent, lors de la production des états S , la contribution du processus TS2, faisant intervenir deux interactions projectile-électron indépendantes, devrait être négligeable. Seule l'interaction électron-électron peut vraisemblablement expliquer les fortes intensités relatives observées pour les états S . On rappelle que l'interaction électron-électron peut se manifester sous deux formes différentes que sont les processus diélectronique et shake. Le processus diélectronique fait intervenir l'interaction mutuelle des deux électrons actifs, alors que le processus shake correspond à un réarrangement interne de la cible. Nous ne disposons pas d'outil théorique pour déterminer la contribution du processus diélectronique et pour la comparer à l'expérience. Par contre, nous proposons une méthode de détermination de la contribution du processus shake lors du peuplement des états S . C'est sur ce processus que, dans la suite, nous focaliserons notre discussion en ce qui concerne le peuplement des états S .

Lors de la création des états S par processus shake, l'ionisation doit nécessairement avoir lieu avant l'excitation. En effet, si l'interaction projectile-électron (première interaction) conduit à l'excitation du premier électron $1s$, on aura principalement affaire à une transition

dipolaire du type $1s \rightarrow np$ ($n \geq 2$) (chapitre III). Dans ce cas de figure, l'ionisation du deuxième électron $1s$ par un processus shake-off (pas d'échange de moment cinétique) ne peut conduire qu'à la création d'un état P . Autrement dit, pour le processus shake, seule la forme shake-up est envisageable pour le peuplement des états S .

Pour traiter en détail le processus shake-up, considérons tout d'abord le cas de l'état $2s^2 \ ^1S$. Si l'état $2s^2 \ ^1S$ est produit par processus shake, il ne peut provenir que de l'état intermédiaire *singlet* $1s_0 2s_0 \ ^1S$. L'indice 0 signifie que les orbitales prises en compte sont celles du lithium *neutre* (orbitales « gelées ») et que, donc, l'émission du premier électron est supposée soudaine. Le processus shake implique que l'électron résiduel situé sur l'orbitale $1s_0$ passe sur l'orbitale $2s$, tandis que l'électron $2s_0$ « reste » sur l'orbitale $2s$ de l'ion Li^+ . Il n'y a donc qu'une seule voie possible pour le peuplement de l'état $2s^2 \ ^1S$ par processus shake. C'est la voie *directe*, c'est-à-dire $1s_0 \rightarrow 2s$ (et $2s_0 \rightarrow 2s$).

Pour ce qui est maintenant du peuplement par processus shake de la configuration $2s3s$, deux voies sont possibles. Il y a la voie correspondant à une transition shake *directe*, c'est-à-dire $1s_0 \rightarrow 3s$ (et $2s_0 \rightarrow 2s$). Un processus shake d'*échange* est également possible, où l'électron $1s_0$ est transféré sur l'orbitale $2s$ et, simultanément, l'électron $2s_0$ est transféré vers le niveau $3s$, c'est-à-dire $1s_0 \rightarrow 2s$ et $2s_0 \rightarrow 3s$. Étant donné qu'il existe deux voies possibles (voies *directe* et d'*échange*) menant à la production du même état final, les amplitudes de probabilités correspondantes s'additionnent de manière cohérente. On s'attend donc à ce que des interférences apparaissent entre ces deux processus.

Pour examiner le phénomène d'interférences, les probabilités de production des états $2s3s \ ^{1,3}S$ via le processus shake ont été calculées en évaluant le recouvrement des fonctions d'onde initiales et finales à deux électrons. Ces fonctions d'ondes à deux électrons sont obtenues en construisant les déterminants de Slater appropriés au moyen de fonctions d'onde à un électron. Les fonctions d'onde à un électron associées aux orbitales $1s_0$ et $2s_0$ de l'état intermédiaire et aux orbitales $2s$ et $3s$ de l'état final sont déterminées à l'aide du code de

calcul de structure atomique de Grant [Dyall *et al.* 1989]. Le détail du calcul est donné dans l'annexe 3. Les probabilités de transition shake-up ainsi obtenues sont répertoriées dans le tableau 2. Dans ce tableau, le signe et l'ordre de grandeur des interférences, correspondant au terme croisé, sont reportés.

Dans le cadre de l'approximation shake, la section efficace d'ionisation-excitation par processus shake-up est considérée comme étant proportionnelle à la probabilité de transition shake-up (§ III.4.2). Ainsi, à partir des probabilités de transition shake indiquées dans le tableau 2, on prévoit que la section efficace de production du singulet $2s3s\ ^1S$ par processus shake soit environ 8 fois plus faible que celle correspondant au triplet $2s3s\ ^3S$ (tableau 2). Il y a deux raisons complémentaires qui peuvent expliquer un aussi grand facteur. Premièrement, il y a le poids statistique qui est 3 fois plus petit pour le singulet que pour le triplet. Deuxièmement, pour le singulet $2s3s\ ^1S$, l'existence d'interférences destructives (le terme croisé est négatif) entre les processus direct et d'échange ne peut qu'accentuer la différence de section efficace entre le singulet et le triplet, par diminution de la section efficace associée au singulet.

Élément de matrice de transition	Processus direct	Processus d'échange	Terme croisé	Probabilité totale
$\left\langle 2s^2\ ^1S \middle 1s_0 2s_0 \right\rangle^2$	2×10^{-3}			2×10^{-3}
$\left\langle 2s3s\ ^3S \middle 1s_0 2s_0 \right\rangle^2$	$1,2 \times 10^{-4}$	$2,3 \times 10^{-3}$	$+ 1,1 \times 10^{-3}$	$3,5 \times 10^{-3}$
$\left\langle 2s3s\ ^1S \middle 1s_0 2s_0 \right\rangle^2$	4×10^{-5}	$7,5 \times 10^{-4}$	$- 3,5 \times 10^{-4}$	$4,5 \times 10^{-4}$

Tableau 2 : Probabilités théoriques de transition shake-up P_{s-u} pour la production des états S du $\text{Li}^+(2sns)$.

En ce qui concerne maintenant les états triplets, la caractéristique remarquable de l'état $2s3s\ ^3S$ est que sa section efficace totale est systématiquement plus grande que celle associée à l'état $2s^2\ ^1S$ (tableau 1). Étant donné que l'état $2s3s\ ^3S$ est un état triplet, il ne peut résulter que de l'état intermédiaire $1s_0 2s_0\ ^3S$. Une évaluation préalable du recouvrement des fonctions d'ondes initiale et finale à *un* électron [Dyall *et al.* 1989] indique que la transition $1s_0 \rightarrow 2s$, par processus shake, est environ 10 fois plus probable que la transition $1s_0 \rightarrow 3s$, alors que les probabilités relatives aux transitions $2s_0 \rightarrow 2s$ et $2s_0 \rightarrow 3s$ diffèrent de moins d'un facteur 2. Au vue de ce rapport de probabilités, on s'attend à ce que le processus d'échange (transitions $1s_0 \rightarrow 2s$ et $2s_0 \rightarrow 3s$) soit plus de 5 fois plus probable que le processus direct (transitions $1s_0 \rightarrow 3s$ et $2s_0 \rightarrow 2s$). Nos calculs de probabilités shake, effectués à partir du recouvrement de fonctions d'ondes à *deux* électrons (déterminants de Slater), confirment la forte prédominance du processus d'échange. Ils prédisent que le mécanisme d'échange est pratiquement 15 fois plus probable que le mécanisme direct (tableau 2). Par conséquent, le processus shake lors de la production de l'état $2s3s\ ^3S$ est essentiellement un processus en trois étapes faisant intervenir une interaction projectile-électron (ionisation) suivie de deux interactions électron-électron (excitations du type $1s_0 \rightarrow 2s$ et $2s_0 \rightarrow 3s$).

Contrairement à l'état $2s3s\ ^1S$, le terme croisé relatif à l'état $2s3s\ ^3S$ donne naissance à des interférences constructives (tableau 2), favorisant d'autant la production de cet état. Les interférences constructives lors de la formation de l'état $2s3s\ ^3S$ peuvent être interprétées comme étant la manifestation de l'interaction d'échange de Pauli. Rappelons que l'état triplet $2s3s\ ^3S$ ne peut provenir que de l'état intermédiaire $1s_0 2s_0\ ^3S$. Or, à partir de cet état, le principe de Pauli interdit le fait que la transition $2s_0 \rightarrow 2s$ accompagne la transition $1s_0 \rightarrow 2s$ (l'état $2s^2\ ^3S$ ne peut évidemment pas exister). La probabilité relative à la transition $2s_0 \rightarrow 2s$ est alors réduite à zéro. Afin de conserver le flux de probabilité totale de transition, l'interdiction de la transition $2s_0 \rightarrow 2s$ conduit à l'augmentation des probabilités associées aux autres transitions, telles que $2s_0 \rightarrow ns$ ($n \geq 3$). Par conséquent, l'interaction d'échange de Pauli favorise la transition de l'électron $2s_0$ vers le niveau supérieur $3s$. Ce

résultat est cohérent avec l'existence d'interférences constructives lors de la formation de l'état $2s3s\ ^3S$.

III.1.2. Les états P

Considérons l'état $2p^2\ ^1S$ situé à une énergie Auger de 78 eV environ. Cet état peut être produit par la combinaison de processus d'ionisation et d'excitation où interviennent les interactions projectile-électron et électron-électron. Cet état peut être également peuplé par interaction de configurations, après peuplement de $2s^2\ ^1S$. Une interaction particulièrement forte existe, en effet, entre les configurations $2p^2$ et $2s^2$ [Tanis *et al.* 2000]. Un calcul [Tanis *et al.* 2000] basé sur le code de Fischer [Fischer 1991] prédit que la composante de la configuration $2p^2$ est à hauteur de 33 % de celle de $2s^2$.

La production directe de l'état $2p^2$ par processus collisionnel requiert un mécanisme en au moins trois étapes (plus complexe que les processus TS1 et TS2). Un tel mécanisme est susceptible d'être beaucoup moins probable que les processus en deux étapes TS1 et TS2. Ainsi, la section efficace de production de l'état $2p^2\ ^1S$ par ce mécanisme est vraisemblablement très faible aux sections efficaces d'ionisation-excitation par processus en deux étapes. Dans la suite, nous nous limiterons donc au cas des états P créés par processus en deux étapes.

Examinons maintenant les mécanismes de production des états $2snp\ ^{1,3}P$. Les états P sont susceptibles d'être peuplés par le processus TS2 puisque les interactions projectile-électron donnent lieu principalement à des transitions dipolaires, c'est-à-dire $1s \rightarrow \varepsilon p$ et $1s \rightarrow np$. Dans ce cas, l'excitation peut avoir lieu aussi bien avant qu'après l'ionisation. La contribution du processus TS2, proportionnelle à $(Z_p/v_p)^4$ (chapitre I), risque d'être significative pour des perturbations relativement fortes ($|Z_p|/v_p \geq 0,5$ u.a.) et devenir négligeable pour des perturbations plus petites ($|Z_p|/v_p \leq 0,5$ u.a.).

Outre le processus TS2, l'interaction électron-électron (TS1) est susceptible de peupler les états P . La nature diélectronique de l'interaction électron-électron peut produire des états P si l'électron εp , quittant l'atome, excite l'autre électron $1s$ vers une orbitale np . Dans ce cas, le premier électron actif perd son moment orbital $\ell = 1$ pour devenir un électron $\varepsilon's$ du continuum de la cible, c'est-à-dire ($\varepsilon p + 1s \rightarrow \varepsilon's + np$).

En ce qui concerne le processus shake, rappelons qu'il s'agit d'un réarrangement interne de l'atome (ou ion) cible résiduel ne donnant lieu qu'à des transitions de type $\Delta\ell = 0$ (et $\Delta L = 0$). Par conséquent, dans le cas où l'ionisation a lieu avant l'excitation, le processus shake-up ne peut se manifester que par une transition de type monopolaire $1s \rightarrow ns$ et l'état final ainsi produit ne peut être qu'un état S du type $2sns$ $^{1,3}S$. Le peuplement des états P n'est donc pas possible par processus shake-up. Par contre, si l'excitation a lieu avant l'ionisation, l'excitation s'effectue principalement par transition dipolaire $1s \rightarrow np$ et l'ionisation du deuxième électron $1s$ par processus shake-off est alors envisageable, conduisant ainsi au peuplement d'un état P du type $2snp$ $^{1,3}P$. Cependant, même si le processus shake-off est susceptible de contribuer au peuplement des états P , on montre, en comparant d'un côté les probabilités de transition shake-off [Skogvall *et al.* 1995] et shake-up (tableau 2) et d'un autre côté les sections efficaces de simple excitation et de simple ionisation en couche K , que le processus shake-off ne peut expliquer les intensités observées (Annexe 3) et qu'en fait, il ne contribue que de façon négligeable au peuplement des états P . Il en résulte que, lors de la formation des états P , la contribution du processus TS1 ne peut être significative que sous la forme d'un processus diélectronique. L'investigation du rôle de l'interaction électron-électron, lors de la production des états P , offre donc une opportunité unique d'étudier expérimentalement l'aspect diélectronique de l'interaction électron-électron.

III.2. Recherche des mécanismes prépondérants:

Dans ce paragraphe, nous faisons une première tentative d'identification des mécanismes de peuplement des états S et P produits lors de l'ionisation + excitation en couche K du lithium. Il s'agit dans un premier temps de repérer les mécanismes prépondérants.

Dans le cadre de l'approximation de Born, valable pour de faible paramètre de perturbation ($|Z_p|/v_p < 1$ u.a.), la section efficace totale peut pratiquement s'exprimer suivant un polynôme en Z_p/v_p [chapitre I, relation (I.47)]. Dans ce paragraphe nous négligerons le facteur $\ln v_p$ car sa variation en vitesse de projectile v_p est faible par rapport à celle des fonctions en $1/v_p^n$ ($n \geq 2$). Rappelons que la contribution proportionnelle à $(Z_p/v_p)^2$ correspond à un processus mettant en jeu une interaction projectile-électron suivie d'une interaction électron-électron (TS1), alors que la contribution proportionnelle à $(Z_p/v_p)^4$ est associée à un processus faisant intervenir deux interactions projectile-électron (TS2). Nous négligeons dans ce paragraphe le terme en $(Z_p/v_p)^3$ dû aux éventuelles interférences entre les processus TS1 et TS2.

Sur les figures 7 et 8, nous avons respectivement représenté les sections efficaces totales de production des états $2s2p^{1,3}P$ et $2s3s^3S$, en fonction du paramètre $|Z_p|/v_p$. Les points expérimentaux correspondent aux valeurs données dans le tableau 1. Sur ces figures, nous avons aussi tracé des fonctions proportionnelles à $(Z_p/v_p)^2$ en petits pointillés et à $(Z_p/v_p)^4$ en grands pointillés. Lorsque $|Z_p|/v_p \ll 1$ u.a., la contribution en $(Z_p/v_p)^2$ domine vraisemblablement la contribution en $(Z_p/v_p)^4$. C'est ce que l'on attend en particulier dans le cas des électrons projectiles de 5 keV, dont le paramètre de perturbation $|Z_p|/v_p$ vaut 0,05 u.a. Nous avons donc normalisé la fonction proportionnelle à $(Z_p/v_p)^2$ au point correspondant à la section efficace obtenue avec les électrons de 5 keV. Par contre, lorsque le paramètre de perturbation $|Z_p|/v_p$ tend vers 1 u.a. (Kr^{34+} à 60 MeV/uma), la

section efficace associée au processus TS2 est susceptible de devenir comparable, voire supérieure, à celle correspondant au processus TS1. La fonction proportionnelle à $(Z_p / v_p)^4$ est donc, quant à elle, normalisée au point expérimental correspondant au plus grand paramètre de perturbation, obtenu avec les ions Kr^{34+} à 60 MeV/uma.

Sur la figure 7, on constate que, pour le peuplement de la configuration $2s2p$, la dépendance en $(Z_p / v_p)^2$ (en petits pointillés) correspond exactement à la dépendance expérimentale des sections efficaces obtenues avec les électrons projectiles. Ce résultat suggère que les états $2s2p \ ^{1,3}P$ sont principalement peuplés par le processus TS1 faisant intervenir l'interaction électron-électron. Au contraire, dans le cas des ions projectiles Ar^{18+} et Kr^{34+} , la dépendance en $(Z_p / v_p)^2$ est en désaccord avec celle donnée par les valeurs expérimentales. En revanche, les valeurs expérimentales obtenues avec les ions projectiles ont une dépendance, en fonction du paramètre de perturbation, quasiment identique à $(Z_p / v_p)^4$ (grands pointillés). Il semble donc qu'aux plus grands paramètres de perturbation obtenus avec les ions, le rôle du processus TS2 lors du peuplement des états P devient significatif.

Sur la figure 8, dans le cas de l'état $2s3s \ ^3S$, on constate que tous les points expérimentaux, quelque soit le projectile utilisé, suivent une dépendance plus proche de $(Z_p / v_p)^2$ que de $(Z_p / v_p)^4$. La dépendance en $(Z_p / v_p)^4$ est, en effet, en net désaccord avec les valeurs expérimentales. Il est donc vraisemblable que le processus TS2 joue un rôle négligeable pour tous les projectiles utilisés et que, par conséquent, le processus TS1 soit pratiquement le seul mécanisme responsable du peuplement des états S .

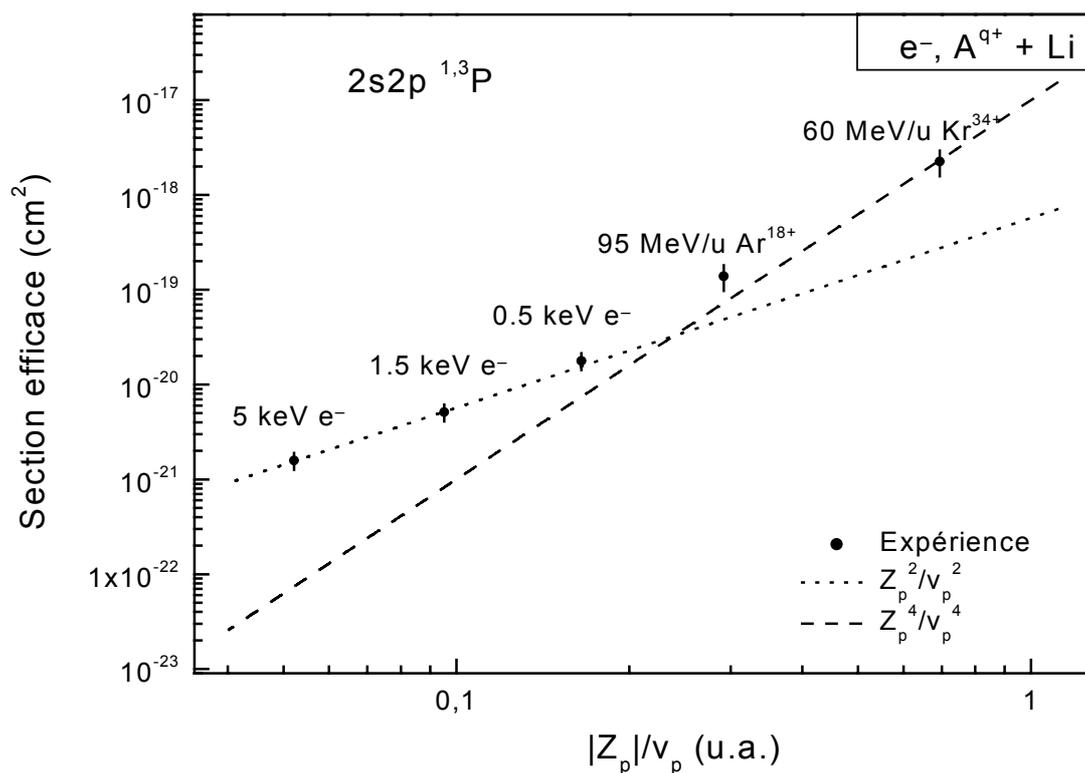


Figure 7. : Sections efficaces de production des états $2s2p \ ^{1,3}P$. L'incertitude relative sur les points expérimentaux est de 20 % pour les électrons projectiles et de 25 % pour les ions projectiles. Le trait en petits pointillés correspond à une fonction en $(Z_p / v_p)^2$ et le trait en grands pointillés à une fonction en $(Z_p / v_p)^4$.

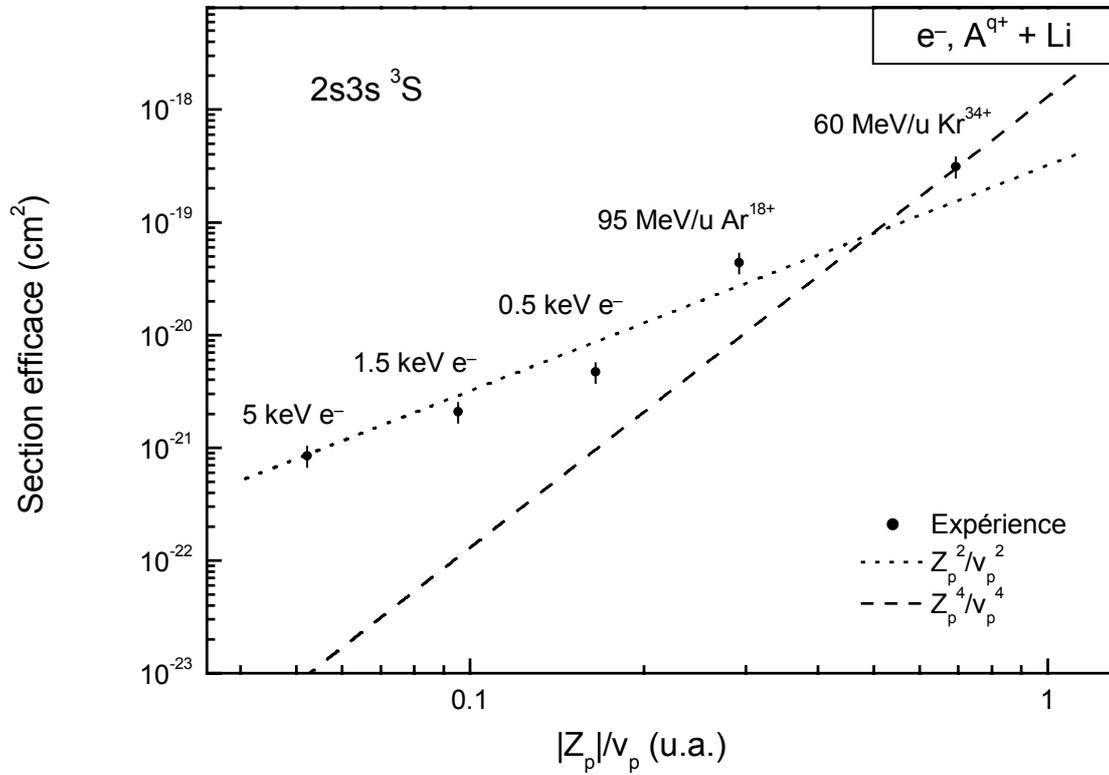


Figure 8. : Sections efficaces de production des états $2s3s \ ^3S$. L'incertitude relative sur les points expérimentaux est de 20 % pour les électrons projectiles et de 25 % pour les ions projectiles. Le trait en petits pointillés correspond à une fonction en $(Z_p / v_p)^2$ et le trait en grands pointillés à une fonction en $(Z_p / v_p)^4$.

III.3. Séparation des contributions des différents mécanismes :

Dans ce paragraphe, nous allons tenter de déterminer quantitativement les contributions des divers mécanismes responsables de la création de deux lacunes en couche K du lithium, que ces mécanismes soient prépondérants ou non. On recherchera également le rôle des éventuelles interférences entre les différents mécanismes.

III.3.1. Méthode adoptée pour la séparation des contributions des mécanismes

En reprenant la relation (I.45), on comprend que pour séparer les contributions relatives aux différents mécanismes et aux éventuelles interférences entre TS1 et TS2, il est commode de diviser la section efficace totale σ_{tot} par $(\ln v_p)^2$ et d'introduire un nouveau paramètre de perturbation : $p = \frac{Z_p}{v_p} \frac{1}{\sqrt{\ln v_p}}$ (v_p en u.a.). De cette manière, on a une expression polynomiale simple pour la section efficace σ_{red} "réduite en vitesse" :

$$\sigma_{red} = \frac{\sigma_{tot}}{(\ln v_p)^2} = c_{TS1} p^2 + c_{TS2} p^4 + c_{int} p^3. \quad (IV.1)$$

On peut noter que le paramètre p est très analogue au paramètre de perturbation habituel Z_p / v_p puisque le terme en $(\ln v_p)^{-1/2}$ varie très lentement avec la vitesse v_p . Les quantités c_{TS1} , c_{TS2} et c_{int} correspondent aux paramètres d'ajustement respectivement associés aux processus TS1, TS2 et aux interférences entre TS1 et TS2.

Sur les figures 9 et 10, nous avons tracé la section efficace réduite en vitesse en fonction du paramètre de projectile p . Les points correspondent aux sections efficaces expérimentales listées dans le tableau 1, divisées par $(\ln v_p)^2$. La courbe en trait plein

correspond à l'ajustement, des points expérimentaux, par la fonction σ_{red} donnée par la relation (IV.1). Cette procédure d'ajustement permet de séparer, aussi bien les contributions des processus TS1 (en petits pointillés) et TS2 (en grands pointillés) que celle des interférences entre ces deux mécanismes. Les valeurs obtenues pour les paramètres d'ajustement sont données dans le tableau 3.

III.3.2. Séparation des mécanismes dans le cas des états P

Pour les états P (Fig. 9), des contributions importantes dues aux processus TS1 et TS2 sont mises en évidence. Par contre, l'ajustement prévoit que le phénomène d'interférences entre les processus TS1 et TS2 est négligeable lors du peuplement des états P . Aussi pour établir la figure 9, nous avons recommencé l'ajustement en imposant la condition $c_{int} = 0$ [relation (IV.1)]. La somme des contributions TS1 et TS2 s'ajuste de façon "quasi-parfaite" sur les points expérimentaux. La déviation standard sur les paramètres d'ajustement est en effet très faible. Notons que le fait que les dépendances en p des contributions TS1 et TS2 sont très différentes (respectivement en p^2 et p^4) facilite grandement la procédure d'ajustement et limite ainsi la déviation standard sur les paramètres d'ajustement. Par conséquent, les incertitudes sur la détermination des contributions TS1 et TS2 n'excèdent pratiquement pas les incertitudes expérimentales et sont d'environ 20-25 %. Dans le prochain paragraphe, la contribution TS2 trouvée ici sera comparée avec un calcul PWBA.

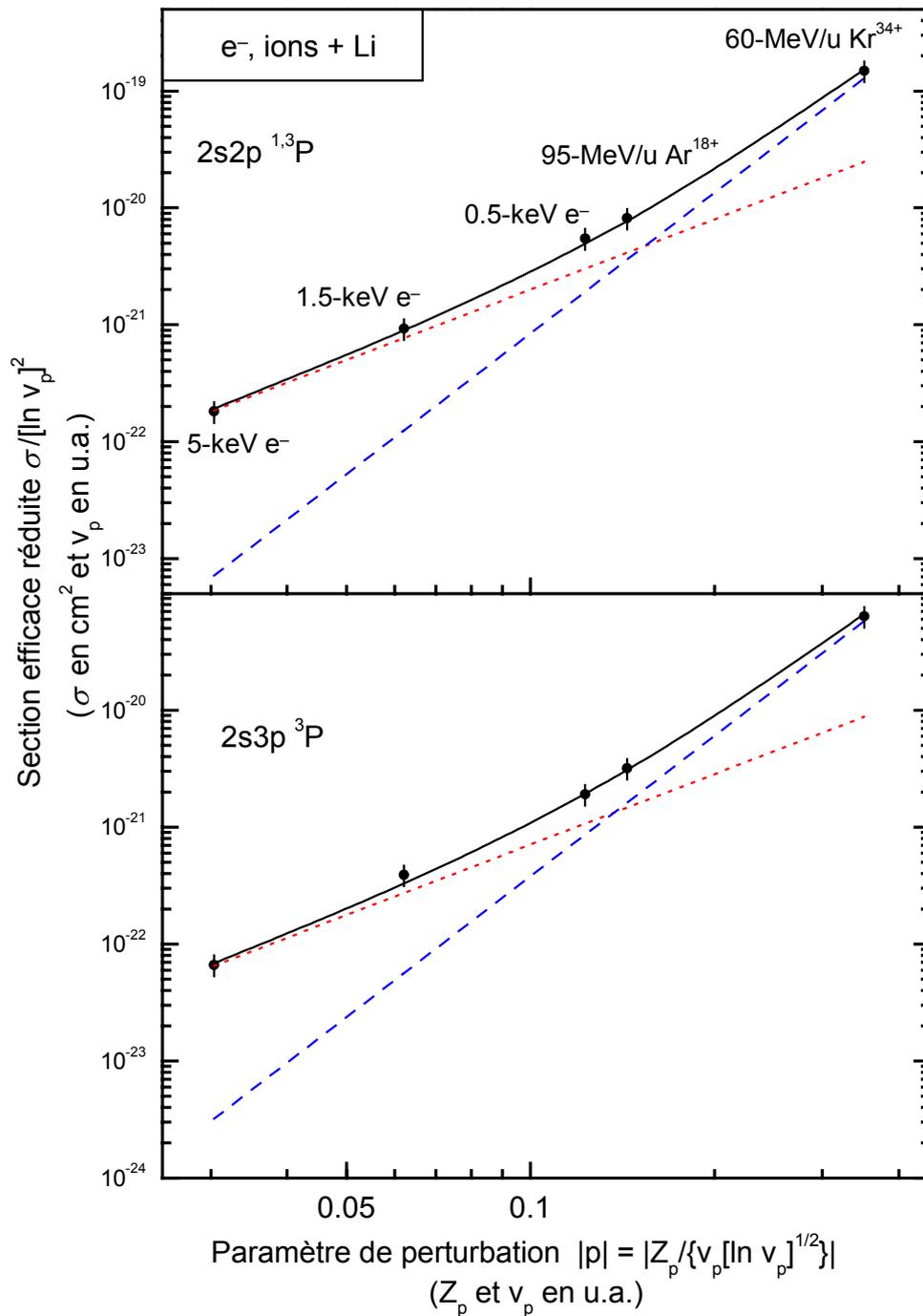


Figure 9. : Sections efficaces de peuplement des états P , totales divisées par $(\ln v_p)^2$, données en fonction de la valeur absolue du paramètre de perturbation p . L'incertitude relative sur les points expérimentaux est de 20 % pour les électrons projectiles et de 25 % pour les ions projectiles. La contribution relative au processus TS1 est représentée en petits pointillés et celle associée à TS2, en grands pointillés. L'incertitude relative de ces contributions est de 20 %.

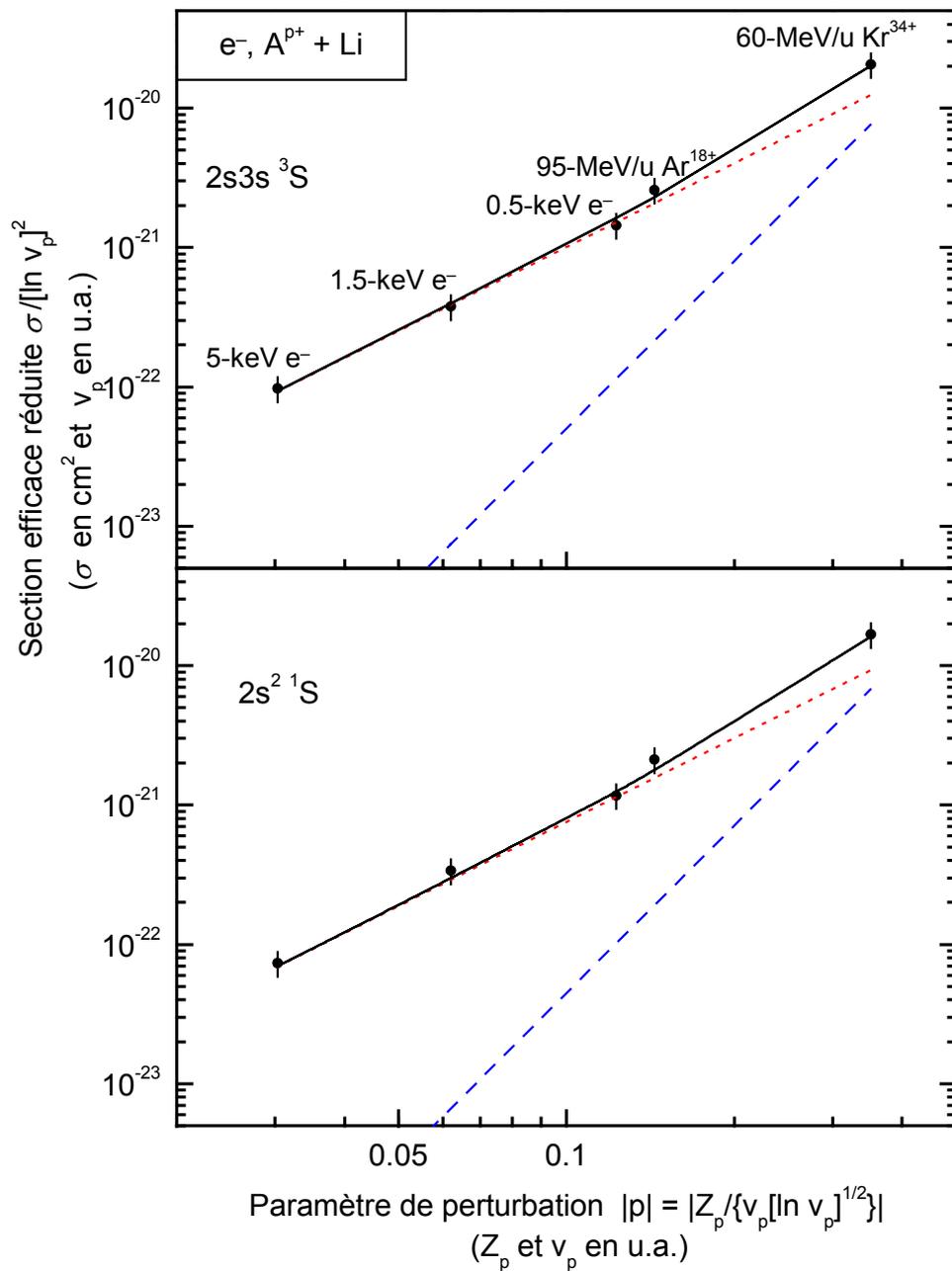


Figure 10. : Sections efficaces de peuplement des états S , totales divisées par $(\ln v_p)^2$, données en fonction de la valeur absolue du paramètre de perturbation p . L'incertitude relative sur les points expérimentaux est de 20 % pour les électrons projectiles et de 25 % pour les ions projectiles. La contribution relative au processus TS1 est représentée en petits pointillés et celle associée à TS2, en grands pointillés. L'incertitude relative de ces contributions est de 20 %.

États	c_{TS1}	c_{TS2}
$2s^2 \ ^1S$	$7,6 \times 10^{-20}$	$4,5 \times 10^{-19}$
$2s2p \ ^{1,3}P$	$2,0 \times 10^{-19}$	$8,4 \times 10^{-18}$
$2s3s \ ^3S$	$1,0 \times 10^{-19}$	$5,0 \times 10^{-19}$
$2s3p \ ^3P$	$7,1 \times 10^{-20}$	$3,6 \times 10^{-18}$

Tableau 3. : Paramètres d'ajustement c_{TS1} et c_{TS2} . Les paramètres s'appliquent pour les relations (I.43) et (IV.1) lorsque la section efficace d'ionisation-excitation est exprimée en cm^2 et les quantités Z_p et v_p en u.a.

En examinant les résultats reportés sur la figure 9 au sujet des états P , il est particulièrement intéressant de remarquer que les sections efficaces expérimentales ont quasiment la même dépendance en p , qu'il s'agisse des états $2s2p \ ^{1,3}P$ ou $2s3p \ ^3P$. Il s'ensuit que, l'importance relative des processus TS1 et TS2 est pratiquement la même pour $2s2p \ ^{1,3}P$ ou $2s3p \ ^3P$ (courbes en pointillés). Dans le cas des ions Kr^{34+} à 60 MeV/uma, la production des configurations $2s2p$ et $2s3p$ est essentiellement gouvernée par des processus mettant en jeu deux interactions projectile-électron indépendantes (TS2). Dans le cas des ions Ar^{18+} à 95 MeV/uma, les contributions des processus TS1 diélectronique et TS2 sont du même ordre de grandeur. Par contre, lorsque des électrons projectiles sont utilisés, les processus faisant intervenir l'interaction électron-électron (TS1) représentent la contribution prédominante dans la production des états P . Il est important de rappeler que, seul l'aspect diélectronique de l'interaction électron-électron peut contribuer de façon significative au peuplement des états P . Ainsi, grâce à ce type d'ajustement sur les sections efficaces de production, non seulement nous séparons les contributions des processus TS1 et TS2 lors du peuplement des états creux, mais aussi, pour la première fois, nous dégageons la contribution du processus diélectronique.

Comme déjà mentionné, la contribution des interférences entre les mécanismes TS1 et TS2 dans le cas des états P est systématiquement négligeable pour toutes les valeurs du paramètre p explorées dans ce travail. Deux raisons majeures peuvent expliquer la faible contribution des interférences: la première concerne le *time ordering* dans le processus TS2 et la deuxième est liée aux états finals peuplés par processus TS1 diélectronique et TS2.

On rappelle que l'absence de *time ordering* au sein du processus TS2 peut annuler les interférences entre les processus TS1 et TS2 [McGuire and Straton 1991, Stolterfoht 1993] (chapitre I). Or, dans le cas des projectiles rapides utilisés dans ce travail, le modèle à particules indépendantes dans l'approximation des orbitales gelées (modèle IPM-FO, [Stolterfoht 1993, Stolterfoht *et al.* 1995]) constitue une excellente approche pour le traitement de l'ionisation-excitation en couche K par processus TS2. On comprend effectivement que, si le projectile est rapide, l'ionisation et l'excitation ont lieu quasi-simultanément et que, par conséquent, le cortège électronique de la cible n'a pas le temps de se réarranger entre les deux interactions projectile-électron. Autrement dit, lors des collisions à grande vitesse étudiées ici, le *time ordering* au sein du processus TS2 est susceptible de disparaître; ce qui ne favorise pas les interférences entre les processus TS1 et TS2.

Il y a cependant une raison plus profonde qui permet de comprendre l'absence des interférences entre TS1 et TS2. Lors du peuplement des états P , le processus TS1 diélectronique conduit essentiellement aux états finals du type $(2snp + \varepsilon s)$ avec $n \geq 2$, alors que le processus TS2 produit principalement des états creux $(2snp + \varepsilon p)$ avec $n \geq 2$. Les états finals peuplés par le processus TS1 diélectronique sont alors généralement différents de ceux produits par processus TS2. Donc, même s'il existe un *time ordering* au sein de TS2, les processus TS1 et TS2 ne peuvent pas interférer.

III.3.3. Séparation des mécanismes dans le cas des états S

Sur la figure 10, l'importance de la contribution du processus TS1 lors de la production des états S est mise en évidence. L'ajustement estime, au contraire, que la contribution du processus TS2 est négligeable lors du peuplement des états S . Il en est de même pour les interférences. On remarque, en effet, qu'en imposant $c_{\text{int}} = 0$ et $c_{TS2} = 0$ [relation (IV.1)], la contribution TS1 seule s'ajuste relativement bien sur tous les points expérimentaux, excepté pour le Kr^{34+} . En imposant seulement $c_{\text{int}} = 0$, la somme des contributions TS1 et TS2 s'ajuste presque parfaitement sur tous les points. Rappelons que le fait que les dépendances en p des contributions TS1 et TS2 soient très différentes (respectivement p^2 et p^4) facilite la procédure d'ajustement. Ainsi, l'incertitude sur la détermination de la contribution prédominante (TS1) n'excède quasiment pas les incertitudes expérimentales et est d'environ 20-25 %. L'incertitude sur TS2 est plus forte et s'élève à environ 30-40 %. Dans le paragraphe (III.4), la contribution de TS2 trouvée par la procédure d'ajustement sera comparée avec un calcul *ab-initio* PWBA et la contribution de TS1 (shake et diélectronique) à la contribution théorique de TS1 shake.

Après examen de la figure 10, il faut tout d'abord souligner que les sections efficaces expérimentales ont la même dépendance en p , aussi bien pour l'état $2s^2 \ ^1S$ que pour $2s3s \ ^3S$. Il en résulte que l'importance relative des processus TS1 et TS2 est pratiquement la même pour $2s^2 \ ^1S$ et $2s3s \ ^3S$ (courbes en pointillés). Contrairement aux états P , la production des états S est essentiellement gouvernée par des processus mettant en jeu l'interaction électron-électron (TS1 shake et diélectronique), et ce, dans tout le domaine de paramètre de perturbation exploré dans ce travail. La contribution du processus TS2 est généralement largement inférieure à celle associée au processus TS1. En effet, dans le cas des électrons projectiles de 5 keV, la contribution de TS2 est plus de deux ordres de grandeur plus faible que TS1 et pour le Kr^{34+} , il y a presque un facteur 2 entre les deux contributions. On peut alors conclure que l'observation des états S (notamment aux petits paramètres de

perturbation) constitue une mise en évidence expérimentale directe de la manifestation de l'interaction électron-électron dans le processus d'ionisation-excitation en couche interne.

On rappelle que la contribution des interférences entre les mécanismes TS1 et TS2 dans le cas des états S est systématiquement négligeable pour toutes les valeurs du paramètre p explorées dans ce travail (Fig. 10). Cependant, contrairement aux cas des états P , les processus TS1 et TS2 peuvent, lors de la formation des états S , conduire à la production du même état final. En considérant d'abord le processus TS2, nous savons qu'une interaction projectile-électron donne lieu de façon majoritaire à une transition dipolaire et, par conséquent, lors de l'ionisation d'un électron $1s$ par interaction projectile-électron, la transition $1s \rightarrow \varepsilon p$ est probablement dominante. Ainsi, lors de la création d'état S par processus TS2, l'état final creux ($2sns + \varepsilon p$) avec $n \geq 2$ est susceptible d'être majoritairement produit. De la même façon, pour le processus TS1 (shake et diélectronique), si l'interaction projectile-électron provoque l'ionisation d'un électron $1s$, donnant essentiellement naissance à une transition $1s \rightarrow \varepsilon p$, le même état final creux ($2sns + \varepsilon p$) avec $n \geq 2$ est susceptible d'être créé. Ainsi, le fait que deux "chemins" différents (TS1 et TS2) peuvent peupler le même état creux final ($2sns + \varepsilon p$) avec $n \geq 2$ implique que des interférences sont possibles entre les processus TS1 et TS2. Cependant, étant donné que le processus TS2 joue un rôle négligeable dans la production des états S (Fig. 10), on s'attend à ce que la contribution associée au terme d'interférence soit faible. De même, l'absence probable de *time ordering* au sein de TS2 lors des collisions à haute vitesse étudiées ici risque de réduire les interférences entre TS1 et TS2.

III.4. Mécanismes - Comparaison entre le calcul PWBA et les contributions expérimentales

Dans le paragraphe précédent, en ajustant la fonction $\sigma_{red}(p)$ [relation (IV.1)] sur les données expérimentales, nous avons séparé quantitativement les contributions des processus TS1 et TS2 de peuplement des états $2s2p \ ^{1,3}P$, $2s3p \ ^3P$, $2s3s \ ^3S$ et $2s^2 \ ^1S$. Nous nous

proposons maintenant de comparer les résultats ainsi obtenus avec des calculs *ab-initio* PWBA. La comparaison portera sur les contributions TS2 et TS1 shake.

III.4.1. Contribution du processus TS2

Intéressons-nous dans un premier temps à la contribution du processus TS2. Étant donné que le modèle IPM-FO est susceptible d'être valable dans le domaine de vitesses de collision étudié dans ce travail, on peut considérer que, suite à la première interaction projectile-électron, les orbitales de la cible sont "gelées" tant que la deuxième interaction projectile-électron n'a pas eu lieu. Ainsi, pour déterminer la probabilité d'ionisation-excitation en couche K du lithium, il suffit de multiplier la probabilité d'ioniser un électron $1s$ du lithium neutre par la probabilité d'exciter un électron $1s$ du lithium neutre vers l'orbitale $n\ell$ ($n \geq 2$) considérée. En principe, ces probabilités doivent être également multipliées par la probabilité de ne pas ioniser ni exciter l'électron $2s$ du lithium. Cette dernière probabilité étant très proche de un, la probabilité totale d'ionisation-excitation par TS2 s'écrit simplement :

$$P(b) = 2P_i(b)P_e(b). \quad (\text{IV.2})$$

Les quantités $P_i(b)$ et $P_e(b)$ sont respectivement les probabilités de simple ionisation en couche K et de simple excitation $1s \rightarrow np$ du lithium neutre, exprimées en fonction du paramètre d'impact b . A partir de la probabilité totale ainsi obtenue, on peut déterminer les sections efficaces théoriques d'ionisation-excitation par processus TS2 :

$$\sigma_{TS2} = 2\pi \int_0^{\infty} P(b) b db. \quad (\text{IV.3})$$

Sur les figures 11 et 12, nous comparons la contribution théorique de TS2 (courbe en trait plein) avec les valeurs des sections efficaces expérimentales (points) pour les états P et S et avec la contribution de TS2 obtenue précédemment (courbe en pointillés) par ajustement des données expérimentales.

Pour ce qui est des sections efficaces relatives, on retrouve par la théorie la dépendance en p^4 adoptée lors de la procédure d'ajustement. Cette dépendance est conforme à la dépendance en $(Z_p / v_p)^4$ prévue par la théorie de Born dans le cas du processus TS2.

En ce qui concerne les sections efficaces absolues, la contribution théorique du processus TS2 est systématiquement plus grande que la contribution obtenue par ajustement sur les sections efficaces expérimentales. Dans le cas des états P (Fig. 11), la contribution théorique de TS2 est systématiquement 1,5 à 2 fois plus grande que la contribution ajustée. Il en est de même pour l'état $2s3s\ ^3S$ (Fig. 12). Par contre, on observe une différence d'un facteur 10 pour l'état $2s^2\ ^1S$.

Pour ce qui est des états P (Fig. 11) et de l'état $2s3s\ ^3S$ (Fig. 12), le fait que la différence entre les contributions calculées et ajustées pour le processus TS2 n'excède pas un facteur 2 est particulièrement satisfaisant, d'autant que la comparaison effectuée ici porte sur des sections efficaces *absolues*. Il est difficile de s'attendre à un meilleur accord dans la mesure où le calcul est réalisé dans le cadre de l'approximation de Born au premier ordre et que la prise en compte des deux étapes de TS2 repose sur l'approximation du modèle IPM-FO. Dans ce calcul, les éventuelles interactions de configurations ne sont pas traitées. En plus d'une possible surestimation lors du calcul des sections efficaces absolues, on ne peut exclure l'éventualité d'une erreur systématique (sous estimation) sur les données expérimentales liée à la procédure de normalisation des sections efficaces (chap. III). En particulier, les résultats du calcul PWBA utilisés pour la normalisation sont 1,2 à 1,3 inférieurs aux résultats obtenus par Nagy dans le cadre d'un calcul multiconfigurationnel [Nagy 2002, comm. privée]

- *Cas des états P*

Malgré la différence observée, le calcul confirme le fait que, lors du peuplement des états P (électrons d'énergie supérieure à 1 keV), le processus TS2 soit d'importance négligeable, et que son rôle soit prépondérant pour les paramètres de perturbations plus grands (Kr^{34+}). Pour les valeurs intermédiaires de p , c'est-à-dire pour les ions Ar^{18+} à 95 MeV/uma et les électrons projectiles de 0,5 keV, il est difficile de conclure de façon aussi catégorique. Cependant, on peut considérer que le processus TS2 est, pour ces projectiles, d'importance comparable au processus TS1 diélectronique.

- *Cas de l'état $2s^2\ ^1S$*

Dans le cas de l'état $2s^2\ ^1S$ (Fig. 12), la grande différence entre les résultats du calcul et ceux de l'ajustement n'est pas comprise. Notons cependant que, de manière similaire, pour la section efficace de peuplement de l'état $2s^2\ ^1S$ de l'hélium par impact de protons à 100 keV, un calcul basé sur la théorie de Born ne reproduit pas le résultat expérimental [Godunov *et al.* 2000]. La section efficace est surestimée par un facteur 2. Pourtant, contrairement à notre calcul, le calcul de Godunov *et al.* est mené jusqu'au second ordre et les interactions de configurations sont prises en compte. Dans le cas présent de l'état $2s^2\ ^1S$ du lithium, il semble que pour déterminer la contribution du processus TS2 un calcul prenant en compte aussi bien les interactions de configurations que les termes d'ordre supérieur (au moins jusqu'à l'ordre trois) de la théorie de Born soit nécessaire.

- *Cas de l'état $2s3s\ ^3S$*

Le résultat obtenu ici dans le cadre de l'approximation de Born au premier ordre montre que, contrairement au cas des états P , la contribution du processus TS2 lors du peuplement de l'état $2s3s\ ^3S$ est négligeable aussi bien pour les électrons projectiles que pour les ions Ar^{18+} et n'excède pas 50 % de la contribution totale dans le cas du Kr^{34+} .

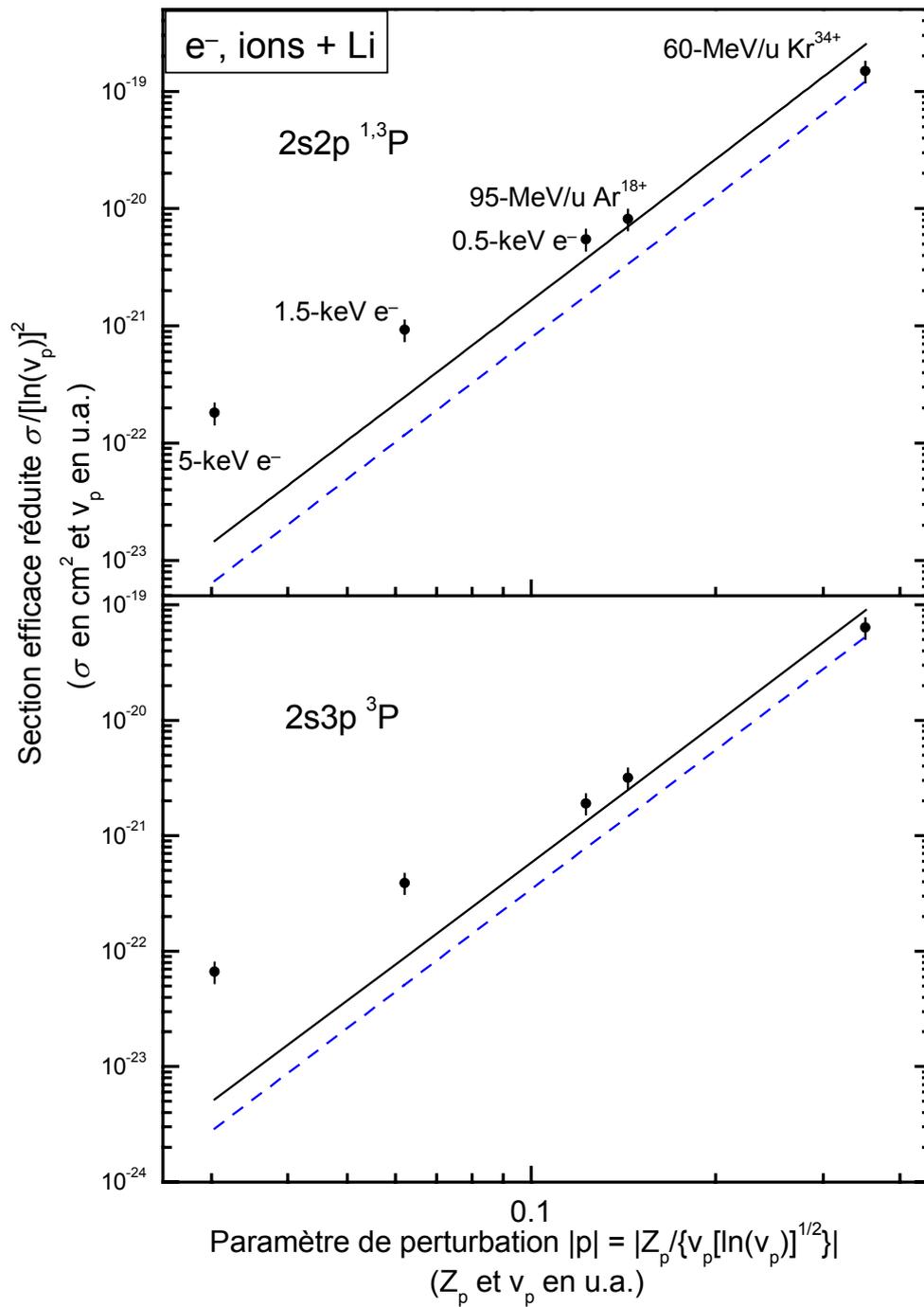


Figure 11. : Sections efficaces de peuplement des états P , totales divisées par $(\ln v_p)^2$, données en fonction de la valeur absolue du paramètre de perturbation p . L'incertitude relative sur les points expérimentaux est de 20 % pour les électrons projectiles et de 25 % pour les ions projectiles. La contribution TS2 expérimentale obtenue après ajustement est représentée en pointillés. Le résultat du calcul *ab-initio* PWBA correspond au trait plein.

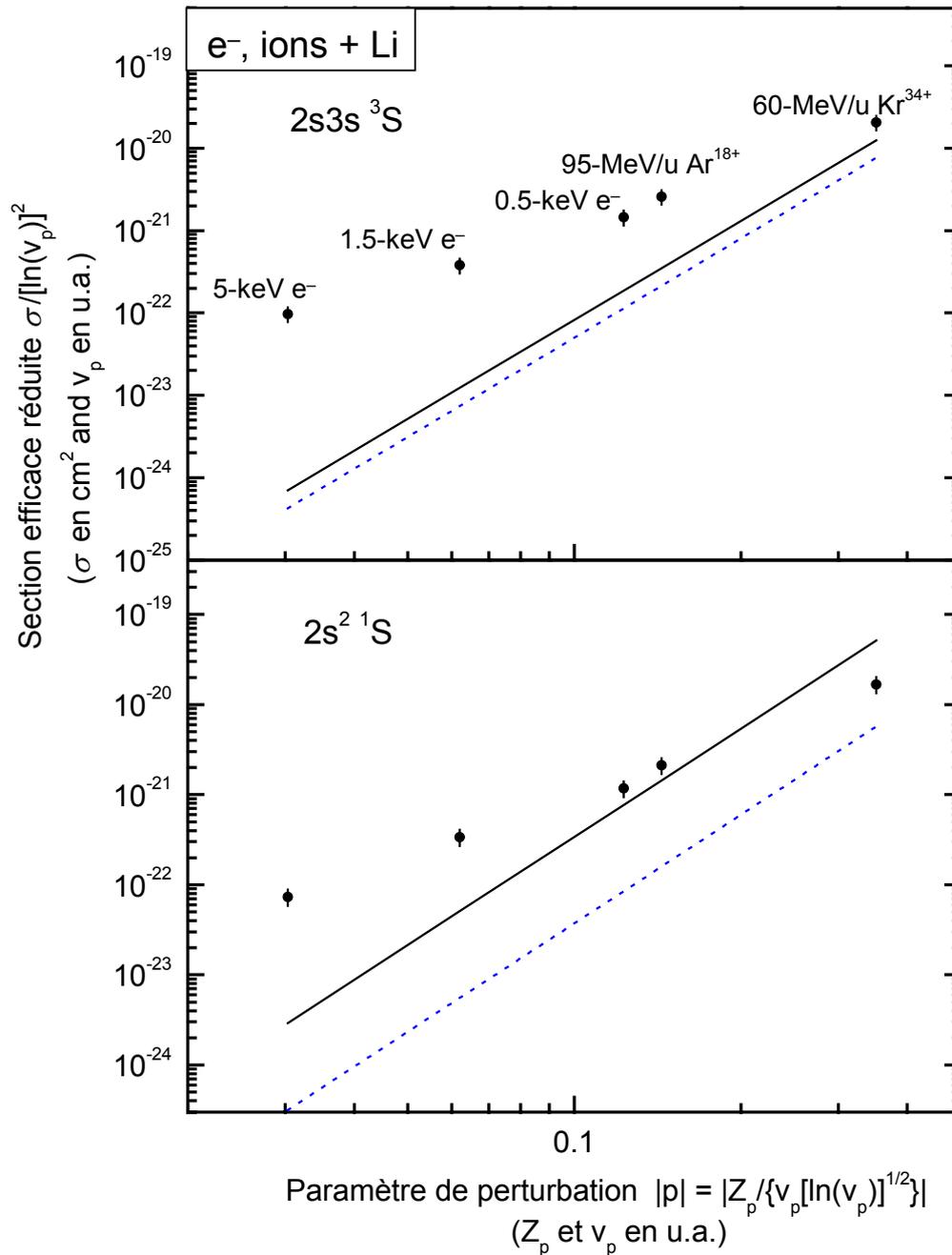


Figure 12. : Sections efficaces de peuplement des états S , totales divisées par $(\ln v_p)^2$, données en fonction de la valeur absolue du paramètre de perturbation p . L'incertitude relative sur les points expérimentaux est de 20 % pour les électrons projectiles et de 25 % pour les ions projectiles. La contribution TS2 expérimentale obtenue après ajustement est représentée en pointillés. Le résultat du calcul *ab-initio* PWBA correspond au trait plein.

Notons que, malgré les résultats du calcul, la même conclusion s'applique vraisemblablement pour l'état $2s^2\ ^1S$, la dépendance en paramètre de perturbation de la section efficace expérimentale correspondante étant la même que celle observée pour $2s3s\ ^3S$.

III.4.2. Contribution du processus TS1 shake

Comme indiqué dans le paragraphe précédent, le processus shake est susceptible de jouer un rôle négligeable lors du peuplement des états P . Par contre, lors de la formation des états S , une contribution significative du processus shake-up est envisageable. En première approximation, la section efficace de peuplement des états S par processus shake-up s'exprime comme suit :

$$\sigma_{s-u} = P_{s-u} \int_{\Delta E}^{\infty} \frac{d\sigma_{ion}^K}{d\varepsilon} d\varepsilon, \quad (IV.4)$$

avec $d\sigma_{ion}^K/d\varepsilon$ la section efficace de simple ionisation en couche K , différentielle en énergie de l'électron éjecté (cf. calcul PWBA, Annexe 2). La quantité P_{s-u} est la probabilité d'excitation du dernier électron $1s$ par processus shake-up (tableau 2). La limite ΔE correspond à l'énergie cinétique minimale que doit posséder le premier électron éjecté pour que la transition shake soit possible. Il s'agit de l'énergie cédée par l'électron ionisé aux électrons de la cible lors du réarrangement shake :

$$\Delta E_{(2s^2)} = |I_b(1s2s) - I_b(2s^2)| \text{ pour le peuplement de } 2s^2,$$

$$\Delta E_{(2s3s)} = |I_b(1s2s) - I_b(2s3s)| \text{ pour le peuplement de } 2s3s,$$

où $I_b(1s2s)$, $I_b(2s^2)$ et $I_b(2s3s)$ sont les énergies de liaison totales pour les configurations $1s2s$, $2s^2$ et $2s3s$, respectivement. A partir du code de calcul de structure atomique de Grant [Dyall *et al.* 1989], $\Delta E_{(2s^2)}$ est évaluée à 86,4 eV et $\Delta E_{(2s3s)}$ à 92,8 eV.

Sur la figure 13, nous avons reporté au moyen de losanges la contribution théorique du processus TS1 shake-up obtenue pour les états $2s3s\ ^3S$ et $2s^2\ ^1S$. Cette contribution est

comparée aux sections efficaces expérimentales et à la contribution totale du processus TS1 (courbe en pointillés) déterminée par ajustement sur les données expérimentales.

Comme le montre la figure 13, aussi bien pour l'état $2s3s\ ^3S$ que pour $2s^2\ ^1S$, la dépendance, en paramètre de perturbation, obtenue par le calcul pour le processus shake-up est en assez bon accord avec la dépendance adoptée pour le processus TS1 global (shake et diélectronique) lors de l'ajustement sur les données expérimentales. Cet accord valide la procédure d'ajustement pour le processus TS1. D'autre part, les valeurs absolues obtenues par le calcul sont en bon accord avec les sections efficaces expérimentales, les déviations étant systématiquement inférieures à un facteur 1,5.

L'accord observé va dans le sens d'une contribution shake-up majoritaire. Par ailleurs, en effectuant le rapport des probabilités shake-up associées aux états $2s3s\ ^3S$ et $2s^2\ ^1S$, on remarque que ce dernier est quasiment égal au rapport des sections efficaces expérimentales. Conformément aux prévisions, ce rapport est indépendant des paramètres de charge et de vitesse du projectile. De plus, conformément à l'expérience, le rapport des sections efficaces calculées pour les états $2s3s\ ^3S$ et $2s3s\ ^1S$ est voisin de 10. Même s'il est difficile de l'affirmer de manière catégorique, il semble, d'après l'ensemble de ces résultats, que le processus shake-up est pratiquement le seul processus responsable de la production d'états ioniques creux S .

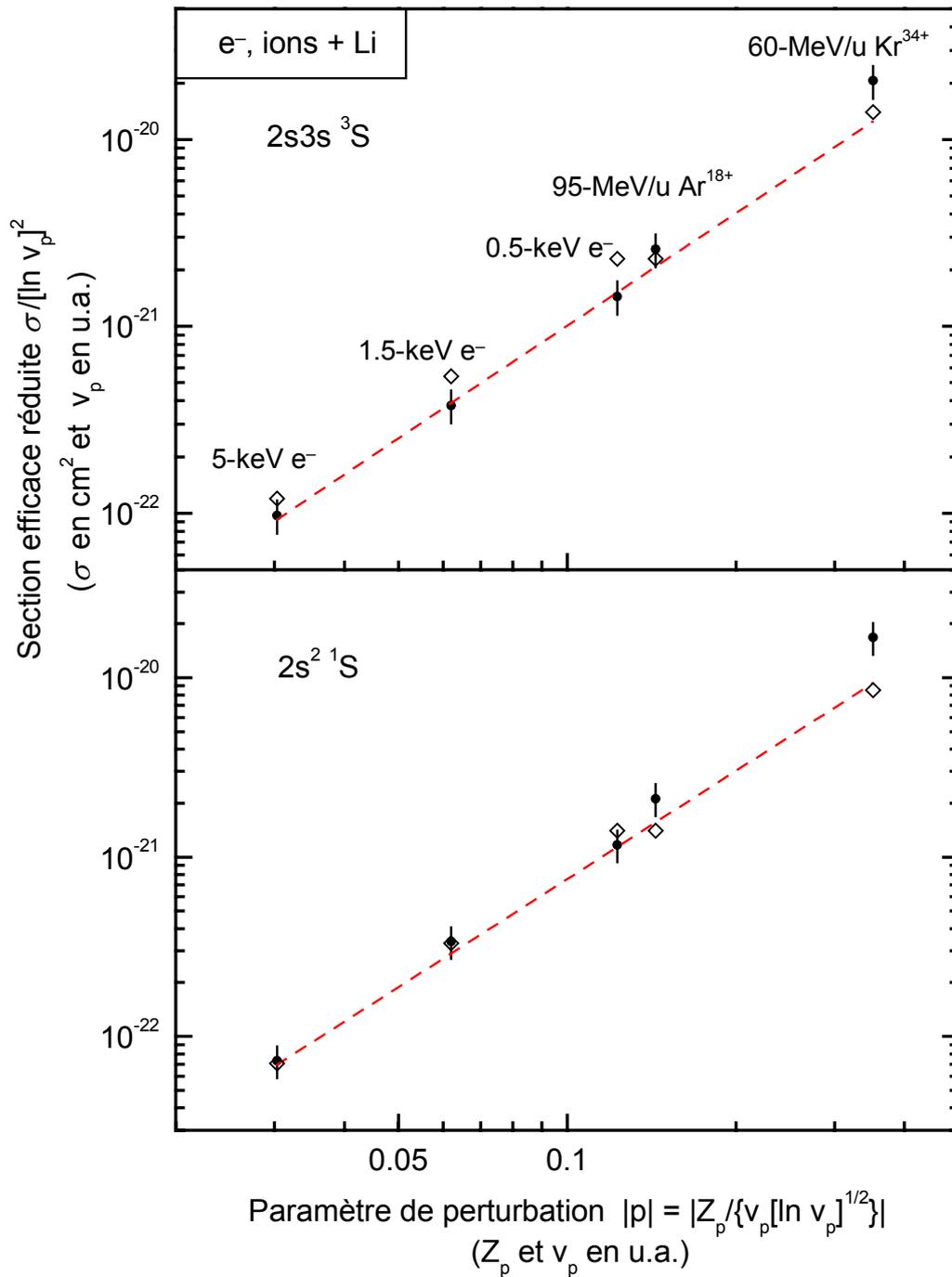


Figure 13. : Sections efficaces réduites en vitesse en fonction du paramètre commun p associées aux configurations $2sns$ avec $n = 2 - 3$. L'incertitude relative sur les points expérimentaux est de 20 % pour les électrons projectiles et de 30 % pour les ions projectiles. La contribution expérimentale relative au processus TS1 est représentée en pointillés. Les résultats du "calcul shake" sont représentés par des losanges.

IV. Conclusion :

Nous avons étudié les mécanismes de production de deux lacunes en couche K du lithium. Les spectres d'émission Auger, enregistrés lors de collisions ions + Li et électrons + Li à grande vitesse, ont permis d'obtenir les distributions angulaires d'émission Auger suite au peuplement d'états excités lors du processus d'ionisation-excitation. Contrairement aux états ioniques S , les états ioniques P présentent une distribution fortement anisotropes centrée à un angle d'émission de 90° . De manière analogue à la simple excitation, lorsque la vitesse du projectile est relativement faible, le peuplement de la composante $M_L = 0$ du sous-état magnétique est favorisé et, par conséquent, les états ioniques P produits s'alignent le long du faisceau projectile. Dans le cas contraire, les sous-états magnétiques $M_L = \pm 1$ sont favorisés et donc, les états P produits sont orientés selon la perpendiculaire au faisceau projectile.

Les sections efficaces totales de production ont été déterminées en intégrant les distributions angulaires. Dans le cas des états P , pour les petits paramètres de perturbation $|Z_p|/v_p$, la dépendance de la section efficace totale de production est pratiquement proportionnelle à $(Z_p/v_p)^2$ alors que, lorsque le paramètre de perturbation est supérieur à 0,5 u.a. environ, une dépendance en $(Z_p/v_p)^4$ est observée. Dans le cas des états S , la section efficace totale est proportionnelle à $(Z_p/v_p)^2$ pour l'ensemble des projectiles utilisés (sur tout le domaine de perturbation). Par conséquent, cette unique dépendance met clairement en évidence l'existence d'un mécanisme principal de production des états S . C'est le processus TS1 (shake et diélectronique). Dans le cas des états P , comme dans celui des états S , les interférences entre les processus TS1 et TS2 sont négligeables.

Des calculs *ab-initio* PWBA ont été effectuées pour vérifier les contributions obtenues pour les processus TS1 shake et TS2. Qu'il s'agisse du processus shake ou du processus TS2, les résultats du calcul confirment les choix effectués quant à leur dépendance en Z_p et en v_p .

lors de la procédure d'ajustement. En ce qui concerne le processus TS2, la différence entre les contributions théoriques et expérimentales n'excède pas un facteur 2 (sauf pour l'état $2s^2\ ^1S$). Le léger désaccord observé n'est pas surprenant, compte tenu des incertitudes liées à la procédure de normalisation des sections efficaces et aux approximations inhérentes à la méthode de calcul. Pour le peuplement des états S ($2s3s\ ^3S$), on vérifie grâce au calcul que la contribution de TS2 est négligeable. Pour les états P , le calcul PWBA confirme le fait que le processus TS2 soit négligeable aux faibles valeurs de paramètres de perturbation. Ainsi, l'observation des états P aux faibles valeurs de $|Z_p|/v_p$ (électrons projectiles) met clairement en évidence la manifestation de la nature diélectronique du processus TS1.

La contribution théorique du processus TS1 shake a été évaluée dans le cas des états S et comparée à la contribution obtenue par ajustement avec les valeurs expérimentales. Trois constats importants doivent être faits. Premièrement, la section efficace théorique de peuplement par shake est supérieure aux sections efficaces totales expérimentales, ce qui semble indiquer que le processus shake contribue de façon significative au peuplement des états S . Deuxièmement, le résultat du calcul pour le rapport entre les sections efficaces de formation des états $2s3s\ ^3S$ et $2s^2\ ^1S$ par processus shake est, conformément à l'expérience, supérieur à 1 et indépendant du projectile. Enfin, le calcul des probabilités shake reproduit de façon satisfaisante le rapport expérimental entre les sections efficaces de production des états $2s3s\ ^3S$ et $2s3s\ ^1S$. En particulier, le calcul montre que le peuplement de la configuration $2s3s$ par processus shake implique principalement un mécanisme d'échange qui interfère fortement avec le mécanisme direct. Les interférences entre le mécanismes direct et d'échange lors du peuplement du triplet $2s3s\ ^3S$ sont de nature constructives alors qu'elles sont destructives lors du peuplement du singulet $2s3s\ ^1S$. Ces interférences font que le rapport entre les sections efficaces de peuplement du triplet et du singulet par processus shake est très supérieur à 3. Ces trois constats vont dans le sens d'une prédominance du processus TS1 shake lors du peuplement des états S . Des calculs permettant de séparer les contributions relatives des processus shake et diélectronique sont cependant nécessaires pour affirmer que le processus shake est effectivement le principal mécanisme de production des états S .

Conclusion et perspectives

Dans ce mémoire, nous avons présenté, l'étude de la simple excitation et de l'ionisation-excitation en couche interne après impact d'ions et d'électrons à haute énergie sur une cible atomique de lithium. Nous avons centré nos recherches sur l'influence de l'énergie de collision et de la charge du projectile sur les processus de création de lacunes en couche K . Nous avons tout particulièrement mis l'accent sur les processus à deux électrons faisant intervenir les interactions projectile-électron et électron-électron.

Dans le cas des systèmes électrons + Li, un domaine d'énergie relativement large (0,5 - 5 keV) a été exploré avec une source d'électrons projectiles conçue au CIRIL. En ce qui concerne les systèmes ions + Li, les expériences ont été réalisées avec des ions Kr^{34+} à 60 MeV/uma fournis par la ligne LISE du GANIL de Caen. Ainsi, par spectroscopie d'électrons Auger, nous avons eu accès à un vaste domaine de paramètre de perturbation $|Z_p|/v_p$ (Z_p et v_p sont, respectivement, la charge et la vitesse du projectile).

Après simple excitation ou ionisation-excitation en couche K , la cible de lithium se désexcite exclusivement par émission d'électrons Auger. Par conséquent, les variations de l'émission Auger traduisent des variations, dans le même sens, des sections efficaces de la simple excitation ou l'ionisation-excitation en couche interne. De ce fait, la spectroscopie d'électrons Auger constitue une méthode expérimentale particulièrement bien adaptée pour étudier les processus de simple excitation et d'ionisation-excitation en couche K du lithium. La mise en œuvre de cette méthode est, de surcroît, plus simple que celle d'autres méthodes nécessitant, par exemple, des détections en coïncidences. Aussi permet-elle une étude systématique plus rapide que la plupart des autres méthodes expérimentales.

Dans le cas des collisions électrons + Li et ions + Li, les résultats présentent un certain nombre de similitudes. En ce qui concerne la simple excitation en couche K , les transitions de type dipolaire $1s \rightarrow np$ avec $n \geq 2$ sont largement dominantes par rapport aux transitions monopolaires $1s \rightarrow ns$ ($n \geq 2$). Par conséquent, l'interaction projectile-électron, responsable de la simple excitation, donne lieu principalement à des transitions dipolaires. Pour ce qui est

de l'ionisation-excitation, de fortes intensités sont observées pour les configurations $2sns$, dont la formation requiert au moins une transition de type monopolaire.

Contrairement aux états S produits lors de la simple excitation en couche interne, la distribution angulaire de l'émission Auger associée aux états P (produits par transition dipolaire) présente une anisotropie centrée autour de l'angle d'émission de 90° . En particulier, pour les plus faibles vitesses de collision explorées, la proportion de sous-états magnétiques $M_L = 0$ est dominante, traduisant alors l'alignement des états P selon de la direction du faisceau projectile. Au contraire, aux plus hautes vitesses, la proportion de composantes $M_L = \pm 1$ augmente, révélant ainsi l'alignement des états P selon la perpendiculaire au faisceau projectile. Ce résultat s'explique par le fait que, lorsque la vitesse de collision est plus élevée, la collision s'effectue sous des conditions de plus grands paramètres d'impact.

L'intégration des distributions angulaires d'émission Auger nous a permis de déterminer les sections efficaces totales de production des états de la simple excitation en couche K du lithium et de connaître leur dépendance en fonction du paramètre de perturbation $|Z_p|/v_p$. Lorsque le paramètre de perturbation augmente, les sections efficaces de la simple excitation en couche K augmentent également. Dans le cas des ions Kr^{34+} à 60 MeV/uma, les sections efficaces de simple excitation sont plus de 200 fois plus grandes que celles obtenues avec les électrons projectiles de 5 keV.

Les résultats expérimentaux obtenus pour la simple excitation sont comparés avec des sections efficaces calculées à partir de la détermination des probabilités d'excitation (méthode PWBA) dans le cadre de l'approximation de Born. Le bon accord observé entre la théorie de Born et l'expérience illustre la validité de la méthode PWBA lors du traitement des collisions étudiées dans ce travail. Une dépendance en $(Z_p/v_p)^2 \ln v_p$ est obtenue pour les sections efficaces de simple excitation en couche K du lithium.

Dans le cas de l'ionisation-excitation en couche K , même si les transitions dipolaires restent les transitions dominantes, pour chaque projectile, la proportion de transitions monopolaires est plus importante que dans le cas de la simple excitation en couche interne. Pour comprendre l'évolution de l'importance relative des transitions dipolaires et monopolaires lors de l'ionisation-excitation en couche interne, nous avons déterminé la contribution des divers processus à deux électrons entrant en jeu lors du peuplement des états P et S .

Dans le cas des états P , le processus dominant à faibles paramètres de perturbation est le processus TS1. Sa section efficace varie asymptotiquement (aux grandes vitesses) en $(Z_p / v_p)^2$. Dans ce cas, l'aspect purement diélectronique du processus TS1 est identifié, le processus shake n'étant pas attendu lors du peuplement des états P . Le processus à deux électrons dominant à plus fortes perturbations, suit une dépendance asymptotique en $(Z_p / v_p)^4$ et correspond au processus TS2. Par une méthode d'ajustement, nous avons séparé et évalué la contribution de ces processus dont les évolutions en fonction du paramètres de perturbation diffèrent nettement. Par ailleurs, la contribution des effets d'interférences, entre ces deux processus, est négligeable lors du peuplement des états P par ionisation-excitation en couche K du lithium.

Concernant les états S , le mécanisme principal de peuplement est le processus TS1 (shake et diélectronique). La contribution du processus TS2 est négligeable dans le domaine de paramètres de perturbation exploré dans ce travail. Comme pour les états P , les interférences entre les processus TS1 et TS2 sont largement négligeables.

Afin de valider les contributions des processus TS1 et TS2 évaluées par ajustement des sections efficaces expérimentales, aussi bien pour les états P que pour les états S , la contribution théorique du processus TS2 a été déterminée à l'aide d'un calcul *ab-initio* PWBA. Les résultats théoriques ainsi obtenus sont comparés aux données expérimentales. L'accord satisfaisant entre le calcul *ab-initio* PWBA et la contribution expérimentale du processus TS2

confirme la dépendance choisie pour le processus TS2 lors de la procédure d'ajustement. En effet, mis à part l'état $2s^2\ ^1S$, les sections efficaces théoriques absolues ne diffèrent pas des valeurs expérimentales de plus d'un facteur 1,5-2.

Pour les états S , nous avons aussi déterminé la contribution du processus TS1 shake, en calculant le recouvrement des fonctions d'ondes à deux électrons initiale et finale. La dépendance théorique du processus TS1 shake, ainsi obtenue, est en bon accord avec la contribution du processus TS1 global (shake et diélectronique) déterminée par ajustement. Également, un accord très satisfaisant est observé lorsque l'on compare les valeurs théoriques absolues avec les valeurs obtenues par ajustement. Ces résultats suggèrent que le processus shake-up joue un rôle décisif lors du peuplement des états $2sns\ ^{1,3}S$ du Li^+ par impact de particules chargées rapides.

Concernant les sections efficaces absolues, des calculs prenant en compte les interactions de configurations, donnant des résultats très satisfaisants dans le cas de la simple excitation en couche K du lithium [Nagy 2002, communication privée], sont en cours de réalisation pour le cas de l'ionisation-excitation en couche K . Les sections efficaces théoriques ainsi obtenues pourront être comparées à nos valeurs théoriques et expérimentales.

Du point de vue expérimental, la comparaison entre les photons et les particules chargées, en tant que projectiles, devrait apporter des informations essentielles quant à la séparation des processus shake et diélectronique. En effet, la contribution du processus diélectronique dépend de l'énergie du premier électron émis. Or, lors de la photoionisation, l'énergie de cet électron dépend de l'énergie du photon incident. Par conséquent, on s'attend à ce que, contrairement au processus shake, le processus diélectronique dépende également de l'énergie du photon. La comparaison de la dépendance en énergie de photon des sections efficaces avec celle obtenue lorsque des particules chargées sont utilisées comme projectiles devrait apporter des informations nouvelles sur l'importance relative des aspects shake et diélectronique de l'interaction électron-électron.

Dans nos spectres d'électrons Auger, quelques états triplement excités sont visibles. Par exemple, la configuration $2s^22p$ est susceptible d'être essentiellement créée par le processus TS1 alors que le peuplement de la configuration $2s2p^2$ est probablement dominée par le processus TS2. Des spectres enregistrés avec une meilleure statistique et à plus haute résolution permettraient de fournir des données expérimentales sur la production d'états triplement excités, utiles pour vérifier les prédictions quant aux mécanismes impliqués. De plus, ces données pourraient servir de point de départ pour de futurs développements théoriques.

ANNEXE 1

Excitation électronique dans l'approximation PWBA.

I. Introduction

Dans cette annexe, la méthode de calcul des probabilités d'excitation électronique dans l'approximation "Plane Wave Born Approximation" (PWBA) est présentée. Dans un premier temps, nous décrirons le Hamiltonien du système et les fonctions d'onde utilisées. Ensuite, nous déterminerons l'expression de l'élément de matrice de transition. Finalement, l'amplitude de probabilité de transition sera calculée. Le module au carré de l'amplitude de probabilités est égal à la probabilité d'excitation électronique. Dans cette annexe, les unités atomiques sont utilisées.

II. Hamiltonien du système.

On pose m_p et Z_p la masse et la charge du projectile et m_c la masse de la cible. La masse de la cible est supposée très grande devant la masse de l'électron. De cette façon, le centre de masse du système cible + électron peut être confondu avec celui de la cible. On utilisera par ailleurs les unités atomiques. On posera également $V_{cible}(r)$ le potentiel sous lequel l'électron actif voit la cible. Dans ce cas le Hamiltonien total du système peut s'écrire :

$$H_{rel} = -\frac{1}{2}\nabla_{\vec{r}}^2 + V_{cible}(r) - \frac{1}{2\mu}\nabla_{\vec{R}}^2 + \frac{Z_p}{R} - \frac{Z_p}{|\vec{R} - \vec{r}|}$$

Ici, μ est mis pour la masse réduite du projectile et de la cible soit :

$$\mu = \frac{m_p m_c}{m_p + m_c}$$

Ce Hamiltonien se compose de trois parties :

- Le Hamiltonien atomique, $H_{cible} = -\frac{1}{2}\nabla_{\vec{r}}^2 + V_{cible}(\vec{r})$ qui décrit le mouvement, non perturbé par le projectile, de l'électron actif autour de la cible.
- Le Hamiltonien du mouvement relatif du projectile par rapport à la cible, $H_{proj} = -\frac{1}{2\mu}\nabla_{\vec{R}}^2$
- Le potentiel d'interaction, $V_{int} = \frac{Z_p}{R} - \frac{Z_p}{|\vec{R} - \vec{r}|}$

Dans l'approximation de Born, on suppose que le potentiel d'interaction est suffisamment petit pour être traité comme une perturbation.

III. Fonctions d'onde utilisées.

La fonction d'onde totale se compose d'une fonction d'onde électronique et d'une fonction d'onde du projectile.

La fonction d'onde électronique est fonction propre du Hamiltonien atomique tel que :

$$H_{cible}\phi = E\phi$$

La fonction d'onde décrivant le mouvement du projectile est fonction propre du Hamiltonien projectile. Comme celui ci se réduit uniquement à un terme d'énergie cinétique, la fonction propre est une onde plane en $e^{i\vec{K}\vec{R}}$ tel que :

$$H_{proj}e^{i\vec{K}\vec{R}} = E_{coll}e^{i\vec{K}\vec{R}}$$

où E_{coll} représente l'énergie relative de collision tel que :

$$K = \sqrt{2\mu E_{coll}}$$

IV. Élément de matrice transition.

Dans le cadre de l'approximation de Born au premier ordre, c'est simplement l'élément de matrice du potentiel d'interaction V_{int} pris entre l'état initial (avant la collision) et l'état final (après la collision) :

$$T_{if}^{(B)} = \frac{1}{(2\pi)^3} \left\langle e^{i\vec{k}_f \cdot \vec{r}} \phi_f(\vec{r}) \left| V_{\text{int}} \right| e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}} \phi_i(\vec{r}) \right\rangle$$

La conservation de l'impulsion impose que la quantité de mouvement $\vec{q} = \vec{K}_i - \vec{K}_f$ soit transférée à la cible. C'est pour cela qu'on nomme cette quantité : moment transféré.

Le moment transféré \vec{q} est lui-même décomposé en deux composantes, l'une transverse $\vec{\eta}$ (orthogonale à la vitesse relative initiale) et l'autre longitudinale $\vec{\eta}'$ (parallèle à la vitesse relative initiale). On a donc :

$$\vec{q} = \vec{\eta} + \vec{\eta}'$$

si on appelle ε l'énergie transférée à l'électron, on a :

$$\varepsilon = E_f - E_i$$

La conservation de l'énergie impose :

$$\frac{K_i^2}{2\mu} + E_i = \frac{K_f^2}{2\mu} + E_f$$

ce qui peut s'écrire de la façon suivante :

$$\frac{K_i^2}{2\mu} - \frac{K_f^2}{2\mu} = E_f - E_i = \varepsilon$$

soit encore :

$$\frac{1}{2\mu}(K_i - K_f)(K_i + K_f) = \varepsilon$$

or

$$\eta' = K_i - K_f \cos \theta$$

si l'angle θ est petit alors :

$$\eta' \approx K_i - K_f$$

et si l'énergie transférée est petite devant l'énergie cinétique du projectile, alors :

$$\frac{1}{2\mu}(K_i + K_f) \approx \frac{2}{2\mu} K_i = v_p$$

il reste donc :

$$\eta' = \frac{\varepsilon}{v_p},$$

où v_p est la vitesse du projectile.

L'élément de matrice de transition peut encore se mettre sous la forme suivante :

$$T_{if}^{(B)} = \frac{1}{(2\pi)^3} \iint e^{i(\vec{k}_i - \vec{k}_f) \cdot \vec{R}} \phi_f^*(\vec{r}) \phi_i(\vec{r}) \left(\frac{Z_p}{R} - \frac{Z_p}{|\vec{R} - \vec{r}|} \right) d^3 R d^3 r.$$

On peut développer cette expression, ce qui donne :

$$T_{if}^{(B)} = \frac{1}{(2\pi)^3} \iint e^{i(\vec{k}_i - \vec{k}_f)\vec{R}} \phi_f^*(\vec{r}) \phi_i(\vec{r}) \left(\frac{Z_p}{R} \right) d^3 R d^3 r + \frac{1}{(2\pi)^3} \iint e^{i(\vec{k}_i - \vec{k}_f)\vec{R}} \phi_f^*(\vec{r}) \phi_i(\vec{r}) \left(-\frac{Z_p}{|\vec{R} - \vec{r}|} \right) d^3 R d^3 r$$

On suppose ici que la vitesse du projectile est grande devant la vitesse caractéristique de l'électron actif. On fait donc l'hypothèse de l'approximation soudaine. Dans ce cas, on peut considérer que les fonctions d'onde électroniques ne dépendent pas de la distance projectile-cible. On peut alors écrire :

$$\langle \phi_f(\vec{r}) | \frac{1}{R} | \phi_i(\vec{r}) \rangle \approx \delta_{if}$$

Ce terme se trouve en facteur dans la première partie de l'élément de matrice de transition écrit plus haut. Et puisqu'on étudie une collision inélastique, on peut le négliger. En outre, on peut remplacer le moment initial et final du projectile par le moment transféré, il reste alors :

$$T_{if}^{(B)} = -Z_p \frac{1}{(2\pi)^3} \iint e^{i\vec{q}\vec{R}} \phi_f^*(\vec{r}) \phi_i(\vec{r}) \left(\frac{1}{|\vec{R} - \vec{r}|} \right) d^3 R d^3 r$$

L'intégration sur R se réalise aisément. En effet, il s'agit de l'intégrale de Bethe dont le résultat est le suivant :

$$\int \frac{e^{i\vec{q}\vec{R}}}{|\vec{R} - \vec{r}|} d^3 R = \frac{4\pi}{q^2} e^{i\vec{q}\vec{r}}$$

L'élément de matrice de transition se simplifie et devient :

$$T_{if}^{(B)} = -\frac{2Z_p}{(2\pi)^2 q^2} \int e^{i\vec{q}\vec{r}} \phi_f^*(\vec{r}) \phi_i(\vec{r}) d^3 r$$

On a coutume de définir le facteur de forme $F_{if}(\vec{q})$ par le terme intégral de l'élément de matrice de transition :

$$F_{if}(\vec{q}) = \int e^{i\vec{q}\vec{r}} \phi_f^*(\vec{r}) \phi_i(\vec{r}) d^3 r$$

ce qui donne pour l'élément de matrice de transition :

$$T_{if}^{(B)} = -\frac{2 Z_p}{(2\pi)^2 q^2} F_{if}(\vec{q})$$

Décomposons les trois fonctions de l'intégrant en parties radiale et angulaire :

$$e^{i\vec{q}\vec{r}} = 4\pi \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l i^l j_l(qr) Y_l^{m*}(\hat{q}) Y_l^m(\hat{r}),$$

où $j_l(qr)$ est une fonction de Ricatti-Bessel sphérique d'ordre l et d'argument réel.

Les deux autres termes sont des harmoniques sphériques dans lesquelles l'argument, noté en abrégé \hat{u} , représente les angles polaire et azimutal du vecteur \vec{u} .

De même pour les deux états liés on a :

$$\phi_i(\vec{r}) = R_{n_i l_i}(r) Y_{l_i}^{m_i}(\hat{r})$$

et

$$\phi_f(\vec{r}) = R_{n_f l_f}(r) Y_{l_f}^{m_f}(\hat{r})$$

La partie radiale de ces fonctions est un réel, tandis que la partie angulaire est un complexe.

V. Calcul de l'élément de matrice de transition.

On remplace dans le facteur de forme les fonctions par leur décomposition et on obtient :

$$F_{if} = 4\pi \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l i^l \int j_l(qr) R_{n,l_i}(r) R_{n,l_f}(r) Y_l^{m*}(\hat{q}) Y_l^m(\hat{r}) Y_{l_i}^{m_i}(\hat{r}) Y_{l_f}^{m_f*}(\hat{r}) d^3 r$$

Grâce aux propriétés des harmoniques sphériques on va pouvoir intégrer facilement sur \hat{r} .

En effet,

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

et

$$\int Y_{l_1}^{m_1}(\hat{r}) Y_{l_2}^{m_2}(\hat{r}) Y_{l_3}^{m_3}(\hat{r}) d^3 \hat{r} = \sqrt{\frac{(2l_1+1)(2l_2+1)(2l_3+1)}{4\pi}} \begin{pmatrix} l_1 & l_2 & l_3 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_1 & l_2 & l_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix}$$

Le facteur de forme devient donc :

$$F_{if} = \sqrt{4\pi} \sum_{l=0}^{\infty} i^l \sqrt{(2l_i+1)(2l+1)(2l_f+1)} \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \sum_{m=-l}^l (-1)^{m_f} Y_l^{m*}(\hat{q}) \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ m_i & m & -m_f \end{pmatrix} \zeta_{l,l_f}^l(q)$$

en posant :

$$\zeta_{l,l_f}^l(q) = \int j_l(qr) R_{n,l_i}(r) R_{n,l_f}(r) r^2 dr$$

ce qui donne pour l'élément de matrice de transition :

$$T_{if}^{(B)} = -\frac{2^{\frac{3}{2}} Z_p}{(2\pi)^3 q^2} \sum_{l=0}^{\infty} i^l \sqrt{(2l_i+1)(2l+1)(2l_f+1)} \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \sum_{m=-l}^l (-1)^{m_f} Y_l^{m*}(\hat{q}) \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ m_i & m & -m_f \end{pmatrix} \zeta_{l,l_f}^l(q)$$

VI. Amplitude de diffusion.

L'amplitude de diffusion se déduit de l'élément de matrice de transition par transformation de Fourier à deux dimensions :

$$a_{if}(\rho, \nu) = \frac{2}{(2\pi)^2} \frac{1}{v_p} \int d^2\eta e^{i\vec{\eta}\vec{\rho}} T_{if}^{(B)}.$$

On obtient alors l'amplitude de diffusion suivante :

$$a_{if}(\rho, \nu) = -\frac{2Z_p}{v_p \sqrt{\pi}} \sum_{l=0}^{\infty} i^l \sqrt{(2l_i+1)(2l+1)(2l_f+1)} \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \sum_{m=-l}^l (-1)^{m_f} \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ m_i & m & -m_f \end{pmatrix} A$$

en posant :

$$A = \int d^2\eta \frac{e^{i\vec{\eta}\vec{\rho}}}{q^2} Y_l^{m*}(\vec{q}) \zeta_{l,l_f}^l(q)$$

Avant d'aller plus loin, explicitons les angles. Les quatre vecteurs suivants sont coplanaires.

$$\begin{aligned} &\vec{K}_i (\theta_{K_i} = 0) \\ &\vec{K}_f (\theta_{K_f}; \varphi_{K_f}) \\ &\vec{\eta} (\theta_{\eta} = \pi/2; \varphi_{\eta}) \\ &\vec{q} (\theta_q; \varphi_q) \end{aligned}$$

Ils ont donc le même angle azimutal :

$$\varphi_{K_f} = \varphi_{\eta} = \varphi_q$$

Le paramètre d'impact $\vec{\rho} (\theta_{\rho} = \pi/2; \varphi_{\rho})$ est dans un plan perpendiculaire au moment initial du projectile \vec{K}_i et contient la composante transverse du moment transféré $\vec{\eta}$. L'angle azimutal entre $\vec{\rho}$ et $\vec{\eta}$ vaut $\varphi_{\eta} - \varphi_{\rho}$.

Considérons maintenant l'intégrale $A = \int d^2\eta \frac{e^{i\vec{\eta}\vec{\rho}}}{q^2} Y_l^{m*}(\vec{q}) \zeta_{l,l_f}^l(q)$. Séparons la en partie radiale et angulaire. Il n'y aura pas de dépendance en angle polaire θ puisque le paramètre d'impact et la composante transverse du moment transféré sont perpendiculaires. Il ne subsistera qu'une dépendance azimutale.

$$A = \int_0^\infty \eta d\eta \frac{\zeta_{l,l_f}^l(q)}{q^2} \int_0^{2\pi} d\varphi_\eta e^{i\eta\rho \cos(\varphi_\eta - \varphi_\rho)} Y_l^{m*}(\theta_q, \varphi_\eta)$$

Or entre les harmoniques sphériques et les polynômes de Legendre, on a la relation suivante :

$$Y_l^m(\theta, \varphi) = (-1)^m \sqrt{\frac{(2l+1)(l-m)!}{4\pi(l+m)!}} P_l^m(\cos\theta) e^{im\varphi}$$

comme $Y_l^{m*}(\theta, \varphi) = (-1)^m Y_l^{-m}(\theta, \varphi)$, cela donne :

$$Y_l^{m*}(\theta, \varphi) = \sqrt{\frac{(2l+1)(l+m)!}{4\pi(l-m)!}} P_l^{-m}(\cos\theta) e^{-im\varphi}$$

$$\text{mais : } P_l^{-m}(\cos\theta) = (-1)^m \frac{(l-m)!}{(l+m)!} P_l^m(\cos\theta)$$

donc :

$$Y_l^{m*}(\theta, \varphi) = (-1)^m \sqrt{\frac{(2l+1)(l-m)!}{4\pi(l+m)!}} P_l^m(\cos\theta) e^{-im\varphi}$$

Ainsi l'intégrale A devient :

$$A = (-1)^m \sqrt{\frac{(2l+1)(l-m)!}{4\pi(l+m)!}} \int_0^\infty \eta d\eta \frac{\zeta_{l,l_f}^l(q)}{q^2} P_l^m(\cos\theta_q) \int_0^{2\pi} d\varphi_\eta e^{i\eta\rho \cos(\varphi_\eta - \varphi_\rho)} e^{-im\varphi_\eta}$$

L'intégrale sur φ est connue :

$$\int_0^{2\pi} d\beta e^{iz \cos \beta} e^{-im\beta} = 2\pi i^{-m} J_{-m}(z).$$

Or pour m entier, on a $i^{-m} = (-i)^m$ et on a de plus : $(-1)^m J_{-m}(z) = J_m(z)$. Ici, les $J_m(z)$ sont des fonctions de Bessel régulières d'indice entier.

L'intégrale angulaire devient donc :

$$\int_0^{2\pi} d\varphi_\eta e^{i\eta\rho \cos(\varphi_\eta - \varphi_\rho)} e^{-im\varphi_\eta} = 2\pi (-i)^m (-1)^{-m} J_m(\eta\rho) e^{-im\varphi_\rho}$$

L'intégrale complète A devient :

$$A = (-i)^m \sqrt{\pi} \sqrt{\frac{(2l+1)(l-m)!}{(l+m)!}} \int_0^\infty \eta d\eta \frac{\zeta_{l,l_f}^l(q)}{q^2} P_l^m(\cos \theta_q) J_m(\eta\rho) e^{-im\varphi_\rho}$$

Finalement l'amplitude de diffusion s'écrit :

$$a_{if}(\rho\nu) = -\frac{2Z_p}{v_p} \sum_{l=0}^{\infty} i^l (2l+1) \sqrt{(2l_i+1)(2l_f+1)} \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \sum_{m=-l}^l (-1)^{m_f} (-i)^m \sqrt{\frac{(l-m)!}{(l+m)!}} \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ m_i & m & -m_f \end{pmatrix} \\ \times \int_0^\infty d\eta \frac{\eta}{q^2} \zeta_{l,l_f}^l(q) P_l^m(\cos \theta_q) J_m(\eta\rho) e^{-im\varphi_\rho}$$

La symétrie des 3j impose :

$$m = m_f - m_i$$

$$l_{\min} \leq l \leq l_{\max}$$

avec :

$$l_{\min} = \sup\{|l_i - l_f|, m\}$$

$$l_{\max} = l_i + l_f$$

Ces éléments de symétrie rendent la sommation sur les moments angulaires plus facile. On peut également noter pour le terme imaginaire que :

$$i^l (-i)^m = (-1)^m i^{l+m}$$

ANNEXE 2

Ionisation électronique dans l'approximation PWBA.

I. Introduction

La méthode de calcul des probabilités d'ionisation électronique dans l'approximation PWBA est donnée dans cette annexe. Le Hamiltonien du système et la fonction d'onde initiale ont été présentés dans l'annexe précédente. On comprend, en effet, que le début du traitement est identique au cas de l'excitation (cf. annexe précédente). Nous donnerons d'abord l'expression de la fonction d'onde finale qui est, dans le cas de l'ionisation électronique, une fonction du continuum. Ensuite, l'expression de l'élément de matrice de transition ainsi que celle de l'amplitude de transition seront déterminées.

II. Fonction d'onde de l'état final

Dans le cas de l'ionisation, l'expression de la fonction du continuum est plus complexe. On prend une fonction de la forme :

$$\phi_f(\vec{r}) = \frac{1}{k} \sum_{l_f=0}^{\infty} \sum_{m_f=-l_f}^{l_f} i^{l_f} e^{-i\sigma_{l_f}} R_{k_f l_f}(r) Y_{l_f}^{m_f*}(\hat{k}) Y_{l_f}^{m_f}(\hat{r})$$

où k est l'impulsion de l'électron éjecté.

La phase σ_{l_f} est choisie de sorte que la partie radiale de cette fonction soit réelle tandis que la partie angulaire demeure un complexe.

L'orthogonalité pour les l, l' et m, m' différents est assurée par les fonctions angulaires. Les fonctions radiales, elles, doivent être normalisées par la condition :

$$\int_0^{\infty} r^2 R_{k'l} R_{kl} dr = \delta(k' - k)$$

En normalisant les fonctions d'onde, non pas d'après l'échelle de k , mais d'après l'échelle sur l'énergie de l'électron ionisé, à savoir par la condition :

$$\int_0^{\infty} r^2 R_{E'l} R_{El} dr = \delta(E' - E)$$

on aura la relation suivante entre les deux représentations de la fonction :

$$R_{El} = \frac{1}{\sqrt{k}} R_{kl}$$

III. Calcul de l'élément de matrice de transition.

On remplace dans le facteur de forme les fonctions par leur décomposition et on obtient :

$$F_{if} = \frac{4\pi}{k} \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l \sum_{l_f=0}^{\infty} \sum_{m_f=-l_f}^{l_f} \left\{ i^{(l-l_f)} e^{i\sigma_{l_f}} Y_{l_f}^{m_f}(\hat{k}) Y_l^{m*}(\hat{q}) \right. \\ \left. \times \int J_l(qr) R_{n,l_i}(r) R_{kl_f}(r) Y_l^m(\hat{r}) Y_{l_i}^{m_i}(\hat{r}) Y_{l_f}^{m_f}(\hat{r}) d^3r \right\}.$$

Grâce aux propriétés des harmoniques sphériques on va pouvoir intégrer facilement sur \hat{r} .

En effet,

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

et

$$\int Y_{l_1}^{m_1}(\hat{r}) Y_{l_2}^{m_2}(\hat{r}) Y_{l_3}^{m_3}(\hat{r}) d^3\hat{r} = \sqrt{\frac{(2l_1+1)(2l_2+1)(2l_3+1)}{4\pi}} \begin{pmatrix} l_1 & l_2 & l_3 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_1 & l_2 & l_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix}.$$

Le facteur de forme devient donc :

$$F_{if} = \frac{\sqrt{4\pi}}{k} \sum_{l_f=0}^{\infty} \sum_{l=0}^{\infty} i^{(l-l_f)} e^{i\sigma_{l_f}} \sqrt{(2l_i+1)(2l+1)(2l_f+1)} \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \\ \times \sum_{m_f=-l_f}^{l_f} \sum_{m=-l}^l (-1)^{m_f} Y_l^{m*}(\hat{q}) Y_{l_f}^{m_f}(\hat{k}) \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ m_i & m & -m_f \end{pmatrix} \zeta_{l_i l_f}^l(q)$$

en posant :

$$\zeta_{l_i l_f}^l(q) = \int j_l(qr) R_{n_i l_i}(r) R_{kl_f}(r) r^2 dr,$$

ce qui donne pour l'élément de matrice de transition :

$$T_{if}^{(B)} = -\frac{2^{3/2} Z_p}{(2\pi)^3 k q^2} \sum_{l_f=0}^{\infty} \sum_{l=0}^{\infty} i^{(l-l_f)} e^{i\sigma_{l_f}} \sqrt{(2l_i+1)(2l+1)(2l_f+1)} \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \\ \times \sum_{m_f=-l_f}^{l_f} \sum_{m=-l}^l (-1)^{m_f} Y_l^{m*}(\hat{q}) Y_{l_f}^{m_f}(\hat{k}) \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ m_i & m & -m_f \end{pmatrix} \zeta_{l_i l_f}^l(q).$$

IV. Amplitude de diffusion.

L'amplitude de diffusion se déduit de l'élément de matrice de transition par transformation de Fourier à deux dimensions :

$$a_{if}(\rho, \nu_p) = \frac{2}{(2\pi)^2} \frac{1}{\nu_p} \int d^2 \eta e^{i\eta \bar{\rho}} T_{if}$$

on obtient alors l'amplitude de diffusion suivante :

$$a_{if}(\rho, \nu) = -\frac{2Z_p}{\nu_p k \sqrt{\pi}} \sum_{l_f=0}^{\infty} \sum_{l=0}^{\infty} i^{(l-l_f)} e^{i\sigma_{l_f}} \sqrt{(2l_i+1)(2l+1)(2l_f+1)} \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \\ \times \sum_{m_f=-l_f}^{l_f} \sum_{m=-l}^l (-1)^{m_f} Y_{l_f}^{m_f}(\hat{k}) \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ m_i & m & -m_f \end{pmatrix} A$$

en posant :

$$A = \int d^2\eta \frac{e^{i\tilde{\eta}\tilde{\rho}}}{q^2} Y_l^{m*}(\tilde{q}) \zeta_{l,l_f}^l(q)$$

On montre (cf. annexe précédente) que A s'écrit comme suit :

$$A = (-i)^m \sqrt{\pi} \sqrt{\frac{(2l+1)(l-m)!}{(l+m)!}} \int_0^\infty \eta d\eta \frac{\zeta_{l,l_f}^l(q)}{q^2} P_l^m(\cos\theta_q) J_m(\eta\rho) e^{-im\phi_\rho}$$

Finalement l'amplitude de diffusion s'écrit :

$$\begin{aligned} a_{if}(\rho, \mathbf{v}_p) &= -\frac{2Z_p}{k v_p} \sum_{l_f=0}^\infty \sum_{l=0}^\infty i^{(l-l_f)} e^{i\sigma_{l_f}} (2l+1) \sqrt{(2l_i+1)(2l_f+1)} \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \\ &\times \sum_{m_f=-l_f}^{l_f} \sum_{m=-l}^l (-1)^{m_f} (-i)^m Y_{l_f}^{m_f}(\tilde{k}) \sqrt{\frac{(l-m)!}{(l+m)!}} \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ m_i & m & -m_f \end{pmatrix} \\ &\times \int_0^\infty d\eta \frac{\eta}{q^2} \zeta_{l,l_f}^l(q) P_l^m(\cos\theta_q) J_m(\eta\rho) e^{-im\phi_\rho}. \end{aligned}$$

La symétrie des 3j impose :

$$m = m_f - m_i$$

$$l_{\min} \leq l \leq l_{\max}$$

avec :

$$l_{\min} = \sup\{|l_i - l_f|, m\}$$

$$l_{\max} = l_i + l_f.$$

Ces éléments de symétrie rendent la sommation sur les moments angulaires plus facile. On peut également noter pour le terme imaginaire que :

$$i^l (-i)^m = (-1)^m i^{l+m} .$$

Le carré de l'amplitude de probabilité devient :

$$\begin{aligned} |a_{if}(\rho, \mathbf{v}_p)|^2 &= \frac{4Z_p^2}{k^2 v_p^2} (2l_i + 1) \sum_{l_f=0}^{\infty} i^{l_f} e^{-i\sigma_{l_f}} \sqrt{(2l_f + 1)} \sum_{l'_f=0}^{\infty} i^{-l'_f} e^{i\sigma_{l'_f}} \sqrt{(2l'_f + 1)} \\ &\quad \sum_{m_f=-l_f}^{l_f} \sum_{m'_f=-l'_f}^{l'_f} (-1)^{m_f+m'_f} Y_{l'_f}^{m'_f}(\widehat{k}) Y_{l_f}^{m_f*}(\widehat{k}) \\ &\quad \times \sum_{l=0}^{\infty} i^{-l} (2l+1) \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \sum_{l'=0}^{\infty} i^{l'} (2l'+1) \begin{pmatrix} l_i & l' & l'_f \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \\ &\quad \times (-i)^{m-m'} e^{i(m-m')\varphi_\rho} \frac{\sqrt{(l-m)!}}{\sqrt{(l+m)!}} \frac{\sqrt{(l'-m')!}}{\sqrt{(l'+m')!}} \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ m_i & m & -m_f \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_i & l' & l'_f \\ m_i & m' & -m'_f \end{pmatrix} \\ &\quad \times \int_0^\infty d\eta \frac{\eta}{q^2} \zeta_{l,l_f}^l(q) P_l^m(\cos\theta_q) J_m^*(\eta\rho) \int_0^\infty d\eta' \frac{\eta'}{q'^2} \zeta_{l,l'_f}^{l'}(q') P_{l'}^{m'}(\cos\theta_{q'}) J_{m'}(\eta'\rho) . \end{aligned}$$

Regardons le cas particulier où l'on intègre sur les angles de k . Dans ce cas,

$$\int Y_{l_f}^{m_f*}(\widehat{k}) Y_{l'_f}^{m'_f}(\widehat{k}) d\widehat{k} = \delta_{l_f, l'_f} \delta_{m_f, m'_f} ,$$

et le carré de l'amplitude de probabilité devient :

$$\begin{aligned} |a_{if}(\rho, \mathbf{v}_p)|^2 &= \frac{4Z_p^2}{k^2 v_p^2} (2l_i + 1) \sum_{l_f=0}^{\infty} (2l_f + 1) \\ &\quad \sum_{m_f=-l_f}^{l_f} \sum_{l=0}^{\infty} i^{-l} (2l+1) \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \sum_{l'=0}^{\infty} i^{l'} (2l'+1) \begin{pmatrix} l_i & l' & l'_f \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \\ &\quad \times \frac{\sqrt{(l-m)!}}{\sqrt{(l+m)!}} \frac{\sqrt{(l'-m')!}}{\sqrt{(l'+m')!}} \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ m_i & m & -m_f \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_i & l' & l'_f \\ m_i & m & -m_f \end{pmatrix} \\ &\quad \times \int_0^\infty d\eta \frac{\eta}{q^2} \zeta_{l,l_f}^l(q) P_l^m(\cos\theta_q) J_m^*(\eta\rho) \int_0^\infty d\eta' \frac{\eta'}{q'^2} \zeta_{l,l'_f}^{l'}(q') P_{l'}^{m'}(\cos\theta_{q'}) J_{m'}(\eta'\rho) . \end{aligned}$$

Revenons au cas général et remplaçons les harmoniques sphériques sur k par les polynômes de Legendre :

$$\begin{aligned}
|a_{if}(\rho, v_p)|^2 &= \frac{4Z_p^2}{k^2 v_p^2} (2l_i + 1) \sum_{l_f=0}^{\infty} i^{l_f} e^{-i\sigma_{l_f}} \sqrt{(2l_f + 1)} \sum_{l'_f=0}^{\infty} i^{-l'_f} e^{i\sigma_{l'_f}} \sqrt{(2l'_f + 1)} \\
&\quad \sum_{m_f=-l_f}^{l_f} \sum_{m'_f=-l'_f}^{l'_f} \sqrt{\frac{(2l_f + 1)(l_f - m_f)!}{4\pi(l_f + m_f)!}} \sqrt{\frac{(2l'_f + 1)(l'_f - m'_f)!}{4\pi(l'_f + m'_f)!}} P_{l_f}^{m_f}(\cos\theta_k) P_{l'_f}^{m'_f}(\cos\theta_k) e^{i(m'_f - m_f)\phi_k} \\
&\quad \times \sum_{l=0}^{\infty} i^{-l} (2l + 1) \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \sum_{l'=0}^{\infty} i^{l'} (2l' + 1) \begin{pmatrix} l_i & l' & l'_f \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \\
&\quad \times (-i)^{m-m'} e^{i(m-m')\varphi_\rho} \sqrt{\frac{(l-m)!}{(l+m)!}} \sqrt{\frac{(l'-m')!}{(l'+m')!}} \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ m_i & m & -m_f \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_i & l' & l'_f \\ m_i & m' & -m'_f \end{pmatrix} \\
&\quad \times \int_0^{\infty} d\eta \frac{\eta}{q^2} \zeta_{l,l_f}^l(q) P_l^m(\cos\theta_q) J_m^*(\eta\rho) \int_0^{\infty} d\eta' \frac{\eta'}{q'^2} \zeta_{l',l'_f}^{l'}(q') P_{l'}^{m'}(\cos\theta_{q'}) J_{m'}(\eta'\rho).
\end{aligned}$$

Intégrons sur l'angle azimutal de k . Cela entraîne $m_f = m'_f$ et par la suite $m = m'$ puisque $m = m_f - m_i$. La dépendance en angle azimutal sur ρ disparaît également. D'autre part, on a :

$$J_m^*(\eta\rho) = J_m(\eta\rho).$$

Il reste donc :

$$\begin{aligned}
|a_{if}(\rho, v_p)|^2 &= \frac{4Z_p^2}{k^2 v_p^2} (2l_i + 1) \sum_{l_f=0}^{\infty} i^{l_f} e^{-i\sigma_{l_f}} \sqrt{(2l_f + 1)} \sum_{l'_f=0}^{\infty} i^{-l'_f} e^{i\sigma_{l'_f}} \sqrt{(2l'_f + 1)} \\
&\quad \sum_{m_f=-l_f}^{l_f} \sqrt{\frac{(2l_f + 1)(l_f - m_f)!}{4\pi(l_f + m_f)!}} \sqrt{\frac{(2l'_f + 1)(l'_f - m_f)!}{4\pi(l'_f + m_f)!}} P_{l_f}^{m_f}(\cos\theta_k) P_{l'_f}^{m_f}(\cos\theta_k) \\
&\quad \times \sum_{l=0}^{\infty} i^{-l} (2l + 1) \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \sum_{l'=0}^{\infty} i^{l'} (2l' + 1) \begin{pmatrix} l_i & l' & l'_f \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \\
&\quad \times \sqrt{\frac{(l-m)!}{(l+m)!}} \sqrt{\frac{(l'-m)!}{(l'+m)!}} \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ m_i & m & -m_f \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_i & l' & l'_f \\ m_i & m & -m_f \end{pmatrix} \\
&\quad \times \int_0^{\infty} d\eta \frac{\eta}{q^2} \zeta_{l,l_f}^l(q) P_l^m(\cos\theta_q) J_m(\eta\rho) \int_0^{\infty} d\eta' \frac{\eta'}{q'^2} \zeta_{l',l'_f}^{l'}(q') P_{l'}^{m_f}(\cos\theta_{q'}) J_m(\eta'\rho),
\end{aligned}$$

soit encore :

$$\begin{aligned}
|a_{if}(\rho, \nu_p)|^2 &= \frac{Z_p^2}{\pi k^2 \nu_p^2} (2l_i + 1) \sum_{l_f=0}^{\infty} i^{l_f} e^{-i\sigma_{l_f}} (2l_f + 1) \sum_{l'_f=0}^{\infty} i^{-l'_f} e^{i\sigma_{l'_f}} (2l'_f + 1) \\
&\quad \sum_{m_f=-l_f}^{l_f} \sqrt{\frac{(l_f - m_f)!}{(l_f + m_f)!}} \sqrt{\frac{(l'_f - m_f)!}{(l'_f + m_f)!}} P_{l_f}^{m_f}(\cos \theta_k) P_{l'_f}^{m_f}(\cos \theta_k) \\
&\quad \times \sum_{l=0}^{\infty} i^{-l} (2l + 1) \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \sum_{l'=0}^{\infty} i^{l'} (2l' + 1) \begin{pmatrix} l_i & l' & l'_f \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \\
&\quad \times \sqrt{\frac{(l - m)!}{(l + m)!}} \sqrt{\frac{(l' - m)!}{(l' + m)!}} \begin{pmatrix} l_i & l & l_f \\ m_i & m & -m_f \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_i & l' & l'_f \\ m_i & m & -m_f \end{pmatrix} \\
&\quad \times \int_0^{\infty} d\eta \frac{\eta}{q^2} \zeta_{l, l_f}^l(q) P_l^m(\cos \theta_q) J_m(\eta \rho) \int_0^{\infty} d\eta' \frac{\eta'}{q'^2} \zeta_{l', l'_f}^{l'}(q') P_{l'}^m(\cos \theta_{q'}) J_m(\eta' \rho) \quad .
\end{aligned}$$

ANNEXE 3

Calcul des intégrales de recouvrement

I. Généralités

Le processus shake correspond à un réarrangement interne de la cible, après que celle-ci ait subi une interaction soudaine avec le projectile. En première approximation, pour les hautes vitesses de projectile, on considère donc que le processus de réarrangement shake n'est pas influencé par le projectile. Par conséquent, l'amplitude de probabilité associée au processus shake pour une transition d'un état initial $|i\rangle$ vers un état final $|f\rangle$, n'est autre, au premier ordre, que le recouvrement des fonctions d'ondes initiale et finale [Åberg 1967, Carlson 1967] :

$$a_{shake} = \langle f | i \rangle \quad (\text{A-3.1})$$

Cette amplitude est une caractéristique de la cible et ne dépend pas des paramètres du projectile.

Dans un premier scénario on considère que l'ionisation est due à l'interaction projectile-électron alors que l'excitation correspond à une transition de type shake (ce processus est généralement appelé processus *shake-up*). Un second scénario correspond au cas où l'excitation est due à l'interaction projectile-électron alors que l'ionisation s'effectue *via* une transition de type *shake-off*. La probabilité totale associée à chaque scénario est égale au produit de la probabilité de la première transition *via* l'interaction projectile-électron (ionisation ou excitation) par la probabilité de la seconde transition *via* l'interaction électron-électron (*shake-up* ou *shake-off*).

Sur la figure 1, nous avons tracé la probabilité d'ioniser un électron $1s$ du lithium neutre (courbe en trait plein) et la probabilité d'exciter un électron $1s$ vers une orbitale $2s$ du lithium (courbe en pointillés) en fonction du paramètre d'impact b . Ces probabilités sont déterminées dans le cadre de l'approximation de Born pour le système électron+Li à 5 keV. A partir de ces probabilités, il apparaît que la section efficace de simple ionisation en couche K est systématiquement plus grande que la section efficace de simple excitation en couche K ,

d'au moins un ordre de grandeur. La section efficace d'ionisation d'un électron $1s$ est environ 10 fois (resp. 100 fois) plus grande que la section efficace d'excitation d'un électron $1s$ vers un niveau $2p$ (resp. $2s$). Or, la probabilité de transition *shake-off* [Skogvall *et al.* 1995] est au plus du même ordre de grandeur que les probabilités de transition *shake-up* (tableau 2, Chap. IV). La probabilité de 4×10^{-3} donnée par Skogvall *et al.* correspond au processus *shake-off* après *ionisation*. Or, le processus *shake-off* susceptible d'intervenir ici se manifeste après une *excitation*. Contrairement au cas de l'ionisation, après une excitation les fonctions d'onde du continuum, tout comme la fonction d'onde $1s$, demeurent pratiquement inchangées et, par conséquent, sont quasi-orthogonales. La probabilité de transition *shake-off* après *excitation* est alors beaucoup plus faible que la probabilité de transition *shake-off* après *ionisation* et, ainsi, très inférieure à 4×10^{-3} . Il en résulte que la section efficace associée au processus *shake-off* est au moins un ordre de grandeur inférieure à celle du processus *shake-up*. Le processus *shake-off* joue donc un rôle négligeable, aussi bien lors du peuplement des états $2sns$ $^{1,3}S$ que lors de la production des états $2snp$ $^{1,3}P$ du Li^+ .

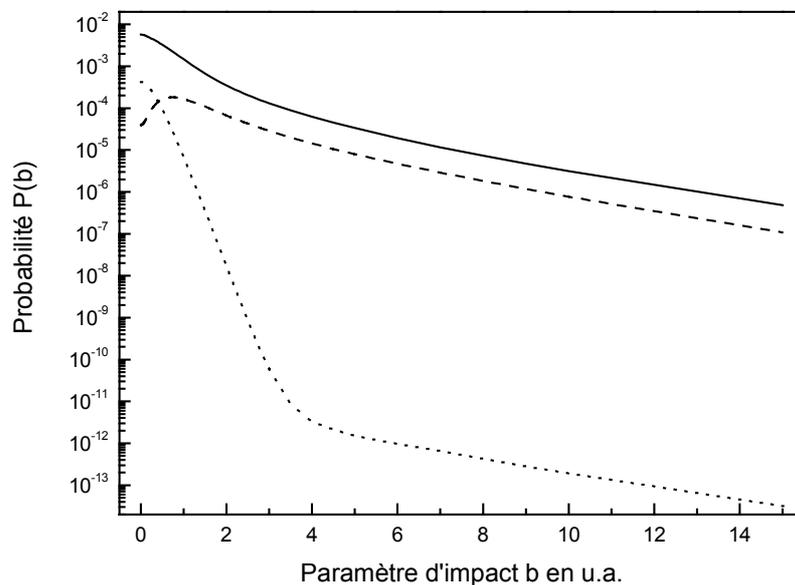


Figure 1. : Probabilité d'ionisation en couche K (courbe en trait plein) et d'excitation par transition $1s \rightarrow 2s$ (courbe en petits pointillés) et par transition $1s \rightarrow 2p$ (courbe en grands pointillés) dans le système collisionnel électrons + Li à 5 keV. Ces probabilités sont déterminées dans le cadre de l'approximation PWBA.

Dans la suite, nous déterminerons les probabilités associées au processus shake-up lors de la production des états S par ionisation-excitation en couche K du lithium.

II. Description de l'état initial $|1s_0 2s_0\rangle$ du Li^0

La configuration $|1s_0 2s_0\rangle$ correspond à une configuration intermédiaire du processus TS1 shake-up suite à l'ionisation du premier électron $1s$. Lors de l'ionisation soudaine du premier électron actif, les orbitales relatives aux autres électrons n'ont pas le temps d'évoluer. Ce sont donc les orbitales "gelées" $1s_0$ et $2s_0$ du lithium neutre qui définissent l'état initial $|i\rangle = |1s_0 2s_0\rangle$ à partir duquel la transition shake-up s'effectue (l'indice 0 est relatif au lithium neutre dans son état fondamental)

Les fonctions d'ondes associées à la configuration $|1s_0 2s_0\rangle$ s'écrivent:

$$\begin{aligned}
 & \left\{ \begin{aligned}
 |T_1^{(0)}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} [1s_0(1)2s_0(2) - 2s_0(1)1s_0(2)] \alpha(1)\alpha(2), \\
 |T_2^{(0)}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} [1s_0(1)2s_0(2) - 2s_0(1)1s_0(2)] \frac{1}{\sqrt{2}} [\alpha(1)\beta(2) + \beta(1)\alpha(2)], \\
 |T_3^{(0)}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} [1s_0(1)2s_0(2) - 2s_0(1)1s_0(2)] \beta(1)\beta(2),
 \end{aligned} \right. \quad (\text{A-3.2}) \\
 & \text{Singulet } |S^{(0)}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [1s_0(1)2s_0(2) + 2s_0(1)1s_0(2)] \frac{1}{\sqrt{2}} [\alpha(1)\beta(2) - \beta(1)\alpha(2)]
 \end{aligned}$$

Remarque: Afin de ne pas alourdir l'écriture des fonctions d'ondes, nous avons retiré les symboles de représentation vectorielle $|\ \rangle$.

Le symbole (1) représente les coordonnées $(r_1, \theta_1, \varphi_1)$ du premier électron et (2) les coordonnées du second électron.

Les fonctions de spin $\alpha(\omega)$ et $\beta(\omega)$ (« up » and « down ») sont définies de telle sorte que :

$$\begin{aligned}
 \int \alpha^2(\omega) d\omega &= 1, \\
 \int \beta^2(\omega) d\omega &= 1, \\
 \int \alpha(\omega)\beta(\omega) d\omega &= 0.
 \end{aligned} \quad (\text{A-3.3})$$

Les quatre fonctions (A-3.2), qui peuvent être déterminées à l'aide du déterminant de Slater, sont antisymétriques par rapport aux coordonnées des deux électrons, de manière à ce que le principe de Pauli soit respecté.

L'état $|1s_0 2s_0\rangle$ correspond à une combinaison des quatre fonctions listées ci-dessus, à savoir :

$$|1s_0 2s_0\rangle = \frac{1}{\sqrt{4}} \left(|T_1^{(0)}\rangle + |T_2^{(0)}\rangle + |T_3^{(0)}\rangle + |S^{(0)}\rangle \right). \quad (\text{A-3.4})$$

Remarque : Les fonctions $T_1^{(0)}$, $T_2^{(0)}$, $T_3^{(0)}$ et $S^{(0)}$ sont normalisées et orthogonales entre elles. L'état $|1s_0 2s_0\rangle$ est également normalisé.

III. Description des états de la configuration $|2s3s\rangle$ du Li^+

La configuration $|2s3s\rangle$ représente la configuration de l'état final peuplé par processus TS1 shake. De la même façon que la configuration intermédiaire $|1s_0 2s_0\rangle$, les fonctions d'ondes associées à la configuration finale $|2s3s\rangle$ s'écrivent :

$$\begin{cases} |T_1^{(+)}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [2s(1)\beta s(2) - 3s(1)2s(2)] \alpha(1)\alpha(2), \\ |T_2^{(+)}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [2s(1)\beta s(2) - 3s(1)2s(2)] \frac{1}{\sqrt{2}} [\alpha(1)\beta(2) + \beta(1)\alpha(2)], \\ |T_3^{(+)}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [2s(1)\beta s(2) - 3s(1)2s(2)] \beta(1)\beta(2), \\ \text{Singulet } |S^{(+)}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [2s(1)\beta s(2) + 3s(1)2s(2)] \frac{1}{\sqrt{2}} [\alpha(1)\beta(2) - \beta(1)\alpha(2)] \end{cases} \quad (\text{A-3.5})$$

L'état triplet $|2s3s \ ^3S\rangle$ peut s'écrire* :

* Pour la construction de $|2s3s \ ^3S\rangle$, on prend l'un des trois triplets listés ci-dessus ou la somme de ces trois triplets avec un facteur de normalisation de $\frac{1}{\sqrt{3}}$. On obtient le même résultat.

$$|2s3s \ ^3S\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}} \left(|T_1^{(+)}\rangle + |T_2^{(+)}\rangle + |T_3^{(+)}\rangle \right) \quad (\text{A-3.6})$$

L'état singulet $|2s3s \ ^1S\rangle$ s'écrit simplement :

$$|2s3s \ ^1S\rangle = |S^{(+)}\rangle \quad (\text{A-3.7})$$

Maintenant, nous pouvons calculer les éléments de matrice $\langle 2s3s \ ^3S | 1s_0 2s_0 \rangle$ et $\langle 2s3s \ ^1S | 1s 2s \rangle$.

Tenant compte des propriétés des harmoniques sphériques (orthonormées) et des fonctions de spin, nous obtenons les probabilités de transitions pour le processus shake :

$$\left| \langle 2s3s \ ^3S | 1s_0 2s_0 \rangle \right|^2 = \left| \frac{1}{\sqrt{3}} \frac{1}{\sqrt{4}} \left(\langle T_1^{(+)} | T_1^{(0)} \rangle + \langle T_2^{(+)} | T_2^{(0)} \rangle + \langle T_3^{(+)} | T_3^{(0)} \rangle \right) \right|^2. \quad (\text{A-3.8})$$

On vérifie que : $\langle T_1^{(+)} | T_1^{(0)} \rangle = \langle T_2^{(+)} | T_2^{(0)} \rangle = \langle T_3^{(+)} | T_3^{(0)} \rangle$. On obtient alors :

$$\left| \langle 2s3s \ ^3S | 1s_0 2s_0 \rangle \right|^2 = \frac{3}{4} \left| \langle T_1^{(+)} | T_1^{(0)} \rangle \right|^2. \quad (\text{A-3.9})$$

En développant l'élément de matrice $\langle T_1^{(+)} | T_1^{(0)} \rangle$ à l'aide des fonctions d'ondes (A-3.2) et (A-3.5), la probabilité shake (A-3.9) s'écrit alors :

$$\begin{aligned} \left| \langle 2s3s \ ^3S | 1s_0 2s_0 \rangle \right|^2 &= \frac{3}{4} \left| \langle 2s | 1s_0 \rangle \langle 3s | 2s_0 \rangle - \langle 3s | 1s_0 \rangle \langle 2s | 2s_0 \rangle \right|^2 \\ &= \frac{3}{4} \left[\left| \langle 2s | 1s_0 \rangle \langle 3s | 2s_0 \rangle \right|^2 + \left| \langle 3s | 1s_0 \rangle \langle 2s | 2s_0 \rangle \right|^2 \right. \\ &\quad \left. - 2 \langle 2s | 1s_0 \rangle \langle 3s | 2s_0 \rangle \langle 3s | 1s_0 \rangle \langle 2s | 2s_0 \rangle \right]. \quad (\text{A-3.10}) \end{aligned}$$

Dans la relation (A-3.10), le terme $\left| \langle 2s | 1s_0 \rangle \langle 3s | 2s_0 \rangle \right|^2$ correspond au processus shake *échange* ($1s_0 \rightarrow 2s$ puis $2s_0 \rightarrow 3s$) et le terme $\left| \langle 3s | 1s_0 \rangle \langle 2s | 2s_0 \rangle \right|^2$ est associée au processus shake *direct* ($1s_0 \rightarrow 3s$). La quantité $2 \langle 2s | 1s_0 \rangle \langle 3s | 2s_0 \rangle \langle 3s | 1s_0 \rangle \langle 2s | 2s_0 \rangle$ est relative aux interférences entre les processus *direct* et *échange*.

De manière analogue, pour l'état singulet :

$$\left| \langle 2s3s \ ^1S | 1s_0 2s_0 \rangle \right|^2 = \frac{1}{4} \left| \langle S^{(+)} | S^{(0)} \rangle \right|^2. \quad (\text{A-3.11})$$

De cette expression, on écrit :

$$\begin{aligned}
\left| \langle 2s3s \ ^1S | 1s_0 2s_0 \rangle \right|^2 &= \frac{1}{4} \left| \langle 2s | 1s_0 \rangle \langle 3s | 2s_0 \rangle + \langle 3s | 1s_0 \rangle \langle 2s | 2s_0 \rangle \right|^2 \\
&= \frac{1}{4} \left[\left| \langle 2s | 1s_0 \rangle \langle 3s | 2s_0 \rangle \right|^2 + \left| \langle 3s | 1s_0 \rangle \langle 2s | 2s_0 \rangle \right|^2 \right. \\
&\quad \left. + 2 \langle 2s | 1s_0 \rangle \langle 3s | 2s_0 \rangle \langle 3s | 1s_0 \rangle \langle 2s | 2s_0 \rangle \right]. \quad (\text{A-3.12})
\end{aligned}$$

Le code de calcul de structure atomique de Grant [Dyall *et al.* 1989] permet de déterminer les fonctions d'ondes à *un* électron. Grâce aux relations (A-3.10) et (A-3.12) et à ce code de calcul, nous avons évalué les probabilités relatives au processus shake-up lors de la production des états $2s3s \ ^3S$ et $2s3s \ ^1S$, respectivement. Dans le cas de l'état $2s3s \ ^3S$, le terme croisé est négatif et donc les interférences sont constructives. Par contre pour l'état $2s3s \ ^1S$, le terme croisé est positif et par conséquent les interférences sont destructives. Dans le chapitre IV, le rapport $2s3s \ ^3S/2s3s \ ^1S$ des sections efficaces est discuté en terme d'interférence entre les processus shake échange et direct.

De la même façon, on peut déterminer la probabilité associée au processus shake pour l'état $2s^2 \ ^1S$ grâce à la relation suivante :

$$\begin{aligned}
\left| \langle 2s^2 \ ^1S | 1s_0 2s_0 \rangle \right|^2 &= \frac{1}{4} \left| \langle 2s | 1s_0 \rangle \langle 2s | 2s_0 \rangle + \langle 2s | 1s_0 \rangle \langle 2s | 2s_0 \rangle \right|^2 \\
&= \left| \langle 2s | 1s_0 \rangle \langle 2s | 2s_0 \rangle \right|^2 \quad (\text{A-3.13})
\end{aligned}$$

Les résultats de ces calculs sont listés dans le tableau 2 du chapitre IV.

Références

-A-

Åberg T., Phys. Rev. **156**, 35 (1967).

Andersen L. H., Hvelplund P., Knudsen H., Møller S. P., Elsener K., Rensfeld K.-G. and Uggerhøj E., Phys. Rev. Lett. **57**, 2147 (1986).

Andersen L. H., Hvelplund P., Knudsen H., Møller S. P., Pedersen J. O. P., Uggerhøj K.-G. E., Elsener K. and Morenzoni E., Phys. Rev. Lett. **62**, 1731 (1989).

Andersen L. H., Hvelplund P., Knudsen H., Møller S. P., Sørensen A. H., Elsener K., Rensfeld K.-G. and Uggerhøj E., Phys. Rev. A **36**, 3612 (1987).

Auger P., Comp. Rend. **177**, 65 (1925); J. Radium **6**, 205 (1925).

-B-

Ballance C. P., Badnell N. R. and Berrington K. A., J. Phys. B. **34**, 3287 (1991).

Basbas G., Nucl. Instrum. Methods B **4**, 227 (1984).

Baum G., Frost L., Raith W. and Sillmen U., J. Phys. B **22**, 1667 (1989).

Bell F., Böckl H., Wu M. Z. and Betz H.-D., J. Phys. B **16**, 187 (1983).

Bethe H. A., Ann. Physics (Leipzig) **5**, 325 (1930).

Bordenave-Montesquieu A., Gleizes A., Moretto-Capelle P., Andriamonje S., Benoît-Cattin P., Martin F. and Salin A., J. Phys. B **25**, L367 (1992).

Bronk T., Reading J. F. and Ford A. L., J. Phys. B **31**, 2477 (1998).

Bruch R., Paul G., Andrä J. and Lipsky L., Phys. Rev. A **12**, 1808 (1975).

-C-

Carlson T. A., Phys. Rev. **156**, 142 (1967).

Carlson T. A. and Krause M. O., Phys. Rev. **140**, A1057 (1965).

- Chesnel J.-Y., Tanis J. A., Sulik B., Skogvall B., Rangama J., Frémont F., Bremer J.-H., Cassimi A., Hennecart D., Hoffmann V., Husson X., Landers A. L. and Stolterfoht N., Photonic, Electronic and Atomic Collisions (XXII ICPEAC) Proceedings ed. J Burgdorfer, J Cohen, S Datz, and C Vane, pp 699-707 (1992).
- Chung K. T. and Gou B., Phys. Rev. A **52**, 3669 (1995).
- Cleff B. and Mehlhorn W., J. Phys. B **7**, 593 (1974).
- Cleff B. and Mehlhorn W., J. Phys. B **7**, 605 (1974).
- Cohen-Tannoudji C., Diu B. and Laloë F., Mécanique quantique I et II, ed. Hermann (1973).
- Cooper J. W., Fano U. and Prats F., Phys. Rev. Lett. **10**, 518 (1963).
- Cowan R. D., The Theory of Atomic Structure and Spectra, University of California Press (1981).
- Craseman B., J. Phys. (Paris), Colloq. **48**, C9-389 (1987).
- Cubaynes D., Diehl S., Journel L., Rouvellou B., Bizau J.-M., Al Moussalami S., Wuilleumier F. J., Berrah N., VoKy L., Faucher P., Hibbert A., Blancard C., Kennedy E., Morgan T. J., Bozek J. and Schlachter A. S., Phys. Rev. Lett. **77**, 2194 (1996).

-D-

- Diehl S., Cubaynes D., Wuilleumier F. J., Bizau J.-M., Journel L., Kennedy E. T., Blancard C., VoKy L., Faucher P., Hibbert A., Berrah N., Morgan T. J., Bozek J., and Schlachter A. S., Phys. Rev. Lett. **79**, 1241 (1997).
- Diehl S., thèse Université de Paris-Sud (1998).
- Diehl S., Cubaynes D., Zhou H. S., VoKy L., Wuilleumier F. J., Kennedy E. T., Bizau J.-M., Manson S. T., Blancard C., Berrah N. and Bozek J., J. Phys. B **33**, L487 (2000).
- Dijkkamp D., Brazuk A., Drentje A. G., de Heer F. J. and Winter H., J. Phys. B **17**, 4371 (1984).
- Dyall K. G., Grant I. P., Johnson C. T., Parpia F. A. and Plummer E. P., Comp. Phys. Comm. **55**, 425 (1989).

-E-

- Ederer D. L., Lucatorto T. and Madden R. P., Phys. Rev. Lett. **25**, 1537 (1970).
- Ermolaev A. M., Hewitt R. N. and C. McDowell M. R., J. Phys. B **20**, 3125 (1987).
- Ermolaev A. M., Hewitt R. N., Shingal R. and McDowell M. R. C., J. Phys. B **20**, 4507 (1987).
- Ermolaev M., J. Phys. B **17**, 1069 (1984).

-F-

- Fano U., Phys. Rev. **124**, 1866 (1961).
- Fano U. and Cooper J. M., Rev. Mod. Phys. **40**, 441 (1968).
- Fano U., Annu. Rev. Nucl. Sci. **13**, 1 (1963).
- Fermi E., Z. Physik **29**, 315 (1924).
- Fischer C. F., Comput. Phys. Commun. **64**, 369 (1991).
- Fock V., Z. Physik **61**, 126 (1930).
- Ford L. and Reading J. F., J. Phys. B **27**, 4215 (1994).

-G-

- Garcia J. D. and Mack J. E., Phys. Rev. **138**, A987 (1955).
- Giese J. P., Schultz M., Swenson J. K., Schöne H., Benhennu M., Varghese S. L., Vaner C. R., Dittner P. F., Shafroth S. M. and Datz S., Phys. Rev. A **42**, 1231 (1990).
- Godunov A. L., Ivanov P. B., Shipakov V. A., Moretto-Capelle P., Bordenave-Montesquieu D. and Bordenave-Montesquieu A., J. Phys. B **33**, 971 (2000).
- Godunov A. L., Merabet H., McGuire J. H., Bruch R., Hanni J. and Schipakov V. S., J. Phys. B **34**, 2575 (2001).
- Godunov A. L., Ivanov P. B., Shipakov V. A. and Schulz M., J. Phys. B **35**, 2477 (2002).

-H-

Hartree D. R., Proc. Cambridge Phil. Soc. **24**, 89 (27).

-I-

Inal M. K. and Dubau J., J. Phys. B. **20**, 4221 (37).

Inokuti M., Rev. Mod. Phys. **43**, 297 (71).

-J-

Jacquet E., Pascale J., Boduch P., Chantepie M. and Lecler D., J. Phys. B 28, 2221 (5).

Jouin H., Thèse, Université de Bordeaux I (1986), et références ernes.

Journel L., Cubaynes D., Bizau J.-M., Al Moussalami S., Rouvellou B., Wuilleumier F. J.,
VoKy L., Faucher P., Hibbert A., Phys. Rev. Lett. 76, 30 (6).

-K-

Kiernan L. M., Lee M.-K., Sonntag B. F., Sladeczek P., Zimmermann P. Kennedy E. T.,
Mosnier J.-P. Costello J. T., J. Phys. B **28**, L161 (5).

Krause M. O., J. Phys. Chem. Ref. Data **8**, 307 (9).

Kuyatt C. E., Simpson J. A. and Mielczarek S. R. Phys. Rev. **138**, A385 (5).

-L-

Lee D. H., Richard P., Zouros T. J. M., Sanders J. M., Shinpaugh J. L. and Hidmi H., Phys.
Rev. A **41**, 4816 (0).

-M-

- MacDowell M. R. C. and Coleman J. P., Introduction to the theory of the ion-atom collisions, North Holland, Amsterdam (1970).
- Madden R. P. and Codling K., Phys. Rev. Lett. **10**, 516 (1963).
- Martín F. and Salin A., Phys. Rev. A **54**, 3990 (1996).
- McGuire J. H. and Straton J. C., Phys. Rev. A **43**, 5184 (1991).
- McGuire J. H. and Weaver O. L., Phys. Rev. A **16**, 41 (1977).
- McGuire J. H., Berrah N., Bartlett R. J., Samson, J. A. R. Tanis J. A., Cocke C. L. and Schlachter A. S., J. Phys. B **28**, 913 (1995).
- McGuire J. H., Phys. Rev. A **36**, 1114 (1987).
- McGuire J. H., Phys. Rev. Lett. **49**, 1153 (1982).
- McIlrath T. J. and Lucatorto T. B., Phys. Rev. Lett. **38**, 1390 (1977).
- Messiah A., Mécanique quantique 1 et 2, ed. Dunod (1959).
- Meyer F. W., Griffin D. C., Havener C. C., Huq M. S., Phaneuf R. A., Swenson J. K. and Stolterfoht N., Phys. Rev. Lett. **60**, 1821 (1988).
- Mott N. F. and Massey H. S. W., The Theory of Atomic Collisions, Oxford University Press (1965).
- Moretto-Capelle P., Benhenni M., Bordenave-Montesquieu D. and Bordenave-Montesquieu A., J. Phys. B **29**, 2007 (1996).
- Moretto-Capelle P., Bordenave-Montesquieu D., Bordenave-Montesquieu A., Godunov A. L. and Schipakov V. A., Phys. Rev. Lett. **79**, 5230 (1997).
- Moshhammer R., Schmitt W., Ullrich J., Kollmus H., Cassimi A., Dörner R., Jagutzki O., Mann R., Olson R. E., Prinz H. T., Schmidt-Böcking H. and Spielberger L., Phys. Rev. Lett. **79**, 3621 (1997).
- Mukoyama T. and Uda M., Phys. Rev. A **65**, 052706 (2002).

-N-

Nagy L. and Fritzsche S., J. Phys. B **33**, L495 (1970).

Nagy L., McGuire J. H., Végh L., Sulik B. and Stolterfoht N., J. Phys. B **30**, 1939 (1977).

-O-

Ourdane M., Bachau H., Gayet R. and Hanssen J., J. Phys. B **32**, 2041 (1999).

-P-

Parks A. D. and Sampson D. H., J. Phys. B **8**, 774 (1975).

Pedersen J. O. and Hvelplund P. Phys. Rev. Lett. **62**, 2373 (1989).

Pegg D. J., Haselton H. H., Thoe R. S., M. Griffin P., Brown M. D. and Sellin I. A., Phys. Rev. A **12**, 1330 (1975).

Pejčev V., Ross K. J. and Rassi D., J. Phys. B **10**, L579 (1977).

Pietenpol J. L., Phys. Rev. Lett. **7**, 64 (1961).

Prömpeler H., Diplom Thesis Freiburg (1976).

-R-

Rassi D., Pejčev V. and Ross K. J., J. Phys. B **10**, 3535 (1977).

Reading J. F. and Ford A. L., in Electronic and Atomic Collisions, Invited Papers, edited by Gilbody H. B., Newell W. R., Read F. H. and Smith A. C. H., 693 (North-Holland, Amsterdam, 1978).

Reading J. F. and Ford A. L., J. Phys. B **20**, 3747 (1987).

Rødbrø M., Bruch R. and Bisgaard P., J. Phys. B **12**, 2413 (1979).

-S-

- Schroeder W. A., Nelson T. R., Borisov A. B., Longworth J. W., Boyer K. and Rhodes C. K.,
J. Phys. B **34**, 297 (1991).
- Schwarz W. H. E., Butscher W., Ederer D. L., Lucatoro T. B., Ziegenbein B., Mehlhorn W.
and Prömpeler H., J. Phys. B **4**, 11 (1978).
- Schweitzer J., Brandenburg R., Bray I., Hoekstra R., Aumayr F., Janev R. K. and Winter HP.,
At. Data and Nucl. Data Tables **72**, 239 (1999).
- Shuttleworth T., Burgess D. E., Hender M. A. and Smith A. C. H., J. Phys. B **12**, 3967 (1979).
- Silverman S. M. and Lassette E. N., J. Chem. Phys **40**, 1265 (1964).
- Skogvall B., Chesnel J.-Y., Frémont F., Lecler D., Husson X., Lepoutre A., Hennecart D.,
Grandin J.-P, Sulik B., Salin A. and Stolterfoht N., Phys. Rev. A **51**, R4321 (1995).
- Stolterfoht N., Chesnel J.-Y., Grether M., Skogvall B., Frémont F., Lecler D., Hennecart D.,
Husson X., Grandin J. P., Sulik B., Gulyás L. and Tanis J. A., Phys. Rev. Lett. **80**, 4649
(1998).
- Stolterfoht N., Chesnel J.-Y., Grether M., Tanis J. A., Skogvall B., Frémont F., Lecler D.,
Hennecart D., Husson X., Grandin J. P., Koncz Cs., Gulyás L. and Sulik B., Phys. Rev.
A **59**, 1262 (1999).
- Stolterfoht N., DuBois R. D. and Rivarola, R. D. Electron Emission in Heavy Ion-Atom
Collisions (Springer-Verlag, Berlin, 1997).
- Stolterfoht N., Lectures Notes in Physics **376**, 139 (1990).
- Stolterfoht N., Mattis A., Schneider D., Schiwietz G., Skogvall B., Sulik B. and Ritz S., Phys.
Rev. A **48**, 2986 (1993).
- Stolterfoht N., Mattis A., Schneider D., Schiwietz G., Skogvall B., Sulik B. and Ritz S., Phys.
Rev. A **51**, 350 (1995).
- Stolterfoht N., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **53**, 477 (1991).
- Stolterfoht N., Phys. Rev. A **48**, 2980 (1993).
- Stolterfoht N., Z. Phys. **248**, 81 (1971); **248**, 92 (1971).
- Straton J. C., McGuire J. H. and Chen Z., Phys. Rev. A **46**, 5514 (1992).

-T-

Tanis J. A., Chesnel J.-Y., Frémont F., Hennecart D., Husson X., Cassimi A., Grandin J. P., Skogvall B., Sulik B., Bremer J.-H. and Stolterfoht N., Phys. Rev. Lett. **83**, 1131 (1999).

Tanis J. A., Chesnel J.-Y., Frémont F., Hennecart D., Husson X., Lecler D., Cassimi A., Grandin J. P., Rangama J., Skogvall B., Sulik B., Bremer J.-H. and Stolterfoht N., Phys. Rev. A **62**, 032715 (2000).

Tayal S. S. and Henry R. J. W., Phys. Rev. A **44**, 2955 (1991).

-V-

Végh L., Phys. Rev. A **37**, 992 (1988).

Végh L., Sulik B. and Stolterfoht N., Phys. Rev. A **51**, 3017 (1995).

-W-

Whiteford A. D., Badnell N. R., Ballance C. P., Loch S. D., O'Mullane M. G. and Summers H. P., J. Phys. B **35**, 3729 (2002).

Weizsäcker C. F. v., Z. Physik **88**, 612 (1937).

Wentzel G., Z. Phys. **43**, 524 (1927).

Williams E. J., Phys. Rev. **45**, 729 (1934).

-Z-

Zatsarinny O., J. Phys. B **32**, L565 (1999).

Zeng J., Yuan J. and Lu Q., J. Phys. B **34**, 2823 (2001).

Ziem P., Bruch R. and Stolterfoht N., J. Phys. B **8**, L480 (1975).

Ziem P., Schilling R., Chang T. C., Meinhart M. and Schwarz W. H. E., J. Phys. B **13**, 2071
(30).