



HAL
open science

Excitation Collisionnelle du formaldéhyde interstellaire : Théorie et Observations

Nicolas Troscompt

► **To cite this version:**

Nicolas Troscompt. Excitation Collisionnelle du formaldéhyde interstellaire : Théorie et Observations. Astrophysique [astro-ph]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2009. Français. NNT: . tel-00454581

HAL Id: tel-00454581

<https://theses.hal.science/tel-00454581>

Submitted on 8 Feb 2010

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.

THÈSE
PRÉSENTÉE PAR
Nicolas Troscompt

POUR OBTENIR LE TITRE DE DOCTEUR
DE L'UNIVERSITÉ JOSEPH FOURIER - GRENOBLE 1
SPÉCIALITÉ ASTROPHYSIQUE ET MILIEU DILUÉ

EXCITATION COLLISIONNELLE DU
FORMALDÉHYDE INTERSTELLAIRE :
THÉORIE ET OBSERVATIONS

Sous la direction de
Laurent Wiesenfeld
et
Alexandre Faure

DATE DE SOUTENANCE : 16 octobre 2009

COMPOSITION DU JURY :

Mme Claudine KAHANE	Présidente
Mme Bérengère PARISE	Rapporteur
Mme Nicole FEAUTRIER	Rapporteur
M. Laurent MARGULES	Examineur
M. Laurent WIESENFELD	Examineur
M. Alexandre FAURE	Examineur

THÈSE PRÉPARÉE AU SEIN DU LABORATOIRE
D'ASTROPHYSIQUE,
Observatoire de Grenoble, UJF/CNRS, BP 53, F-38 041 Grenoble
CEDEX 9

Résumé

L'hydrogène moléculaire est la molécule la plus simple et la plus répandue dans l'Univers. Elle se présente sous deux formes, ortho- et para- H_2 , correspondant aux différents alignements des spins de ses deux noyaux. Le rapport ortho/para de H_2 est un paramètre essentiel pour comprendre les processus collisionnels inélastiques et réactifs dans les milieux astrophysiques moléculaires.

Dans cette thèse, nous nous sommes intéressés à la détermination de ce rapport dans les nuages sombres, régions où H_2 ne peut pas être observée directement. Dans ce but, nous avons utilisé la molécule de formaldéhyde (H_2CO) dont l'excitation rotationnelle dans ces sources est dominée par les collisions avec H_2 . Une transition particulière a été choisie pour cette étude : la raie à 6 cm (4,8 GHz) de ortho- H_2CO observée en absorption devant le fond diffus cosmologique. Si des études précédentes ont montré que cette absorption (antimaser) peut être expliquée par des effets collisionnels, aucune n'a étudié jusqu'à présent l'impact des formes ortho- et para- H_2 sur l'absorption.

Nous présentons, dans un premier temps, nos calculs haute-précision des taux d'excitation rotationnelle entre (ortho-,para-) H_2CO et (ortho-,para-) H_2 . Nous montrons qu'il existe des différences significatives sur les taux de collisions selon le type de projectiles, et en particulier qu'il existe des différences entre ortho- et para- H_2 . Nous présentons ensuite l'utilisation de ces taux dans un modèle de transfert radiatif afin de reproduire les observations que nous avons menées au Green Bank Telescope sur la transition à 6 cm de ortho- H_2CO en direction de 3 nuages sombres (B68, L134N et TMC-1). Nous montrons que les différences dans les taux de collisions calculés avec ortho- et para- H_2 ont un impact significatif sur les simulations, nous permettant ainsi d'apporter des contraintes sur la valeur du rapport ortho/para de H_2 dans ces milieux. Nous traitons en particulier l'exemple de B68, prototype de cœur pre-stellaire.

Summary

Molecular hydrogen is the simplest and most abundant molecule in the Universe. Owing to the possible different nuclear spin alignments, it presents two forms, ortho- and para- H_2 . The ortho-to-para ratio of H_2 is a fundamental parameter to understand the (inelastic and reactive) collisional processes in molecular astrophysical media.

In this thesis, we focus on the determination of the ortho-to-para ratio of H_2 in dark clouds, where H_2 cannot be directly observed. To this aim, we use the formaldehyde molecule (H_2CO) whose rotational excitation in these sources is dominated by H_2 collisions. A peculiar transition has been selected in our study : the 6-cm transition (4.8 GHz) of ortho- H_2CO observed in absorption against the cosmic microwave background. Previous studies have shown that collisional effects can explain this (antimaser) absorption but the impact of the ortho- and para- form of H_2 on this absorption has been so far ignored.

We first present high-precision computations of the (de)excitation rates of (ortho-, para-) H_2CO by (ortho-, para-) H_2 . Significant differences are observed between ortho- and para- H_2 rates. We then use these collisional rates in radiative transfer calculations in order to model 6-cm observations carried out with the Green Bank Telescope towards 3 different dark clouds (B68, L134N and TMC-1). We show that the differences in para and ortho- H_2 collisional rates have a significant impact on the modeling, allowing us to put interesting constraints on the ortho-to-para ratio of H_2 in dark clouds. We consider in detail the example of B68, prototype of pre-stellar cores.

Remerciement

La thèse est généralement associée à un parcours long et difficile. Personnellement, je trouve cette image un peu galvaudée et pas tout à fait exacte. Le parcours pour arriver en thèse est long, certes, mais la thèse est une finalité tellement enrichissante. Une fois enfin accepté dans un laboratoire, une fois commencé le travail de thèse à proprement parler, il n'est plus question de difficultés, mais d'apprentissage et de découverte.

Ma thèse a été un moment vraiment enrichissant de ma vie. J'ai appris à me questionner, à analyser, à prendre du recul pour mieux comprendre les tenants et les aboutissants de mes travaux. Et cette démarche scientifique, cette rigueur, va me rester pour tout le reste de ma vie professionnelle. Bien sûr, Je n'aurai pas pu faire ces découvertes sans l'entourage qui m'a encadré, que je souhaite bien évidemment remercier.

Tout d'abord, j'ai particulièrement apprécié l'ensemble du laboratoire d'astrophysique de Grenoble, de par l'ambiance conviviale qui y règne. Une vraie petite famille! Merci à tous pour cet ambiance de travail, en espérant qu'elle ne change jamais. J'aimerais remercier en particulier le travail exemplaire du secrétariat, qui permet à tout le monde de pouvoir travailler dans les meilleures conditions. Merci à elles pour tout ce qu'elles ont fait.

Si le laboratoire dans son ensemble à participer au bon déroulement de ma thèse, je tiens à remercier en particulier l'équipe d'astrophysique moléculaire dans lequel j'ai travaillé depuis mon stage de Master 2. Je me souviendrais en particulier des réunions de groupe entre 12h et 14h où tout le monde apportait son repas, mais aussi de la petite pierre que chacun a apportée à mon travail. En effet, de part l'étendue même de mon travail, j'ai pu travailler avec les théoriciens, les astronomes et les modélisateurs du groupe, sans qui j'aurais sûrement été un peu perdu.

Alors un grand merci à Cecilia et son enthousiasme italien de tous les instants, à Sébastien pour son humour pince-sans-rire et pour avoir accepté de venir se perdre avec moi au fin fond de l'Amérique profonde pour faire des observations, à Pierre Hily-Blant pour sa bonne humeur et ses avis toujours critiques et pleins de bon sens (ma soutenance te dit un grand merci!) et n'oublions pas, évidemment, mes deux directeurs de thèse, Laurent et Alexandre, qui m'ont encadré pendant trois ans et sans qui ce travail n'aurait sûrement pas été aussi complet. Par la même occasion, j'aimerais aussi remercier l'ensemble des participants aux réunions WAGOS et FORCOMS pour l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail. Un travail de thèse n'est rien s'il n'est pas jugé par des personnes compétentes et reconnues. C'est pour ça que je voudrais remercier chacun des membres de mon jury, Mme Claudine Kahane, Mme Nicole Feautrier, Mme Bérengère Parise et M. Laurent Margulès pour avoir accepté de lire cette thèse et de l'avoir jugée apte à être soutenue. Merci à vous tous.

D'un point de vue moins... hiérarchique, je remercie évidemment tous mes compagnons de thèse, ceux que j'ai côtoyés durant ces trois ans. J'aimerais commencer pas les X-Blasteurs ("*On Blast les gars?*") de la pause de midi : Philippe, Rémy et Timothée qui

ont contribué à la bonne ambiance du deuxième étage, même si je ne suis pas sûr que ceux qui ne jouaient pas partagent mon avis. Je remercie aussi tous les Nicolas de cet étage, ceux qui ont partagés mon bureau et celui qui ne le partageait pas, mais avec qui je partageais irrémédiablement la chambre lors de tous nos déplacements communs et avec qui on s'est quand même bien marré. Enfin, j'aimerais remercier les autres vieux thésards, Johan, Morgan et Romain, mais aussi tous les autres qui sont passés pendant ces 3 ans.

Ces remerciements ne seraient pas complets sans un grand merci à ma famille, mes parents, grands-parents qui ne comprenaient sûrement pas grand chose à ce que je racontais, mais qui faisaient au moins semblant, et à mes frères et sœur à qui j'ai vainement essayé de montrer que la physique, c'était cool !

Et puis un grand merci à toute la famille de Savoie qui acceptent que je vienne les embêter assez souvent. Surtout un grand merci à Paulette et à sa mère Jeannine (et à ses gâteaux !) pour la gentillesse et leur accueil, ainsi que pour les crises de rire qu'elles me procurent lorsqu'elles sont ensemble.

Enfin, ces remerciements ne seraient pas complets sans remercier deux personnes, pour des raisons bien différentes.

La première personne que je souhaite remercier en particulier est Pierre Valiron, sans qui tout ce travail n'aurait pas pu se faire. Sa disparition prématurée en août 2008 laissera pendant longtemps un vide, que ce soit dans la recherche française, qui perd aussi bien un expert en chimie théorique qu'un chercheur toujours curieux de tout, ou dans le laboratoire. Il était toujours ravi de discuter de tout et de rien, je me souviens que lorsqu'il se mettait à parler, on pouvait presque dire adieu à l'après-midi de travail. Ses avis, parfois percutant et déstabilisant, m'ont grandement aidé, surtout au début de ma thèse.

Et la dernière personne que je voulais remercier dans ce petit chapitre est sûrement la personne la plus importante. Celle qui me supporte depuis plus de 6 ans maintenant, qui partage ma vie depuis plus de 5 ans et qui a su me soutenir durant ces trois ans de thèse. Alors pour tout ça, Aurélie, je te dis un grand merci, et j'espère pouvoir toujours répondre à tes attentes.

Table des matières

Résumé	iii
Remerciements	v
Introduction	1
1 Introduction	1
1.1 Introduction générale	1
1.2 Nuages Moléculaires	2
1.2.1 Généralités - Historique	2
1.2.2 Nuages Sombres	4
1.3 H ₂ , Rapport Ortho/Para et Nuages moléculaires	8
1.3.1 Ortho-H ₂ , Para-H ₂	9
1.3.2 Formation de H ₂ , conversion ortho-/para-H ₂ , rapport ortho/para	9
1.3.3 Rapport Ortho/Para et nuages moléculaires	11
1.4 Ce qui va suivre	15
I Taux de collision inélastiques	17
2 Taux de collision rotationnels : Théorie	19
2.1 Introduction	19
2.2 Description du problème	20
2.2.1 Hamiltonien	20
2.2.2 Approximation de Born-Oppenheimer	21
2.3 Surface d’Energie Potentielle	23
2.3.1 Géométrie du système : généralités	23
2.3.2 Système de coordonnées	24
2.3.3 Calcul de la SEP	25
2.4 De la SEP aux sections efficaces	28
2.4.1 Calcul Close Coupling	28
2.4.2 Calcul Coupled States	31
2.4.3 Propagation de la fonction d’onde	32
2.5 Des sections efficaces aux taux de collision	36
2.5.1 Taux de collision	36
2.5.2 Bilan détaillé	36

3	Taux de collision rotationnel : Le système H₂CO-H₂	37
3.1	Introduction	37
3.2	Le code MOLSCAT	38
3.3	Surface d'Énergie Potentielle	38
3.4	Résultats : ortho-H ₂ CO–(ortho-,para-)H ₂	41
3.4.1	Sections efficaces	41
3.4.2	Taux de collisions	47
3.5	Résultats : para-H ₂ CO–(ortho-,para-)H ₂	51
3.5.1	Paramètres du calcul, description de la section efficace	51
3.5.2	Sections Efficaces	53
3.5.3	Taux de collisions	53
3.6	Conclusion	55
II	Transfert Radiatif	69
4	Transfert Radiatif : Théorie	71
4.1	Introduction	71
4.2	Interaction matière-rayonnement : Problème du transfert radiatif	72
4.2.1	Profil de raie - Largeur de raie	72
4.2.2	Principe	73
4.2.3	Équation du transfert radiatif	73
4.2.4	Population des niveaux	75
4.2.5	Densité critique	77
4.3	Approximation de découplage	78
4.3.1	La probabilité d'échappement	78
4.3.2	La méthode <i>Large Velocity Gradient</i> (LVG)	80
4.4	Une application : influence des taux de collisions sur une modélisation astrophysique	81
5	H₂CO dans le milieu interstellaire : étude des nuages sombres	85
5.1	Introduction	85
5.1.1	Température d'excitation	86
5.2	« L'absorption anormale » de ortho-H ₂ CO	87
5.2.1	Preuve observationnelle	87
5.2.2	L'absorption anormale : un phénomène collisionnel	88
5.3	Absorption anormale : une sonde des paramètres physiques	92
5.3.1	Collision avec He, densitométrie	92
5.3.2	Collision avec H ₂ , influence du rapport ortho/para(H ₂)	94
5.4	Structure hyperfine de ortho-H ₂ CO	96
5.4.1	Niveaux hyperfins et absorption anormale	96
5.5	Analyse des observations spectroscopiques	99
5.5.1	Problématique	99
5.5.2	Différence entre les modélisations : hyperfine vs rotationnelle	100
5.6	Conclusion	105

6	Rapport Ortho/Para de H₂ : étude de B68, TMC-1 et L134N	107
6.1	Introduction	107
6.2	Observations existantes - Résolution spectrale	108
6.2.1	Résolution spectrale	108
6.2.2	Exemple d'observation	108
6.3	Observations menées : Green Bank Telescope	109
6.3.1	Caractéristiques générales	110
6.3.2	Caractéristiques des observations	111
6.4	Observations - Résultats	112
6.4.1	Barnard 68	112
6.4.2	L134N	114
6.4.3	TMC-1	116
6.5	Analyse des observations	118
6.5.1	Détermination des observables	118
6.5.2	B68	120
6.5.3	L134N	121
6.5.4	TMC-1	121
6.6	Détermination du rapport ortho/para de H ₂	126
6.6.1	Effet des paramètres sur les simulations numériques	127
6.6.2	H ₂ dans B68	129
6.6.3	H ₂ dans L134N	131
6.6.4	H ₂ dans TMC-1	132
6.7	Discussion des résultats	135
6.7.1	H ₂ : densité, rapport ortho/para	135
6.7.2	H ₂ CO : densité de colonne, localisation de l'absorption anormale	137
6.8	Conclusion	138
	Conclusion	145
7	Conclusions et perspectives	145
7.1	Conclusions	145
7.2	Perspectives	147
	Bibliographie	149
	Annexes	157
A	Annexe : H₂CO, généralités	157
A.1	Géométrie interne	157
A.2	Spectroscopie	158
A.2.1	Spectre de vibration	158
A.2.2	Spectre de rotation	158
A.2.3	Spectre hyperfin	160
A.3	Ortho H ₂ CO : Coefficients d'Einstein	162
A.3.1	Rotation	162
A.3.2	Hyperfin	162

Chapitre 1

Introduction

Sommaire

1.1	Introduction générale	1
1.2	Nuages Moléculaires	2
1.2.1	Généralités - Historique	2
1.2.2	Nuages Sombres	4
1.3	H₂, Rapport Ortho/Para et Nuages moléculaires	8
1.3.1	Ortho-H ₂ , Para-H ₂	9
1.3.2	Formation de H ₂ , conversion ortho-/para-H ₂ , rapport ortho/para	9
1.3.3	Rapport Ortho/Para et nuages moléculaires	11
1.4	Ce qui va suivre	15

1.1 Introduction générale

L'objet de cette thèse est l'étude de milieux astrophysiques par le biais des transitions moléculaires. On touche donc, *a priori* à tous les milieux astrophysiques froids ($T \lesssim 5000$ K). Une étude exhaustive de tous les milieux astrophysiques n'est pas réalisable au cours d'une thèse, c'est pourquoi nous nous sommes restreints à l'étude des nuages moléculaires, milieux d'où les étoiles naissent.

Pour étudier ces nuages, nous utilisons des sondes particulières : les molécules. En effet, de par les différentes conditions physiques des milieux étudiés (en particulier densité, température et illumination ambiante), ces molécules rayonnent, absorbent, et c'est ce que nous pouvons observer depuis nos télescopes, sur Terre.

Le but de cette thèse est de tenter d'utiliser ces molécules pour contraindre les conditions physiques au sein de ces milieux. Pour cela, il nous faut comprendre les mécanismes de rayonnement et de collisions qui y ont lieu.

Durant toute cette thèse, nous nous intéressons à une molécule en particulier : H₂CO. Nous étudions les collisions qui ont lieu dans les nuages moléculaires, en particulier avec la molécule d'hydrogène. Ceci fait l'objet de la partie 1.

Dans la partie 2, nous nous intéressons aux problèmes de transfert radiatif au sein de milieux astrophysiques particuliers : les nuages sombres, et tentons de voir si la molécule de formaldéhyde peut nous renseigner sur les conditions physiques y régnant.

Mais avant de rentrer dans le vif du sujet, arrêtons-nous un moment afin d'avoir une vue d'ensemble du contexte dans lequel s'inscrit cette thèse, afin de bien comprendre les tenants et les aboutissants des travaux qui vont y être présentés.

1.2 Nuages Moléculaires

La vie d'une étoile commence par un nuage de gaz et de poussières dans le milieu interstellaire. Ces milieux, diffus, sont les premiers stades de la chimie interstellaire, dont tout le cycle hérite. Ces nuages de gaz, ou nuages moléculaires, peuvent atteindre des densités de l'ordre de $10^6 - 10^7 \text{ cm}^{-3}$, pour des extensions spatiales de l'ordre de 100000 UA. Si la masse du nuage devient plus grande qu'une masse critique, appelée masse de Jeans (Jeans 1902 [55]), les forces de pression à l'intérieur du nuage ne suffisent plus à contrebalancer la force de gravitation : c'est le début de l'effondrement gravitationnel dont va résulter l'étoile.

C'est à partir de ce moment que l'on parle de protoétoiles, dont les différents stades d'évolution sont classés par une méthode empirique fondée sur l'excès de rayonnement infrarouge de 2 à 100 microns des objets jeunes par rapport à un rayonnement purement photosphérique de corps noir (voir Lada *et al.* 1991 [64]). Nous ne développerons pas ces différents stades ici, le seul intérêt est de savoir que ces protoétoiles viennent des nuages moléculaires.

Les nuages moléculaires sont primordiaux dans ce cycle, puisque toute la chimie qui se déroule dans le cycle de formation des étoiles vient directement de ce qu'il s'est passé à l'intérieur de ces objets. C'est pourquoi, il est primordial de les comprendre correctement afin d'avoir une complète compréhension de la chimie au sein des proto-étoiles.

1.2.1 Généralités - Historique

Historique

Historiquement, les nuages moléculaires ont été découverts par William Herschel en 1785 [52]. A cette époque, le concept de nuage pouvant absorber la lumière de l'arrière-plan n'était évidemment pas connu, et un débat se tenait sur la nature de ces objets. Est-ce des trous ? Des zones sans étoiles ? Et si oui, comment cela est-il possible ?

Le débat a duré presque 150 ans, jusqu'à ce que Barnard (1919) [5] fasse la première étude photographique systématique des zones sombres. Il en conclut que ces zones sombres sont « des objets sombres plus proches que les étoiles distantes », obscurcissant la lumière.

L'histoire aurait pu en rester là : les zones sombres sont des objets occultant la lumière. Mais, 30 ans plus tard, Bok (1946) [11] développe une théorie ambitieuse : ces zones sombres, ces nuages, sont les lieux de formation d'étoiles et tout particulièrement les nuages sphériques, appelés plus tard les « globules de Bok ». Il a pourtant fallu attendre le développement des techniques d'observations infra-rouges et millimétriques pour avoir la première preuve de cette relation entre nébuleuses sombres et formation d'étoiles.

D'autre part, cette astronomie millimétrique et infra-rouge a révélé que ces milieux sombres étaient des milieux moléculaires, composés majoritairement d'hydrogène moléculaire (Weinreb *et al.* 1963 [122], Wilson *et al.* 1970 [124]), ce qui leur a valu la double appellation de *nuages moléculaires* et *nuages sombres*.

Dans la suite, et dans toute cette thèse, nous appellerons *nuages moléculaires* l'ensemble des milieux moléculaires interstellaires, et *nuages sombres* ou *cœurs prestellaires* ceux qui sont assez denses pour avoir des extinctions fortes, mais qui ne forment pas encore d'étoiles.

Généralités

Si ces nuages sont effectivement sombres, ce n'est pas à cause de l'hydrogène moléculaire, mais des particules de poussière qui absorbent les radiations visibles et augmentent l'extinction visuelle ($A_v > 1$ mag), qui est une mesure de l'atténuation de la lumière par ces poussières. De telles absorptions des radiations ambiantes réduisent le chauffage du aux sources externes au sein de ces milieux, ce qui implique de basses températures, de l'ordre de quelques degrés au-dessus de la température du fond diffus cosmologique (FDC) à 2,72 K.

L'étude des nuages moléculaires se fait grâce à l'utilisation conjuguée de deux domaines de longueur d'onde.

L'optique - l'infrarouge. L'extinction des rayonnements au sein des nuages moléculaires ne nous aide pas à comprendre leur distribution de matière aux grandes échelles. Cela dit, toutes les radiations ne sont pas absorbées de la même manière : si le rayonnement optique est efficacement absorbé par les poussières, le rayonnement infrarouge l'est beaucoup moins. Cette propriété est justement utilisée par les méthodes de comptage d'étoile afin de déterminer la structure en densité : on compare la luminosité dans deux bandes spectrales (généralement les bandes H et K) d'observations d'étoiles vues au travers des nuages afin de déterminer l'extinction visuelle des nuages (voir par exemple Cambrésy 1999 [18]).

Grâce à ces études de comptage d'étoiles, on déduit la structure en extinction visuelle de ces nuages. A partir de ces cartes en extinction, on en déduit la distribution de la densité de colonne de H_2 (Frerking *et al.* 1982 [43]), puis la structure en densité (voir figure 1.1 par exemple) : sont-elles uniformes, présentent-elles des différences en densité selon l'endroit ? Seules ces études permettent de le savoir.

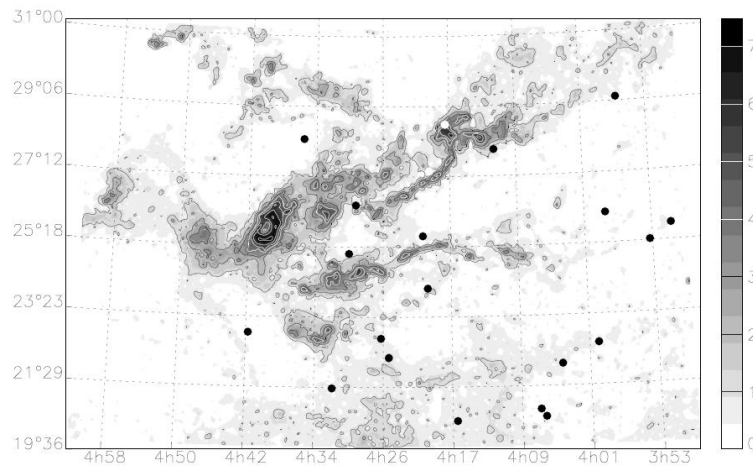


FIGURE 1.1 – Etude de la structure en extinction de TMC-1 faite par Cambrésy (1999) [18]. Nous voyons clairement la structure : des zones peu denses (zones grisées claires) et des zones plus denses (zones noires). Les cercles noirs correspondent aux étoiles de magnitude visuelle inférieure à 4.

La radio Les longueurs d'onde radio ($\lambda \geq 1$ cm) ont, quant à elles, la propriété de ne pas être absorbées par les poussières des nuages. Ces longueurs d'onde ont deux utilités :

(i) les observations millimétriques nous permettent d’observer l’émission de la poussière, et, ainsi, de connaître sa température (ii) ces longueurs d’onde correspondent aussi aux transitions entre les niveaux d’énergie des molécules ro-vibrationnelles, nous permettant ainsi de sonder les conditions physiques du gaz de ces milieux.

Ainsi, nous pouvons avoir accès à la température de la poussière, et à la température, la densité, la structure en vitesse et la composition chimique du gaz. Les ondes radio sont de puissantes sondes des conditions physiques de ces nuages, c’est pourquoi elles sont grandement utilisées dans leurs études.

Cela dit, les deux études sont complémentaires, et il est souvent nécessaire de faire une étude en optique/infrarouge et une étude en radio pour pouvoir contraindre toutes les conditions physiques des nuages moléculaires.

Grâce à ses études, une structure standard des nuages moléculaires a pu être mise au point. Nous présentons dans le tableau 1.1 cette structure et les conditions physiques des différentes composantes (voir Bergin & Tafalla 2007 [8]).

	Milieux Diffus	Nuages	Cœurs denses
Masse (M_{\odot})	$10^3 - 10^4$	50–500	0,5–5
Taille (pc)	2–15	0,3–3	0,03–0,2
Densité moyenne (cm^3)	50–500	$10^3 - 10^4$	$10^4 - 10^5$
Largeur de raie (km/s)	2,5	0,3–3	0,1–0,3
Température du gaz (K)	~ 10	10–20	8–12
Exemples	Taureau, Oph, Musca	B213, L1709	L1544, L1498, B68

TABLE 1.1 – Hiérarchie dans les nuages moléculaires, Bergin & Tafalla 2007 [8]. Les valeurs des paramètres physiques sont donnés à titre indicatif, les valeurs pouvant fluctuer d’un nuage à un autre.

Les nuages moléculaires de très grande étendue suivent cette structure : plus on rentre dans le nuage et plus la densité augmente : on passe d’un milieu diffus, au nuage puis au cœur dense. Cependant, certains milieux ne sont jamais assez denses pour être structurés ainsi et peuvent être composés uniquement de milieux diffus (voir les travaux de Liszt *et al.* [70; 71] par exemple).

1.2.2 Nuages Sombres

Intéressons-nous maintenant à un type de nuage particulier, les nuages sombres. Ces nuages, comme nous l’avons dit, sont les cœurs denses d’où les étoiles vont se former. Il est important de connaître leurs propriétés afin de comprendre l’évolution de la matière lors de la formation des étoiles.

Densité

Comme nous l’avons montré dans le tableau 1.1, ces milieux sont des milieux denses, entre 10^4 et 10^5 cm^{-3} . Comment est obtenue cette gamme de densité ? Grâce à la structure en extinction visuelle. En effet, cette structure, obtenue grâce aux observations dans le proche infrarouge, est interprétée par des modèles numériques qui en donnent un ajustement et permettent d’en déduire la structure en densité (voir par exemple la figure 1.2).



FIGURE 1.2 – Image de B68 en visible (gauche), en bande K (centre) et graphique de l’extinction visuelle en fonction du rayon au centre (Bergin & Tafalla [8])

La principale caractéristique de la majorité des structures en densité trouvées pour les cœurs pré-stellaires est de présenter une partie centrale où la densité est quasi-constante (voir Ward-Thomson *et al.* 1994 [121]). Il en résulte que le profil en densité pour la majorité des sources peut se résumer à des lois de puissance : en r^{-2} dans les parties externes puis avec une coupure en r^{-1} entre 2500 et 5000 UA, avec une densité culminant entre 10^5 et 10^6 cm^{-3} selon les nuages.

Cela dit, définir la structure en densité comme étant la réunion de deux lois de puissance pose un problème de définition de la dérivée $\frac{dn}{dr}$ au point de raccord entre les deux lois. C’est pourquoi des méthodes de raccordement ont été faites, et citons qu’il existe une loi physique ajustant souvent correctement la structure en densité des cœurs pré-stellaires : la sphère isotherme de Bonnor-Ebert (Ebert 1955 [35], Bonnor 1956 [12]), en équilibre hydrostatique avec un champ de pression extérieure P_0 . Il est à noter que cette sphère s’effondre uniquement si le critère de stabilité $\frac{dP_0}{dR} < 0$ n’est pas vérifiée, avec R le rayon de la source.

Température

Dans tout milieu astrophysique, il y a deux températures à considérer : la température du gaz et la température de la poussière. Aux densités telles que celles régnant dans les nuages sombres ($> 10^4 \text{ cm}^{-3}$) le gaz et la poussière sont thermalisés par collision (Goldsmith & Langer 1978 [47]), et leurs températures doivent converger l’une vers l’autre. Qu’elles soient égales ou non va dépendre des conditions exactes de densité et d’illumination extérieure.

Température de la poussière. Commençons par étudier la température de la poussière. Elle est déterminée par l’équilibre entre le chauffage dû au champ de radiation interstellaire (CRIS) et le refroidissement dû à l’émission des grains dans l’infrarouge lointain. La méthode observationnelle généralement utilisée pour déterminer la température de cette poussière est basée sur la détermination des mesures de couleur des grains dans le submillimétrique ou dans l’infrarouge lointain. Cette mesure est grevée d’incertitudes, dues à notre compréhension limitée des propriétés d’émissivité des grains lorsque la densité change, ou lorsqu’il se recouvre de glace.

Les études à grande échelle de la température des grains montrent que la température au sein des cœurs denses est plus basse que la température des couches plus externes.

Cela est compatible avec le principe d'atténuation du CRIS en fonction de la profondeur dans le nuage. Les observations ISO à 170 et 200 μm (Warp-Thompson *et al.* (2002) [120]) montrent des températures de l'ordre de 15 K dans les couches externes et aux environs de 10 K dans le cœur.

Nous pouvons aussi citer les observations faites par Pagani *et al.* 2003 [90] sur L183 qui contraignent la température de la poussière du corps dense à 8 K, ou les travaux faits sur différents cœurs du Taureau concluant à des températures de la poussière de l'ordre de 12 K.

Comme nous l'avons dit, ces températures sont à prendre avec prudence, tant que nous ne saurons pas avec précision la variation d'émissivité des grains avec la densité.

Température du gaz. Tout comme pour la poussière, elle est déterminée par l'équilibre entre chauffage et refroidissement.

Dans le cas des milieux les moins denses, le chauffage vient principalement des interactions avec les rayons cosmiques, le refroidissement du rayonnement des transitions moléculaires, principalement de CO (voir Goldsmith & Langer 1978 [47]).

Pour les milieux plus denses, le couplage entre poussière et gaz devient important : suivant la différence de température entre ces deux phases, la poussière va soit refroidir, soit chauffer le gaz. Le refroidissement par radiation des transitions moléculaires, quant à lui, est négligeable dans les cœurs denses. En effet, quasiment toutes les molécules pouvant refroidir le gaz (comme CO par exemple) se trouvent piégées dans les manteaux de glace des grains, les empêchant de rayonner. Cela dit, les études menées par Goldsmith (2001) [46] ont montré que le refroidissement par la poussière était très efficace aux densités typiques de ces régions ($>10^4 \text{ cm}^{-3}$).

La température au sein du gaz est mesurée grâce à des transitions de molécules simples, comme CO ou NH_3 . Cela dit, parce qu'il se colle sur les grains lorsque la température baisse, CO ne peut sonder que les zones de basses densités où la température est assez haute, et les températures dérivées grâce à ce traceur indiquent des valeurs entre 10 et 15 K. Pour les zones plus denses, les observations des transitions métastables de NH_3 semblent être de bons traceurs, puisque NH_3 a un pic d'abondance aux grandes densités. Cela nous amène à des températures de l'ordre de 10 K pour la majorité des nuages sombres.

Structure en vitesse

Les cœurs denses présentent des mouvements internes lents. En effet, les observations de transitions moléculaires dans ces objets (observations de NH_3 par exemple) montrent des largeurs de raies systématiquement proches de celles engendrées par des mouvements thermiques, donc subsoniques.

Malgré ces vitesses lentes, les mouvements de la matière au sein de ces nuages semblent être complexes. L'écart des largeurs des transitions moléculaires à celles dues aux mouvements thermiques est généralement associé aux phénomènes de turbulence, bien que les mouvements d'effondrement/expansion ne soient pas à exclure (voir, par exemple, Caselli *et al.* 2002 [20]).

Une autre caractéristique importante de ces nuages est leur rotation. Comme tout objet formé par gravitation, les nuages pré-stellaires doivent subir une rotation. Cela dit, les nombreuses observations faites (Caselli *et al.* 2002 [20] par exemple) montrent que cette rotation, si elle existe bien, est très lente. De plus, les études faites par Arquilla &

Goldsmith en 1986 [2] montrent que le moment cinétique décroît lorsque la taille de l'objet décroît, et ce en suivant une loi de puissance : $j \propto R^{1.6}$. Cette loi empirique reproduit bien les observations, mais il manque une explication au transfert de moment cinétique associé du cœur au milieu ambiant. Quel est le mécanisme efficace permettant de transférer ce moment angulaire (champ magnétique, fragmentation) ?

D'autres mouvements sont observés : mouvement d'effondrement, vu grâce à l'asymétrie des transitions moléculaires qui absorbent les composantes décalées vers le bleu des transitions (profil de type P-Cygni), ou mouvement de pulsation, comme vu par Lada *et al.* (2003) [63] dans le cas de B68.

Ainsi, bien que froids, ces nuages présentent de nombreux phénomènes compliquant l'explication des profils de raie observés, ce qui retarde d'autant plus la complète compréhension de ces milieux.

Composition moléculaire

Généralités. La dernière caractéristique de ces nuages que nous allons développer est une des plus importantes : la chimie. Comme nous l'avons dit plus haut, la chimie qui se déroule au sein de ses nuages est héritée par les étoiles (et aussi par les planètes) lors de la formation stellaire, il est donc primordiale de bien la connaître.

De nombreuses études ont montré que les nuages moléculaires sont composés de nombreuses espèces différentes. Nous pouvons citer les études observationnelles de Kaifu *et al.* 2004 [59] qui détectent une quarantaine de molécules dans une bande de fréquence relativement restreinte (8 GHz–50 GHz).

Les études aux grandes échelles montrent aussi des inhomogénéités dans les nuages. Citons par exemple Pratap *et al.* (1997) [95] qui, sur TMC-1, dénombrent pas moins de 3 différents pics d'émission, correspondant chacun à une molécule différente : HC_3N , NH_3 et SO . Cette distribution montre l'importance des conditions physiques à l'intérieur des nuages, conditions qui vont permettre à une molécule d'être abondante à un endroit et pas à un autre (différenciation chimique).

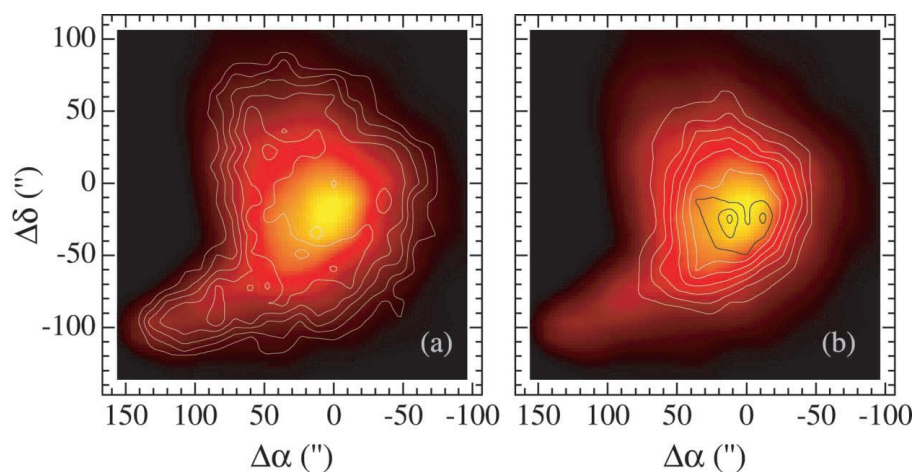


FIGURE 1.3 – Exemple de B68, Bergin *et al.* 2002 [6]. En couleur, la carte d'extinction dérivée de Alves *et al.* (2001), [1]. Contour : (a) Transition $J = 1 \rightarrow 0$ de C^{18}O , (b) Transition $J = 1 \rightarrow 0$ de N_2H^+

Molécules sur les grains. D'un point de vue chimie sur les grains, de nombreuses études ont observé le mode vibrationnel fondamental de molécules en phase solide, comme H_2O ou CO par exemple. Ces glaces, étudiées grâce à l'absorption du rayonnement des étoiles en arrière-plan des nuages moléculaires (voir van Dishoek 2004 [115] par exemple) sont composées majoritairement de glace d'eau, mais aussi d'une proportion allant jusqu'à 25% de CO et CO_2 .

Une chose importante lorsqu'on parle de manteaux de glace est l'existence d'un seuil en extinction en deçà duquel leurs signatures d'absorption ne sont plus observées, ce qui implique que les grains n'ont plus de manteaux pour les extinctions visuelles faibles. Ce seuil diffère pour chacune des espèces composant la glace, et dépend grandement des conditions physiques des sources. Passé ce seuil, les glaces moléculaires subliment et enrichissent le milieu gazeux des molécules qui ont été piégées/formées dans ces manteaux.

Molécules dans le gaz. Le problème des nuages sombres est leur température (~ 10 K) qui rend toute observation du composant majoritaire du gaz (H_2) impossible (voir ci-après 1.3.1). Cela dit, en supposant que les isotopes de CO (généralement C^{18}O) ont une abondance constante par rapport à H_2 (Frerking *et al.* 1982 [43]), on peut remonter à la distribution de densité de colonne de H_2 dans les nuages.

De plus, il semble découler des études de chimie que les réactions ions-molécules sont prépondérantes dans la phase gazeuse des nuages (voir Herbst 2005 [51]).

Il est faux de penser que la chimie dans le gaz est déconnectée de la chimie sur les grains. De nombreuses études ont montré que les molécules composant le gaz se collent sur les grains lorsque la température baisse. Les premières preuves ont été trouvées en comparant les densités de colonne de CO déduites des observations de ses transitions moléculaires aux densités de colonne de H_2 déduites des observations de l'émission de la poussière. La baisse d'abondance ainsi observée entre les parties externes et les parties internes des objets est expliquée par une *déplétion* de CO sur le grain, faisant baisser l'abondance de CO dans la phase gazeuse (voir Kuiper *et al.* 1996 [62] par exemple).

Cette déplétion ne touche pas toutes les molécules de la même façon, il y a une sorte de sélection. La figure 1.3 montre ce fait sur l'exemple de B68. La carte couleur représente la carte en extinction du nuage, les contours la carte en émission moléculaire de C^{18}O à gauche et N_2H^+ à droite. Nous voyons que l'émission de CO est bien répartie sur l'ensemble du nuage, sauf au centre lorsque l'extinction est maximale. Ceci représente bien le fait que le CO est déplété. Le cas de N_2H^+ est totalement inversé. En effet, l'émission de cette molécule est très faible dans les parties externes, mais plus on se rapproche du centre, et plus elle devient forte. Ceci vient du fait que CO est le destructeur principal de N_2H^+ . Lorsque celui-ci se colle sur les grains, la voie de destruction de N_2H^+ est plus faible, et donc son abondance augmente.

1.3 H_2 , Rapport Ortho/Para et Nuages moléculaires

Nous avons présenté jusqu'ici le contexte astrophysique de notre étude : les nuages moléculaires. Nous avons montré qu'il s'agissait de milieux bien connus, dont la majorité des conditions physiques était contrainte. Il y a cependant une chose à laquelle nous ne nous sommes pas intéressé en détail, et il s'agit de H_2 .

1.3.1 Ortho-H₂, Para-H₂

Comme nous l'avons dit, la molécule d'hydrogène moléculaire est le composant principal des nuages moléculaires. Une bonne connaissance de ces milieux passe par une bonne connaissance de H₂.

H₂, malgré le fait qu'elle soit composée de deux atomes les plus simples, n'est pas une molécule simple. Elle possède plusieurs particularités qui la rendent intéressante (la liste n'est pas exhaustive) :

- Elle ne possède pas de moment dipolaire, donc aucune transition dipolaire ($\Delta J = 1$). Seules les transitions quadrupolaires ($\Delta J = 2$) sont autorisées, ce qui nécessite des températures grandes pour pouvoir exciter les niveaux correspondants ($J = 2$ est à une énergie de 360 cm^{-1} au dessus du niveau fondamental $J = 0$).
- Avec une énergie de dissociation de 4,5 eV, il s'agit de la première molécule à se dissocier dans les milieux moléculaires.
- Elle est la base de toutes les autres molécules, et ce par l'intermédiaire de la réaction (Oka 2002 [87]) :



où CR correspond au rayon cosmique. Il vient que la molécule H₃⁺ est une molécule très réactive, qui réagit donc très facilement avec les divers composants du milieu.

Mais une des propriétés qui va particulièrement nous intéresser est la présence de deux espèces de H₂ : para- et ortho-H₂.

Chacun des atomes d'hydrogène composant H₂ possède un spin nucléaire $I = \pm \frac{1}{2}$. Selon la valeur de ses spins, le spin nucléaire total de la molécule de H₂ est donc : $I_{\text{tot}} = 0, 1$.

Si $I_{\text{tot}} = 0$, c'est-à-dire si les spins des deux noyaux d'hydrogène sont anti-parallèles, la molécule est dans sa forme para. Cette forme correspond aux niveaux rotationnels ayant un nombre quantique de rotation pair ($J = 0, 2, 4, \dots$). A l'inverse si $I_{\text{tot}} = 1$, les spins sont dit parallèles, la molécule est dans son état ortho. Elle correspond aux niveaux rotationnels ayant un nombre quantique rotationnel impair ($J = 1, 3, 5, \dots$). Ces relations entre état de spin et niveaux de rotation proviennent du principe d'exclusion de Pauli, appliqué aux fermions.

1.3.2 Formation de H₂, conversion ortho-/para-H₂, rapport ortho/para

Formation de H₂ et rapport ortho/para de H₂

La formation de la molécule d'hydrogène moléculaire se fait par combinaison de deux atomes d'hydrogène. Le mécanisme exact de cette formation est encore le sujet de nombreuses études, même si toutes ces études tombent d'accord sur un point : dans les milieux astrophysiques, H₂ se forme à la surface des grains de poussières.

Le problème est que nous n'avons aucune idée précise sur la formation de H₂ dans ces milieux, c'est pourquoi plusieurs mécanismes ont vu le jour. Nous allons rapidement les présenter ici, ainsi que leur implication sur le rapport ortho/para de H₂ (dans toute cette thèse, ce rapport sera dénommé : OPR(H₂)) à sa formation (voir Takahashi 2001 [102]).

La principale différence entre tous les mécanismes qui ont été imaginés pour expliquer la formation de H₂ sur les grains vient de la redistribution de l'énergie de formation sur

les degrés de liberté. En se formant, H_2 libère de l'énergie ($\simeq 4.48$ eV). La redistribution de cette énergie va avoir un impact sur la valeur du rapport ortho/para de H_2 .

1. L'énergie de formation est répartie de façon équitable entre les degrés de libertés de translation, de rotation et de vibration de H_2 . En supposant ceci, la température de rotation de H_2 est de l'ordre de 9200 K, et le rapport ortho/para de H_2 est égal au rapport donné par l'équilibre statistique, *i.e.* 3 (Black & van Dishoeck 1987 [9]).
2. L'énergie est répartie sur les états d'énergie vibrationnels et rotationnels uniquement, le surplus étant absorbé par le grain de poussière. Ainsi, H_2 est dans son niveau d'énergie vibrationnel $\nu = 14$, proche du seuil de dissociation, et dans ses niveaux d'énergie rotationnels $J = 0, 1, 2, 3$ au plus. OPR(H_2) est alors uniquement basé sur la statistique de spin nucléaire, donc 3. (Le Boulrot *et al.* 1995 [67])
3. L'excitation vibrationnelle de H_2 est comparable à la différence d'énergie entre l'énergie de liaison H–H et la profondeur du puits de potentiel du grain, dans le cas où celui-ci est un silicate. Le niveau d'énergie vibrationnel du produit est alors $\nu < 7$ et seuls les niveaux fondamentaux des deux espèces sont peuplés : $J = 1$ pour ortho- H_2 et $J = 0$ pour para- H_2 , dû à la distribution thermique du moment angulaire initial à la température du grain ($10 \text{ K} < T_{\text{grain}} < 80 \text{ K}$). Pour cette gamme de température, OPR(H_2) est alors compris entre 0 et 1 (Duley & Williams 1986 [33]).
4. Si la recombinaison a lieu entre 2 atomes d'hydrogène ayant un spin nucléaire aléatoire et que la molécule de H_2 est éjectée du grain avant que la réorganisation des spins nucléaires soit finie, alors OPR(H_2) devrait être 1 (Le Boulrot 1991 [65]).
5. Afin de reproduire la distribution vibrationnelle et rotationnelle de H_2 dans les régions de photo-dissociation (PDR), un modèle stationnaire a été mis au point, prenant en compte les processus radiatifs, la formation de H_2 sur les grains et la conversion de H_2 dans le gaz (voir paragraphe suivant pour cette conversion). Le résultat montre que OPR(H_2) doit être compris entre 0,5 et 0,8, correspondant à une température de formation de 60-70 K (Takayanagi *et al.* 1987 [103]).
6. Le dernier exemple nous vient de simulation de PDR faite par Draine & Bertoldi (1996) [31]. Ils proposent une distribution ro-vibrationnelle différente du mécanisme précédent et concluent à un OPR(H_2) de 2.78, en considérant en plus l'auto-écranage du rayonnement.

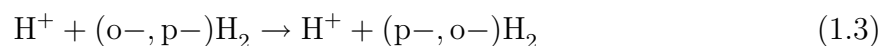
Le but que nous avons ici n'est pas de montrer si tous ces mécanismes sont réalistes ou non, mais plutôt de voir qu'à partir du même mécanisme de base, *i.e.* la formation de H_2 sur les grains, on peut arriver à des rapports ortho/para de H_2 sur toute la gamme possible : entre 0 et 3.

Conversion ortho-/para- H_2

Peu importe la valeur initiale de OPR(H_2) à la formation de H_2 , celle-ci évolue en fonction du temps. En effet, s'il n'est pas possible de passer de para- à ortho- H_2 par phénomène radiatif ou collisionnel (inélastique), il existe plusieurs moyens réactionnels de le faire.

Dans la phase gazeuse, il y a deux possibilités pour passer de ortho- H_2 à para- H_2 : (i) par échange de proton avec un donneur de proton, comme H^+ ou H_3^+ , (ii) par échange d'atome avec H.

De nombreuses études ont montré que le premier mécanisme :



était la manière la plus simple et la plus efficace de passer d'une forme à l'autre (Gerlich 1990 [45]), bien que les taux de réaction ne soient pas très bien connus. La transition entre ortho-H₂ ($J = 1$) et para-H₂ ($J = 0$) a un taux de réaction aux alentours de 2×10^{-10} cm³.s⁻¹ aux températures des nuages moléculaires ($T \sim 10$ K), mais dépend grandement de cette température.

De ces travaux d'ailleurs, l'auteur déduit une loi sur le rapport ortho/para de H₂ dans le domaine 0-100 K :

$$\frac{n_{\text{ortho}}}{n_{\text{para}}} = 9.35 \exp(-169.4/T) \quad (1.4)$$

La conversion peut aussi se passer à la surface des grains de poussière. Nous pouvons citer, par exemple, les travaux de Le Bourlot *et al.* 2000 [66]. Le premier résultat que tire cette étude est que la conversion entre ortho- et para- H₂ sur des surfaces non-magnétique et non-métallique peut être très efficace (< 1 min), ce qui est très rapide au vu des temps de réactions dans la phase gazeuse.

Le mécanisme de conversion est le suivant :

- Une molécule de H₂ entre en collision avec un grain de poussière et est adsorbée (physisorbée). Le coefficient de collage devrait être de l'ordre de 1.
- La molécule adsorbée se thermalise à la température du grain sur une échelle de temps de l'ordre de celle de la vibration ($\sim 10^{-13}$ s). La plupart des molécules adsorbées sont dans leur état ro-vibrationnel fondamental (v, J)=(0,0) et (0,1).
- Conversion de la molécule. Cette conversion se fait par échange de moment cinétique avec un électron du substrat. Le moment dipolaire induit interagit alors avec le spin nucléaire d'un des noyaux et le change. L'échelle de temps de cet échange est de l'ordre de la minute.
- Evaporation de H₂ de la surface. Le temps d'adsorption k_{ev}^{-1} dépend à la fois de la température du grain et de l'énergie de liaison de l'adsorption.

Ce mécanisme paraît simple, mais à l'inconvénient de mettre en jeu des phénomènes qu'il est difficile de connaître précisément : le coefficient de collage, l'interaction électron du substrat/H₂, énergie de liaison, etc... Mais si l'on fait des hypothèses sur toutes ses valeurs, on peut trouver des taux de conversion de 100% aux A_v supérieure à 1.

1.3.3 Rapport Ortho/Para et nuages moléculaires

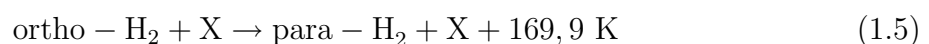
La molécule d'hydrogène a donc deux formes. Il est possible d'obtenir une conversion entre ses formes par collisions réactives. Mais quelques questions restent en suspens : quel est l'état de H₂ dans les nuages moléculaires ? Quelle est son évolution ? Quels sont ses impacts ? Autant de questions auxquelles il nous faut répondre pour avoir une connaissance complète de ces nuages moléculaires.

Evolution de OPR(H₂) dans les nuages moléculaires

En dépit de tous les débats sur la formation de H₂ sur les grains, il est communément accepté que la valeur initiale du rapport Ortho/Para de H₂ est de 3.

Le tout est de savoir maintenant quelle est la valeur thermalisée de ce rapport à la température du nuage.

Nous avons parlé de conversion entre ortho- et para-H₂. Il faut savoir que seule l'une des conversions est exothermique :



où X représente H^+ , H_3^+ , H ou le grain.

Ainsi, sauf s'il y a assez d'énergie dans le milieu (thermique, cinétique, etc...) à apporter au système, la seule réaction possible est la conversion de ortho- H_2 en para- H_2 . C'est ce qu'il se passe dans les nuages moléculaires, où la température est de l'ordre d'une dizaine de Kelvin.

Ainsi, lorsque H_2 se forme, le rapport ortho/para est égal à 3, puis décroît au fur et à mesure du temps afin d'arriver à la valeur thermalisée. Mais quelle est cette valeur ?

Si l'on considère que les niveaux rotationnels de H_2 sont peuplés selon la loi de Boltzmann, on peut facilement trouver la valeur de $OPR(H_2)$ théorique à la température des nuages (que nous prendrons à 10 K).

$$\frac{n_{ortho}}{n_{para}} = \frac{g_{ortho}}{g_{para}} \exp(-T_{trans}/T_{cin}) \quad (1.6)$$

où g_i est la dégénérescence du niveau i , T_{trans} l'écart d'énergie entre les deux niveaux (170 K) et T_{cin} la température du milieu.

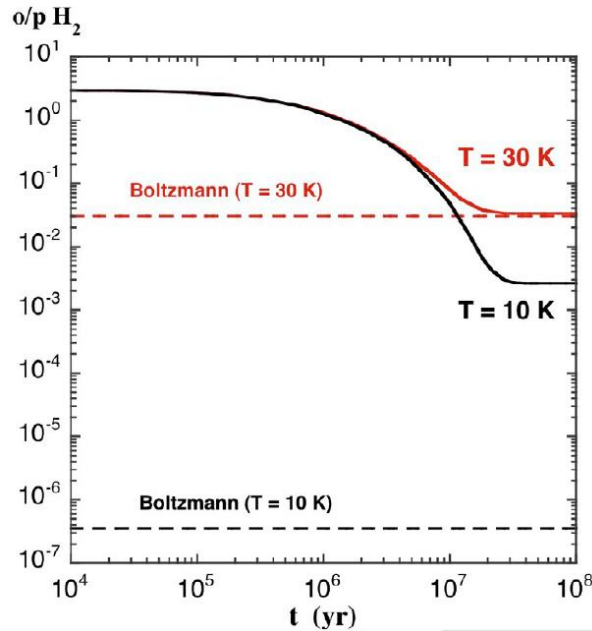


FIGURE 1.4 – Evolution du rapport ortho/para de H_2 en fonction de l'âge d'un nuage sombre pour deux températures cinétiques de nuage, $n_H=10^4 \text{ cm}^{-3}$, Flower *et al.* 2006 [41].

En faisant cette hypothèse, nous trouvons une valeur de $OPR(H_2)$ de l'ordre de $3,6 \times 10^{-7}$. Le tableau 1.2 montre la valeur de $OPR(H_2)$ à l'équilibre thermodynamique locale pour d'autres températures. Les valeurs supérieures à 3 viennent de la dégénérescence du spin nucléaire I de H_2 : $g_I = 3$ pour ortho- H_2 soit une dégénérescence totale $g_{ortho} = g_I \times g_J = 9$, $g_I = 1$ pour para- H_2 dans son état fondamental, soit une dégénérescence totale $g_{para} = 1$.

Flower *et al.* 2006 [41] simulent d'ailleurs dans leurs travaux cette décroissance du rapport ortho/para de H_2 en fonction du temps (voir figure 1.4). Pour cela ils prennent en compte tous les phénomènes de destruction de H_2 dans leur modèle.

Nous y voyons que le rapport ortho/para de H_2 décroît avec le temps, comme escompté. Les auteurs montrent que l'on atteint le régime stationnaire au bout de 3×10^7 ans pour

Température cinétique	OPR(H_2) à l'ETL
10	$3,6 \times 10^{-7}$
20	$1,8 \times 10^{-3}$
30	$3,1 \times 10^{-2}$
40	$1,3 \times 10^{-1}$
50	3×10^{-1}
100	1,63
150	2,89
200	3,84
250	4,55
300	5,1

TABLE 1.2 – Valeur du rapport ortho/para de H_2 à l'équilibre thermodynamique local en fonction de la température.

une densité de milieu de 10^4 cm^{-3} et en concluent qu'il était probable que OPR(H_2) ne soit pas thermalisé lorsque commence l'effondrement gravitationnel ($\sim 10^7$ années).

Cela dit, on touche du doigt un des premiers intérêts de connaître précisément le rapport ortho/para de H_2 : si nous le connaissons, nous pouvons avoir une estimation de l'âge du nuage moléculaire que nous étudions.

OPR(H_2) et deutération

Les observations spectroscopiques des nuages moléculaires ont montré une présence importante de molécules deutérées (voir par exemple la revue de Ceccarelli *et al.* (2007) [22]). Cette deutération de molécules complexes (citons par exemple Turner 2001 [109] qui détecte une dizaine de molécules deutérées dans TMC-1 et L183) comme N_2D^+ , DC_3N , etc... viennent toutes de la réaction primordiale exothermique :



la molécule de H_2D^+ réagissant alors avec d'autres atomes/molécules afin de créer les molécules complexes deutérées, tout comme H_3^+ réagit avec les composants du milieu pour créer les molécules non-deutérées.

Le rapport ortho/para de H_2 a une influence non-négligeable sur le taux de deutération dans les milieux interstellaires. En effet, la forme ortho- de H_2 à assez d'énergie interne pour permettre la réaction exothermique :



et ainsi détruire H_2D^+ .

Ainsi, plus il y a de la forme ortho de l'hydrogène moléculaire, moins il y aura de molécules deutérées dans le milieu. Cela est d'ailleurs bien montré dans les travaux théoriques de Flower *et al.* 2006 [41]. Nous voyons que, dans l'exemple de D_3^+ , l'abondance de l'espèce par rapport à H_2 diminue drastiquement si l'on considère la valeur de OPR(H_2) à

l'équilibre thermodynamique ($\sim 10^{-7}$) ou un OPR(H_2) de 3 : pour une densité du type des milieux moléculaires que nous étudions, $\sim 10^4 \text{ cm}^{-3}$, l'abondance passe de 2×10^{-10} à 8×10^{-17} , soit une diminution de 7 ordres de grandeur.

Nous voyons ainsi que connaître le rapport ortho/para de H_2 nous permettra d'expliquer l'abondance de molécules deutérées dans les milieux moléculaires. D'ailleurs, certains auteurs, citons par exemple Pagani *et al.* 2009 [91] utilise l'abondance de molécules deutérées pour contraindre OPR(H_2). Nous reviendrons sur ce point dans le corps de la thèse.

OPR(H_2) et observations

Comme nous l'avons vu, le rapport ortho/para de H_2 est un paramètre des plus importants dans la compréhension du milieu interstellaire. C'est pourquoi il y a eu beaucoup d'études ayant pour but de le déterminer. Nous allons présenter deux cas différents d'études : les milieux chauds et les milieux froids.

Les milieux chauds. Lorsque nous parlons de milieux chauds pour les nuages moléculaires, nous parlons surtout de régions particulières de ces nuages, où il y a une température cinétique haute ($T_{\text{cin}} > 300 \text{ K}$). Il s'agit généralement de zones de chocs entre un jet provenant d'étoiles en formation et de nuages moléculaires.

Cette zone de choc amène de l'énergie au milieu moléculaire. Cette énergie a pour principale conséquence de permettre à la molécule de H_2 de peupler ses niveaux rotationnels excités, et, ainsi, de lui permettre de rayonner. Il nous est donc possible d'observer directement les transitions rotationnelles des deux formes de l'hydrogène moléculaire et en déduire le rapport ortho/para de H_2 dans la zone de choc.

Citons par exemple les études faites par Neufeld *et al.* 1998 et 2006 [85; 86] ou par Lefloch *et al.* 2003 sur les régions de chocs HH54, HH7-11 et HH2 respectivement. Ces études consistent à mesurer les intensités des transitions de H_2 et à en tirer les diagrammes rotationnels dont nous pouvons voir un exemple dans la figure 1.5.

Par comparaison entre les intensités des transitions des deux formes de H_2 , il est facile de remonter au rapport ortho/para de H_2 . Les observations montrent un OPR(H_2) compris entre 0.5 et 2 dans ces régions. Nous reviendrons sur ce point dans le chapitre 6.

Les milieux froids. Pour les autres milieux moléculaires, la température n'est pas suffisante pour observer les transitions rotationnelles de H_2 , il n'est donc pas possible de déterminer directement le rapport ortho/para de H_2 . Il nous faut trouver d'autres moyens.

Les seuls moyens indirects que nous avons pour déterminer ce rapport est donc d'utiliser les autres molécules observables présentes dans ces milieux. Le seul problème est de trouver des molécules dont l'intensité des transitions est sensible au rapport ortho/para de H_2 .

De précédentes études ont tenté de contraindre ce rapport en modélisant les transitions de diverses molécules (citons par exemple Maret *et al.* 2007 [75] qui ont utilisé les transitions de DCO^+ et HCO^+) grâce à des simulations de chimie dans les milieux interstellaires. Ils arrivent à trouver une valeur à ce rapport aux alentours de 0,015. Cependant, ce résultat est entaché de grandes incertitudes, puisque limité par l'état actuel de nos connaissances dans les mécanismes chimiques des milieux spatiaux.

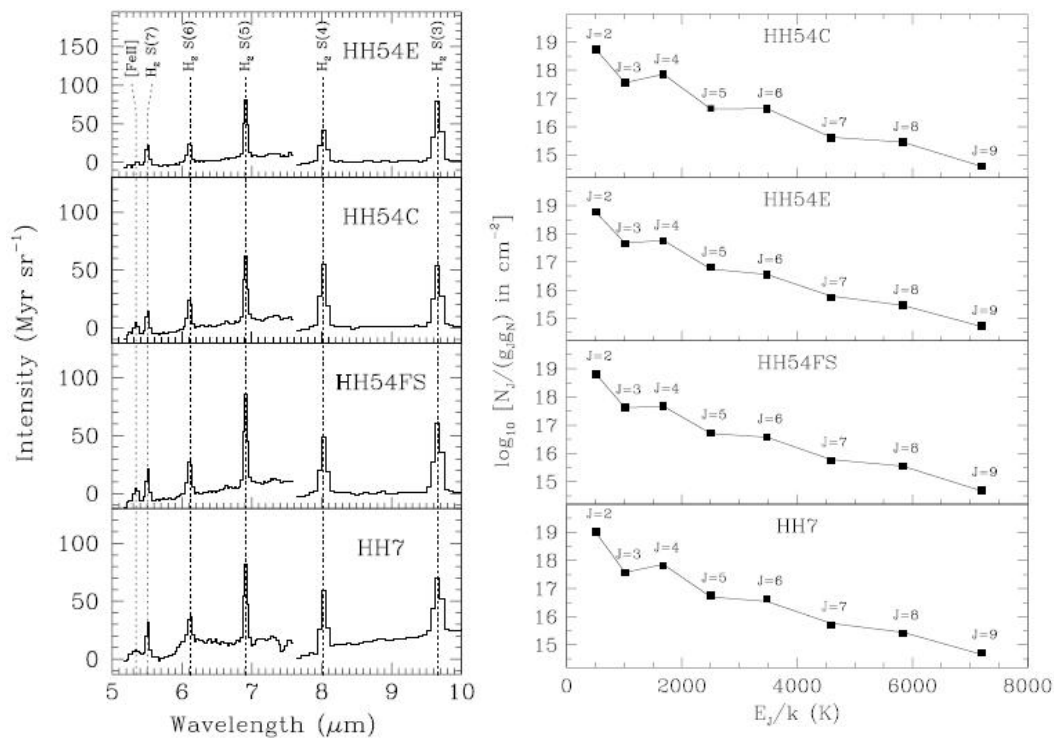


FIGURE 1.5 – Observation des raies rotationnelles de la molécule d’hydrogène dans plusieurs zones de choc (Neufeld *et al.* 2006 [86]). À gauche les observations spectroscopiques de H_2 , à droite le diagramme rotationnel déduit des observations.

1.4 Ce qui va suivre

Comme le lecteur l’aura sûrement compris, dans toute cette thèse, nous allons nous intéresser à deux sujets : les milieux moléculaires, et en particulier les nuages sombres, et le rapport ortho/para de H_2 .

Pour contraindre $OPR(H_2)$ dans ces milieux, et comme nous ne pouvons pas directement observer H_2 dans ces milieux, nous avons besoin d’une molécule qui va nous servir de sonde.

Pour cela, nous avons choisi le formaldéhyde, H_2CO . Pourquoi ce choix ? Pour plusieurs raisons :

- Il s’agit d’une molécule que l’on peut observer directement du sol.
- Ce grand moment dipolaire va induire une différence de comportement selon que l’on considère des collisions avec ortho- ou para- H_2 . En effet, la surface d’énergie potentielle, donc les sections efficaces de collisions, est sensible aux interactions polaires entre les deux molécules. Puisque seule la forme ortho- de H_2 possède une polarité (quadrupôle), les taux de collision entre H_2CO et H_2 vont être très sensibles à l’état de spin de H_2 , donc au rapport ortho/para de H_2 des milieux.
- Elle est présente dans une grande variété de milieux, ce qui permettra de diversifier les sources.
- Elle présente une observation originale dans les nuages sombres : « l’absorption anormale » de la transition fondamentale de sa forme ortho à 6 cm, dont les propriétés de densitométrie sont déjà connues.

Cela dit, pour pouvoir utiliser cette molécule, c’est-à-dire pouvoir modéliser son émis-

sion grâce à des programmes de transfert radiatif, il nous faut connaître ses taux de collisions avec H_2 , et ainsi voir s'il existe des différences que l'on considère ortho ou para- H_2 . Cette étude fait l'objet de la partie 1, où nous présentons, après un rappel théorique des calculs, les résultats que nous avons obtenus.

La partie 2 de ce manuscrit se focalise sur la détermination du rapport ortho/para de H_2 dans les nuages sombres, en se basant sur des observations que nous avons menées, puis sur des simulations numériques.

Que le jeu commence...

Première partie

Taux de collision inélastiques

Chapitre 2

Taux de collision rotationnels : Théorie

Sommaire

2.1	Introduction	19
2.2	Description du problème	20
2.2.1	Hamiltonien	20
2.2.2	Approximation de Born-Oppenheimer	21
2.3	Surface d’Energie Potentielle	23
2.3.1	Géométrie du système : généralités	23
2.3.2	Système de coordonnées	24
2.3.3	Calcul de la SEP	25
2.4	De la SEP aux sections efficaces	28
2.4.1	Calcul Close Coupling	28
2.4.2	Calcul Coupled States	31
2.4.3	Propagation de la fonction d’onde	32
2.5	Des sections efficaces aux taux de collision	36
2.5.1	Taux de collision	36
2.5.2	Bilan détaillé	36

2.1 Introduction

L’observation de transitions moléculaires permet de sonder et comprendre les conditions physiques régnant au sein des milieux astrophysiques. Pour ceci, les astrophysiciens se basent sur des observations spectroscopiques à grandes longueurs d’onde (principalement du centimétrique à l’infrarouge), signatures de transitions entre les niveaux d’énergie rotationnels et vibrationnels des molécules.

L’intérêt de telles observations réside dans la capacité que nous avons à en tirer des contraintes sur les conditions physico-chimiques des milieux observés. Pour cela, ces observations spectroscopiques en elle-même sont d’excellentes sondes de tout ce qu’il se passe au sein dudit milieu. Par exemple, les formes des raies spectroscopiques nous renseignent sur les conditions dynamiques du milieu (turbulent ou non, en effondrement ou calme,...). Mais ce qui va le plus nous intéresser, ce sont les intensités de ces transitions, véritables traceurs des conditions physiques du milieu.

Ces intensités dépendent directement de la population des différents niveaux d'énergie de la molécule que l'on étudie, ou « excitation ». Cette distribution de population dépend, elle, des différents processus de population/dépopulation qui ont lieu entre les niveaux d'énergie :

- Les processus radiatifs, qui sont les mécanismes d'absorption et d'émission (spontanée ou induite) décrits par les coefficients d'Einstein. Ces coefficients sont déduits de mesures de laboratoire et sont donc généralement bien connus.
- Les processus collisionnels, qui, comme leur nom l'indique, sont les mécanismes qui prennent en compte les phénomènes de collisions entre molécules. Contrairement aux phénomènes radiatifs, les phénomènes d'excitation collisionnels ne sont pas aisés à mesurer en laboratoire. En effet, afin de pouvoir faire des mesures précises de taux de collisions, il faudrait pouvoir préparer des molécules dans un état quantique donné, tout en ayant une basse température et une basse densité. Ces trois paramètres sont très difficiles à réunir, ce qui explique les difficultés de mesures en laboratoire.

Il existe une véritable compétition entre ces deux processus. La prédominance de l'un par rapport à l'autre va dépendre des conditions de densité du milieu. Ainsi, afin de pouvoir comprendre les conditions physico-chimiques des milieux astrophysiques que l'on veut étudier, il est capital de connaître avec une précision suffisante tous les processus de collisions intervenant dans la population des niveaux d'énergie d'une molécule.

Les processus collisionnels sont caractérisés par une probabilité de transition d'un état d'énergie à un autre pour une température donnée : les taux de collisions ($\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$). Dans ce chapitre, nous allons décrire le processus général de calcul des taux de collisions, des calculs de la Surface d'Énergie Potentielle (SEP) aux taux proprement dit, en passant par les sections efficaces de collision.

2.2 Description du problème

2.2.1 Hamiltonien

Soit un système de deux molécules en interaction, composé de n électrons et m noyaux où seules les interactions coulombiennes sont considérées. Ceci exclut les interactions spin-orbite, spin-spin et les autres effets relativistes du problème que l'on considère. Comme tout système quantique, celui-ci est décrit par un Hamiltonien qui s'écrit :

$$\hat{H} = \hat{T}_e + \hat{T}_N + \hat{V}_{eN} + \hat{V}_{ee} + \hat{V}_{NN} \quad (2.1)$$

$$= - \sum_{i=1}^n \frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_{\vec{r}_i}^2 - \sum_{K=1}^m \frac{\hbar^2}{2M_K} \nabla_{\vec{R}_K}^2 - \sum_{i=1}^n \sum_{K=1}^m \frac{Z_K e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{iK}} + \sum_{i=1}^n \sum_{j>i}^n \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}} + \sum_{K=1}^m \sum_{L>K}^m \frac{Z_K Z_L e^2}{4\pi\epsilon_0 R_{KL}} \quad (2.2)$$

où les indices en minuscules sont pour les électrons et les majuscules pour les noyaux. Les termes en \hat{V}_{ij} correspondent au potentiel d'interaction entre les particules i et j , les termes en \hat{T}_i correspondent à la composante cinétique de la particule i . r_{ij} correspond à la distance entre deux électrons, r_{iK} la distance entre un électron et un noyau K , R_{KL} la distance entre deux noyaux K et L (voir figure 2.1). Enfin M_K correspond à la masse du noyau K , m_e la masse de l'électron, et Z_K la charge du noyau K .

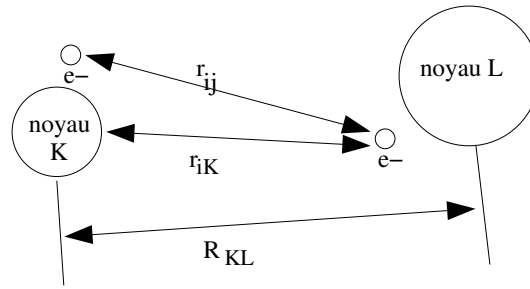


FIGURE 2.1 – Convention de distance pour un exemple de système à deux noyaux et deux électrons

En théorie, il suffirait de résoudre l'équation de Schrödinger stationnaire pour connaître toutes les propriétés indépendantes du temps de notre système. A l'exception de cas très simples, il est impossible de trouver des solutions analytiques quand le nombre de particules du système devient trop grand (dès que $n \geq 3$), et il faudra alors traiter le problème sous quelques approximations.

2.2.2 Approximation de Born-Oppenheimer

Le Hamiltonien décrit dans l'équation 2.2 peut se décomposer en deux parties : une partie purement nucléaire et une partie électronique et nucléaire :

$$\hat{H} = \underbrace{\hat{T}_N + \hat{V}_{NN}}_{\hat{H}_{nucl}} + \underbrace{\hat{T}_e + \hat{V}_{ee} + \hat{V}_{eN}}_{\hat{H}_{elec}}$$

De cette équation, nous voyons que si \hat{H}_{nucl} ne dépend que des coordonnées nucléaires, \hat{H}_{elec} dépend à la fois des coordonnées électroniques et de ces coordonnées nucléaires (via \hat{V}_{eN}). On dit, en mécanique quantique, que les deux Hamiltoniens ne *commutent pas*, *i.e.* que l'on ne pourra pas obtenir la fonction d'onde totale solution de l'équation de Schrödinger comme étant un produit de deux fonctions d'onde distinctes, une nucléaire et une électronique.

L'approximation généralement faite pour palier à ce problème est celle dite de *Born-Oppenheimer*. Elle a été initialement décrite par Born & Oppenheimer en 1927 [13] et se base sur la différence de masse entre électrons et protons ($m_p/m_e = 1836.15267247(80)^1$) qui se reflète au niveau de la dynamique du système.

Comparons les différentes énergies intervenant au sein d'une molécule (voir par exemple Messiah [80]) composée d'électrons de masse m , de noyaux de masse M et considérons a la distance moyenne séparant les noyaux dans cette molécule.

A l'intérieur de cette molécule, l'échelle de distance est a , ce qui donne l'ordre de grandeur de l'amplitude des mouvements électroniques. Ces électrons ont alors une énergie cinétique de

$$e_{el} = \frac{\hbar^2}{ma^2} \quad (2.3)$$

qui est aussi l'ordre de grandeur de la séparation des niveaux électroniques.

1. source : 2006 CODATA recommended values, http://physics.nist.gov/cgi-bin/cuu/Value?mpsm|search_for=atomnuc!

Pour le mouvement des noyaux, considérons les deux mouvements principaux :

- La rotation. Le moment d'inertie du système nucléaire est de l'ordre de Ma^2 . Considérant que la variation du carré du moment d'inertie est de l'ordre de \hbar^2 , la variation de l'énergie de rotation est de l'ordre de :

$$e_{rot} = \frac{\hbar^2}{Ma^2} \quad (2.4)$$

- La vibration. Le phénomène de vibration peut s'assimiler, en première approximation, aux vibrations harmoniques d'énergie : $e_{vib} = \hbar\omega$, où ω est la pulsation. Si l'on fixe la position d'équilibre comme étant le zéro de l'énergie potentielle, et qu'on éloigne l'un des noyaux des autres d'une distance a , le système acquiert une énergie potentielle $\frac{1}{2}M\omega^2a^2$. Cette modification revient à séparer complètement le noyau du reste de la molécule, ce qui revient à dire que : $\frac{1}{2}M\omega^2a^2 \simeq \hbar^2/ma^2$. Il suit :

$$e_{vib} = \frac{\hbar^2}{(mM)^{\frac{1}{2}}a^2} \quad (2.5)$$

En comparant les expressions des trois énergies au sein de la molécule, on obtient :

$$e_{rot} \ll e_{vib} \ll e_{el} \quad (2.6)$$

Il vient que les noyaux des molécules vont bouger beaucoup plus lentement que les électrons. Ceci est une hypothèse dite *adiabatique* : le mouvement des noyaux est un phénomène si lent au niveau électronique que les électrons s'adaptent instantanément à la perturbation qu'il a engendrée. Ainsi, les mouvements des électrons vont dépendre *paramétriquement* de la position des noyaux. D'un point de vue fonctions d'onde, cela se traduit par :

$$\Psi_{tot}(\vec{r}_i, \vec{R}_K) = \sum_i \Phi_i(\vec{R}_K) \cdot \psi_i(\vec{r}_i; \vec{R}_K) \quad (2.7)$$

où les $\Phi_i(\vec{R}_K)$ correspondent aux fonctions d'onde nucléaires et $\psi_i(\vec{r}_i; \vec{R}_K)$ aux fonctions d'onde électroniques. Notons que cette dernière dépend paramétriquement de \vec{R}_K , coordonnée nucléaire qui traduit l'hypothèse adiabatique.

Si l'on applique le Hamiltonien total \hat{H} sur cette fonction d'onde, on obtient l'expression suivante de l'équation de Schrödinger :

$$\begin{aligned} \hat{H}\Psi_{tot}(\vec{r}_i; \vec{R}_K) &= (\hat{T}_N + \hat{V}_{NN} + \hat{H}_{elec})\Psi_{tot}(\vec{r}_i; \vec{R}_K) & (2.8) \\ &= \sum_i \left(\sum_{K=1}^m -\frac{\hbar^2}{2M_K} \nabla_{\vec{R}_K}^2 + E_{elec}^i \right) \Phi_i(\vec{R}_K) \psi_i(\vec{r}_i; \vec{R}_K) \\ &+ \sum_i \Phi_i(\vec{R}_K) \sum_{K=1}^m -\frac{\hbar^2}{2M_K} \nabla_{\vec{R}_K}^2 \psi_i(\vec{r}_i; \vec{R}_K) \\ &- \sum_i \sum_{K=1}^m -\frac{\hbar^2}{2M_K} \left(\nabla_{\vec{R}_K} \Phi_i(\vec{R}_K) \right) \left(\nabla_{\vec{R}_K} \psi_i(\vec{r}_i; \vec{R}_K) \right) \\ &= E\Phi(\vec{R}_K) \cdot \psi(\vec{r}_i; \vec{R}_K) & (2.9) \end{aligned}$$

où E_{elec}^i est l'énergie propre des fonctions propres électroniques solutions de $\hat{H}_{elec}\psi_i(\vec{r}_i; \vec{R}_K) = E_{elec}^i\psi_i(\vec{r}_i; \vec{R}_K)$.

Les termes $[\hat{T}_N\psi(\vec{r}_i, \vec{R}_K)]\Phi(\vec{R}_K)$ et $\frac{1}{2M_K}\nabla_{\vec{R}_K}\psi(\vec{r}_i, \vec{R}_K)\cdot\nabla_{\vec{R}_K}\Phi(\vec{R}_K)$ sont dits termes *non adiabatiques*. Du fait que $M_K \gg m_e$, ces termes non adiabatiques sont généralement bien plus faibles que le terme $\hat{H}_{elec}\psi(\vec{r}_i, \vec{R}_K)(= E_{elec}\psi(\vec{r}_i, \vec{R}_K))$. L'équation 2.9 peut donc se simplifier comme suit :

$$(\hat{T}_N + \hat{V}_{NN} + E_{elec}^i(\vec{R}_K))\Phi_i(\vec{R}_K) \simeq E\Phi_i(\vec{R}_K) \quad (2.10)$$

Cette equation 2.10 est en fait une équation aux valeurs propres pour $\Phi(\vec{R}_K)$: il s'agit d'une équation de Schrödinger pour le mouvement nucléaire, avec pour potentiel effectif :

$$U(\vec{R}_K) = \hat{V}_{NN} + E_{elec}^i(\vec{R}_K) \quad (2.11)$$

La fonction d'onde nucléaire $\Phi_i(\vec{R}_K)$ représente les mouvements de rotation (plus généralement de *ro-vibration*) de nos molécules. Ces mouvements dépendent d'un potentiel électronique (dépendant paramétriquement de la position des noyaux) venant de la résolution de l'équation de Schrödinger électronique.

Donc, pour résoudre notre problème, il nous faut le séparer en deux : résoudre le problème électronique afin d'en calculer le potentiel effectif $U(\vec{R}_K)$ et ensuite traiter le problème nucléaire en tenant compte de cette surface d'énergie potentielle (SEP) électronique. Dans la suite, nous traitons ce problème dans l'état fondamental de vibration de la molécule ($\nu = 0$).

2.3 Surface d'Énergie Potentielle

Comme nous l'avons présenté dans la section 2.2.2, la première étape dans le calcul de taux de collision est de connaître le potentiel effectif dans lequel les noyaux vont se mouvoir. Il nous faut donc calculer la surface d'énergie potentielle engendrée par les interactions électron-électron, électron-noyau et noyau-noyau du système.

Tout ce qui va être dit dans ce paragraphe ne fut pas l'objet du travail de thèse. Il s'agit du travail effectué par Pierre Valiron et collaborateurs et dont le cheminement général est présenté dans Valiron *et al.* (2008) [113] dans le cas de la surface de potentiel H₂O-H₂. Nous allons ici nous borner à une description qualitative du travail nécessaire au calcul de la surface d'énergie potentielle, travail de chimie théorique *ab initio*.

2.3.1 Géométrie du système : généralités

La première chose à faire pour calculer cette surface est de se fixer une géométrie pour le système de molécules en collision.

En tout premier lieu, nous considérons que les conditions de température des objets astrophysiques que nous étudierons par la suite impliquent des énergies bien en dessous du premier seuil d'excitation vibrationnel des molécules que nous étudierons (voir par exemple le seuil de la première excitation vibrationnelle pour H₂CO, annexe A). Ainsi, nous pouvons les considérer comme ne vibrant pas, nous travaillerons donc sous l'hypothèse de *corps rigides*. Ceci nous permet de réduire drastiquement les degrés de liberté du système et de simplifier les calculs (on ne considère plus que les degrés de liberté de rotation, et pas ceux de vibration).

Une fois cette hypothèse faite, il nous faut choisir la géométrie (rigide) des molécules. Oui, mais quelle doit être alors la valeur des distances internucléaires et des angles ?

Cette question est encore largement discutée dans la littérature. Citons par exemple Jeziorska *et al.* [56] qui présentent une étude des surfaces d'énergie potentielle pour le cas d'interaction entre la molécule HF et l'atome d'argon, calculée pour différentes géométries de la molécule HF, ou Valiron *et al.* [113] pour le cas du système H₂O-H₂.

Le choix le plus couramment utilisé dans le calcul des SEP pour des applications astrophysiques est celui d'utiliser les géométries d'équilibre r_e qui sont celles qui minimisent l'énergie interne des molécules lorsqu'elles sont isolées. Si ce choix peut paraître naturel, il est tout de même soumis à caution. En effet, si l'on écrit le Hamiltonien de rotation d'une molécule avec cette géométrie, les valeurs propres trouvées ne seront pas exactement les énergies de rotation telles qu'observées en spectroscopie.

Les expériences de laboratoires nous donnent les constantes de rotation des molécules, I . Ces constantes I sont reliées aux géométries des molécules : $I \propto \langle r^2 \rangle^{-1/2}$, moyenne étant faite sur les états vibrationnels des noyaux. Il est facile de voir que ces constantes de rotations sont reliés non pas à r_e , mais à $\langle r^2 \rangle$, carré des distances moyennées sur les états de vibration.

C'est pourquoi un autre choix consiste à choisir une géométrie dite « moyenne » : les noyaux composant les molécules se trouvent à leur position moyennée sur leurs états vibrationnels :

$$\langle r \rangle = \int |\psi(r)|^2 r dr \quad (2.12)$$

L'intérêt est d'arriver à inclure les mouvements de vibration des noyaux de la molécule même dans l'hypothèse de molécule rigide. Les travaux fait sur H₂O-H₂ par Faure *et al.* (2005) [39] et Valiron *et al.* (2008) [113] ont d'ailleurs montré qu'utiliser cette géométrie était une très bonne approximation pour introduire les vibrations de point zéro dans une molécule « gelée ». Jeziorska *et al.* [56] montrent que définir ainsi les positions des noyaux, pour le système HF-Ar dans leur cas, donne une meilleure concordance entre calculs et expériences dans la spectroscopie du complexe qu'utiliser la géométrie d'équilibre.

2.3.2 Système de coordonnées

La seconde étape dans le calcul de la SEP est de se fixer un système de coordonnées dans lequel la collision sera décrite, le but étant de trouver un référentiel pratique où l'on pourra repérer simplement les positions relatives des deux molécules. Dans le cas des collisions quantiques, on privilégie le repère lié au centre de masse de la molécule cible. Ce choix à plusieurs avantages : il suffit pour décrire toutes les orientations relatives des molécules, la cible est fixe dans le référentiel et seul le projectile bouge.

Le système de coordonnées est représenté par la figure 2.2 pour l'exemple de la collision H₂CO-H₂. Le référentiel est situé au centre de masse de la molécule cible. L'axe z est son axe de symétrie, la molécule étant dans le plan xz . Cinq variables servent à repérer le projectile par rapport au centre de masse de la cible : la distance R , les angles (θ, ϕ) qui repère la direction de collision (*i.e.* la direction du centre de masse du projectile) et (θ', ϕ') qui repère l'orientation relative de celui-ci par rapport à la cible (il est à noter que si le projectile est un atome, ces deux derniers angles n'ont plus de sens, et le système se réduit donc à 3 coordonnées).

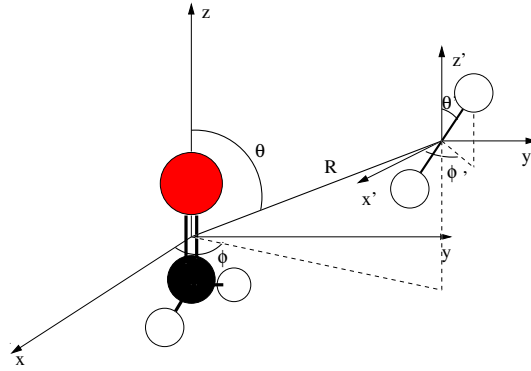


FIGURE 2.2 – Coordonnées du système. Dans le référentiel lié au centre de masse de la molécule cible, cinq coordonnées sont nécessaires pour repérer le collisionneur : la distance R et les angles (θ, ϕ) et (θ', ϕ')

2.3.3 Calcul de la SEP

Une fois définie la géométrie de la molécule et le système de coordonnées du problème, il « ne reste plus » qu'à calculer la surface d'énergie potentielle proprement dite. Nous n'allons pas décrire ici les différentes méthodes de calcul existantes, nous nous bornerons à présenter uniquement la méthode de calcul qui a été employée pour arriver à la SEP du système qui nous intéresse.

La résolution des propriétés électroniques d'un système est une branche conséquente de la chimie quantique. De nombreuses méthodes existent afin de résoudre ce problème électronique, certaines purement théoriques, dans le sens où elles n'emploient pas de termes empiriques autres que les constantes physiques fondamentales : masses et charges des nucléons et de l'électron, vitesse de la lumière et constante de Planck. Ces méthodes, appelées *méthodes ab initio* servent à résoudre l'équation de Schrödinger stationnaire pour les électrons (pour rappel $\hat{H}_{elec}\psi_i(\vec{r}_i; \vec{R}_K) = E_{elec}^i\psi_i(\vec{r}_i; \vec{R}_K)$), dans laquelle nous pouvons rajouter éventuellement les corrections non-adiabatiques et relativistes) et ainsi déterminer des propriétés telles que l'énergie, les moments multipolaires, les géométries d'équilibre, etc...

Méthode de Hartree-Fock

Cette méthode a été initialement exposée par D.R. Hartree en 1957 et détaillée dans [49]. Elle permet d'obtenir la solution de l'équation de Schrödinger électronique sous la forme d'une fonction d'onde décrite par un unique déterminant de Slater χ_{elec} , dont la forme, pour un système à n électrons, est donnée par :

$$\chi_{elec} = \frac{1}{\sqrt{n!}} \begin{vmatrix} \chi_1(1) & \chi_2(1) & \dots & \chi_n(1) \\ \chi_1(2) & \chi_2(2) & \dots & \chi_n(2) \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ \chi_1(n) & \chi_2(n) & \dots & \chi_n(n) \end{vmatrix} \quad (2.13)$$

Ce déterminant est composé, sur ses colonnes, de spin-orbitales mono électroniques, fonctions de base caractérisant la position et l'état de spin d'un électron, appelées *orbitales*

moléculaires. Il permet de satisfaire à deux particularités de la solution : l'antisymétrie de la fonction d'onde, autrement dit le changement de signe de la fonction d'onde si on permute deux de ses composantes (qui vient du fait que les électrons sont des fermions), et le principe d'exclusion de Pauli (deux électrons ne peuvent se trouver dans la même spin-orbitale).

Chaque composante $\chi_j(i)$ du déterminant de Slater est solution d'un système d'équations différentielles couplées appelées équation de Hartree-Fock :

$$\hat{F}\chi_j(i) = \epsilon_i\chi_j(i) \quad (2.14)$$

où $\hat{F} = \nabla_{\vec{r}_i}^2 + \hat{V}_{eN}(\vec{r}_i) + \sum_j \hat{J}_j - \hat{K}_j$. Cette équation est en fait une équation de Schrödinger où les interactions électroniques sont définies par un champ moyen ($\sum_j \hat{J}_j$).

Si cette méthode permet une résolution à l'ordre zéro du problème électronique, il est à noter qu'elle ne prend en compte les interactions électroniques que par l'intermédiaire d'un champ moyen. De par ce fait, elle sous-estime les énergies puisqu'elle néglige toutes les corrélations entre les mouvements des électrons. Pour avoir l'énergie exacte du système moléculaire, il est donc nécessaire d'ajouter à cette énergie Hartree-Fock une énergie de corrélation électronique.

Méthode des Clusters Couplés

La méthode des Clusters Couplés (*Coupled Clusters* en anglais) est ce qu'on appelle une méthode post-Hartree-Fock. On l'utilise afin d'introduire les corrélations entre les mouvements des électrons dans la fonction d'onde sortante de la méthode de Hartree-Fock. Elle a été initialement introduite par Čížek en 1966 [112].

Elle consiste à introduire une corrélation électronique sous la forme d'une correction perturbatrice, la fonction d'onde totale solution du problème s'écrivant ainsi à partir de la fonction d'onde de Hartree-Fock sous la forme :

$$\Psi_{CC} = e^{\hat{T}}\phi_0 \quad (2.15)$$

où ϕ_0 est la fonction d'onde Hartree-Fock et \hat{T} est l'opérateur de cluster

$$\hat{T} = \hat{T}_1 + \hat{T}_2 + \dots \quad (2.16)$$

Le but de l'opérateur \hat{T}_i est de construire, à partir du déterminant de référence, tous les déterminants de Slater correspondant aux niveaux excités i fois. Ainsi, pour un calcul conduit au niveau CCSD(T), nous incluons dans l'opérateur \hat{T} les termes \hat{T}_1 et \hat{T}_2 , et \hat{T}_3 est traité de façon approximative (perturbatrice).

Erreur de superposition de base

La dernière chose à prendre en compte lorsque l'on calcule une SEP est l'erreur de superposition de base. Cette erreur apparaît inévitablement lorsque l'on fait des calculs de dimère avec des bases finies, et ce, quel que soit la méthode.

Revenons tout d'abord à notre problème : le traitement des collisions moléculaires inélastiques. Comme nous l'avons déjà dit, nous sommes intéressés par l'interaction de deux systèmes moléculaires, qui se traduit par un potentiel. Ce potentiel, n'est autre que la différence entre les énergies des molécules A et B prises séparément et l'énergie de la « super-molécule », complexe formé par l'assemblage des deux molécules :

$$E = E_{AB} - E_A - E_B \quad (2.17)$$

L'énergie de la molécule A est calculée avec sa propre base d'orbitale (b_A), de même pour la molécule B (b_B). L'énergie de la super-molécule AB (E_{AB}) par contre, est calculée sur une base plus grande : $b_A + b_B$. Ainsi, si pour les calculs de E_A et E_B les électrons ne disposent que de la base propre de leur monomère, pour le calcul de E_{AB} , ils disposent de cette base élargie. Comme cette base est plus complète, la description de la structure électronique est meilleure. Ceci a pour effet d'abaisser artificiellement l'énergie du complexe par rapport aux monomères séparés : c'est l'erreur de superposition de base (BSSE). Ce phénomène est d'autant plus marqué que les bases b_A et b_B sont petites et les molécules très proches.

Boys et Bernardi [14] proposèrent en 1970 une méthode qui tend à diminuer cette erreur : la méthode du contreponds. Cette formule nécessite le recalcul de l'énergie des monomères pour chaque configuration géométrique dans la base du complexe :

$$E = E_{AB}(b_A + b_B) - E_A(b_A + b_B) - E_B(b_A + b_B) \quad (2.18)$$

Le gros inconvénient qui apparaît dans cette formule est que l'on doit, pour chaque orientation, faire trois calculs *ab initio*. Une SEP de N points consiste donc en $3N$ calculs.

Extrapolation de base

Idéalement, le calcul de la surface d'énergie potentielle devrait se faire sur l'ensemble de la surface de paramètre et avec une précision infinie. Dans la pratique, et ce pour cause de temps de calcul, nous ne pouvons pas calculer autant de points de cette surface avec une telle précision.

C'est pourquoi nous adoptons une approche différente. Puisqu'il nous faut ces deux caractéristiques en même temps, nous faisons un calcul en trois temps :

1. Afin de bien échantillonner l'espace de paramètres, et ce pour décrire convenablement toutes les échelles de la surface de potentiel, nous calculons un grand ensemble de points de cette surface, mais avec une précision moyenne en terme de base *ab initio* (« double zeta »). Nous pouvons ainsi détailler assez précisément cette surface avec un coût en temps de calcul raisonnable.
2. Afin de pouvoir atteindre une précision adéquate pour la surface d'énergie potentielle, nous effectuons des calculs coûteux en temps de calculs, avec une base plus complète d'orbitales (« triple zeta ») sur un petit nombre de points de cette surface.

3. Enfin, il ne reste plus qu'à calibrer les points de la SEP calculés en 1 grâce aux points calculés en 2, ce qu'on appelle « l'extrapolation de base », pour avoir une surface d'énergie potentielle détaillée sur une grande partie de l'espace des paramètres et avec une très bonne précision.

Cette méthode nous permet donc d'avoir une surface d'énergie potentielle complète avec une très bonne précision dans un temps de calcul raisonnable. Cette méthode est détaillée plus précisément dans Troscompt *et al.* 2009 [107], que le lecteur trouvera à la fin de cette première partie.

2.4 De la SEP aux sections efficaces

Une fois la SEP calculée, il nous faut l'utiliser pour calculer les sections efficaces de collisions. Nous allons présenter dans ce paragraphe les théories nous permettant de calculer les sections efficaces de collision à partir de la surface de potentiel.

Historiquement, les théories quantiques de collisions ont été rapidement développées, en particulier sous l'impulsion de la physique nucléaire (Oppenheimer, par exemple, développe en 1928 la théorie Closed Coupling, voir [88]). Cela dit, du fait du manque de puissance de calcul de l'époque, les premières sections efficaces de collision calculées n'ont pas été obtenues en utilisant ces théories quantiques, mais via des calculs classiques [105] ou semi-classique ([4] pour H_2CO par exemple). Ces méthodes ont été les premiers pas dans ce type de calcul et les sections efficaces longtemps utilisées dans les modèles astrophysiques. Il a fallu attendre le développement des moyens de calcul puissants pour permettre des calculs quantiques précis. Dans la suite, nous allons présenter les deux méthodes de calcul de sections efficaces inélastiques quantiques que nous avons utilisées.

Avant toute chose, dans toute la suite de cette partie, nous allons parler de deux énergies différentes : énergie totale du système et énergie de collision du projectile. Ces deux énergies sont reliées entre elles (nous présentons ici dans le cas de collisions de molécules type bâton-bâton, mais ces définitions peuvent se généraliser à tous les systèmes) :

$$E_{coll} = \frac{1}{2}\mu v^2 + \frac{l^2}{2\mu r^2}$$

$$E_{tot} = E_{coll} + B_1 j_1(j_1 + 1) + B_2 j_2(j_2 + 1)$$

où $\mu = \frac{Mm}{M+m}$ où M est la masse de la cible et m la masse du projectile, B_1 et j_1 respectivement la constante de rotation et le nombre quantique de rotation de la cible, B_2 et j_2 la constante de rotation et le nombre quantique de rotation du projectile, l le moment orbital du projectile par rapport à la cible et r la distance entre les deux corps.

La signification de l'énergie totale est claire : il s'agit de l'énergie totale du système. L'énergie de collision quant à elle correspond à l'énergie cinétique du projectile relative à la cible, c'est pourquoi apparaît dans son expression à la fois l'énergie cinétique de translation et un terme orbital (énergie centrifuge).

2.4.1 Calcul Close Coupling

La méthode dite de « Close Coupling » est une des méthodes les plus précises pour calculer la dynamique moléculaire. Elle a initialement été décrite par Oppenheimer en

1928 [88] et appliquée aux systèmes collisionnels moléculaires par Arthurs et Dalgarno [3] pour un rotateur rigide en collision avec un atome simple.

Nous allons ici nous attacher à présenter la partie théorique du CC. Ce qui va être dit ici est présenté en détail dans de nombreux livres, et ce qui va être décrit ici est tiré de Child (1984) [23].

Afin de ne pas compliquer inutilement la démonstration de la théorie, nous présentons ici le cas de collisions entre une molécule linéaire et un atome. Nous posons comme hypothèse que la molécule cible ne vibre pas, son seul degré de liberté est la rotation rigide. $\vec{R} = (R, \hat{R})$ est le vecteur reliant le centre de masse de la cible au centre de masse du projectile, $\vec{r} = (r, \hat{r})$ est la coordonnée interne de la cible. Notons que, comme décrit dans le paragraphe 2.3.2, $\hat{R} = (\theta, \phi)$.

Dans toute la suite, l représente le moment angulaire orbital de l'atome par rapport à la cible, j le moment rotationnel de la cible, J le moment cinétique total du système ($\vec{J} = \vec{j} + \vec{l}$) et M la projection de J sur l'axe z ($-J \leq M \leq J$).

Avant d'entrer dans les détails de la théorie, introduisons le concept de « canal ». Un « canal » correspond à l'état quantique du système moléculaire, *i.e.* la valeur du couple (j, l) . Ainsi, on introduit deux types de canal : le « canal d'entrée » qui est l'état quantique du système avant la collision, et le « canal de sortie » qui est l'état quantique du système après la collision.

L'équation de Schrödinger stationnaire régissant le système collisionnel dans le canal d'entrée (j, l) est la suivante :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_R^2 + \frac{\hbar^2 l(l+1)}{2\mu R^2} + V(\vec{R}, \hat{r}) + B j(j+1) \right] \Phi_{jl}^{JM}(\vec{R}, \hat{r}) = E_j \Phi_{jl}^{JM}(\vec{R}, \hat{r}) \quad (2.19)$$

avec \hbar la constante de Planck réduite ($\hbar = \frac{h}{2\pi}$), μ la masse réduite du système collisionneur-cible, $V(\vec{R}, \hat{r})$ le potentiel d'interaction entre la molécule cible et le collisionneur (décrit par la SEP), B la constante rotationnelle de la molécule cible et E l'énergie totale du système.

Pour résoudre cette équation, nous décomposons la fonction d'onde solution $\Phi_{jl}^M(\vec{R}, \hat{r})$ en deux parties : une partie radiale, ne dépendant que de la distance collisionneur-cible (Ψ), et une partie angulaire (\mathcal{Y}). C'est ce que l'on appelle une « décomposition en ondes partielles » décomposition se déroulant sur une base de nombres quantiques j, l, J, J_z .

$$\Phi_{jl}^{JM} = \frac{1}{R} \sum_{j'l'} \Psi_{j'l'}^{Jj}(R) \mathcal{Y}_{j'l'}^{JM}(\hat{R}, \hat{r}) \quad (2.20)$$

avec

$$\mathcal{Y}_{jl}^{JM}(\hat{R}, \hat{r}) = \sum_{m_l, m_j} \langle j l m_j m_l | j l J M \rangle Y_j^{m_j}(\hat{r}) Y_l^{m_l}(\hat{R}) \quad (2.21)$$

où les $Y_j^{m_j}$ sont les harmoniques sphériques et $\langle j l m_j m_l | j l J M \rangle$ les coefficients de Clebsch-Gordan.

En utilisant l'équation 2.20 dans l'équation 2.19, il vient :

$$\begin{aligned} \sum_{j'l'} \left(-\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_R^2 + \frac{\hbar^2 l'(l'+1)}{2\mu R^2} + V(\vec{R}, \hat{r}) + B j'(j'+1) \right) \Psi_{j'l'}^{Jj}(R) \mathcal{Y}_{j'l'}^{JM}(\hat{R}, \hat{r}) \\ = \sum_{j'l'} E_j \Psi_{j'l'}^{Jj}(R) \mathcal{Y}_{j'l'}^{JM}(\hat{R}, \hat{r}) \end{aligned} \quad (2.22)$$

Afin de considérer uniquement la solution radiale de l'équation de Schrödinger, on multiplie les deux membres de l'équation par $\mathcal{Y}_{j''l''}^{*JM}$ et on intègre \hat{R} et \hat{r} .

$$\begin{aligned} & \sum_{j'l'} \left(\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_R^2 - \frac{\hbar^2 l'(l'+1)}{2\mu R^2} - B j'(j'+1) + E_j \right) \\ & \quad \times \Psi_{j'l'}^{Jjl}(R) \iint \mathcal{Y}_{j''l''}^{*JM}(\hat{R}, \hat{r}) \mathcal{Y}_{j'l'}^{JM}(\hat{R}, \hat{r}) d^2 \hat{R} d^2 \hat{r} \\ & = \sum_{j'l'} \iint \mathcal{Y}_{j''l''}^{*JM}(\hat{R}, \hat{r}) V(\vec{R}, \hat{r}) \mathcal{Y}_{j'l'}^{JM}(\hat{R}, \hat{r}) d^2 \hat{R} d^2 \hat{r} \Psi_{j'l'}^{Jjl}(R) \end{aligned} \quad (2.23)$$

Il est à noter que J et M se conservent lors de la collision.

Sachant que :

$$\iint \mathcal{Y}_{j''l''}^{*JM}(\hat{R}, \hat{r}) \mathcal{Y}_{j'l'}^{JM}(\hat{R}, \hat{r}) d^2 \hat{R} d^2 \hat{r} = \delta_{j'l''} \delta_{l'l'} \quad (2.24)$$

les équations couplées du problème se dérivent simplement :

$$\begin{aligned} & \left[\nabla_R^2 - \frac{l'(l'+1)}{R^2} + \frac{2\mu}{\hbar^2} (E_j - B j'(j'+1)) \right] \Psi_{j'l'}^{Jjl}(R) \\ & = \frac{2\mu}{\hbar^2} \sum_{jl} \iint \mathcal{Y}_{j''l''}^{*JM}(\hat{R}, \hat{r}) V(\vec{R}, \hat{r}) \mathcal{Y}_{j'l'}^{JM}(\hat{R}, \hat{r}) d^2 \hat{R} d^2 \hat{r} \Psi_{j''l''}^{Jjl}(R) \end{aligned} \quad (2.25)$$

Analysons la forme de cette équation. Si son second membre avait été nul, on aurait juste eu une équation aux valeurs propres de la fonction d'onde $\Psi_{j'l'}^{Jjl}(R)$. Tout le problème vient de ce second membre, qui représente le terme de couplage dû au potentiel du système. Ainsi nous voyons que $V(\vec{R}, \hat{r})$ couple le canal $j''l''$ au canal $j'l'$. Plus ce terme de potentiel va être fort, plus nous allons coupler de canaux. C'est de là que vient le terme de « Close Coupling ».

On définit la matrice S^J par le comportement à longue portée des coefficients $\Psi_{j'l'}^{Jjl}(R)$. En effet, on impose qu'asymptotiquement :

$$\lim_{R \rightarrow 0} \Psi_{j'l'}^{Jjl}(R) = 0 \quad (2.26)$$

$$\begin{aligned} \lim_{R \rightarrow \infty} \Psi_{j'l'}^{Jjl}(R) & = \delta_{jj'} \delta_{ll'} \exp(-i(k_j R - \frac{1}{2} l \pi)) \\ & - \left(\frac{k_j}{k_{j'}} \right)^{\frac{1}{2}} i^{-l-l'} \langle j l | S^J | j' l' \rangle \exp(-i(k_{j'} R - \frac{1}{2} l' \pi)) \end{aligned} \quad (2.27)$$

où $k_{j'} = 2\mu[E_j + B(j(j+1) - j'(j'+1))]$.

Cette matrice $S^J = \langle j l | S^J | j' l' \rangle$ couple chaque onde entrante $\langle j l |$ à une amplitude d'onde sortante $| j' l' \rangle$. Cette matrice contient toute l'information sur la collision. Elle est la base de tous les calculs de sections efficaces (d'excitation rotationnelle, hyperfine, élargissement par pression,...). Elle est diagonale en J (conservation du moment cinétique total lors de la collision) et indépendante de M .

Elle est donc reliée à l'amplitude de l'onde diffusée par le centre diffuseur. Si l'on considère la fonction d'onde totale à l'infini solution de l'équation de Schrödinger comme la combinaison de l'onde plane entrante et de l'onde sphérique diffusée, on a :

$$\chi_{jm_j}(\vec{R}, \hat{r}) \sim \exp(ik_j z) Y_j^{m_j}(\hat{r}) + \sum_{j'm_{j'}} \frac{f_{jj'}(\vec{R}) \exp(ik_{j'} R)}{k_j k_{j'} R} Y_{j'm_{j'}}(\hat{r}) \quad (2.28)$$

avec $f(\vec{R})$ l'amplitude de l'onde diffusée. Si l'on compare l'équation 2.27 avec l'équation 2.28, il vient :

$$f_{jj'}(\hat{R}) = \sum_J \sum_{l'} \sum_{m_{l'}} [(2l+1)\pi]^{\frac{1}{2}} i^{l-l'} \langle jlm_j 0 | j'l' J m_j \rangle \langle j'l' | T^J | j'l' \rangle \langle j'l' J m_j | j'l' m_{l'} m_{j'} \rangle Y_{l'm_{l'}}(\hat{R}) \quad (2.29)$$

où T^J est appelé matrice de Transfert, avec $\langle j'l' | T^J | j'l' \rangle = i[\langle j'l' | S^J | j'l' \rangle - \delta_{j'l'} \delta_{ll'}]$.

A partir de l'amplitude de diffusion, il est facile de dériver la section efficace totale de collision d'un canal jl vers un canal $j'l'$:

$$\sigma_{jl \rightarrow j'l'} = \frac{1}{(2j+1)k_j^2} \int |f_{jj'}(\hat{R})|^2 d^2 \hat{R} \quad (2.30)$$

On peut aussi vouloir la section efficace partielle $\sigma_{jl \rightarrow j'l'}^J$ définie par :

$$\sigma_{jl \rightarrow j'l'} = \sum_J \sigma_{jl \rightarrow j'l'}^J \quad (2.31)$$

Cette section efficace partielle se calcul à l'aide de la matrice T^J :

$$\sigma_{jl \rightarrow j'l'}^J = \frac{\pi(2J+1)}{(2j+1)k_j^2} \sum_{j'l'} |\langle j'l' | T^J | j'l' \rangle|^2 \quad (2.32)$$

Ainsi, la matrice S^J est bien reliée aux sections efficaces de collision.

2.4.2 Calcul Coupled States

La méthode CC que nous avons présentée dans le paragraphe 2.4.1 est une des méthodes de calcul les plus précises pour le calcul des sections efficaces. Cela dit, elle devient vite problématique d'un point de vue temps de calcul quand le nombre de canaux que nous prenons en compte augmente : plus nous considérons de canaux, plus le nombre de couplages augmente et donc plus les calculs deviennent long.

Pour essayer de quantifier ce problème, le temps de calcul pour le CC est proportionnel au cube du nombre d'états couplés. Ceci émane directement de l'algorithme du problème, qui fait intervenir un grand nombre d'inversions et de diagonalisations de matrices. Par exemple, pour certains calcul CC que nous avons effectués sur le système H_2CO —para- H_2 aux alentours de 100 cm^{-1} , le calcul de la section efficace pouvait atteindre jusqu'à 10 jours !

Si ces calculs sont déjà longs aujourd'hui, il faut se replacer dans le contexte des débuts des calculs de collisions (dans les années 1970), où les capacités de calcul n'étaient pas aussi avancées. Les calculs CC demandaient tellement de ressources que des approximations ont été faites pour raccourcir les calculs. On appelle ces approximations : *approximation*

de découplage. Il s'agit de faire des approximations sur le système afin de découpler les moments rotationnel et angulaire du système moléculaire, et ainsi le simplifier.

Pour nos calculs, en particulier lorsque l'énergie de collision devient grande et que le nombre de canaux couplés devient important, nous avons utilisé l'approximation *Coupled states* (CS) afin de limiter le temps de calcul. Cette méthode de découplage a été initialement décrite par Rabitz en 1972 [96], puis développée par McGuire *et al.* en 1974 [79].

La théorie en elle-même n'apporte que peu de changement par rapport à la théorie que nous avons développée dans l'approche CC, à l'exception que, généralement, cette théorie est développée dans un référentiel fixé au centre de masse de la particule cible.

Comme nous l'avons présenté dans le paragraphe précédent, le problème des calculs de collisions se tient dans le couplage entre les nombres quantiques j et l . L'idée de la théorie CS est de faire disparaître ce couplage en approximant le terme $\frac{\hat{l}^2}{2\mu R^2}$ comme suit :

$$\langle jm_j JM | \frac{\hat{l}^2}{2\mu R^2} | j' m_{j'} J' M' \rangle \sim \delta_{m_j m_{j'}} \frac{l(l+1)}{2\mu R^2} \quad (2.33)$$

et de dire que [79] :

$$l(l+1) = J(J+1) \quad (2.34)$$

Ainsi, on fait disparaître le terme en l de l'équation, ce qui découple j et l . On diminue ainsi le nombre de couplage entre niveaux et, donc, le temps de calcul.

D'un point de vue technique, moins d'états sont donc couplés, les temps de calcul sont 3 à 10 fois moindres que pour le CC. D'un point de vue qualitatif, cette approximation n'est jamais très mauvaise, mais notons quand même que ce n'est pas la méthode à privilégier dans le régime de résonance, un calcul CC et un calcul CS pouvant être éloignés de plus de 100%.

Cela dit, il n'existe pas de moyens théoriques pour quantifier l'erreur commise par cette approximation. Ainsi, les calculs CS devront toujours être validés par des calculs quantiques exacts (CC). Ceci ne doit être fait que pour des énergies faibles, car plus l'énergie augmente, plus on est loin du seuil d'ouverture de canal et plus le calcul CS est bon : plus l'énergie totale du système augmente, moins l'on est sensible aux détails du potentiel d'interaction, et donc aux couplages induits par les coefficients radiaux.

2.4.3 Propagation de la fonction d'onde

Nous avons présenté dans les deux paragraphes précédents les équations couplées décrivant la dynamique de collision rotationnelle de deux particules. Il nous faut maintenant pouvoir intégrer ces équations sur la coordonnée radiale du problème. Nous allons présenter ici ces méthodes de résolution.

Les méthodes de résolution du système d'équation consistent à propager la fonction d'onde solution sur la coordonnée radiale afin de prendre en compte en chaque point la surface d'énergie potentielle. Historiquement, la première méthode utilisée fut de propager directement la fonction d'onde. Le problème de cette méthode de calcul est son manque de stabilité.

L'approche « log derivative », Johnson 1973

Dans les années 1970, de nombreuses études sont menées dans le but de palier à ce problème récurrent de stabilité. En 1973, Johnson [57] pose les bases d'une nouvelle

méthode, la méthode dite *méthode log-derivative*. Il s'agit d'une méthode de propagation plus stable permettant de calculer les sections efficaces de collision, consistant non plus à propager la fonction d'onde, mais le rapport entre la dérivée radiale de la fonction d'onde et la fonction d'onde.

Rappelons tout d'abord la forme générale des équations couplées :

$$\Psi''(r) = \left(\frac{2\mu}{\hbar^2}V(r) - k^2\right)\Psi(r) \quad (2.35)$$

où μ est la masse réduite du système, $V(r)$ regroupant le potentiel et le terme centrifuge et $k = E + Bj(j+1)$ la matrice des vecteurs d'onde (diagonale). $\Psi(r)$ est une matrice carrée dont chaque colonne représente une solution indépendante du problème. On tronque le problème à N canaux, avec N assez grand pour atteindre une convergence acceptable.

On définit la matrice log-dérivée comme suit :

$$Y(r) = \frac{\Psi'(r)}{\Psi(r)} \quad (2.36)$$

Le problème lorsque l'on propage la fonction d'onde vient du fait que, durant la propagation, le canal couplé le plus fort tend à dominer tous les autres canaux. De fait, on perd l'indépendance linéaire des solutions, ce qui peut provoquer des inexactitudes dans le résultat. C'est pourquoi cette méthode consiste à propager cette matrice $Y(r)$, qui élimine ce problème.

En utilisant l'équation 2.35 dans l'équation 2.36, on obtient :

$$Y'(r) = W(r) - Y(r)^2 \quad (2.37)$$

Nous voyons que l'équation régissant la propagation de $Y(r)$ est une simple équation différentielle, avec $W(r) = \left(\frac{2\mu}{\hbar^2}V(r) - k^2\right)$.

Dans la plupart des problèmes de diffusion inélastique, $W(r)$ est une matrice réelle symétrique, ce qui implique : $W^*(r) = W(r)$ et $W^t(r) = W(r)$, où $W^*(r)$ correspond à la matrice conjuguée de $W(r)$ et $W^t(r)$ à la matrice transposée de $W(r)$.

Si on transpose l'équation 2.37, on trouve : $Y^{tt}(r) = W^t(r) - Y^t(r)^2 \Leftrightarrow Y^{tt}(r) = W(r) - Y^t(r)^2$. En comparant avec l'équation 2.37 on en déduit que $Y(r)$ est symétrique.

Nous avons pour l'instant défini le principe de base de la méthode log-dérivée. Nous allons présenter maintenant la méthode d'un point de vue numérique.

Le principe de l'algorithme est de propager la matrice log-dérivée en découpant l'intervalle d'étude $[a, b]$ en sous-intervalle $[r', r'']$ afin de pouvoir adapter le pas de propagation, ce qui permet de correctement échantillonner Y . Sur chacun de ces sous-intervalles, nous définissons le propagateur \mathcal{Y} permettant de propager la matrice Y en s'affranchissant des problèmes de définition de Y lorsque Ψ s'annule. Ce propagateur est obtenu par résolution d'une équation aux limites de l'intervalle $[r', r'']$:

$$\begin{bmatrix} \Psi'(r') \\ \Psi'(r'') \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathcal{Y}_1(r', r'') & \mathcal{Y}_2(r', r'') \\ \mathcal{Y}_3(r', r'') & \mathcal{Y}_4(r', r'') \end{bmatrix} \begin{bmatrix} -\Psi(r') \\ \Psi(r'') \end{bmatrix} \quad (2.38)$$

Elle est obtenue en résolvant le problème aux limites de l'intervalle et est relié à la matrice $Y(r)$ par l'expression :

$$Y(r'') = \mathcal{Y}_4(r', r'') - \mathcal{Y}_3(r', r'') \frac{\mathcal{Y}_2(r', r'')}{Y(r') + \mathcal{Y}_1(r', r'')} \quad (2.39)$$

Ainsi, l'opérateur \mathcal{Y} permet de calculer la matrice $Y(r)$ à la borne supérieure de l'intervalle, pourvu que l'on connaisse sa valeur à la borne inférieure. D'ailleurs, dans son article, [57] préconise de prendre $Y(r_{\min}) = \infty$. Normalement, r_{\min} est choisie dans la zone classiquement inaccessible. La condition à ce calcul est évidemment la connaissance du potentiel dans l'intervalle $[r', r'']$.

Ensuite, considérons *la matrice de réaction* K définie par le comportement asymptotique de la fonction d'onde :

$$\lim_{r \rightarrow \infty} \psi(r) = J(r) + N(r)K \quad (2.40)$$

où J et N sont des fonctions dépendant des fonctions de Bessel.

La forme de ces deux fonctions change suivant que l'on considère des canaux ouverts ou fermés. Si les canaux sont ouverts :

$$\begin{aligned} J(r)_{ij} &= \delta_{ij} k_j^{-1/2} \hat{j}_{l_j}(k_j r) \\ N(r)_{ij} &= \delta_{ij} k_j^{-1/2} \hat{n}_{l_j}(k_j r) \end{aligned}$$

où $\hat{j}_{l_j}(k_j r)$ et $\hat{n}_{l_j}(k_j r)$ sont les fonctions de Riccati-Bessel et k_j le nombre d'onde du canal.

Si les canaux sont fermés :

$$\begin{aligned} J(r)_{ij} &= \delta_{ij} (k_j r)^{1/2} I_{l_j+1/2}(k_j r) \\ N(r)_{ij} &= \delta_{ij} (k_j r)^{1/2} K_{l_j+1/2}(k_j r) \end{aligned}$$

où $I_{l_j+1/2}(k_j r)$ et $K_{l_j+1/2}(k_j r)$ sont les fonctions de Bessel sphériques modifiées du premier et du troisième ordre et k_j le nombre d'onde du canal.

En différentiant l'équation 2.40 nous pouvons déterminer la matrice K à partir de la matrice Y lorsque $r \rightarrow \infty$:

$$K = - \frac{Y(r)J(r) - J'(r)}{Y(r)N(r) - N'(r)} \quad (2.41)$$

Cette matrice K est composée en fait de 4 sous-matrice :

$$K = \begin{pmatrix} K_{oo} & K_{of} \\ K_{fo} & K_{ff} \end{pmatrix} \quad (2.42)$$

où K_{oo} , K_{of} , K_{fo} , K_{ff} représentent les sous-matrices couplant respectivement deux canaux ouverts, le canal d'entrée ouvert et le canal de sortie fermé, le canal d'entrée fermé et le canal de sortie ouvert et les deux canaux fermés.

Enfin, nous obtenons la matrice de passage S grâce à la sous-matrice K_{oo} de K :

$$S = \frac{I - iK_{oo}}{I + iK_{oo}} \quad (2.43)$$

avec I la matrice identité.

Pour l'implémentation numérique de cette méthode de propagation, nous conseillons de se référer à [58], où la méthode est décrite dans les détails.

L'approche « improved log derivative », Manolopoulos 1986

De nombreux autres auteurs se sont basés sur ces travaux pour développer au mieux la méthode, mais c'est en 1986, que [74] la développe de la façon la plus précise. Il s'agit de la méthode utilisée dans MOLSCAT, c'est pourquoi il est intéressant de la présenter.

Cette méthode diffère de l'approche « log-derivative » de Johnson par l'utilisation d'un potentiel de référence continu, variant peu sur l'intervalle d'intégration, et pour lequel l'équation de Schrödinger est résolue analytiquement.

Sur un intervalle $[a, b]$, le potentiel de référence est une matrice diagonale construite à partir des éléments diagonaux p_j de la matrice du potentiel prise au point c , milieu de $[a, b]$.

$$W_{\text{ref}}(r)_{ij} = \delta_{ij} p_j^2 \quad (2.44)$$

On utilise l'intervalle $[r', r'']$ pour nommer à la fois l'intervalle $[a, c]$ et $[c, b]$.

L'équation de Schrödinger est alors homogène et les propagateurs $y_1(r', r'')$, $y_2(r', r'')$, $y_3(r', r'')$, $y_4(r', r'')$ de la solution homogène sont définis analytiquement :

$$y_1(r', r'')_{ij} = y_4(r', r'')_{ij} = \delta_{ij} \begin{cases} |p_j| \coth |p_j| h, & p_j^2 \geq 0 \\ |p_j| \cot |p_j| h, & p_j^2 \leq 0 \end{cases} \quad (2.45)$$

$$y_2(r', r'')_{ij} = y_3(r', r'')_{ij} = \delta_{ij} \begin{cases} |p_j| \cosh |p_j| h, & p_j^2 \geq 0 \\ |p_j| \csc |p_j| h, & p_j^2 \leq 0 \end{cases} \quad (2.46)$$

avec $h = \frac{b-a}{2}$.

On définit des propagateurs effectifs $\hat{\mathcal{Y}}(r', r'')$ de l'équation 2.35 sur le demi-intervalle $[r', r'']$ tels que :

$$\begin{aligned} \mathcal{Y}_1(r', r'') &= y_1(r', r'') + \mathcal{Q}(r') \\ \mathcal{Y}_2(r', r'') &= y_2(r', r'') \\ \mathcal{Y}_3(r', r'') &= y_3(r', r'') \\ \mathcal{Y}_4(r', r'') &= y_4(r', r'') + \mathcal{Q}(r'') \end{aligned}$$

où $\mathcal{Q}(a)$, $\mathcal{Q}(b)$ et $\mathcal{Q}(c)$ sont des fonctions de $U(a)$, $U(b)$ et $U(c)$, et $U = W - W_{\text{ref}}$.

La matrice Y est alors obtenue par propagation de la matrice effective \hat{Y} sur les intervalle $[a, c]$ puis $[c, b]$ suivant l'équation :

$$\hat{Y}(r'') = \frac{\mathcal{Y}_4(r', r'') - \mathcal{Y}_3(r', r'')}{\hat{Y}(r') + \mathcal{Y}_1(r', r'')} \mathcal{Y}_2(r', r'') \quad (2.47)$$

On a alors : $\hat{Y}(a) = Y(a)$ et $\hat{Y}(b) = Y(b) + O(h^4)$.

Le potentiel de référence est redéfini pour chaque intervalle. Cela a valu à cette méthode le qualificatif de « suiveur de potentiel ».

Une fois obtenue la matrice Y , nous obtenons la forme de la matrice S comme présenté dans l'algorithme de Johnson.

D'un point de vue algorithmique, Manolopoulos [74] ne pose que les bases du programme et se réfère à Mrugala *et al.* [83] pour les détails de la programmation. Le principe de calcul est le même entre les deux articles, la différence est que la programmation de Mrugala est faite pour un potentiel de référence nul.

2.5 Des sections efficaces aux taux de collision

Nous avons vu comment calculer la SEP en partant de l'approximation de Born-Oppenheimer et de la chimie quantique *ab initio*, puis les sections efficaces en partant de la SEP. La dernière étape de calcul est, logiquement, de calculer les taux de collisions à partir des sections efficaces.

2.5.1 Taux de collision

Pour passer des sections efficaces de collision aux taux proprement dit, il suffit de faire une moyenne thermique des sections efficaces pondérées par la vitesse du projectile, en supposant une distribution boltzmannienne des vitesses des particules :

$$k_{j \rightarrow j'}(T) = \beta^2 \sqrt{\frac{8}{\mu\pi\beta}} \int_0^\infty \sigma_{j \rightarrow j'}(E_k) E_k e^{-\beta E_k} dE_k \quad (2.48)$$

où β est le facteur de Boltzmann ($\beta = \frac{1}{k_B T}$, où k_B est la constante de Boltzmann), μ la masse réduite du système, E_k l'énergie cinétique du système. Ce taux a les dimensions d'un débit (cm^3/s). Ainsi, si on le multiplie par une densité de particules, on obtient simplement le nombre de transitions par seconde.

2.5.2 Bilan détaillé

Lorsque l'on connaît le taux de transition d'un état j vers un état j' , on peut retrouver facilement celui de j' vers j . En effet, on a

$$k_{j' \rightarrow j}(T) = \frac{g_j}{g_{j'}} k_{j \rightarrow j'}(T) e^{-\Delta E/k_B T} \quad (2.49)$$

où $\Delta E = E_j - E_{j'}$. Cette relation est une conséquence de la micro-réversibilité.

Si un calcul de collision est entrepris, il nous faut calculer convenablement la moyenne thermique de l'équation 2.48. Pour cela, il nous faut convenablement décrire les sections efficaces. Le problème est qu'on ne peut calculer les sections efficaces pour toutes les énergies de collisions, nous devons les calculer sur une grille. Par conséquent, bien décrire les sections efficaces correspond à les calculer sur une grille suffisamment fine en énergie de collision. Ceci est d'autant plus important que les sections efficaces de collisions présentent des résonances pour des énergies de collisions faibles (aux alentours des énergies d'ouverture de canaux, par exemple). Ce point important fait l'objet d'une étude dans le chapitre 3.

Notons que pour résoudre les équations CC et calculer les sections efficaces nous utiliserons le code générique MOLSCAT² [54]. Il est à noter qu'une version parallèle de ce code existe, développée par Pierre Valiron³.

2. <http://www.giss.nasa.gov/tools/molscat/>

3. <http://www-laog.obs.ujf-grenoble.fr/~valiron/molscat/index.html>

Chapitre 3

Taux de collision rotationnel : Le système $\text{H}_2\text{CO}-\text{H}_2$

Sommaire

3.1	Introduction	37
3.2	Le code Molscat	38
3.3	Surface d’Energie Potentielle	38
3.4	Résultats : ortho-H_2CO–(ortho-,para-)H_2	41
3.4.1	Sections efficaces	41
3.4.2	Taux de collisions	47
3.5	Résultats : para-H_2CO–(ortho-,para-)H_2	51
3.5.1	Paramètres du calcul, description de la section efficace	51
3.5.2	Sections Efficaces	53
3.5.3	Taux de collisions	53
3.6	Conclusion	55

3.1 Introduction

Dans le chapitre 2, nous avons décrit le processus qui mène au calcul de taux de collision rotationnels inélastiques. Nous allons maintenant présenter les résultats de la production des taux de collision entre la molécule de formaldéhyde et la molécule de dihydrogène.

Plus que de simplement présenter les résultats que nous avons obtenus, nous allons profiter de ce paragraphe pour répondre à des questions fondamentales.

1. Certaines de ces questions sont techniques : quels sont les paramètres qu’il nous faut utiliser dans le programme numérique nous servant à calculer les sections efficaces (MOLSCAT [54]) ? A quel degré de précision doit-on aller pour avoir des sections efficaces utilisables en astrophysique ?
2. D’autres sont plus intéressantes d’un point de vue physique. Des taux de collisions concernant le formaldéhyde existent déjà, calculés avec l’atome d’Hélium (Green *et al.* 1991 [48]). Existe-t-il une différence entre ces taux et les taux que nous avons calculés avec H_2 ? De plus, comme nous l’avons présenté dans le chapitre 1, l’hydrogène moléculaire comporte deux espèces différentes, dues à différents alignements des spins nucléaires : ortho– et para– H_2 . Existe-t-il une différence de taux de collisions entre ces deux espèces ?

Les résultats des calculs que nous avons obtenus en suivant le processus décrit dans le chapitre 2 sur le système ortho- H_2CO –(ortho-,para-) H_2 sont résumés dans un article paru dans la revue *Astronomy & Astrophysics* [107], que le lecteur pourra trouver à la fin de ce chapitre. Nous n’allons pas décrire une nouvelle fois ces résultats, ce qui ne serait qu’une redite, mais présenter des compléments et détails qui n’ont pas pu être publiés. Les calculs faits pour le système para- H_2CO –(ortho-,para-) H_2 ne sont pas encore publiés. Cela dit, nous allons nous contenter de les décrire rapidement, la méthode employée ne différant pas beaucoup de la méthode utilisée pour ortho- H_2CO .

3.2 Le code Molscat

Tout d’abord, présentons succinctement le programme qui nous a servi à calculer ces taux de collisions. Le code MOLSCAT [54] traite presque tous les types de systèmes collisionnels d’intérêt astrophysique, du plus simple (bâton-atome) au plus complexe (toupie asymétrique-bâton).

Le calcul de sections efficaces peut-être effectué avec diverses précisions, du calcul précis (Close Coupling) à diverses approximations (Coupled States, Infinite Order Sudden,...) en utilisant diverses méthodes de résolution (log-derivative,...), ce qui en fait un des programme de calcul de collisions les plus polyvalents.

Le fonctionnement de ce code est assez simple : il suffit de donner la surface d’énergie potentielle sous la forme d’une routine compatible avec le code MOLSCAT (routine « *potenl* »), et de spécifier les paramètres du calcul dans un fichier d’entrée (une *namelist*), où l’on spécifie la masse réduite, l’énergie totale de collision, les bases rotationnelles, les paramètres de l’intégrateur, les critères de convergence des sections efficaces et les données spectroscopiques du système (constantes rotationnelles des deux molécules, etc...)

Nous n’allons pas décrire tous les paramètres de calcul à renseigner dans la *namelist* de MOLSCAT, d’autant que la valeur de certains d’entre eux va être discutée dans la suite. De plus, les paramètres physiques, tels que la masse réduite, les constantes de rotation, sont présentés dans l’annexe A.

Nous allons rappeler une généralité sur le formaldéhyde. Du fait des différents alignements des spins nucléaires des deux noyaux d’hydrogène, le formaldéhyde se présente sous deux formes différentes : ortho- H_2CO et para- H_2CO . Ces deux formes sont deux espèces différentes, dont les niveaux d’énergie sont libellés par les trois « nombres quantiques » J, K_a, K_c : K_a pair pour la forme para, K_a impair pour la forme ortho.

Il est à noter que lors de collisions inélastiques (c’est à dire *non réactives*), il est impossible d’exciter les niveaux rotationnels de ortho- H_2CO en partant d’un niveau rotationnel para (et inversement). Une des difficultés du calcul numérique de section efficaces vient de cette nécessité de séparation entre les deux formes, il est donc important de signifier au programme de faire la distinction entre les deux différentes formes de la molécule, afin de ne pas calculer des sections efficaces provenant de transitions non physiques. Ceci est possible dans le programme MOLSCAT, et nous avons donc séparé lors de nos calculs les collisions concernant para- H_2CO et ortho- H_2CO .

3.3 Surface d’Energie Potentielle

Nous présentons dans l’article les résultats obtenus pour la surface d’énergie potentielle. Comme dit dans le chapitre précédent, je n’ai pas participé à l’élaboration de cette

surface, je ne vais donc pas m'y attarder, d'autant que tous les détails techniques se trouvent dans l'article et suivent le schéma des calculs présentés dans Valiron *et al.* (2008) [113].

Rappelons tout de même le résultat principal : l'erreur faite sur cette surface est très faible, en dessous de 1 cm^{-1} pour la partie attractive du potentiel. Les molécules composant les milieux ayant une température supérieure à celle du CMB (2.7 K soit 1.8 cm^{-1}), cette précision est largement suffisante pour les calculs de sections efficaces que nous allons mener. Nous pourrions donc avoir confiance dans nos sections efficaces, même pour des énergies de collision très faibles.

Cela dit, nous allons tout de même nous focaliser sur un point, la comparaison entre notre surface d'énergie potentielle et celles déjà calculées pour des études précédentes. En effet, puisqu'il existe des taux calculés avec d'autres projectiles, il existe aussi d'autres surfaces de potentiel calculées au même niveau de précision concernant le formaldéhyde, en particulier concernant les collisions avec l'atome d'Hélium.

Dans toute la suite de cette thèse, lorsque nous comparons des résultats obtenus avec les deux différents projectiles (H_2 et He), les résultats obtenus avec He seront toujours corrigés d'un facteur $\sqrt{\frac{\mu_{\text{He}}}{\mu_{\text{H}_2}}}$, qui corrige la différence de masse entre He et H_2 .

Nous présentons dans la figure 3.1 la surface de potentiel calculée pour des configurations particulières du système, c'est-à-dire différentes orientations de H_2 par rapport à H_2CO . Nous présentons le cas de l'orientation la plus répulsive pour H_2 dans le plan xy (voir le paragraphe 2.3.2 pour le système de coordonnées), la plus attractive, et le cas où H_2 est uniquement considéré dans son état $J = 0$. Les contours en tiret rouge sont les équipotentielles attractives, en traits pleins les répulsives. Il est à noter que les cas où l'on considère la configuration la plus attractive et le cas H_2 ($J = 0$) sont très similaires, seule la valeur du minimum d'énergie change.

Il est communément accepté que les collisions avec l'atome d'Hélium reproduisent assez bien les collisions avec para- H_2 , pourvue que l'on considère l'hydrogène moléculaire dans son état fondamental de rotation ($J = 0$). Afin de vérifier si cette hypothèse est exacte, il est intéressant de comparer les deux surfaces.

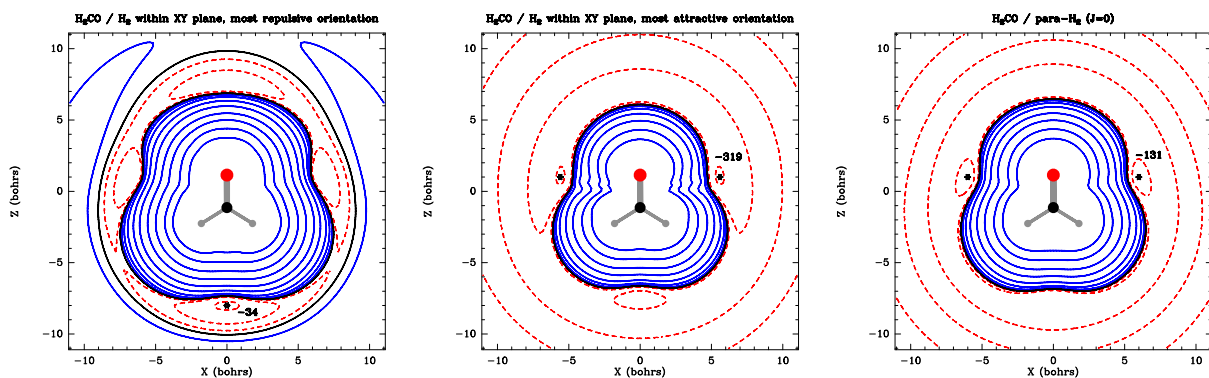


FIGURE 3.1 – Exemples de surface d'énergie potentielle $\text{H}_2\text{CO}-\text{H}_2$. En tiret rouge les équipotentielles attractives ($-100, -30, -10, -3 \text{ cm}^{-1}$), en bleu les répulsives ($3, 10, 30, 100, 300, 1000, 3000, 10\,000 \text{ cm}^{-1}$). Les étoiles représentent l'emplacement des minima d'énergie.

C'est pourquoi nous avons considéré la surface de potentielle pour H_2 dans son état $J = 0$ (voir figure 3.1), et comparé la position et la valeur du minimum en énergie de cette surface avec celle trouvée pour He (calcul de Wheeler & Ellis, 2003 [123]).

	H ₂ ($J = 0$)	He
r (bohrs)	6,1	5,8
(θ, ϕ)(°, °)	(81,0)	(83,0)
E _{min} (cm ⁻¹)	-131,0	-59,6

TABLE 3.1 – Comparaison sur la position et la valeur du minimum en énergie des surfaces de potentiel entre nos calculs H₂ ($J=0$) et les calculs He.

Le tableau 3.1 récapitule les positions et valeurs des deux minima. Comme nous pouvons le voir, la position et la distance des deux minima sont sensiblement les mêmes (aux alentours de 6 bohrs et (81°, 0°)). La différence se situe principalement dans la valeur de ce minimum : -131 cm^{-1} pour nos calculs contre $-59,6 \text{ cm}^{-1}$ pour les calculs effectués avec He.

Phillips *et al.* (1994) [93] observe le même genre d'écart dans le cas de collisions concernant la molécule H₂O. L'explication qu'ils mettent en avant vient de la différence de polarisabilité entre les deux projectiles. En effet, le nuage d'électrons de H₂ s'étend à plus grande échelle que celui de He, le rapport des polarisabilités étant de : $\alpha_{H_2}/\alpha_{He} = 3.7$. H₂ étant plus polarisable que He abaisserait la valeur de l'énergie potentielle, et pourrait expliquer la différence entre les deux valeurs.

Il existe donc une différence entre les valeurs des deux minima. Cette différence peut-elle avoir un effet important sur le calcul des sections efficaces ?

A une énergie donnée, on pourrait penser que les seuls canaux à considérer dans le calcul des sections efficaces sont les canaux ouverts. Cela serait le cas si l'on considérait un potentiel purement répulsif. Pour un potentiel ayant une partie attractive, et en particulier un puits de potentiel il nous faut tenir compte des canaux fermés.

En effet, le puits d'énergie potentielle a un effet non négligeable sur le calcul des sections efficaces : il peut donner de l'énergie au système et ainsi permettre de peupler des canaux qui seraient fermés s'il n'y avait pas le puits comme le montre l'équation 2.25. Plus ce puits est profond, plus il va pouvoir coupler aux canaux ouverts des canaux fermés hauts en énergie. Il est donc important de connaître la forme de la surface de potentiel H₂CO-H₂.

Nous montrons dans la figure 3.2 des coupes de la surface d'énergie potentielle dans le cas H₂CO-H₂, pour différentes orientations et directions de H₂. Nous voyons que, quelle que soit la direction ou l'orientation de H₂, elle présente toujours un puits attractif. Par contre nous voyons que la direction et l'orientation de H₂ ont une influence sur la profondeur de ce puits.

En effet, si nous considérons par exemple la courbe $\theta = 0$ de la figure 3.2, nous voyons un puits beaucoup plus profond dans le cas où le projectile est parallèle à la molécule (parallèle à l'axe z) que lorsqu'il lui est perpendiculaire. Dans le premier cas, l'interaction entre un des deux noyaux d'hydrogène et le noyau d'oxygène de H₂CO abaisse le potentiel, du fait de la grande électronégativité de l'oxygène. Cette interaction n'existe pas dans l'autre configuration. Nous voyons que la valeur de ce puits est directement lié à la configuration spatiale du système.

Comme nous l'avons dit plus haut, la valeur de ce puits est primordiale. Les calculs de surface de potentiel montrent un puits plus profond dans le cas de H₂ ($J = 0$) que pour l'hélium. Cela va conduire à plus de canaux couplés, et donc des différences dans le calcul des sections efficaces.

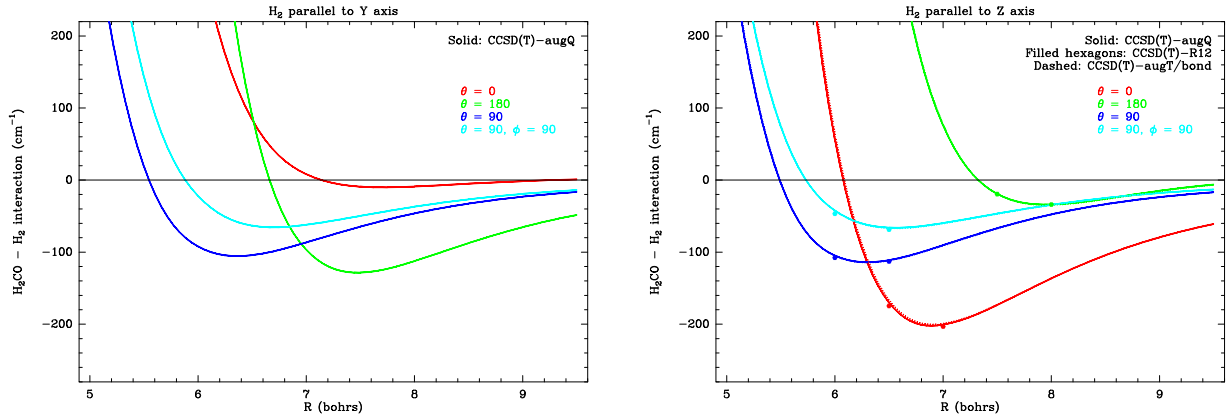


FIGURE 3.2 – Coupe de la surface d'énergie potentielle pour une collision H_2CO - H_2 . Chaque couleur représente une direction du centre de masse de H_2 . À gauche, H_2 parallèle à l'axe y du référentiel, à droite, parallèle à l'axe z du référentiel. Dans les deux cas : rouge : $\theta = 0^\circ$, vert : $\theta = 180^\circ$, bleu : $\theta = 90^\circ$, cyan : $\theta = 90^\circ, \phi = 90^\circ$

C'est pourquoi il est *primordial* de modéliser les collisions concernant le système H_2CO - H_2 par des taux de collisions calculés avec H_2 , même en ne le considérant que dans son niveau rotationnel fondamental. Ceci est d'autant plus vrai lorsque nous considérons H_2 avec tout ses niveaux rotationnels : le minimum atteint une valeur de -319 cm^{-1} , valeur tout à fait différente de celle pour He.

3.4 Résultats : ortho- H_2CO –(ortho-,para-) H_2

Nous allons résumer dans ce paragraphe les résultats des calculs que nous avons obtenus sur le système ortho- H_2CO –(ortho-,para-) H_2 .

Nous avons mené ces calculs dans l'optique d'étudier des milieux froids ($T_{\text{cin}} < 30 \text{ K}$). C'est pourquoi nos calculs se focalisent dans le calcul des taux de collision des 10 premiers niveaux de ortho- H_2CO , du niveau 1_{11} au niveau 5_{15} ($E=45.82 \text{ cm}^{-1}$), suffisant pour étudier de tels milieux, les autres niveaux étant trop hauts en énergie pour avoir une influence significative sur les modélisations à cette température.

3.4.1 Sections efficaces

Les résultats du calcul des sections efficaces de collisions sont résumés dans l'article que le lecteur trouvera à la fin de ce chapitre. Ils ne seront pas plus détaillés dans cette partie, mais rappelons-les pour mémoire : les calculs ont montré que les sections efficaces calculées en utilisant comme projectile la forme ortho- de l'hydrogène moléculaire sont généralement plus hautes que les sections efficaces calculées avec la forme para-. Ceci est expliqué par l'interaction entre le quadripôle de ortho- H_2 ($J = 1$) et le dipôle de H_2CO , interaction qui n'existe pas dans le cas de para- H_2 ($J = 0$).

Nous présentons dans la figure 3.3 quelques exemples de sections efficaces pour toutes les transitions de désexcitation calculées vers le niveau rotationnel fondamental de ortho- H_2CO . Comme nous l'avons remarqué, les sections efficaces calculées avec ortho- H_2 sont généralement supérieures aux sections efficaces calculées avec para- H_2 .

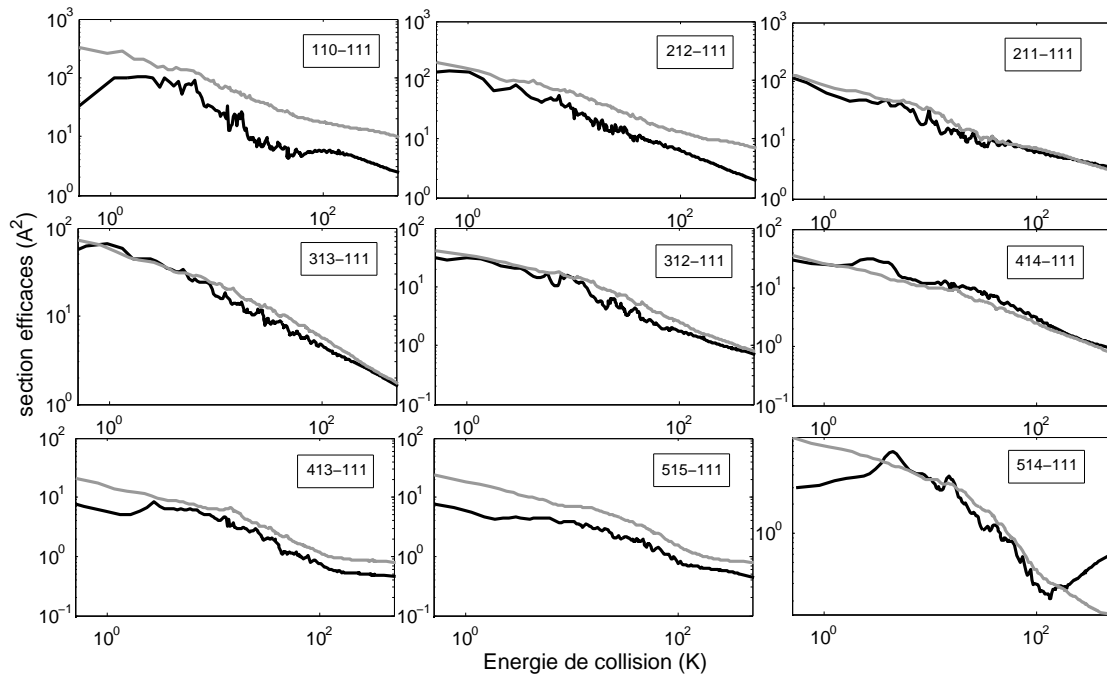


FIGURE 3.3 – Exemple de section efficace de désexcitation vers le niveau fondamental de ortho- H_2CO . En noir les sections efficaces calculées avec para- H_2 , en gris les sections efficaces calculées avec ortho- H_2 .

Dans la suite de cette section, nous allons préciser ce qui n'a pas pu être détaillé dans l'article, en particulier le problème de convergence des sections efficaces, d'inclure ou non les constantes de distorsion dans le calcul ou encore de traiter les problèmes de différences entre les calculs CC et calculs CS.

Constantes de rotation - Constantes de distorsion

Lorsque l'on s'intéresse à des systèmes en collision, la moindre des choses est de reproduire correctement la spectroscopie des molécules, et, en particulier, la spectroscopie de la molécule cible.

Comme nous le présentons dans l'annexe A, la molécule de formaldéhyde, comme toutes les molécules, possède non seulement trois constantes de rotations, mais aussi trois constantes de distorsion.

A priori aux températures que nous considérons, la distribution de population du formaldéhyde ne *devrait pas* s'étendre sur les niveaux rotationnels les plus hauts, ceux qui sont les plus susceptibles d'être affectés par les phénomènes de distorsion. Cela dit, il n'est pas exclu que la spectroscopie soit, elle, influencée par ces constantes. Il est intéressant de comparer la position en énergie des niveaux rotationnels simulés de la molécule de H_2CO en utilisant, ou non, ces constantes de distorsion aux positions mesurées en laboratoire.

C'est pourquoi nous avons comparé aux mesures de laboratoire¹ les énergies des niveaux rotationnels de ortho- H_2CO calculés en utilisant (*i*) uniquement les constantes rotationnelles, (*ii*) les constantes rotationnelles *et* les constantes de distorsion (tableau 3.2).

Tout d'abord, le tableau 3.2 montre que la différence entre les niveaux d'énergie calculés numériquement et les niveaux mesurés est toujours inférieure à 1 cm^{-1} , et ce, quelque soit

1. valeurs prise sur le site du *Cologne Database for Molecular Spectroscopy*, <http://www.cdms.de>

$J K_a K_c$	E(rot) (cm^{-1})	E(rot+dist) (cm^{-1})	E(lab) (cm^{-1})
1 ₁₁	10.53242	10.53897	10.539
1 ₁₀	10.69355	10.70021	10.7001
2 ₁₂	15.22718	15.23673	15.2369
2 ₁₁	15.71056	15.72044	15.7202
3 ₁₃	22.26784	22.28172	22.2822
3 ₁₂	23.23458	23.24914	23.2487
4 ₁₄	31.65265	31.67205	31.6729
4 ₁₃	33.26378	33.28429	33.2835
5 ₁₅	43.37936	43.40518	43.4067
5 ₁₄	45.79567	45.82316	45.822
6 ₁₆	57.44521	57.47805	57.4805
6 ₁₅	60.82705	60.86224	60.8605

TABLE 3.2 – Comparaison entre les niveaux d'énergie de ortho- H_2CO calculés en utilisant le programme MOLSCAT avec uniquement les constantes rotationnelles, les constantes rotationnelles et les constantes de distorsion et ceux mesurés en laboratoire.

les constantes moléculaires incluses dans le calcul pour les 12 premiers niveaux de ortho- H_2CO .

Cela dit, ne pas inclure les constantes de distorsion dans le calcul des énergies de niveaux rotationnels peut impliquer des écarts entre les calculs numériques et les mesures de laboratoire. Si ces écarts sont faibles lorsque l'énergie est basse ($\sim 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ pour le niveau 1₁₁ par exemple), ils augmentent quand l'énergie des niveaux augmente et peuvent devenir plus important à haute énergie ($> 2 \text{ cm}^{-1}$ pour les niveaux $J > 8$).

C'est pourquoi nous avons considéré les constantes de distorsion dans les calculs de sections efficaces, et ce afin d'avoir les calculs les plus précis possible.

Convergence des sections efficaces

Afin de faire des calculs de taux de collision précis, il est nécessaire d'avoir confiance dans les sections efficaces desquelles ils découlent.

Ces sections efficaces dépendent de deux choses :

- La précision de la surface d'énergie potentielle, comme nous l'avons déjà présenté.
- Les paramètres du calcul. Ceci est un point important. Le code MOLSCAT, comme nous l'avons présenté, calcule des sections efficaces de collision à partir de paramètres. La précision des sections efficaces dépend fortement de ces paramètres : il faut trouver les bons ensembles de paramètres pour arriver à une précision satisfaisante sur les sections efficaces.

Le calcul de sections efficaces se fait à partir d'un ensemble de paramètres d'entrée. Certains de ces paramètres sont capitaux pour la précision des calculs. Les plus importants sont : les bornes R_{\min} et R_{\max} de l'intervalle de propagation de la fonction d'onde du problème, le pas d'intégration (*STEPS*) entre ces deux bornes, et le nombre de canaux fermés pris en compte dans le calcul de collision.

Il est aisé de comprendre pourquoi ces paramètres sont importants pour la convergence. L'impact des bornes d'intégration sur la précision est immédiat : il est important de prendre en compte correctement toutes les échelles de la surface d'énergie potentielle, des interactions à courte portée, que nous allons plus ou moins prendre en compte en fonction

de la valeur de R_{\min} , aux interactions à grande portée, déterminées par la valeur de R_{\max} .

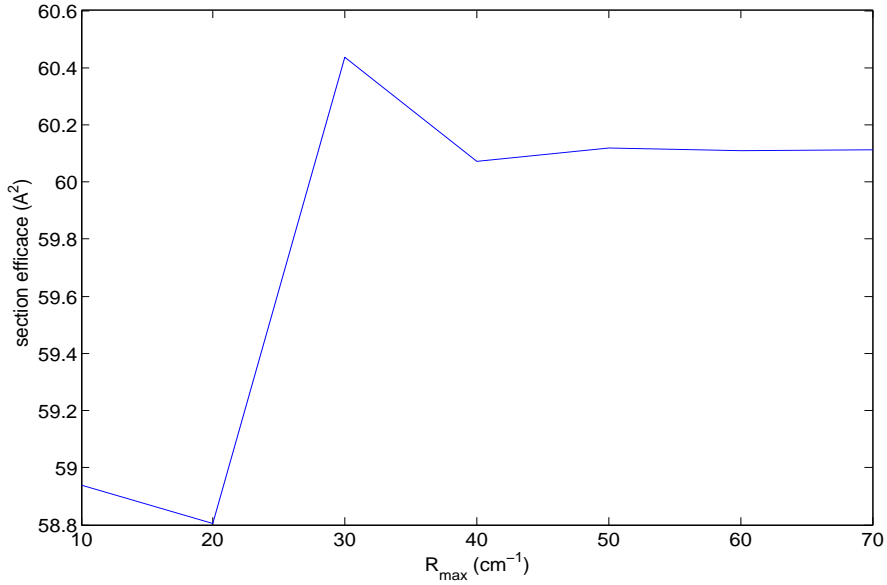


FIGURE 3.4 – Étude de convergence de la section efficace de la transition $1_{11} \rightarrow 1_{10}$ en fonction de R_{\max} , pour une énergie de collision $E = 11 \text{ cm}^{-1}$.

Paramètre RMAX. Nous présentons dans la figure 3.4 une étude de convergence de la section efficace de la transition $1_{11} \rightarrow 1_{10}$ en fonction de R_{\max} , pour une énergie de collision $E = 11 \text{ cm}^{-1}$. Il est à noter que l'influence de ce paramètre est de plus en plus importante lorsque l'on considère des énergies de collision faibles.

D'après cette figure, nous voyons que plus nous augmentons la valeur de R_{\max} , plus la section efficace de la transition considérée converge vers une valeur stable, (aux alentours de $\simeq 60.1 \text{ \AA}^2$), pour une valeur de R_{\max} supérieure à 50 \AA . D'un point de vue général, ce paramètre varie dans nos calculs de 250 \AA pour des basses énergies de collision ($\simeq 0.5 \text{ cm}^{-1}$) à 30 \AA pour les plus hautes énergies de collision ($\simeq 1000 \text{ cm}^{-1}$).

Paramètre STEPS. L'autre paramètre important afin de bien prendre en compte toutes les extensions du potentiel est le pas d'intégration de la fonction d'onde, paramètre STEPS de MOLSCAT. Nous présentons dans la figure 3.5 la dépendance en ce paramètre de sections efficaces pour différentes énergies de collision : 0.2 , 5 et 50 cm^{-1} . Le principal résultat de cette figure est que ce paramètre doit varier en fonction de l'énergie de collision considérée. En effet, si $\text{STEPS} = 10$ est largement suffisant pour une bonne convergence de la section efficace à $E_{\text{coll}} = 50 \text{ cm}^{-1}$, ce n'est pas du tout le cas pour $E_{\text{coll}} = 0.2 \text{ cm}^{-1}$, où il faut $\text{STEPS} \sim 200$.

La relation entre STEPS et le pas d'intégration est, par définition :

$$\text{pas} = \frac{\pi \hbar}{\text{STEPS} \sqrt{2\mu E_{\text{coll}}}} \quad (3.1)$$

où μ est la masse réduite du système, E_{coll} l'énergie de collision.

Par cette expression, nous voyons que le pas d'intégration dépend de la racine carrée de E_{coll} . Ainsi, si nous voulons conserver la même valeur de pas pour toutes les énergies de

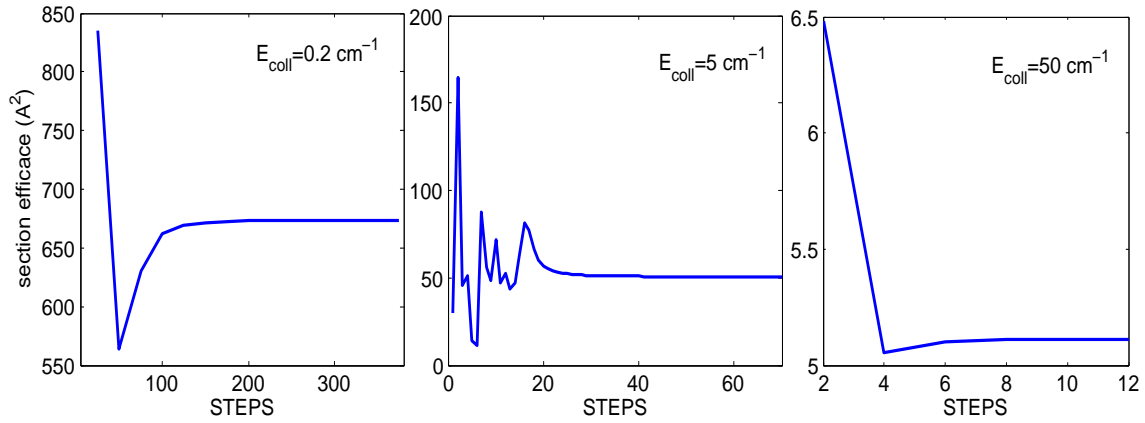


FIGURE 3.5 – Étude de convergence de sections efficaces en fonction du paramètre STEPS de MOLSCAT pour $E_{coll} = 0.2, 5$ et 50 cm^{-1} .

collision, il nous faut adapter la valeur de STEPS : l'augmenter pour des énergies faibles, la diminuer lorsque l'énergie augmente.

Paramètre JMAX. Enfin, comme nous l'avons présenté dans le paragraphe sur la surface de potentiel, la question fondamentale des problèmes de calcul de sections efficaces est de savoir combien de canaux il nous faut considérer dans nos calculs pour pouvoir atteindre une convergence acceptable, puisqu'un puits de potentiel peut coupler les canaux ouverts aux canaux fermés.

Nous présentons sur la figure 3.6 une étude de convergence de sections efficaces en fonction du paramètre JMAX (graphique de gauche), pour une énergie de collisions de 250 cm^{-1} et para- H_2 ($J=0$) comme collisionneur. Le paramètre JMAX permet d'inclure un nombre donné de niveaux dans le calcul : tous les niveaux ayant un nombre quantique $J < JMAX$ sont inclus dans le calcul, les autres non.

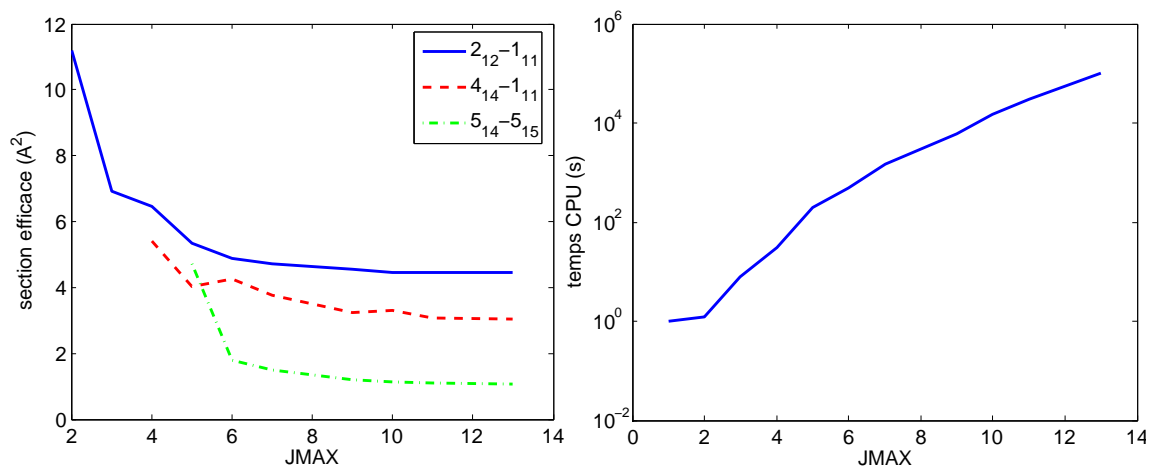


FIGURE 3.6 – Étude de convergence de la section efficace de trois transitions en fonction de J_{max} , pour une énergie totale $E_{tot} = 250 \text{ cm}^{-1}$ et pour para- H_2 ($J=0$) (à gauche). Temps de calcul en fonction de J_{max} (à droite).

Plus on inclut de niveaux dans les calculs, plus les sections efficaces tendent vers une valeur stable et donneront un taux de collisions précis. Il serait donc naturel de penser qu'il faut mieux inclure le plus de canaux possible pour avoir les meilleurs taux possibles. Cela dit, comme le montre le graphique de droite de la figure 3.6, plus on augmente le nombre de niveau dans les calculs, plus le temps mis par le programme augmente. Nous voyons, par exemple, que lorsque nous passons de JMAX=1 à JMAX=13, le temps de calcul passe de 1 seconde à 10^5 secondes, et ce en considérant uniquement le niveau $J=0$ pour para- H_2 . Si l'on considère les niveaux excités de l'hydrogène moléculaire ($J=1,2,\dots$), les temps de calcul vont drastiquement augmenter. C'est pourquoi nous ne pouvons pas inclure autant de niveaux que nous le voulons dans le calcul.

Le problème est qu'il nous faut optimiser deux paramètres : la convergence des sections efficaces afin d'avoir des taux précis et le temps de calcul. C'est pourquoi nous avons fixé une limite dans la convergence : étant donné les besoins astrophysiques et les approximations faites dans les calculs de transfert radiatif, il est superflu d'avoir des taux calculés à partir de sections efficaces convergées au pourcent. Nous avons donc fixé un critère de convergence de 10% sur les sections efficaces.

Dans le cas de nos calculs de sections efficaces, cela revient à inclure systématiquement tous les niveaux ayant un nombre quantique rotationnel J supérieur de 4 unités à celui du niveau rotationnel considéré ayant la plus haute énergie ($J = J_{\text{canal ouvert le plus haut}} + 4$). Cela nous permet de réduire le temps de calcul par rapport à un calcul où l'on inclurait tous les niveaux nécessaires à un calcul convergé au pourcent, tout en ayant des sections efficaces acceptables. Ainsi, nous incluons dans le calcul 50 niveaux rotationnels de H_2CO (soit $J_{\text{max}} = 9$), ce qui nous permet d'atteindre une convergence de l'ordre de 5% pour les transitions les plus basses.

Différence calcul CC - calcul CS

Nous présentons dans le tableau 1 de l'article les détails techniques des calculs de sections efficaces. La dernière colonne présente les méthodes que nous avons utilisées pour le calcul des sections efficaces : les calculs CC, précis, pour des énergies de collision inférieures à 141 cm^{-1} , calculs CS pour des énergies de collision supérieures.

Comme nous l'avons présenté dans la section 2.4, il existe des différences entre les méthodes de calcul CC et CS et leur impact sur la précision des sections efficaces n'est pas négligeable. C'est pourquoi dans le processus de calcul, nous avons préféré la méthode Close Coupling dans le cas des basses énergies, où la précision sur la description des résonances est nécessaire, et la méthode Coupled States lorsque l'énergie de collision augmente, où les résonances ont disparu.

Cette différence de précision dans les méthodes de calcul est à prendre en compte lors du calcul des taux de collision. Comme l'a remarqué Dubernet *et al.* (2002) [32], les calculs CS donnent des valeurs systématiquement différentes des calculs CC. Il est donc nécessaire, pour la précision de nos taux, d'effectuer des calculs CC et CS sur les mêmes points afin de pouvoir calculer une correction à appliquer sur les calculs CS. La correction que nous avons appliquée est le rapport entre les valeurs calculées par les deux différentes méthodes à une énergie donnée.

Le point épineux de cette correction est qu'elle n'est pas de la même valeur pour chacune des transitions. Le rapport entre les deux méthodes de calcul change d'une transition à une autre, et il doit être recalculé et appliqué pour chaque transition.

Nous présentons dans le tableau 3.3 les corrections que nous avons appliquées aux sections efficaces de désexcitation $5_{14} \rightarrow J_{K_a K_c}$ pour une énergie totale $E_{\text{tot}} = 130.7 \text{ cm}^{-1}$.

Nous voyons dans ce tableau que l'erreur moyenne faite par le calcul CS par rapport au calcul CC est, en général, de l'ordre de 20%, certains calcul (comme la transition $5_{14} \rightarrow 3_{13}$) étant très bons (erreur faite par le calcul CS inférieure à $10^{-3}\%$), d'autre (comme la transition $5_{14} \rightarrow 1_{11}$) beaucoup moins (erreur faite par le calcul CS supérieure à 25%).

niveau initial	niveau final	correction
5_{14}	1_{11}	1.54979889
5_{14}	1_{10}	1.01747092
5_{14}	2_{12}	0.984172743
5_{14}	2_{11}	1.28008509
5_{14}	3_{13}	1.00047907
5_{14}	3_{12}	1.17317411
5_{14}	4_{14}	0.866283498
5_{14}	4_{13}	1.1032674
5_{14}	5_{15}	1.02665589
5_{14}	5_{14}	0.972135116

TABLE 3.3 – Exemple de corrections appliquées lors du passage entre les calculs CC et les calculs CS pour les transitions de desexcitation $5_{14} \rightarrow J_{K_a K_c}$ pour $E_{\text{tot}} = 130.7 \text{ cm}^{-1}$.

Tous les points présentés dans cette section sont des points importants à prendre en compte lors de calcul de sections efficaces de collisions. Toute étude rigoureuse se doit de se poser ces questions afin de calculer des taux de collisions dans lesquels les utilisateurs peuvent avoir confiance.

3.4.2 Taux de collisions

Nous présentons dans l'article les résultats obtenus dans le calcul des taux de collisions. Les résultats principaux y sont détaillés, nous n'allons donc pas les redétailler ici. Illustrons-les juste brièvement par la figure 3.7 où nous présentons les taux de collisions vers le niveau fondamental de ortho- H_2CO calculés avec ortho- H_2 (tiret), He (calcul de Green, 1991, trait-point) et para- H_2 (traits pleins).

Nous voyons qu'il existent des différences sur la valeur des taux de collisions selon le type de collisionneur (atome, comme He Green, 1991 [48], ou molécule, comme H_2), mais aussi selon l'état de spin du collisionneur (ortho- ou para- H_2). Contrairement aux taux calculés en utilisant ortho- H_2 , qui sont généralement 3 fois supérieurs aux taux calculés avec l'hélium, il n'y a pas de tendance générale sur les taux calculés avec para- H_2 : ils peuvent aussi bien être très proches des taux de Green pour certaines transitions (comme pour la transition $1_{10} \rightarrow 1_{11}$) ou très éloignés et même supérieurs aux taux calculés avec ortho- H_2 pour d'autres transitions (comme pour la transition $4_{14} \rightarrow 1_{11}$).

Nous allons présenter ici certains aspects qui n'ont pas été détaillés dans l'article : l'effet de la description des résonances des sections efficaces sur les taux de collisions et les règles de suspension qui découlent du calcul des sections efficaces.

De la description des sections efficaces

La description en énergie des sections efficaces, en particulier à basse énergie de collisions est un des détails techniques les plus importants dans le calcul de la section efficace.

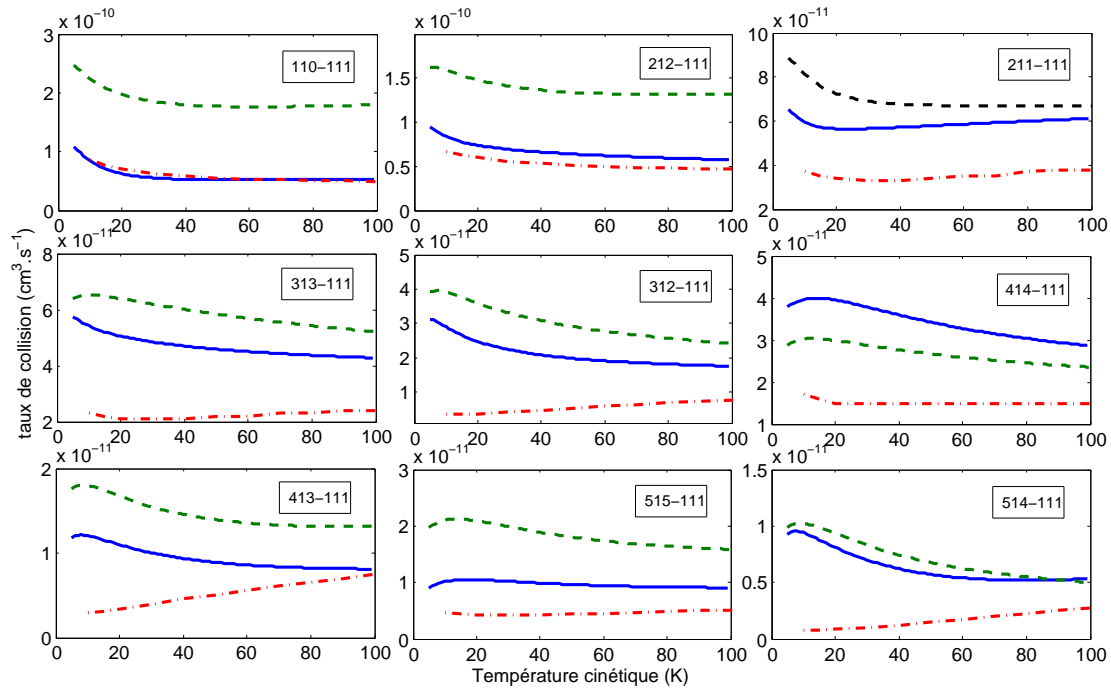


FIGURE 3.7 – Exemple de taux de collisions de desexcitation vers le niveau fondamental de ortho- H_2CO . En traits pleins les taux de collisions calculés avec para- H_2 , en tirets ceux calculés avec ortho- H_2 et en tirets-points ceux calculés par Green avec He.

Pour ces basses énergies, les sections efficaces présentent des structures résonnantes. Il en existe de deux types :

- Les résonances de Feshbach, qui sont des résonances d'un système à plus d'un degré de liberté. Ce système deviendrait un état lié si le couplage entre certains degrés de liberté et les degrés de liberté associés au phénomène de transition étaient mis à zéro. Elles ne sont liées qu'à une excitation d'états de rotation fermés (inaccessibles classiquement).
- Les résonances de forme, qui contrairement aux résonances de Feshbach, disparaissent sous l'action du couplage entre les degrés de libertés. Elles ont, elles, une contrepartie classique (capture).

Il est important de bien décrire ces résonances, qui sont de primordiales dans le calcul des taux de collisions, comme nous allons le montrer dans ce qui suit.

Considérons deux cas :

- le cas où toutes les résonances sont décrites avec une grille d'énergie adéquate (courbe noire de la figure 3.8)
- le cas où nous n'avons pas décrit les sections efficaces avec une grille suffisamment fine (courbe grise de la figure 3.8). Techniquement, nous avons augmenté le pas en énergie d'un facteur 20, correspondant au pas utilisé par Green dans ses calculs.

Nous voyons dans la figure 3.8 la différence entre les sections efficaces lorsque nous considérons différentes grilles en énergie. Typiquement, les résonances sont moins bien décrites lorsque nous augmentons le pas en énergie, nous voyons par exemple que nous manquons totalement les pics à 5 K et à 15 K. Cela dit, les courbes ont la même allure, et, vu que de toute façon, nous moyennons ces sections efficaces pour calculer les taux de collisions, on pourrait croire que l'effet de la grille en énergie sur le calcul des taux de collision n'a que peu d'impact.

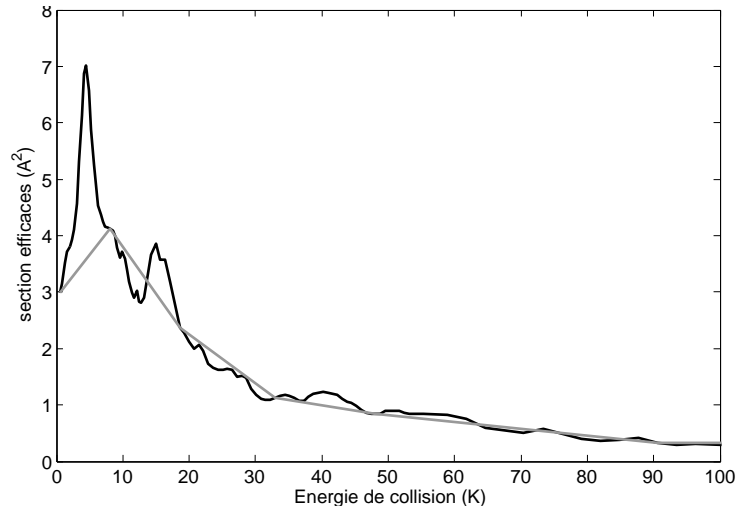


FIGURE 3.8 – Description de la section efficace pour la transition $5_{14} \rightarrow 1_{11}$. En noir la grille d'énergie que nous avons prise pour nos calculs, en gris le pas a été augmenté d'un facteur 20.

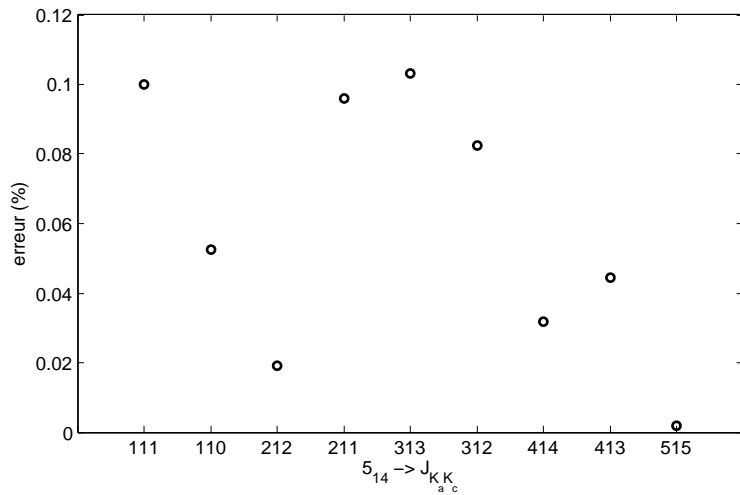


FIGURE 3.9 – Erreur faite sur le calcul des taux de collisions en augmentant le pas de la description des sections efficaces d'un facteur 20. Ici sont montrées les erreurs faites sur les transitions $5_{14} \rightarrow J_{K_a K_c}$.

Nous présentons dans la figure 3.9 les erreurs effectuées sur les taux de désexcitation collisionnelle ayant pour niveau initial le niveau 5_{14} en décrivant les sections efficaces en augmentant le pas en énergie d'un facteur 20, pour une température de 10 K et avec para- H_2 comme collisionneur.

Le résultat que nous en tirons est le suivant : moins bien l'on décrit les résonances, plus on sous-estime les taux de collision. L'écart entre les taux est de l'ordre de l'erreur sur la convergence dans le cas que nous présentons ($\approx 10\%$), ce qui montre bien que ce n'est pas un paramètre à négliger. Il est évident que plus l'on augmente le pas en énergie, plus on sous-estime les taux de collision.

Afin d'avoir les taux les plus précis possible, il est capital d'avoir une bonne description des résonances des sections efficaces. C'est pourquoi nous avons décrit les sections efficaces

avec un très petit pas pour les énergies de collision basses (0.25 cm^{-1} dans nos calculs) afin de ne pas sous-estimer les taux de collision.

Règle de propension

Une des caractéristiques importantes des taux de collision que nous avons calculés est la différence dans les règles de propension entre les différents collisionneurs.

En effet, si les taux de collision sont différents en termes de valeurs entre les différents collisionneurs, ils sont aussi différents dans leurs règles de propension. Nous entendons ici par « règles de propension », les valeurs relatives entre les différentes transitions : telle transition est plus forte que telle autre, etc... Il est intéressant de connaître quelles sont les transitions qui sont favorisées et s'il se dessine une tendance générale.

Ces règles de propension ont déjà été étudiées par le passé. Il est à noter, par exemple, les travaux de Townes & Cheung 1969 [105], qui ont étudié ces règles de propension dans le cas de l'absorption anormale de ortho- H_2CO . Nous n'allons pas nous attarder ici sur le calcul de ces règles, l'étude de l'absorption anormale du formaldéhyde sera l'objet du chapitre 5. Le tout est de savoir qu'ils en ont déduit la règle suivante : les collisions excitent préférentiellement ortho- H_2CO vers un état bas de chaque doublet. Des études similaires ont été menées dans le cas des taux de collision avec He [44], concluant sur les mêmes résultats.

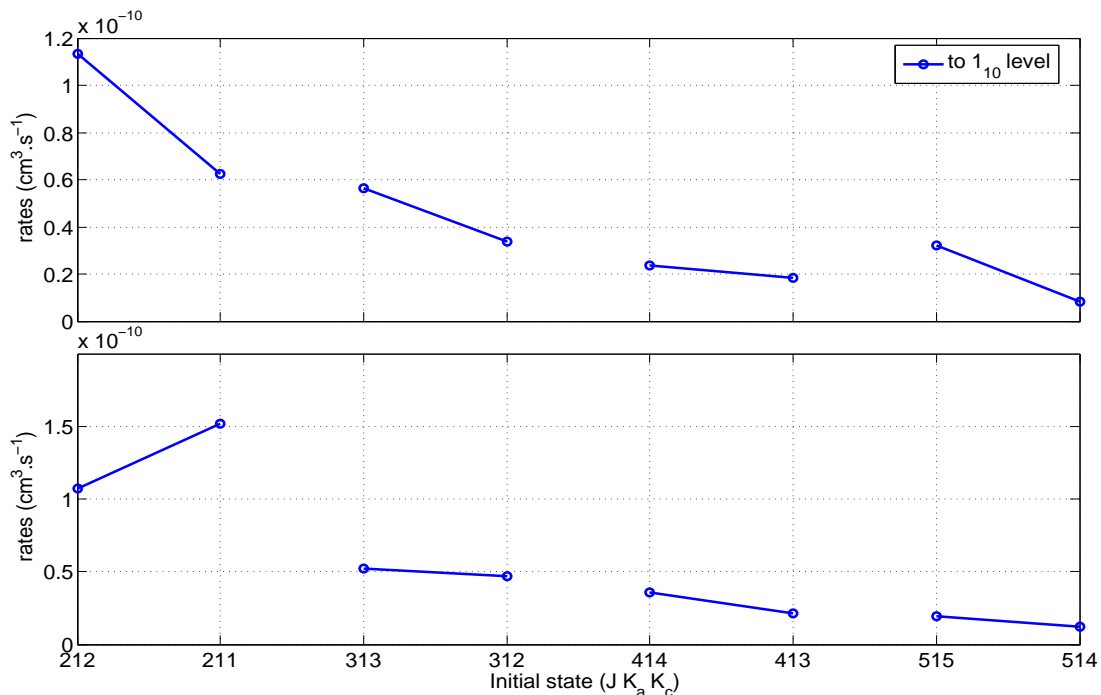


FIGURE 3.10 – Règles de propension dans le cas de collisions avec para- H_2 (en haut) et ortho- H_2 (en bas). On visualise ici les taux de désexcitation d'un niveau initial $JK_a K_c \rightarrow 1_{10}$.

La figure 3.10 montre les règles de propension des transitions de désexcitation $JK_a K_c \rightarrow 1_{10}$ dans le cas de collisions avec ortho et para- H_2 pour une température de 10 K. Nous voyons que les deux collisionneurs ont différentes règles de sélection pour cette transition :

- Collisions avec para-H₂ : les taux de désexcitation vers le niveau 1₁₀ suivent un schéma particulier. Toutes les transitions de désexcitation depuis un niveau bas de chaque doublet ont un taux plus fort que les transitions de désexcitation depuis un niveau haut :

$$\begin{aligned}\Delta K_a &= 0 \\ K_c &= J\end{aligned}$$

- Collisions avec ortho-H₂ : ces taux de désexcitation suivent le même schéma que les taux de collisions calculés avec para-H₂ pour les doublets avec $J > 2$. La règle de propension dans le cas du doublet $J = 2$ est inversée : la transition 2₁₁ → 1₁₀ se trouve avantagée par rapport à la transition 2₁₂ → 1₁₀. Cette différence peut-être très intéressante lors de la modélisation astrophysique, et en particulier sur la modélisation de la transition fondamentale de ortho-H₂CO (voir chapitre 5).

Il est à noter que les taux de désexcitation vers les autres niveaux de ortho-H₂CO suivent les règles énoncées dans le cas de para-H₂ pour les désexcitations vers le niveau 1₁₀, et ce, quelle que soit le collisionneur, mais avec des écarts moins grand. De plus, lorsque la température augmente, ce schéma de collision disparaît

3.5 Résultats : para-H₂CO–(ortho-,para-)H₂

Nous avons présenté dans la section précédente les détails de calcul pour le système ortho-H₂CO–(ortho-,para-)H₂, les résultats étant présentés dans l'article. Nous allons présenter dans la suite les résultats que nous avons obtenus pour le système para-H₂CO–(ortho-,para-)H₂. Nous n'avons pas encore publié d'article concernant cette partie, c'est pourquoi nous allons nous attarder sur les résultats.

Nous n'allons pas représenter les détails techniques des calculs (convergence de sections efficaces, problème de description de ces sections efficaces,...), ceux-ci ne sont pas révolutionnaires par rapport à ce qui a été présenté pour le calcul de section efficaces pour le système ortho-H₂CO-H₂. C'est pourquoi nous allons plutôt nous focaliser sur les résultats.

Nous avons fait les calculs pour des transitions entre les 19 premiers niveaux en énergie de para-H₂CO, depuis le niveau fondamental 0₀₀ jusqu'au niveau 8₀₈ ($\sim 87 \text{ cm}^{-1}$).

3.5.1 Paramètres du calcul, description de la section efficace

Comme pour tous les systèmes moléculaires en collision, le problème de convergence des sections efficaces est aussi présent pour ce système. Nous avons donc fait une étude similaire à ce que nous avons fait pour ortho-H₂CO.

Niveaux de H₂CO

Contrairement à sa forme ortho-, dont les niveaux d'énergie ayant le même nombre quantique rotationnel J sont regroupés (du moins pour les plus bas), les niveaux d'énergie de la forme para- de H₂CO sont mélangés : des niveaux à haut J se trouvent bas en énergie. D'un point de vue numérique, ceci a un effet non négligeable sur la valeur des sections efficaces. Ainsi, même pour des calculs à basse énergie, il nous faut inclure des niveaux rotationnels à grand J pour avoir une bonne convergence des sections efficaces.

Cela dit, inclure systématiquement tous les niveaux rotationnels pour un J donné nous prendrait beaucoup trop de temps de calcul. C'est pourquoi nous avons utilisé le paramètre EMAX de MOLSCAT. Ce paramètre a la même fonction que le paramètre JMAX que nous avons présenté dans ce qui précède. La différence est que, si JMAX inclut dans le calcul tous les niveaux rotationnels ayant un nombre quantique J inférieur à JMAX, EMAX limite en énergie les niveaux inclus dans le calcul : tous les niveaux ayant une énergie inférieure à EMAX sont inclus, les autres exclus. Ces deux paramètres peuvent évidemment se cumuler.

Nous avons donc utilisé ces deux paramètres pour limiter les niveaux d'énergie inclus dans le calcul des sections efficaces et ainsi limité le temps de calcul nécessaire à l'obtention de celles-ci. Nos calculs incluent ainsi jusqu'à 98 niveaux rotationnels pour les collisions avec para- H_2CO , et ce quel que soit le collisionneur.

Niveau rotationnel de H_2

Dans le cas de collision avec ortho- H_2CO , nous avons inclus dans le calcul avec para- H_2 les niveaux $J = 0$ et $J = 2$ de l'hydrogène moléculaire afin d'atteindre une convergence de l'ordre de 10%.

Pour le cas des collisions avec para- H_2CO , nous nous sommes heurtés aux temps de calcul nécessaires pour calculer les sections efficaces avec les niveaux $J = 0$ et $J = 2$ de H_2 . En effet, comme nous l'avons présenté dans le paragraphe précédent, nous devons déjà inclure beaucoup de niveaux rotationnels dans nos calculs pour atteindre une convergence satisfaisante. Inclure le niveau rotationnel $J = 2$, si nécessaire, augmenterait drastiquement le temps de calcul.

C'est pourquoi nous avons étudié l'influence du niveau $J = 2$ de l'hydrogène moléculaire dans nos calculs.

La figure 3.11 montre deux exemples de sections efficaces pour ortho- H_2CO où nous avons calculé l'erreur effectuée considérant uniquement le niveau $J = 0$ de H_2 (tiret) et l'erreur effectuées en faisant un calcul CS ($J = 0, 2$) par rapport à un calcul CC $J = 0, 2$.

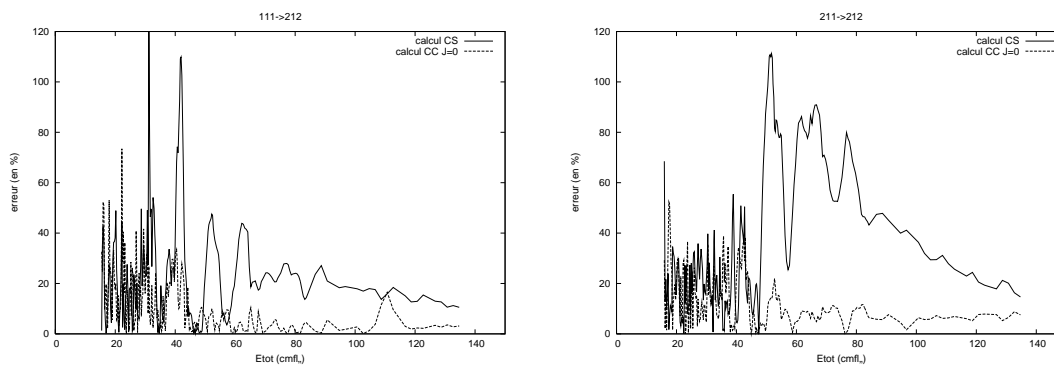


FIGURE 3.11 – Erreur faite en considérant un calcul CC (H_2 , $J = 0$) (tiret) et un calcul CS (H_2 , $J = 0, 2$) (ligne pleine) par rapport à un calcul CC (H_2 , $J = 0, 2$) pour deux transitions de ortho- H_2CO : $1_{11} \rightarrow 2_{12}$ et $2_{11} \rightarrow 2_{12}$

Nous voyons que si nous considérons uniquement le niveau $J = 0$ de H_2 , nous introduisons une erreur de 15% en moyenne sur les basses énergies, *i.e.* dans le cas des domaines d'énergie où les résonances apparaissent, et une erreur minimale (aux alentours

de 5 %) lorsque l'énergie augmente. Il est à noter que l'erreur effectuée dans ce cas est même largement inférieure à l'erreur effectuée en faisant un calcul CS ($J = 0, 2$).

En considérant les résultats de ortho-H₂CO valables pour para-H₂CO, nous avons donc considéré uniquement H₂ dans son état fondamental pour les calculs para-H₂–para-H₂CO, ce qui nous a permis d'inclure plus de niveaux rotationnels de H₂CO dans le calcul des sections efficaces.

Dans le cas des collisions avec ortho-H₂, et comme dans le cas de ortho-H₂CO, nous avons considéré uniquement H₂ dans son niveau $J = 1$. Inclure le niveau $J = 3$ a été testé et a montré un impact négligeable sur les calculs.

Grille d'énergie, autres paramètres de calcul

Comme dans le cas des calculs faits avec ortho-H₂CO, nous avons adapté le paramètre *STEPS* à l'énergie de calcul. Ainsi, nous l'avons augmenté jusqu'à une valeur de 250 pour les plus basses énergies afin de contraindre le pas de l'intégrateur en dessous de ~ 0.1 bohrs, afin de bien suivre les détails des coefficients radiaux de l'ajustement de la PES.

Enfin, afin d'avoir un calcul de taux de collisions précis, nous avons adapté la grille en énergie des sections efficaces. Le tableau 3.4 résume la grille en énergie.

$\sigma_{jj'}(E)$ para-H ₂ CO–para-H ₂		
$E_{\text{tot}}(\text{cm}^{-1})$	pas d'énergie (cm^{-1})	méthode
0 → 191.2	0.25	CC
191.2 → 301.2	1	CC
301.2 → 1001.2	10	CC
$\sigma_{jj'}(E)$ para-H ₂ CO–ortho-H ₂		
$E_{\text{tot}}(\text{cm}^{-1})$	pas d'énergie (cm^{-1})	méthode
121.7 → 312.9	0.25	CC
312.9 → 422.9	1	CC
422.9 → 1122.9	10	CC

TABLE 3.4 – Description des grilles d'énergie effectuées et des méthodes de calcul utilisées pour le calcul des sections efficaces.

3.5.2 Sections Efficaces

Nous avons donc utilisé les paramètres présentés dans le paragraphe 3.5.1 dans le code MOLSCAT afin de calculer les sections efficaces de collisions entre para-H₂CO et (ortho-,para-) H₂. Nous présentons quelques résultats de calculs dans la figure 3.12.

Nous remarquons le même comportement que celui déduit des calculs concernant ortho-H₂CO : les sections efficaces calculées pour ortho-H₂ sont généralement supérieures aux sections efficaces calculées avec para-H₂.

3.5.3 Taux de collisions

Nous présentons dans cette section les résultats pour les taux de collisions de para-H₂CO.

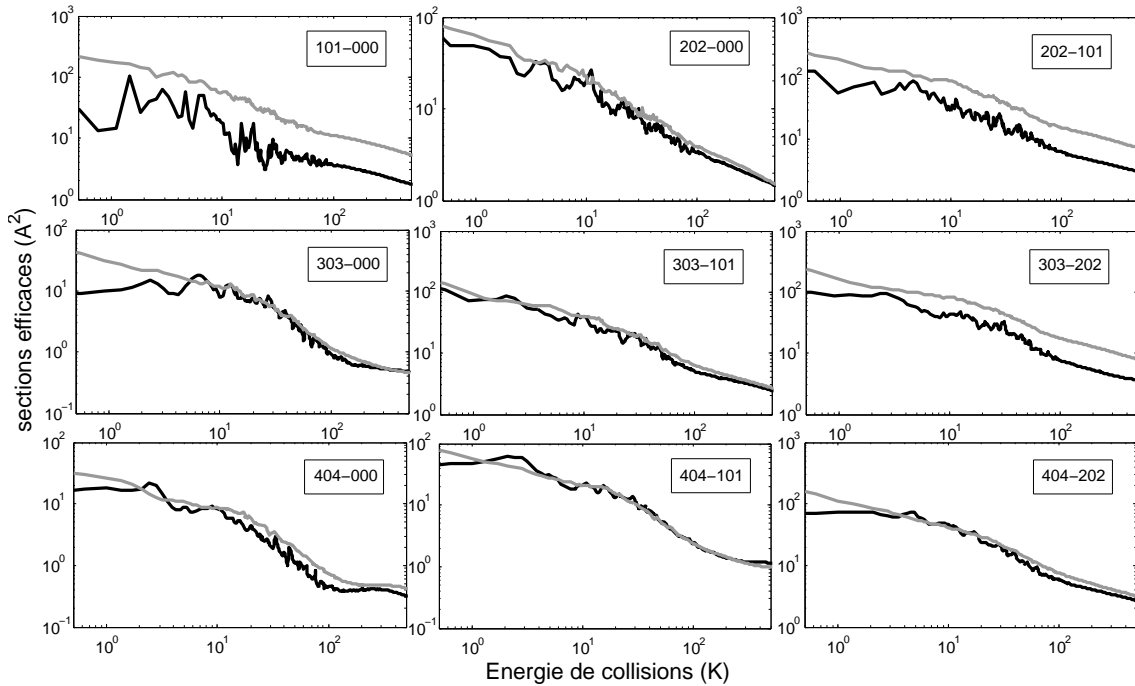


FIGURE 3.12 – Exemple de sections efficaces de désexcitation entre les 5 premiers niveaux de para- H_2CO . En gris les calculs pour ortho- H_2 , en noir les calculs pour para- H_2 .

Résultat

La figure 3.13 montre des exemples de taux de collisions de désexcitation entre les premiers niveaux rotationnels de para- H_2CO . Nous avons tracé sur le même graphique les taux de collisions pour para- H_2 , ortho- H_2 et He (taux de Green).

Comme dans le cas de ortho- H_2CO , nous voyons les même tendances sur les taux : les taux calculés avec ortho- H_2 sont généralement 2 à 3 fois supérieurs aux taux calculés par Green alors qu'aucune tendance générale ne peut être déduit des taux calculés avec para- H_2 . Ceux-ci peuvent être très proches des taux de Green (voir en particulier la transition $1_{01} \rightarrow 0_{00}$) ou très proches des taux calculés avec ortho- H_2 (voir par exemple la transition $4_{04} \rightarrow 1_{01}$)

Il est intéressant de noter que les taux de Green ont parfois un comportement tout à fait différent des taux calculés avec H_2 , même dans le cas de para- H_2 ($J = 0$) : alors que tous nos taux décroissent en fonction de la température, certains taux de Green croissent (par exemple la transition $2_{02} \rightarrow 0_{00}$). Ceci prouve qu'il ne suffit pas de multiplier les taux calculés avec He par un facteur proportionnel au rapport de masse des deux collisionneurs pour pouvoir modéliser les collisions avec l'hydrogène moléculaire, mais qu'il faut absolument calculer les taux de collision avec H_2 .

Règles de propension

Comme dans le cas des collisions avec ortho- H_2CO , nous allons étudier maintenant les règles de propension des collisions entre para- H_2CO et (para-, ortho-) H_2 et, ainsi, regarder si une tendance générale se dessine.

Nous présentons dans la figure 3.14 les taux de désexcitation ayant comme niveau

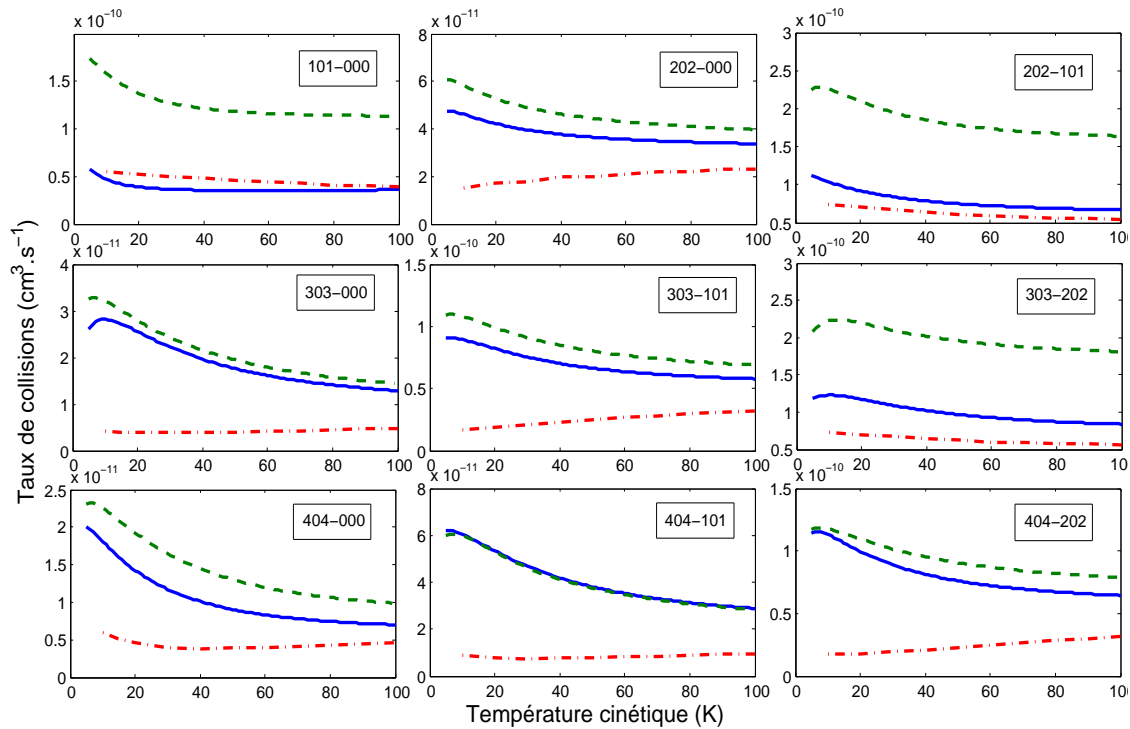


FIGURE 3.13 – Exemple de taux de collisions de désexcitation vers le niveau fondamental de para- H_2CO . En traits pleins les taux de collisions calculés avec para- H_2 , en tirets ceux calculés avec ortho- H_2 et en tirets-points ceux calculés avec He.

initial le niveau 6_{24} (83.9 cm^{-1}) en fonction du niveau final pour des températures de 10 K et 50 K pour les deux collisionneurs.

Aucune tendance claire ne se déduit des taux de collisions, en particulier pour les niveaux de plus basses énergies. Pour les niveaux les plus hauts, il semble y avoir une préférence pour les 6_{06} , 7_{07} et 5_{23} lorsque $T=10 \text{ K}$ et pour les niveaux 6_{06} , 4_{22} et 5_{23} lorsque $T=50 \text{ K}$, et ce pour les deux collisionneurs. De ces graphiques, il semblerait que les transitions $\Delta J \leq 1$ semblent privilégiées. Cela dit, aucune règle claire et précise du type $\Delta J = \Delta K$ ne semble pouvoir être définie.

3.6 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté le cheminement théorique nous permettant de calculer des taux de collision, de la détermination de la surface d'énergie potentielle au calcul proprement dit des taux de collision, en passant par le calcul des sections efficaces de collision. Nous l'avons présenté dans le cas du système moléculaire en interaction particulier auquel nous avons dédié nos travaux : le système $\text{H}_2\text{CO}-\text{H}_2$.

Ce système particulier, rotateur asymétrique-molécule, est un des systèmes les plus compliqués à traiter d'un point de vue dynamique. Le fait que le formaldéhyde possède trois axes de rotation complique le problème. De plus le nombre de niveaux rotationnels présent dans une petite gamme d'énergie rallonge les calculs, puisqu'il faut inclure un grand nombre de niveaux rotationnels dans le calcul.

Nous avons mis en avant la nécessité d'une surface d'énergie potentielle précise décri-

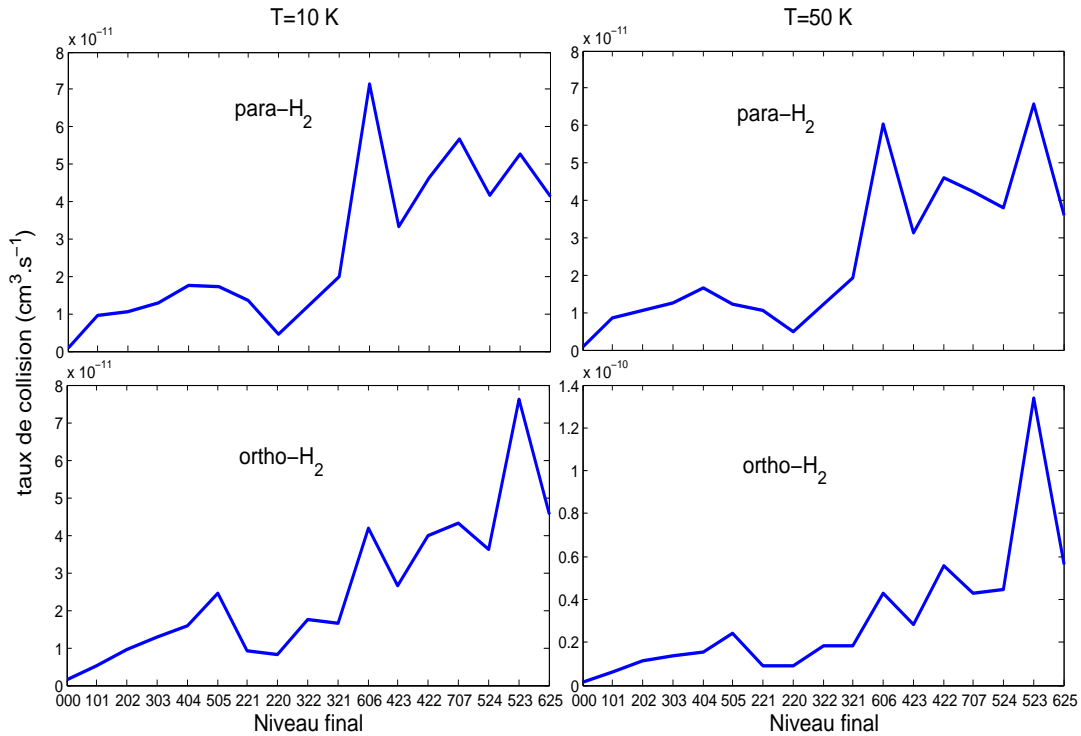


FIGURE 3.14 – Taux de collision de désexcitation à partir du niveau 6_{24} vers tous les niveaux rotationnels moins excités, calculé pour para- H_2 (panneaux du haut) et ortho- H_2 (panneaux du bas) et deux températures : 10 K (panneaux de gauche) et 50 K (panneaux de droite).

vant l'interaction entre tous les électrons et noyaux du système, afin de traiter correctement le problème dynamique de la collision. L'erreur effective de cette surface descend en-dessous de 1 cm^{-1} dans sa partie attractive.

De cette surface d'énergie potentielle, nous avons tiré des sections efficaces de collisions pour les 10 premiers niveaux de ortho- H_2CO . Nous avons présenté les théories des calculs que nous avons employés (calcul CC, CS, propagateur log-dérivatif) dans le programme MOLSCAT et tiré des sections efficaces précises, convergées à mieux que 10% (et même 5% pour les transitions les plus basses en énergie). Nous avons mis en avant la différence qu'il existe dans ces calculs entre ortho- et para- H_2 , différences qui viennent de l'interaction dipôle-quadrupôle du système H_2CO –ortho- H_2 .

Grâce à ces calculs précis, nous avons pu calculer et publier les premiers taux de collision concernant le système H_2CO-H_2 . Nous avons pu comparer ces taux aux calculs déjà effectués par S.Green sur le système H_2CO-He et conclu que, au vu des différences dans ces taux, considérer l'atome d'Hélium comme substitut à l'hydrogène moléculaire est une mauvaise approximation, qui ne reflète pas la réalité, la différence entre les taux de collision pouvant aller jusqu'à un facteur 10.

Les calculs que nous avons présentés ici ne sont bons que pour des calculs fait à relativement basse température ($T < 100 \text{ K}$) et pour un nombre de niveaux limité aux niveaux les plus bas ($E_{\text{niveaux}} < 50 \text{ cm}^{-1}$ pour ortho- H_2CO , $E_{\text{niveaux}} < 90 \text{ cm}^{-1}$ pour para- H_2CO). Pour pouvoir faire des modélisations à plus haute énergie, il va falloir extrapoler ces taux, avec, par exemple, des méthodes semi-empiriques, comme présentée dans Faure & Josselin 2008 [38] ou bien des méthodes s'inspirant des systèmes neuronaux (travaux

de D. Neufeld, communication privée). Le travail que nous avons présenté montre que, dans le cadre de modélisation astrophysique, appliquer un facteur multiplicatif de l'ordre de 2.8 aux taux de Green permettrait de pallier au manque de taux.

Certaines expériences ont déjà été réalisées pour étudier les sections efficaces de collision entre H_2CO et H_2 . Citons par exemple les travaux de van Hulst *et al.* (1987 [117; 116]). Cela dit, il n'est pas possible de comparer les résultats obtenus alors et les résultats que nous avons obtenus dans nos calculs. En effet, les énergies cinétiques des projectiles lors de ces expériences sont très largement supérieures aux énergies cinétiques de nos calculs : aux environs de 15000 cm^{-1} , à comparer avec les plus hautes énergies pour lesquelles nous avons calculé les sections efficaces : 1000 cm^{-1} .

La conclusion générale de tout ce travail est simple : pour modéliser correctement les collisions avec l'hydrogène moléculaire, il faut calculer et utiliser des taux de collision impliquant l'hydrogène moléculaire. Une étude d'un objet astrophysique faite par le biais de l'hélium ne peut être considérée comme réellement révélatrice des conditions physiques régnant dans l'objet.

D'un point de vue personnel, j'ai pu apprécier d'entrer dans la quasi-totalité de la chaîne de calcul. Comme précédemment exposé, je ne suis pas entré dans le calcul *ab initio* de la surface d'énergie potentielle, mais j'ai été en charge de tout le reste : des convergences des sections efficaces au calcul des taux, puis à la modélisation (voir la deuxième partie de cette thèse).

Le grand point qu'il me restera en mémoire est le temps de calcul nécessaire à l'obtention de taux aussi précis. Si, en temps humain, cela consiste en 1 an de travail, cela représente 14 ans en temps de calcul ! Autant dire que sans machine puissante possédant plusieurs processeurs, cette étude n'aurait pas pu être menée à bout, ou, du moins, pas avec autant de précision.

Rotational excitation of formaldehyde by hydrogen molecules: ortho-H₂CO at low temperature^{*,**}

N. Troscompt, A. Faure, L. Wiesenfeld, C. Ceccarelli, and P. Valiron

Laboratoire d'Astrophysique de Grenoble, UMR 5571-CNRS, Université Joseph Fourier, Grenoble, France
e-mail: afaure@obs.ujfgrenoble.fr

Received 30 July 2008 / Accepted 15 October 2008

ABSTRACT

Aims. Rate coefficients for the rotational excitation of the ten lowest levels of ortho-H₂CO by collisions with H₂ molecules are computed for kinetic temperatures in the range 5–100 K.

Methods. Cross sections are obtained from extensive, fully converged, quantum-mechanical scattering calculations using a highly accurate potential energy surface computed at the CCSD(T) level with a basis set extrapolation procedure. Scattering calculations are carried out for H₂ molecules in both para and ortho rotational levels.

Results. The present rates are shown to differ significantly from those available in the literature. Moreover, the strength of propensity rules is found to depend on the para/ortho form of H₂. Radiative transfer modeling also shows that the new rates have a significant impact on H₂CO emission line fluxes and that they should be adopted in any detailed radiative transfer model of ortho-H₂CO in cold environments ($T \lesssim 30$ K).

Key words. molecular data – molecular processes – ISM: molecules

1. Introduction

Formaldehyde (H₂CO) was the first organic polyatomic molecule discovered in the interstellar medium at the end of the sixties (Snyder et al. 1969). Since then it has been extensively observed both in galactic and extragalactic sources. Many reasons make the observation of formaldehyde in space important, but all can be summarized in one sentence: *observation of formaldehyde rotational lines is one of the best tools we have for studying astrophysical sources*. First, the relatively large dipole moment and abundance of the molecule make the rotational lines relatively easy to observe from ground-based observations. Indeed, formaldehyde lines have been detected in a variety of astronomical sources: from comets in the Solar System (e.g. Fray et al. 2006) to the coldest objects of our Galaxy, the pre-stellar cores (Bacmann et al. 2003), and up to distant starburst galaxies (Mangum et al. 2008). Formaldehyde rotational lines are observed in diffuse (Liszt et al. 2006) and in dense (Minh et al. 1993) molecular clouds, in massive (van der Tak et al. 2000) and in low-mass protostars (Maret et al. 2004). In short, rotational lines from formaldehyde are observed everywhere in space. Yet, what makes formaldehyde rotational lines such a popular and powerful tool for studying astronomical sources is their valuable diagnostic capabilities. The most important is the ability of formaldehyde rotational lines to constrain the density

of the studied source (e.g. Mangum & Wootten 1993). This is due to the structure of H₂CO, a slightly asymmetric rotor, which leads to a “K-doublet” structure of the rotational energy levels. Very generally speaking, observations of transitions from different ΔK transitions turn out to be very powerful constraints on the gas-emitting density. This property has been widely used in the literature to derive the density of several astronomical sources. Actually, observations of carefully selected H₂CO rotational lines (namely spanning a wide enough range of upper energy level and spontaneous emission coefficient) can be used to reconstruct the density profile and the H₂CO abundance profile of the studied source (e.g. Ceccarelli et al. 2003). We mention here one specific example to illustrate this point. In low-mass protostars, multi-frequency observations of H₂CO have permitted discovery of the *hot corinos*, warm and dense regions inside the cold envelopes of Class 0 sources where the abundance of formaldehyde jumps by more than a factor of 100 (Ceccarelli et al. 2000, 2001; Maret et al. 2004). At the same time, the abundances of several complex organic molecules also show a jump (Cazaux et al. 2003). This allows us to introduce another important aspect of H₂CO observations: formaldehyde is the simplest and often most abundant polyatomic organic molecule containing oxygen observed in space. It is considered a “parent molecule” from which more complex organic molecules spring (e.g. Charnley et al. 1997). Formaldehyde is, therefore, a basic molecule of organic chemistry in space.

All the studies based on the observations and interpretation of the formaldehyde rotational lines rely on knowing of the *H₂CO collisional coefficients*, which permit observed line intensities to be “converted” into densities and abundances. These coefficients are extremely difficult to measure via laboratory

* This paper is dedicated to the memory of our friend and colleague, Pierre Valiron, who died on 31 August 2008.

** Table of rate coefficients is available in electronic form at the CDS via anonymous ftp to cdsarc.u-strasbg.fr (130.79.128.5) or via <http://cdsweb.u-strasbg.fr/cgi-bin/qcat?J/A+A/493/687>

experiments, and the best way is to compute them following the quantum scattering theory. These calculations are computationally very expensive, so for a long time, approximations have been used. However, given the huge importance that formaldehyde rotational lines have in several fields of astrophysics, it is time now to reconsider more accurate and reliable calculations. This is the goal of this article.

Hydrogen molecules are generally the most important colliding partners in the interstellar medium, although collisions with H, He, and electrons (and H₂O in comets) may be important. The very first collisional calculation on H₂CO was presented by Townes & Cheung (1969), in a purely classical framework. The first semi-classical calculations were performed by Augustin & Miller (1974) (see however Faure & Wiesenfeld 2004, for some limitations) for the system H₂CO–He. Eventually, the first fully quantum calculations were performed by Garrison et al. (1975) and Garrison et al. (1976) for 16 energy levels of ortho-H₂CO and for scattering energies between 20 and 95 K, using the H₂CO–He potential energy surface (PES) of Garrison & Lester (1975). Green et al. (1978), and more recently Green (1991), extended those calculations to 81 rotational levels and kinetic temperatures up to 300 K, still using the PES of Garrison & Lester (1975). In all these theoretical studies, He was employed as a substitute for H₂ to reduce the cost of the computations. As a result, rates for excitation by H₂ have been obtained so far by scaling the rates for He by a factor of ~1.4, accounting for the lower reduced mass of the H₂CO–H₂ system. Recently, this approximation has been questioned experimentally at low temperatures by Mengel & De Lucia (2000). These authors have found that pressure broadening cross sections for H₂CO–H₂ are generally larger by a factor of 2 than the cross sections for H₂CO–He, suggesting a scaling factor of ~2.8 for the rate coefficients. In the case of water, even greater differences between H₂ and He were observed, especially when H₂ is in excited rotational levels (see Faure et al. 2007, and references therein). These results suggest that the substitution of H₂ by He is very approximate and that proper H₂CO–H₂ calculations are necessary. We note finally that cross sections for electron-impact rotational excitation of H₂CO have been recently reported (Kaur & Baluja 2005).

In the present work, a high-accuracy intermolecular PES for the H₂CO–H₂ system is determined (Sect. 2.1). To the best of our knowledge, this is the first available PES for the H₂CO–H₂ system. With the help of this PES, precise quantum scattering calculations are carried out (Sect. 2.2) and collisional cross sections and rate coefficients are obtained and compared to previous H₂CO–He results (Sect. 3). In the last section we examine the influence of these new rates on the H₂CO emission line fluxes (Sect. 4).

2. Method

2.1. Potential energy surface

In the present work, we focus on the low kinetic temperature regime (5–100 K) for which the relevant collisional energies are well below the first vibrational excitation threshold of H₂CO ($\nu_4 = 1167 \text{ cm}^{-1}$, corresponding to the out-of-plane bending mode (Clouthier & Ramsey 1983)). The colliding partners may thus be safely assumed to be rigid in order to restrict the dimensionality of the intermolecular potential to five degrees of freedom (see below). An outline of the PES computation is given below, while a detailed presentation will be published in a forthcoming article.

It has been shown recently by Faure et al. (2005) for the H₂O–H₂ system that employing state-averaged geometries is a very good approximation for including vibrational effects within a rigid-rotor PES (see also Jankowski & Szalewicz 2005; Valiron et al. 2008). In the present work, the ground-state average structure of H₂CO has been taken from Duncan (1974): $r_{\text{CH}} = 1.1171 \text{ \AA}$, $r_{\text{CO}} = 1.2072 \text{ \AA}$ and $\widehat{\text{HCH}} = 116^\circ 14'$. The ground-state average geometry of H₂ has been taken from Faure et al. (2005): $r_{\text{HH}} = 1.448761 \text{ \AA}$. We have used the conventions of Phillips et al. (1994) in defining the H₂CO–H₂ rigid-rotor coordinate system: the intermolecular potential is described as a function of five coordinates, namely the intermolecular distance R from the H₂CO center of mass to the H₂ center of mass, and four relative angles (θ, ϕ) and (θ', ϕ') which describe, respectively, the collision direction and the H₂ orientation relative to the H₂CO body-fixed system.

The five-dimensional H₂CO–H₂ surface has been constructed using the following two-step procedure: (i) a reference PES was computed from a large set (48 000 points) of “medium accuracy” CCSD(T) calculations using the Dunning’s correlation consistent aug-cc-pVDZ basis set; (ii) this reference surface was subsequently calibrated using a complete basis set (CBS) extrapolation procedure based on a smaller set (8000 points) of CCSD(T)/aug-cc-pVTZ calculations. The CBS-type extrapolation was applied to the correlation part of the interaction energy and was performed using a two-point X^{-3} type extrapolation, where X is the cardinal number corresponding to the basis set, as described in Jankowski & Szalewicz (2005) (see also references therein). The self-consistent field (SCF) contribution was not extrapolated and aug-cc-pVTZ values were used. All basis sets were supplemented with midbond functions (Williams et al. 1995) and all calculations counterpoise-corrected as in Jankowski & Szalewicz (2005). The strategy of splitting the calculations into two levels of accuracy was necessary because of the large number of grid points that had to be computed and the computational cost of CCSD(T)/aug-cc-pVTZ. All correlated calculations were frozen core with negligible impact on PES accuracy.

Grid points were chosen for 22 fixed intermolecular distances R (in the range 4–15 a_0) via random sampling for the angular coordinates of H₂ relative to H₂CO. At each intermolecular distance, the interaction energy was then least-square fitted using a 146-term expansion for the angular coordinates, using Eq. (3) of Phillips et al. (1994). This expansion includes anisotropies up to $l_1 = 13$ and $l_2 = 4$, where the integer indices l_1 and l_2 refer to the tensor ranks of the angular dependence of the H₂CO and H₂ orientation, respectively. The CBS correction was fitted over a subset of only 49 angular terms. The accuracy of the angular expansion was monitored using a self-consistent Monte Carlo error estimator, as done previously for H₂O–H₂ (Faure et al. 2005; Valiron et al. 2008) and CO–H₂ (Wernli et al. 2006). A cubic spline interpolation was finally employed over the whole intermolecular distance range and was smoothly connected with standard extrapolations to provide continuous radial expansion coefficients suitable for scattering calculations. The accuracy of the final five-dimensional fit was found to be better than 1 cm^{-1} in the long-range and minimum region of the interaction ($R > 6$ bohrs), as illustrated by the rms fit error in Fig. 1.

The accuracy of the above procedure was also checked against a few number (70) of “high-cost” CCSD(T)-R12 calculations using adequate R12 suited basis sets. The particular advantage of the R12 method is to offer a direct way of reaching the basis set limit value within a single calculation, that is,

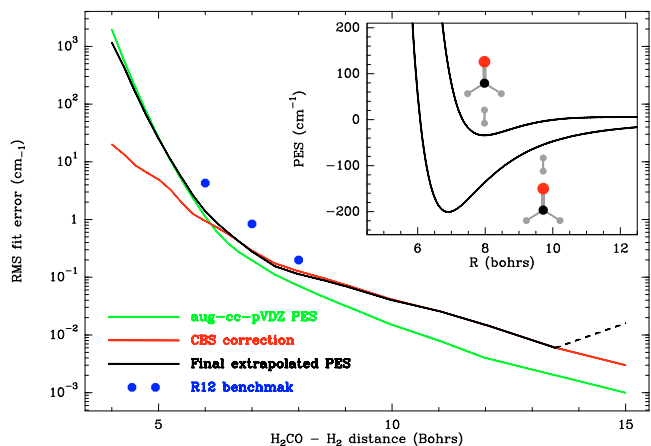


Fig. 1. Root-mean-square residual between angular fits and ab initio input data as a function of the intermolecular separation. The green line denotes the rms error for the reference (CCSD(T)/aug-cc-pVDZ) PES (146-term expansion), while the red line gives the rms for the CBS correction (49-term expansion). The rms error between the final fit and the CBS-extrapolated PES is given as the black line. The blue circles denote the rms error between the final fit and benchmark CCSD(T)-R12 values (a total of 70 R12 points were employed: 50 at 6 bohrs, 10 at 7 bohrs, and 10 at 8 bohrs). The inset shows the interaction energy as a function of the intermolecular separation for two planar $\text{H}_2\text{CO}-\text{H}_2$ configurations.

without extrapolation (Noga & Kutzelnigg 1994). As shown in Fig. 1, in the attractive part of the interaction ($R \geq 7$ bohrs), the rms error between the final fit and benchmark CCSD(T)-R12 values is lower than 1 cm^{-1} , which is the typical intrinsic accuracy of CCSD(T) calculations at the basis set limit (e.g. Noga et al. 2006). At shorter distance ($R < 6$ bohrs), the rms error increases sharply owing to steric hindrance problems, as discussed by Wernli et al. (2007a,b) for $\text{HC}_3\text{N}-\text{H}_2$. It can also be noticed that the rms increases above $R = 13.5$ bohrs as a result of the long-range extrapolation procedure.

A two-dimensional plot of the $\text{H}_2\text{CO}-\text{H}_2$ PES is presented in Fig. 2. In this plot, the interaction potential is spherically averaged over (θ', ϕ') , that is, over H_2 rotational motion. This is equivalent to constraining H_2 in its lowest para, $J_2 = 0$, rotational level (J_2 is the H_2 angular momentum). The global minimum of this averaged PES, as deduced from our fit, lies at -131 cm^{-1} for $R = 6.1$ bohrs and $(\theta, \phi) = (81^\circ, 0^\circ)$. In this configuration, para- $\text{H}_2(J_2 = 0)$ lies in the H_2CO plane and forms an approximately T-shape arrangement with respect to the CO bond. It is interesting to compare this result with the recent high-accuracy ab initio calculations of Wheeler & Ellis (2003) on the $\text{H}_2\text{CO}-\text{He}$ system. These authors have found the global minimum of the $\text{H}_2\text{CO}-\text{He}$ PES at similar values of R (5.8 bohrs) and (θ, ϕ) ($83^\circ, 0^\circ$) but with a much lower intermolecular energy: -59.5 cm^{-1} . This suggests that using an He interaction to represent an orientation average of the interaction with H_2 is quite inaccurate. Note that the PES of Garrison & Lester (1975), employed in all previous scattering calculations, had a global minimum at a similar location but an even smaller intermolecular energy ($\sim 25 \text{ cm}^{-1}$). Furthermore, we emphasize that the global minimum of the $\text{H}_2\text{CO}-\text{H}_2$ full PES, as deduced from our fit, lies at -321 cm^{-1} for $R = 5.6$ bohrs, $(\theta, \phi) = (80^\circ, 0^\circ)$, and $(\theta', \phi') = (118^\circ, 0^\circ)$. The $\text{H}_2\text{CO}-\text{H}_2$ system thus has a much deeper binding energy than the $\text{H}_2\text{CO}-\text{He}$ system. Significant differences between He and H_2 inelastic rate coefficients are thus

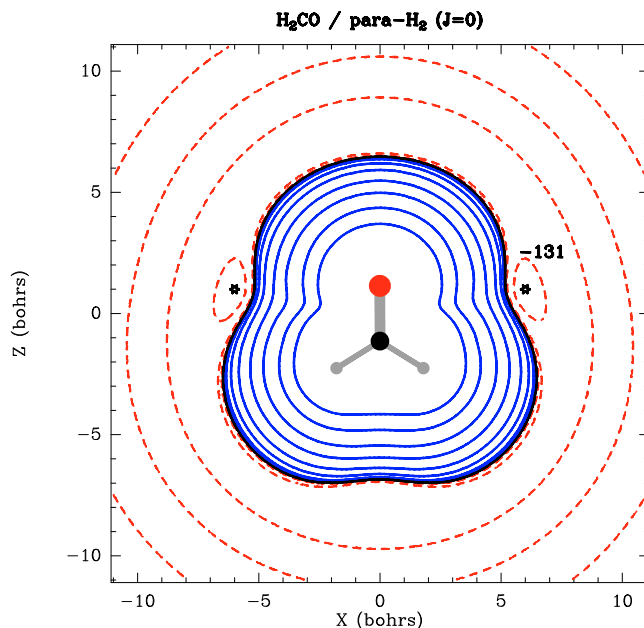


Fig. 2. Contour plots of the $\text{H}_2\text{CO}-\text{H}_2(J_2 = 0)$ PES when H_2 lies in the H_2CO plane. The H_2CO molecule is shown to scale. Equipotentials (in cm^{-1}): in dashed red, $-100, -30, -10, -3$; in solid black, 0 ; in blue $3, 10, 30, 100, 300, 1000, 3000, 10000$. The stars denote the minimum in this configuration, see text for details.

expected, especially at low temperatures where the potential well can have a spectacular effect on scattering cross sections (see e.g. Wernli et al. 2006; Dubernet et al. 2006; Faure et al. 2007; Lique et al. 2007).

2.2. Quantum scattering calculations

The slightly asymmetric top molecule H_2CO has three distinct rotational constants. In the following, rotational energy levels are labelled by three numbers: the angular momentum J and the pseudo-quantum numbers K_a, K_c , which correspond to the projection of J along the inertia a and c axis. Owing to the two H atoms of nuclear spin $1/2$, H_2CO presents two spin modifications: para (total hydrogen nuclear spin 1) and ortho (total hydrogen nuclear spin 0). The para-form corresponds to K_a even and the ortho-form to K_a odd. In the following, we focus only on the ortho- H_2CO . Indeed, scattering calculations can be done separately for the different nuclear spin combinations because inelastic (nonreactive) collisions cannot interconvert the para- and ortho-forms. Kinetic temperatures are also restricted to the range $5-100 \text{ K}$, and finally, only the first ten levels of ortho- H_2CO are considered (see Fig. 3). It should be noted that the ground rotational state of ortho- H_2CO is 1_{11} , which lies 10.7 cm^{-1} above the ground rotational state of para- H_2CO 0_{00} . In Fig. 3 and hereafter, the ground rotational state 0_{00} is taken as the origin of the rotational energies of H_2CO in order to follow the astronomical conventions.

All cross section calculations were performed with the code (Hutson & Green 1994), in the rigid rotor approximation (parameter $ITYPE = 4$). The reduced mass of the system is 1.889053 a.m.u. and the rotational constant of H_2 was taken as $B_{\text{H}_2} = 60.853 \text{ cm}^{-1}$. Rotational energies and wavefunctions for H_2CO were obtained from the three rotational constants $A = 1.134191 \text{ cm}^{-1}$, $B = 1.295431 \text{ cm}^{-1}$, $C = 9.405525 \text{ cm}^{-1}$

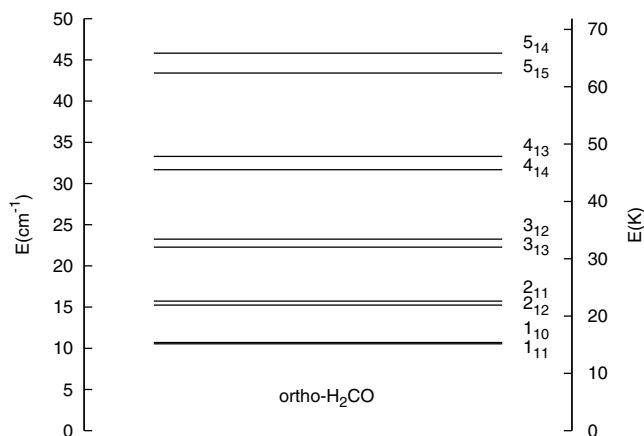


Fig. 3. Energy levels of ortho-H₂CO below 50 cm⁻¹ (to scale). The ground rotational state 0₀₀ of para-H₂CO is taken as the origin of the rotational energies. Quantum numbers: $J_{K_a K_c}$, see text for details.

(Bocquet 1996). Close-coupling (CC), and coupled-states (CS) calculations were performed using the hybrid modified log-derivative/Airy propagator (Alexander & Manolopoulos 1987) to integrate the coupled equations. We note that the parameter *STEPS* was increased up to 250 at the lowest energies to constrain the step length of the integrator below ~ 0.1 bohrs, in order to properly follow the details of the radial fitting coefficients. Other propagation parameters were taken as the default values.

For para-H₂ calculations, the inclusion of the $J_2 = 2$ level of H₂ was necessary to obtain cross sections converged to better than 5%, even when this level was energetically closed. For ortho-H₂ calculations, however, the $J_2 = 3$ level of H₂ was found to be unnecessary for reaching a comparable convergence (at the investigated collisional energies), and only the $J_2 = 1$ level was included. For the rotational basis of H₂CO, we found it necessary to systematically include 4 J values beyond the highest open J value. As a result, the largest basis included all states up to $J = 9$, that is a total of 50 levels. Note that the largest basis (28 levels) used by Green et al. (1978) was found here to be inadequate for giving cross sections within 10% of the infinite basis limit, in particular for the smaller cross sections. The energy grid was adjusted to reproduce all the details of the resonances and to span the whole energy range needed to calculate the rate coefficients with high confidence up to 100 K. Details of calculations are given in Table 1. At collisional energies E_{coll} where resonances become negligible, the CS approximation was employed to save computing time. The CS approximation is expected to become reliable at collision energies above ~ 100 cm⁻¹ (e.g. Phillips et al. 1996). The accuracy of CS calculations was actually checked against CC calculations and it was found necessary in practice to scale the CS cross sections, as done previously by Dubernet & Grosjean (2002). We note, however, that the contribution of the CS cross sections is only a small fraction of the thermal averages reported here. Finally, it should be noted that transitions between $J_2 = 0$ and $J_2 = 2$ (at collision energies above the J_2 channel, i.e. $E_{\text{coll}} > 365$ cm⁻¹) were found to make a negligible contribution in the temperature range 5–100 K. In other words, at these temperatures, collisions can be considered as elastic for H₂ in a very good approximation. As a result, the J_2 quantum number is omitted when labeling the transitions, and

Table 1. Details of the quantum M cross section calculation parameters for ranges of the total energy $E = E_{\text{rot}}(\text{H}_2\text{CO}) + E_{\text{rot}}(\text{H}_2) + E_{\text{coll}}$. CC: close-coupling, CS: coupled-states approximation.

$\sigma_{jj'}(E)$ ortho-H ₂ CO – para-H ₂ collisions		
E (cm ⁻¹)	energy step (cm ⁻¹)	method
10.7 → 55.7	0.25	CC
55.7 → 84.7	0.5	CC
84.7 → 140.7	2	CC
140.7 → 312.7	2	CS
350.7 → 1100.7	50	CS
$\sigma_{jj'}(E)$ ortho-H ₂ CO – ortho-H ₂ collisions		
132.3 → 177.3	0.25	CC
177.3 → 207.3	0.5	CC
207.3 → 262.3	2	CC
262.3 → 432.3	2	CS
432.3 → 1132.3	50	CS

the rate coefficients reported below do rigorously satisfy the detailed balance principle.

3. Results

3.1. Cross sections and rate coefficients

Figure 4 shows examples of cross sections for the rotational excitation of H₂CO by para-H₂ ($J_2 = 0$) and ortho-H₂ ($J_2 = 1$). These plots underline the importance of using an energy grid that is fine enough to properly describe the resonances (of both shape and Feshbach type), especially in the case of para-H₂, which generally has smaller rotational cross sections than ortho-H₂. The larger cross sections of ortho-H₂ actually reflect the importance of the interaction between the H₂CO dipole and the H₂ quadrupole, which vanishes when H₂ is in its $J_2 = 0$ level. This was previously observed for the similar H₂O–H₂ system (see Faure et al. 2007, and references therein). This effect varies greatly with transitions (e.g. the exception 1₁₁ → 4₁₄) and is minor for molecules with small dipoles such as CO (Wernli et al. 2006).

We compare in Table 2 a sample of the present collisional rates with those of Green (1991) at two temperatures (10 and 50 K). It should be noted that in the following the He rates of Green (1991) have been scaled by the reduced mass ratio of $(\mu_{\text{H}_2\text{CO-He}}/\mu_{\text{H}_2\text{CO-H}_2})^{1/2} = 1.37$, as reported for example in the *Leiden Atomic and Molecular DataBase*¹. We first note significant discrepancies between the present rates and those of Green (1991), either when the collider is para-H₂ or ortho-H₂. Differences are thus found to exceed a factor of 10 in some cases, e.g. for the transition 5₁₄ → 1₁₁ at 10 K. Such discrepancies were expected since the PES employed here is very different from that employed by Green (1991) (see Sect. 2.1). However, it is striking that the differences actually do not exceed a factor of ~ 3 for the highest rates. We are thus compelled to conclude that the much more attractive potential well of H₂CO–H₂ compared to that of H₂CO–He does not induce dramatic effects on scattering cross sections. In this respect, the present system presents similarities with HC₃N–H₂ for which geometric aspects were found to dominate details of the PES (Wernli et al. 2007a,b). Our results also suggest that the reduced mass ratio of 1.37 is insufficient to qualitatively account for the substitution of H₂ by He. Thus, even if the differences between He and H₂ rates do

¹ <http://www.strw.leidenuniv.nl/moldata/>

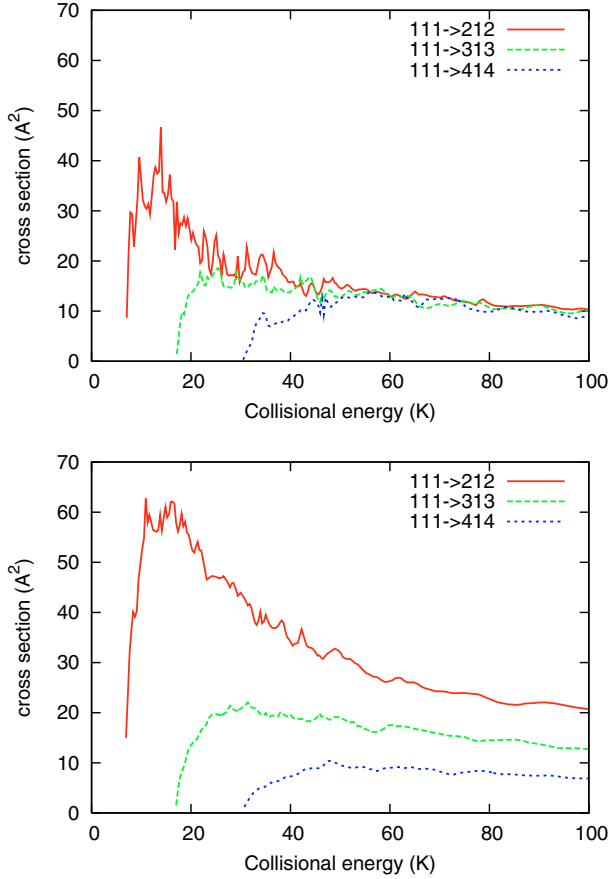


Fig. 4. Cross sections for the rotational excitation of H₂CO by para- (upper panel) and ortho-H₂ (lower panel).

not vary uniformly with transitions and temperatures, a scaling factor of $\sim 2\text{--}3$ would be more appropriate. We emphasize in this context that Green (1991) actually recommends a scaling factor of 2.2, based on pressure-broadening measurements and theoretical calculations on NH₃. A scaling factor of ~ 2.8 was reported from the low temperature measurements of Mengel & De Lucia (2000).

In Fig. 5, deexcitation rates are plotted as functions of temperature for the three colliders: He (scaled), para-H₂ ($J_2=0$), and ortho-H₂ ($J_2=1$). This figure clearly illustrates that a simple scaling of He rates is inappropriate for representing H₂ as the relative differences between He, para-H₂, or ortho-H₂ is significantly different from one transition to another. As a result, it appears that the substitution of H₂ by He is generally not adequate if an accuracy better than a factor of 2 is desired. On the other hand, the situation is expected to improve at high temperatures where kinematic effects become dominant (Faure et al. 2007).

Finally, it is interesting to briefly discuss the collisional propensity rules. Despite no rigorous selection rules hold for inelastic collisions, we observed that the most probable transitions are in most cases those for which the change in angular momentum is preferentially oriented along the direction of greatest moment of inertia (the c axis). For example, the transition $1_{11} \rightarrow 2_{12}$ is preferred to $1_{11} \rightarrow 2_{11}$ (see Table 2). Similarly, we have found that the transition $1_{10} \rightarrow 2_{12}$ is preferred to $1_{11} \rightarrow 2_{11}$ (both are dipole-forbidden). This result was actually predicted by Townes & Cheung (1969) at the classical level of theory and shown to explain the cooling of the excitation temperatures of both the

Table 2. Rate coefficients for the rotational deexcitation of H₂CO by collisions with He (scaled), para-H₂ ($J_2=0$), and ortho-H₂ ($J_2=1$) at $T=10$ and 50 K^a.

initial	final	this work		
		He	para-H ₂	ortho-H ₂
temperature = 10 K				
1 ₁₀	1 ₁₁	0.870(−10)	0.842(−10)	0.224(−09)
2 ₁₂	1 ₁₁	0.670(−10)	0.841(−10)	0.159(−09)
2 ₁₁	1 ₁₁	0.370(−10)	0.596(−10)	0.813(−10)
3 ₁₃	1 ₁₁	0.230(−10)	0.542(−10)	0.653(−10)
3 ₁₂	1 ₁₁	0.350(−11)	0.289(−10)	0.391(−10)
4 ₁₄	1 ₁₁	0.170(−10)	0.396(−10)	0.303(−10)
4 ₁₃	1 ₁₁	0.290(−11)	0.121(−10)	0.180(−10)
5 ₁₅	1 ₁₁	0.460(−11)	0.102(−10)	0.211(−10)
5 ₁₄	1 ₁₁	0.820(−12)	0.941(−11)	0.102(−10)
temperature = 50 K				
1 ₁₀	1 ₁₁	0.550(−10)	0.522(−10)	0.177(−09)
2 ₁₂	1 ₁₁	0.510(−10)	0.639(−10)	0.134(−09)
2 ₁₁	1 ₁₁	0.340(−10)	0.577(−10)	0.670(−10)
3 ₁₃	1 ₁₁	0.220(−10)	0.459(−10)	0.584(−10)
3 ₁₂	1 ₁₁	0.530(−11)	0.198(−10)	0.291(−10)
4 ₁₄	1 ₁₁	0.150(−10)	0.343(−10)	0.267(−10)
4 ₁₃	1 ₁₁	0.510(−11)	0.892(−11)	0.139(−10)
5 ₁₅	1 ₁₁	0.440(−11)	0.958(−11)	0.180(−10)
5 ₁₄	1 ₁₁	0.150(−11)	0.571(−11)	0.675(−11)

^a The two first columns are respectively the initial and final state of formaldehyde. Powers of ten are given in parenthesis.

6-cm and 2-cm doublets (transitions $1_{10} \rightarrow 1_{11}$ and $2_{11} \rightarrow 2_{12}$, respectively). It should be noted, however, that this propensity fails for some transitions and that its strength depends on the collider and, to a lesser extent, on the temperature (see Table 2 and also Sect. 4). Moreover, the propensity is generally stronger for He than for H₂, reflecting significant differences in the corresponding interactions. We thus conclude that the ratios of rates for dipole-forbidden transitions, which are essential for the cooling of the doublets, do vary significantly from one collider to another. This important issue will be discussed in details, through radiative transfer modeling, in a forthcoming paper.

3.2. Fitting procedure and critical density

For use in astrophysical modeling, the rotational transition rates $R(J_{K_a K_c} \rightarrow J'_{K'_a K'_c}, T)$ must be evaluated on a sufficiently fine temperature grid. The rates were therefore least-square fitted over the temperature range 5–100 K by the analytic form used by Faure et al. (2004):

$$\log_{10} R(J_{K_a K_c} \rightarrow J'_{K'_a K'_c}, T) = \sum_{n=0}^4 a_n T^{-n/6}. \quad (1)$$

The results of the fits are summarized in Tables 5 and 6. The fitting accuracy was found to be better than 0.1%.

To quantitatively assess the impact of the new H₂CO-H₂ collisional rates on formaldehyde emission, detailed radiative transfer studies adapted to various astronomical environments are required. In Sect. 4 below, this impact is investigated for a range of density and temperature conditions by neglecting all excitation mechanisms other than the 2.7 K Cosmic Microwave Background (CMB) radiation and H₂ collisions. A first-order indicator is also provided by the impact of rates on critical

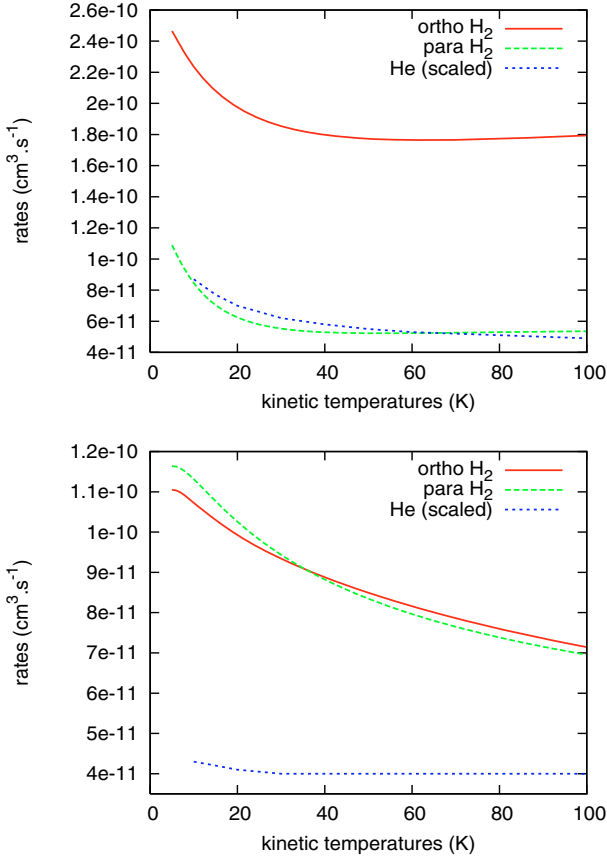


Fig. 5. Rate coefficients for the rotational transitions $1_{10} \rightarrow 1_{11}$ (upper panel) and $2_{12} \rightarrow 1_{10}$ (lower panel) as functions of temperature for (scaled) He (Green 1991), para- H_2 ($J_2 = 0$) and ortho- H_2 ($J_2 = 1$).

densities. For a multi-level system, the critical density of a given partner (here He, para- or ortho- H_2) is usually defined (neglecting absorption and induced emission) as the density at which the sum of the collisional de-excitation rates of a given level is equal to the sum of the spontaneous radiative de-excitation rates:

$$n_{\text{cr}}(J_{K_a K_c}, T) = \frac{\sum_{J'_{K'_a K'_c}} A(J_{K_a K_c} \rightarrow J'_{K'_a K'_c})}{\sum_{J'_{K'_a K'_c}} R(J_{K_a K_c} \rightarrow J'_{K'_a K'_c}, T)}. \quad (2)$$

When the colliding partner has a density $n \gg n_{\text{cr}}$, collisions maintain rotational levels in local thermodynamic equilibrium (LTE) at the kinetic temperature. When $n \ll n_{\text{cr}}$, the rotational levels are in LTE at the temperature of the background radiation (here the 2.7 K CMB). The effect of collisions is important for densities $n \sim n_{\text{cr}}$, where deviations from LTE occurred, including population inversions. Equation (2) was computed using Einstein coefficients from the *Cologne Database for Molecular Spectroscopy*². Results are presented in Table 3 for the 5 lowest upper doublet levels of ortho-formaldehyde. It is observed that critical densities for H_2 are decreased with respect to the scaled He values by a typical factor of 2–3. These differences obviously reflect the impact of the new rates, although rotational rates are summed here over all possible downward transitions, thus averaging their effect. Greater differences in emission line fluxes are thus expected as individual state-to-state rates can exceed the scaled He values by more than an order of magnitude. This

Table 3. Critical densities, in cm^{-3} , for (scaled) He, para- H_2 ($J_2 = 0$), and ortho- H_2 ($J_2 = 1$), as functions of temperature for the 5 lowest upper doublet levels of ortho-formaldehyde^a.

$J_{K_a K_c}$	T (K)	He	p- H_2	o- H_2	He/p- H_2	He/o- H_2
1 ₁₀	10	4.1(01)	4.2(01)	1.6(01)	0.97	2.6
	50	6.5(01)	6.9(01)	2.0(01)	0.94	3.3
	100	7.3(01)	6.7(01)	2.0(01)	1.09	3.7
2 ₁₁	10	4.3(05)	3.3(05)	1.8(05)	1.3	2.4
	50	6.3(05)	2.2(05)	4.2(05)	2.9	1.5
	100	6.3(05)	2.3(05)	4.4(05)	2.7	1.4
3 ₁₂	10	2.1(06)	1.0(06)	6.8(05)	2.1	3.1
	50	2.3(06)	1.3(06)	7.8(05)	1.8	2.9
	100	2.2(06)	1.4(06)	8.1(05)	1.6	2.7
4 ₁₃	10	6.8(06)	2.2(06)	1.7(06)	3.1	4.0
	50	6.0(06)	2.7(06)	1.8(06)	2.2	3.3
	100	5.2(06)	3.0(06)	1.9(06)	1.7	2.7
5 ₁₄	10	9.5(06)	4.1(06)	3.4(06)	2.3	2.8
	50	1.0(07)	4.8(06)	3.4(06)	2.1	2.9
	100	9.5(06)	5.3(06)	3.4(06)	1.8	2.8

^a Powers of 10 are given in parentheses. See text for details.

Table 4. Formaldehyde lines selected in Fig. 6. See text for details.

transition	ν (GHz)	E_{up} (K)
2 ₁₂ → 1 ₁₁	140.8	22.64
2 ₁₁ → 1 ₁₀	150.4	21.95
3 ₁₃ → 2 ₁₂	211.2	32.09
3 ₁₂ → 2 ₁₁	225.6	33.48
4 ₁₄ → 3 ₁₃	281.5	45.62
4 ₁₃ → 3 ₁₂	300.8	47.94
5 ₁₅ → 4 ₁₄	351.7	62.52
5 ₁₄ → 4 ₁₃	375.8	65.99

is demonstrated in Sect. 4 below. Level 1₁₀ has a much lower critical density than the other levels owing to the single allowed radiative transition 1₁₀ – 1₁₁.

4. Modeling formaldehyde emission

In this section we investigate the impact of the new computed collisional coefficients on the theoretical predictions of formaldehyde line emission. We employed the M program, written by Moshe Elitzur & Philip Lockett, to solve the radiative transfer equations using the escape probability method for a homogeneous slab (e.g. Krolik & McKee 1978). We consider the 10 first levels of ortho- H_2CO ($E_{\text{up}} \leq 46 \text{ cm}^{-1}$, see Fig. 3) and the 8 most intense millimeter transitions, as reported in Table 4. The computed line spectrum depends on the following basic parameters: the density of the colliders (here para and/or ortho- H_2), the kinetic temperature, the formaldehyde column density, and the linewidth. To have a relatively exhaustive study, we explored a large parameter space by varying the H_2 density between 10 and 10^8 cm^{-3} , the kinetic temperature between 10 and 30 K, the formaldehyde column density between 10^{13} and 10^{15} cm^{-2} , keeping the Doppler linewidth equal to 1 km s^{-1} . We thus considered both optically thin and optically thick lines. Finally, we included the 2.7 K CMB radiation field,

² <http://www.ph1.uni-koeln.de/vorhersagen/>

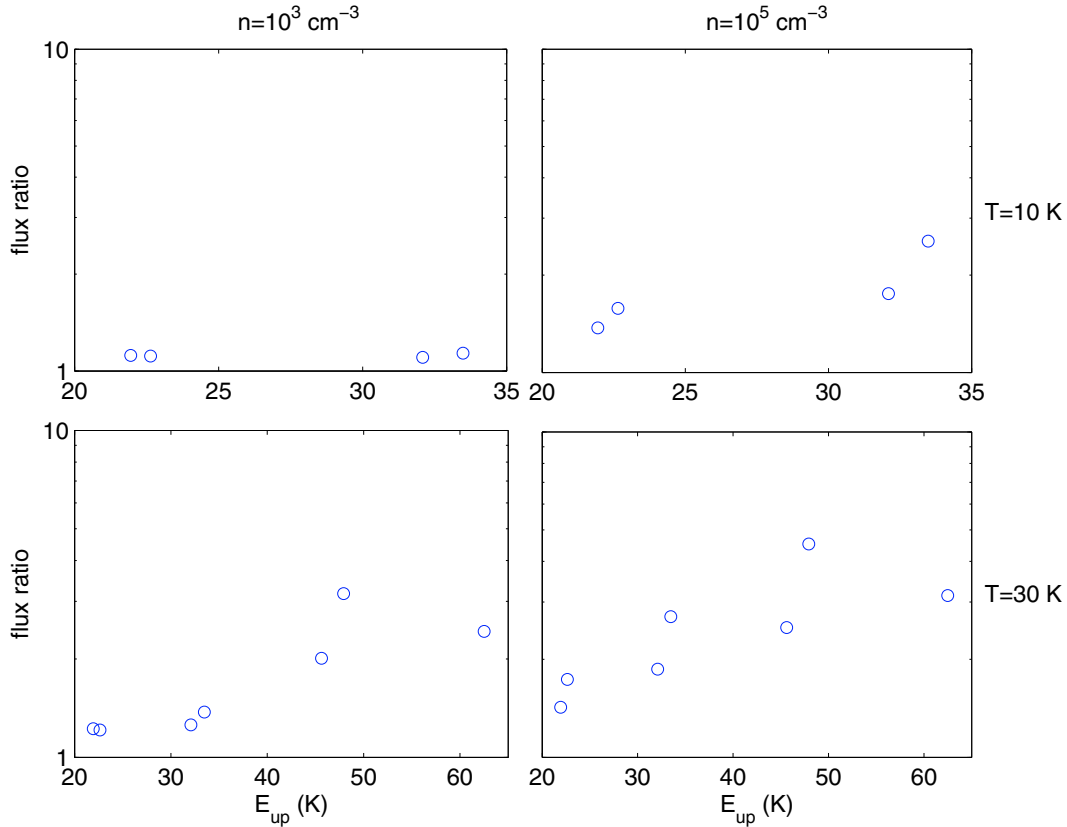


Fig. 6. Emission-line flux ratios from escape-probability modeling as functions of the upper energy levels of ortho-H₂CO for representative densities and temperatures. Two different sets of collision rates were employed (see text for details). The H₂CO column density is fixed at $5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$, corresponding to an optical depth of 1 for the $2_{12} \rightarrow 1_{11}$ transition. Open circles denote the ratios between line fluxes based on the present ortho-H₂ rates and fluxes based on the (scaled) He rates of Green (1991). The plotted ratios correspond to transitions whose fluxes are more than 1% of the total flux (summed over all millimeter transitions). Transitions can be identified from the upper energies given in Table 4. The weakest plotted line ($T = 10 \text{ K}$, $n = 10^3 \text{ cm}^{-3}$, $E_{\text{up}} = 33.48 \text{ K}$) has an antenna temperature of 10 mK.

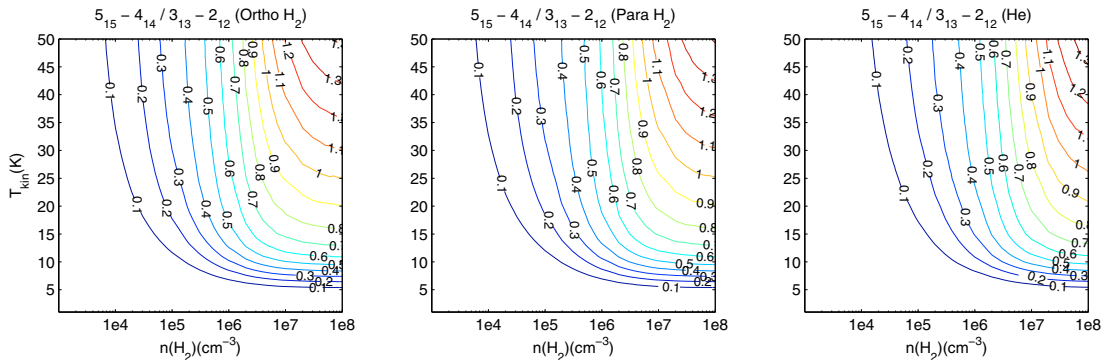


Fig. 7. Variation of the line antenna temperature ratio ($5_{15} \rightarrow 4_{14} / 3_{13} \rightarrow 2_{12}$) with kinetic temperature and H₂ density. The column density is fixed at 1.5×10^{14} , as in van Dishoeck et al. (1995). The colliders are ortho-H₂ (left panel); para-H₂ (middle panel); scaled He (right panel).

but all other possible sources of radiation were neglected to focus on the effect of collisions.

Escape probability computations were performed using two sets of collisional data: the scaled H₂CO–He rates of Green (1991) and the present H₂CO–H₂ rates. The results of this comparison are reported in Fig. 6, where we show the relevant line flux ratios for ortho-H₂CO at representative densities and temperatures. Only collision rates with ortho-H₂ are considered to simplify the interpretation. The H₂CO column density is fixed at $5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$. It can be observed that line fluxes based

on the present rates are increased up to a factor of 5 with respect to fluxes based on the scaled He rates of Green (1991). These results clearly reflect the differences in collisional rates (see Table 2). They also show that inaccuracies in rates are not amplified but are quasi-linearly propagated within the radiative transfer equations. In particular, it is worth noting that the typical increase in fluxes at 30 K is less than a factor of 2–3 at the investigated densities. Similar results were obtained with para-H₂. We also observe that the flux ratios rise with increasing upper energies. This was expected since the critical densities are higher for

Table 5. Coefficients a_i of the polynomial fit, Eq. (1), to the rotational de-excitation rate coefficients of ortho-H₂CO by para-H₂ ($J_2 = 0$). These coefficients are only valid in the temperature range 5–100 K. $E_{\text{up}}(K)$ are the upper level energies.

i	f	$E_{\text{up}}(K)$	$a0$	$a1$	$a2$	$a3$	$a4$
1 ₁₀	1 ₁₁	15.4	-15.992	49.730	-153.065	198.787	-91.799
2 ₁₂	1 ₁₁	21.9	-14.123	24.535	-59.587	65.932	-27.196
2 ₁₂	1 ₁₀	21.9	-10.062	-5.315	20.538	-25.241	10.146
2 ₁₁	1 ₁₁	22.6	-12.447	18.170	-51.831	61.863	-26.279
2 ₁₁	1 ₁₀	22.6	-13.020	22.100	-66.801	87.006	-40.604
2 ₁₁	2 ₁₂	22.6	-8.383	-14.613	34.590	-30.732	8.751
3 ₁₃	1 ₁₁	32.1	-10.998	2.989	-6.021	6.833	-3.110
3 ₁₃	1 ₁₀	32.1	-11.265	-3.697	24.981	-36.985	16.872
3 ₁₃	2 ₁₂	32.1	-11.560	8.307	-18.749	20.791	-9.220
3 ₁₃	2 ₁₁	32.1	-8.857	-14.745	45.725	-54.400	22.643
3 ₁₂	1 ₁₁	33.4	-7.959	-18.565	41.867	-37.082	10.967
3 ₁₂	1 ₁₀	33.4	-7.167	-21.051	50.053	-52.574	20.559
3 ₁₂	2 ₁₂	33.4	-7.585	-15.765	31.555	-25.252	6.789
3 ₁₂	2 ₁₁	33.4	-9.219	-7.709	19.526	-19.440	6.651
3 ₁₂	3 ₁₃	33.4	-6.861	-28.383	76.268	-82.840	31.812
4 ₁₄	1 ₁₁	45.6	-8.420	-22.040	70.489	-89.088	39.395
4 ₁₄	1 ₁₀	45.6	-8.879	-11.776	25.407	-21.517	5.965
4 ₁₄	2 ₁₂	45.6	-8.358	-14.534	37.209	-39.039	14.521
4 ₁₄	2 ₁₁	45.6	-9.156	-16.688	57.442	-74.097	32.875
4 ₁₄	3 ₁₃	45.6	-6.813	-25.619	71.485	-84.483	35.717
4 ₁₄	3 ₁₂	45.6	-7.516	-24.778	71.169	-81.492	32.987
4 ₁₃	1 ₁₁	47.9	0.146	-75.208	182.668	-190.508	72.556
4 ₁₃	1 ₁₀	47.9	-0.562	-71.751	179.682	-192.438	75.030
4 ₁₃	2 ₁₂	47.9	-4.468	-44.470	112.705	-120.438	46.436
4 ₁₃	2 ₁₁	47.9	-6.130	-27.069	64.616	-67.231	25.710
4 ₁₃	3 ₁₃	47.9	-3.286	-47.389	113.572	-115.674	42.566
4 ₁₃	3 ₁₂	47.9	-7.831	-19.582	56.982	-68.227	29.130
4 ₁₃	4 ₁₄	47.9	-6.043	-37.551	106.355	-122.270	49.757
5 ₁₅	1 ₁₁	62.5	-2.885	-56.794	144.040	-157.327	62.568
5 ₁₅	1 ₁₀	62.5	-8.540	-20.660	65.931	-83.981	37.484
5 ₁₅	2 ₁₂	62.5	-5.528	-40.839	116.705	-139.479	59.605
5 ₁₅	2 ₁₁	62.5	-5.043	-40.949	105.056	-114.675	45.381
5 ₁₅	3 ₁₃	62.5	-9.080	-8.966	23.299	-24.102	8.563
5 ₁₅	3 ₁₂	62.5	-7.782	-25.906	80.727	-100.299	43.864
5 ₁₅	4 ₁₄	62.5	-8.105	-17.309	53.010	-67.438	30.101
5 ₁₅	4 ₁₃	62.5	-7.878	-23.580	69.113	-79.281	31.954
5 ₁₄	1 ₁₁	65.9	23.067	-227.845	554.740	-587.588	229.569
5 ₁₄	1 ₁₀	65.9	5.613	-114.856	283.950	-302.641	118.131
5 ₁₄	2 ₁₂	65.9	2.003	-92.221	234.680	-255.324	101.243
5 ₁₄	2 ₁₁	65.9	-2.865	-56.224	145.705	-160.954	64.718
5 ₁₄	3 ₁₃	65.9	-0.118	-75.765	195.552	-215.974	86.951
5 ₁₄	3 ₁₂	65.9	-4.075	-39.992	96.701	-102.708	40.144
5 ₁₄	4 ₁₄	65.9	-2.837	-52.566	130.263	-136.923	52.129
5 ₁₄	4 ₁₃	65.9	-8.376	-14.931	44.661	-54.560	23.598
5 ₁₄	5 ₁₅	65.9	-4.370	-49.693	138.072	-159.025	65.670

higher levels (see Table 3). Furthermore, it can be noticed that the flux ratios are higher for the upper level than for the lower level of a doublet. This again shows that the propensity rule discussed in Sect. 3.1 (at the origin of the cooling of the 6-cm and 2-cm transitions) is stronger for He than for ortho-H₂.

Finally, Fig. 7 shows the variation of the line ratio ($5_{15} \rightarrow 4_{14}$)/($3_{13} \rightarrow 2_{12}$) with kinetic temperature and H₂ density for the three colliding partners He, para-H₂, and ortho-H₂. Such plots have been previously employed to use H₂CO as a “densitometer” (e.g. van Dishoeck et al. 1995). As we can see, for a given line ratio, the present H₂ rates lead to kinetic temperatures and H₂ densities lower than those obtained with (scaled) He rates. For instance, for a kinetic temperature of 15 K and an H₂ density of 10^6 cm^{-3} , the line ratio increases from 0.3 for He to 0.45 for para-H₂ and 0.48 for ortho-H₂. These effects are explained well by the differences between the corresponding rates, H₂ rates

being generally higher than those for He (see Sect. 3). We conclude that the present rates will significantly improve the accuracy of H₂ densities derived from H₂CO millimeter observations. For temperatures above 30 K, levels above the lowest 10 can be required to converge the radiative transfer equations. Results in Fig. 7 are therefore only indicative for $T > 30$ K.

5. Conclusions

We have computed rate coefficients for the rotational (de)excitation of ortho-H₂CO colliding with both para-H₂ ($J = 0$) and ortho-H₂ ($J = 1$) for kinetic temperatures in the range 5–100 K. All transitions among the 10 lowest levels of ortho-H₂CO ($E_{\text{up}} \leq 46 \text{ cm}^{-1}$) were considered. Fully converged quantum scattering calculations were run on a high-accuracy H₂CO–H₂ PES determined at the CCSD(T) level with a basis

Table 6. Coefficients a_i of the polynomial fit, Eq. (1), to the rotational de-excitation rate coefficients of ortho-H₂CO by ortho-H₂ ($J_2 = 1$). These coefficients are only valid in the temperature range 5–100 K. $E_{\text{up}}(K)$ are the upper level energies.

i	f	$E_{\text{up}}(K)$	$a0$	$a1$	$a2$	$a3$	$a4$
1 ₁₀	1 ₁₁	15.4	-5.246	-25.463	50.646	-41.276	11.552
2 ₁₂	1 ₁₁	21.9	-4.448	-34.039	77.211	-74.951	26.474
2 ₁₂	1 ₁₀	21.9	-15.045	27.704	-59.603	59.399	-22.826
2 ₁₁	1 ₁₁	22.6	-13.581	26.572	-76.172	94.542	-42.485
2 ₁₁	1 ₁₀	22.6	-3.911	-37.123	83.373	-80.136	27.979
2 ₁₁	2 ₁₂	22.6	-4.098	-38.832	91.173	-90.833	32.780
3 ₁₃	1 ₁₁	32.1	-12.249	9.069	-14.678	10.580	-3.009
3 ₁₃	1 ₁₀	32.1	-12.048	4.950	-3.851	0.604	-0.052
3 ₁₃	2 ₁₂	32.1	-3.167	-42.183	99.491	-102.666	39.005
3 ₁₃	2 ₁₁	32.1	-11.687	2.740	6.478	-16.171	8.844
3 ₁₂	1 ₁₁	33.4	-8.713	-17.582	51.180	-58.548	23.406
3 ₁₂	1 ₁₀	33.4	-10.444	2.041	-9.473	15.830	-8.742
3 ₁₂	2 ₁₂	33.4	-7.197	-19.667	43.764	-39.570	12.288
3 ₁₂	2 ₁₁	33.4	-2.386	-47.324	111.029	-113.372	42.396
3 ₁₂	3 ₁₃	33.4	-2.975	-50.456	126.727	-135.282	52.361
4 ₁₄	1 ₁₁	45.6	-9.339	-13.114	40.769	-49.568	20.912
4 ₁₄	1 ₁₀	45.6	-5.796	-38.988	109.015	-126.546	52.590
4 ₁₄	2 ₁₂	45.6	-11.270	3.006	1.814	-10.423	6.826
4 ₁₄	2 ₁₁	45.6	-8.709	-17.808	55.011	-66.190	27.762
4 ₁₄	3 ₁₃	45.6	-1.835	-51.135	123.109	-130.486	50.953
4 ₁₄	3 ₁₂	45.6	-9.636	-13.173	49.472	-66.031	29.871
4 ₁₃	1 ₁₁	47.9	1.815	-84.457	204.979	-214.958	82.678
4 ₁₃	1 ₁₀	47.9	-6.494	-35.500	99.787	-116.056	48.209
4 ₁₃	2 ₁₂	47.9	-5.956	-37.630	104.313	-119.372	48.835
4 ₁₃	2 ₁₁	47.9	-9.326	-7.028	19.235	-21.708	8.395
4 ₁₃	3 ₁₃	47.9	-4.439	-42.170	107.517	-116.637	45.968
4 ₁₃	3 ₁₂	47.9	-1.072	-55.924	134.023	-141.311	54.892
4 ₁₃	4 ₁₄	47.9	-2.571	-56.264	146.562	-161.996	64.975
5 ₁₅	1 ₁₁	62.5	-2.435	-61.106	160.877	-180.996	74.047
5 ₁₅	1 ₁₀	62.5	-7.115	-27.779	74.426	-83.817	33.844
5 ₁₅	2 ₁₂	62.5	-6.977	-31.392	92.626	-112.192	48.275
5 ₁₅	2 ₁₁	62.5	-5.037	-43.501	119.662	-137.899	57.159
5 ₁₅	3 ₁₃	62.5	-9.789	-6.265	24.609	-35.514	17.167
5 ₁₅	3 ₁₂	62.5	-7.974	-23.986	72.798	-87.731	37.206
5 ₁₅	4 ₁₄	62.5	-0.836	-56.961	137.327	-147.020	58.139
5 ₁₅	4 ₁₃	62.5	-9.190	-16.967	59.313	-76.718	34.145
5 ₁₄	1 ₁₁	65.9	-5.756	-47.108	134.586	-156.999	65.159
5 ₁₄	1 ₁₀	65.9	8.987	-134.997	333.074	-356.819	140.618
5 ₁₄	2 ₁₂	65.9	4.663	-105.646	262.859	-283.286	112.095
5 ₁₄	2 ₁₁	65.9	-4.445	-46.939	126.569	-144.623	59.698
5 ₁₄	3 ₁₃	65.9	-4.927	-45.527	125.394	-143.484	58.809
5 ₁₄	3 ₁₂	65.9	-7.968	-16.284	44.436	-51.820	21.664
5 ₁₄	4 ₁₄	65.9	-3.761	-49.146	129.223	-144.139	58.274
5 ₁₄	4 ₁₃	65.9	-0.025	-61.370	145.659	-153.236	59.579
5 ₁₄	5 ₁₅	65.9	-3.379	-51.906	137.072	-153.041	61.860

set extrapolation procedure. The present rates are thus expected to be accurate to $\sim 10\%$. Large differences with the (scaled) H₂CO–He rates of Green (1991) were observed and emission line fluxes, computed *via* the escape probability method, were shown to be increased by up to a factor of 5. Moreover, the strength of propensity rules was found to depend on the collider. The present rates should therefore be adopted in any detailed radiative transfer model of ortho-H₂CO in cold environments, typically $T \lesssim 30$ K. Previously published H₂CO abundance and H₂ density estimates should be revised accordingly.

In a forthcoming publication (Troscompt et al., in preparation), we will investigate the impact of these new rates on the cooling of the 6-cm doublet excitation temperature (transition 1₁₀ \rightarrow 1₁₁), which has been used so far as a sensitive probe of the coldest and darkest interstellar sources. For warmer environments ($T \gtrsim 30$ K), rates for higher-lying levels are required

and further scattering calculations are planned at lower accuracy as close-coupling calculations become prohibitive. Calculations on para-H₂CO are also currently under progress. All rate data will be made available in the BASECOL database (<http://www.obspm.fr/basecol/>) and at the CDS (<http://cdsweb.u-strasbg.fr/>).

Acknowledgements. All scattering calculations were performed on the *Service Commun de Calcul Intensif de l'Observatoire de Grenoble* with the valuable help of F. Roch. Ab initio CCSD(T)/aug-cc-pVTZ and R12 calculations were performed on the IDRIS and CINES French national computing centers. This research was supported by the CNRS national program ‘‘Physique et Chimie du Milieu Interstellaire’’ and by the FP6 Research Training Network ‘‘Molecular Universe’’ (contract number MRTN-CT-2004-512302).

References

- Alexander, M., & Manolopoulos, D. 1987, *J. Chem. Phys.*, 86
- Augustin, S. D., & Miller, W. H. 1974, *J. Chem. Phys.*, 61
- Bacmann, A., Lefloch, B., Ceccarelli, C., et al. 2003, *ApJ*, 585, L55
- Bocquet, R. E. A. 1996, *J. Mol. Spec.*, 177, 154
- Cazaux, S., Tielens, A. G. G. M., Ceccarelli, C., et al. 2003, *ApJ*, 593, L51
- Ceccarelli, C., Loinard, L., Castets, A., Tielens, A. G. G. M., & Caux, E. 2000, *A&A*, 357, L9
- Ceccarelli, C., Loinard, L., Castets, A., et al. 2001, *A&A*, 372, 998
- Ceccarelli, C., Maret, S., Tielens, A. G. G. M., Castets, A., & Caux, E. 2003, *A&A*, 410, 587
- Clouthier, D. J., & Ramsey, D. A. 1983, *Ann. Rev. Phys. Chem.*, 34, 31
- Dubernet, M.-L., & Grosjean, A. 2002, *A&A*, 390, 793
- Dubernet, M. L., Daniel, F., Grosjean, A., et al. 2006, *A&A*, 460, 323
- Duncan, J. L. 1974, *Mol. Phys.*, 28, 1177
- Faure, A., & Wiesenfeld, L. 2004, *J. Chem. Phys.*, 121, 6771
- Faure, A., Gorfinkiel, J. D., & Tennyson, J. 2004, *MNRAS*, 347, 323
- Faure, A., Valiron, P., Wernli, M., et al. 2005, *J. Chem. Phys.*, 122, 1102
- Faure, A., Crimier, N., Ceccarelli, C., et al. 2007, *A&A*, 472, 1029
- Fray, N., Bénilan, Y., Biver, N., et al. 2006, *Icarus*, 184, 239
- Garrison, B. J., & Lester, Jr., W. A. 1975, *J. Chem. Phys.*, 63, 4167
- Garrison, B. J., Lester, Jr., W. A., & Miller, W. H. 1976, *J. Chem. Phys.*, 65, 2193
- Garrison, B. J., Lester, Jr., W. A., Miller, W. H., & Green, S. 1975, *ApJ*, 200, L175
- Green, S. 1991, *ApJS*, 76, 979
- Green, S., Garrison, B. J., Lester, Jr., W. A., & Miller, W. H. 1978, *ApJS*, 37, 321
- Hutson, J. M., & Green, S. 1994, MOLSCAT computer code, version 14, distributed by Collaborative Computational Project No. 6 of the Engineering and Physical Sciences Research Council UK
- Jankowski, P., & Szalewicz, K. 2005, *J. Chem. Phys.*, 123, 4301
- Kaur, S., & Baluja, K. L. 2005, *J. Phys. B Atom. Mol. Phys.*, 38, 3917
- Krolik, J. H., & McKee, C. F. 1978, *ApJS*, 37, 459
- Lique, F., Senent, M.-L., Spielfiedel, A., & Feautrier, N. 2007, *J. Chem. Phys.*, 126, 4312
- Liszt, H. S., Lucas, R., & Pety, J. 2006, *A&A*, 448, 253
- Mangum, J. G., Darling, J., Menten, K. M., & Henkel, C. 2008, *ApJ*, 673, 832
- Mangum, J. G., & Wootten, A. 1993, *ApJS*, 89, 123
- Maret, S., Ceccarelli, C., Caux, E., et al. 2004, *A&A*, 416, 577
- Mengel, M., & De Lucia, F. C. 2000, *ApJ*, 543, 271
- Minh, Y. C., Irvine, W. M., & McGonagle, D. 1993, *J. Kor. Astro. Soc.*, 26, 99
- Noga, J., & Kutzelnigg, W. 1994, *J. Chem. Phys.*, 101, 7738
- Noga, J., Kallay, M., & Valiron, P. 2006, *Mol. Phys.*, 104, 2337
- Phillips, T. R., Maluendes, S., & Green, S. 1996, *ApJS*, 107, 467
- Phillips, T. R., Maluendes, S., McLean, A. D., & Green, S. 1994, *J. Chem. Phys.*, 101, 5824
- Snyder, L. E., Buhl, D., Zuckerman, B., & Palmer, P. 1969, *Phys. Rev. Lett.*, 22, 679
- Townes, C. H., & Cheung, A. C. 1969, *ApJ*, 157, L103
- Valiron, P., Wernli, M., Faure, A., et al. 2008, *J. Chem. Phys.*, 129, 134306
- van der Tak, F. F. S., van Dishoeck, E. F., & Caselli, P. 2000, *A&A*, 361, 327
- van Dishoeck, E. F., Blake, G. A., Jansen, D. J., & Groesbeck, T. D. 1995, *ApJ*, 447, 760
- Wernli, M., Valiron, P., Faure, A., et al. 2006, *A&A*, 446, 367
- Wernli, M., Wiesenfeld, L., Faure, A., & Valiron, P. 2007a, *A&A*, 475, 391
- Wernli, M., Wiesenfeld, L., Faure, A., & Valiron, P. 2007b, *A&A*, 464, 1147
- Wheeler, M. D., & Ellis, A. M. 2003, *Chem. Phys. Lett.*, 374, 392
- Williams, H. L., Mas, E. M., Szalewicz, K., & Jeziorski, B. 1995, *J. Chem. Phys.*, 103, 7374

Deuxième partie
Transfert Radiatif

Chapitre 4

Transfert Radiatif : Théorie

Sommaire

4.1	Introduction	71
4.2	Interaction matière-rayonnement : Problème du transfert radiatif	72
4.2.1	Profil de raie - Largeur de raie	72
4.2.2	Principe	73
4.2.3	Équation du transfert radiatif	73
4.2.4	Population des niveaux	75
4.2.5	Densité critique	77
4.3	Approximation de découplage	78
4.3.1	La probabilité d'échappement	78
4.3.2	La méthode <i>Large Velocity Gradient</i> (LVG)	80
4.4	Une application : influence des taux de collisions sur une modélisation astrophysique	81

4.1 Introduction

Dans la première partie de cette thèse, nous nous sommes attachés à présenter la théorie et les résultats obtenus pour le calcul des taux de collision inélastiques rotationnels du système (ortho-,para-)H₂CO–(ortho-,para-)H₂.

Si, en eux-mêmes, ces calculs rotationnels ont un intérêt non négligeable dans le sens où, d'un point de vue chimie théorique, on touche à un système complexe (rotateur asymétrique-molécule), ils ont surtout un intérêt pour les astrophysiciens.

En effet, ces taux de collisions sont de première importance dans l'étude spectroscopique des objets astrophysiques car d'eux dépendent en grande partie les contraintes que nous pouvons fixer sur les conditions physiques des sources que nous observons : à l'instar des phénomènes radiatifs, les phénomènes de collisions peuplent (ou dépeuplent) les niveaux rotationnels des molécules, qui peuvent ainsi se désexciter en émettant du rayonnement.

Nous détectons ce rayonnement (nous entendons ici par rayonnement aussi bien de l'émission que de l'absorption) et nous voulons déduire les conditions physiques régnant dans l'objet qui ont amené ce rayonnement et en particulier la densité du milieu (n) et sa température (T). Pour cela, il nous faut connaître les processus permettant à ce

rayonnement d'être émis ou absorbé ou de se propager dans le milieu. Dans ce chapitre, nous allons présenter en détail ces processus, et les équations qui les régissent. Nous allons, de plus, nous intéresser aux approximations qui permettent leur traitement.

Une grande partie de ce qu'il va être présenté ici est tiré de Elitzur, 1992 [36], dont nous conseillons la lecture, mais aussi de Hummer, 1971 [53].

Dans ce qui va suivre, et sauf mention contraire, nous nous intéresserons à la transition entre deux niveaux l et u , de fréquence ν et de profil en fréquence $\phi(\nu)$.

4.2 Interaction matière-rayonnement : Problème du transfert radiatif

4.2.1 Profil de raie - Largeur de raie

Avant d'entrer dans le vif du sujet, définissons deux paramètres importants de toutes études de transfert radiatif : le *profil* et la *largeur* de raie.

Si à chaque transition radiative correspond théoriquement une fréquence précise ν , en pratique il existe une gamme de fréquence centrée sur ν pour laquelle les photons vont émettre ou absorber. C'est ce qu'on appelle *le profil en fréquence de la transition* $\phi(\nu)$.

Celle-ci est normalisée à 1 ($\int \phi(\nu) d\nu = 1$), est très piquée à la fréquence de la transition ν . Elle a la dimension de l'inverse d'une fréquence (Hz^{-1}).

Il y a de nombreuses raisons pour lesquelles le profil de raie $\phi(\nu)$ est différent d'un profil « idéal », *id est* une fonction de Dirac. La première raison vient du principe d'incertitude de la mécanique quantique : le seul fait qu'une transition peut se produire implique que la durée de vie t d'une molécule dans un niveau considéré est fini. La fréquence du photon émis a donc une incertitude de l'ordre de $\sim t^{-1}$ par rapport à sa fréquence théorique. La largeur de raie ainsi créée est appelée *largeur de raie naturelle* et a la forme d'une loi Lorentzienne. Cela dit, cette largeur est suffisamment faible pour être négligée dans les applications astrophysiques.

Le mécanisme d'élargissement de raie le plus important provient du mouvement de la particule, qui déplace la fréquence d'émission des photons associés à une transition du fait de l'effet Doppler. Pour une particule ayant une vitesse v_z dans la direction de l'observateur, la fréquence de la transition moléculaire observée devient :

$$\nu = \nu_0 \left(1 + \frac{v_z}{c}\right) \quad (4.1)$$

où ν_0 est la fréquence théorique de la transition et c la vitesse de la lumière.

Dans le cas de l'élargissement Doppler, le profil de raie est :

$$\phi(\nu) = \frac{1}{\pi^{1/2} \Delta\nu_D} \exp \left[-\left(\frac{\nu - \nu_0}{\Delta\nu_D}\right)^2 \right] \quad (4.2)$$

si le mouvement des particules suit une loi Maxwellienne, et où $\Delta\nu_D = \left(\frac{2kT}{m}\right)^{1/2}$, appelé *la largeur de raie Doppler*.

De cette définition on dérive un paramètre important, que nous utiliserons dans toute la suite de cette thèse : la largeur à mi-hauteur de la raie $\Delta\nu$. Dans le cas d'un élargissement Doppler, elle est reliée à la largeur de raie Doppler par la relation :

$$\Delta\nu = 2\sqrt{\ln(2)} \Delta\nu_D \quad (4.3)$$

4.2.2 Principe

Considérons la propagation d'un rayon lumineux d'intensité spécifique I_ν ($\text{J.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}.\text{Hz}^{-1}.\text{ster}^{-1}$ ou Jy). Celui-ci, lorsqu'il se propage dans le vide, voit son intensité inchangée durant son trajet :

$$\frac{dI_\nu}{dl} = 0 \quad (4.4)$$

où l est la distance parcourue sur le trajet du rayon lumineux.

Considérons maintenant ce rayon traversant un milieu dilué. Il va interagir avec la matière ambiante, être diffusé, absorbé, réémis, changeant significativement ses propriétés et, en particulier, son intensité.

Nous allons décrire, dans la suite de ce chapitre, les interactions qui peuvent survenir entre un rayon lumineux et la matière environnante et l'influence que ces interactions ont sur le rayon et, en particulier, sur son intensité.

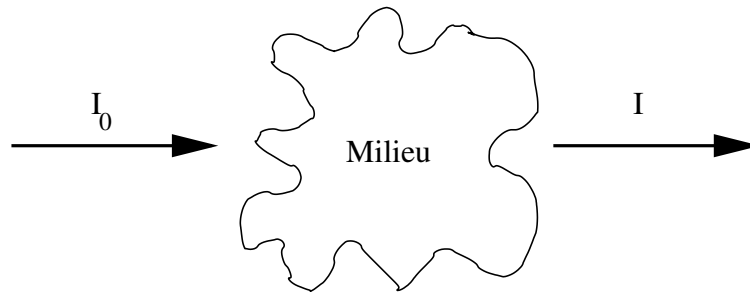


FIGURE 4.1 – Interaction d'une radiation I_0 avec un milieu astrophysique. Il résulte une radiation I que détecte l'observateur.

4.2.3 Équation du transfert radiatif

Un rayonnement traversant un milieu va subir typiquement deux types d'interactions avec la matière : l'atténuation et l'amplification de l'intensité, autrement dit, la perte et la création de photons.

L'atténuation (à une fréquence donnée ν) est donnée par le *coefficient d'absorption* κ_ν (cm^{-1}). L'intensité générée est donnée par le *coefficient d'émission volumique* ϵ_ν ($\text{J.cm}^{-3}.\text{s}^{-1}.\text{Hz}^{-1}.\text{ster}^{-1}$). Ces deux valeurs sont définies par unité de longueur. En effet, plus le trajet dans le milieu est long, plus il a de chances d'être atténué ou amplifié. Cette variation d'intensité est alors donnée par *l'équation du transfert radiatif*.

$$\frac{dI_\nu}{dl} = -\kappa_\nu I_\nu + \epsilon_\nu \quad (4.5)$$

avec I_ν l'intensité spécifique à la fréquence ν (Jy ou $\text{W.m}^{-2}.\text{Hz}^{-1}.\text{sr}^{-1}$)

Naturellement, si $\kappa_\nu = \epsilon_\nu = 0$, nous retombons dans le cas de la propagation d'un rayonnement dans le vide.

Cette équation est souvent réécrite sous la forme :

$$\frac{dI_\nu}{d\tau_\nu} = -I_\nu + S_\nu \quad (4.6)$$

qui introduit deux paramètres fondamentaux : la fonction source, $S_\nu = \epsilon_\nu/\kappa_\nu$, qui correspond à la création d'intensité lumineuse le long du trajet lumineux et l'élément d'épaisseur optique, $d\tau_\nu = \kappa_\nu dl$, qui représente l'atténuation de l'intensité lumineuse sur dl .

Il est à noter que l'équation du transfert radiatif est facilement résolue lorsque l'un des coefficients s'annule. Un cas intéressant à considérer est celui où $\epsilon_\nu = 0$, qui donne la solution :

$$I_\nu(l) = I_\nu(0) \exp\left(-\int \kappa_\nu dl\right) \quad (4.7)$$

qui est l'atténuation décrite par la loi de Beer, avec $I_\nu(0)$ l'intensité en amont de la source.

Dans toute la suite, nous indiquerons par l le niveau bas d'une transition et par u le niveau haut.

Atténuation

Absorption. Comme nous l'avons décrit précédemment, l'équation du transfert radiatif dépend typiquement de deux grandeurs physiques : l'atténuation et la création d'intensité lumineuse. Il est un fait d'introduire ces deux grandeurs, mais un autre de savoir exactement ce qu'elles représentent.

Les milieux astrophysiques sont des milieux chimiques : ils sont majoritairement composés de particules (molécules ou atomes) dont l'état d'excitation (population de leurs niveaux d'énergie) va dépendre principalement de la densité et de la température du milieu.

Si un rayonnement traverse un milieu astrophysique avec une fréquence proche d'une transition radiative d'une des espèces présentes dans l'objet, ce rayonnement va être absorbé. Il s'agit là d'un des facteurs principaux, avec l'absorption par les poussières, d'atténuation de l'intensité incidente au sein de l'objet.

Cette absorption est proportionnelle à l'intensité incidente et est décrite par le coefficient d'Einstein pour l'absorption B_{lu} ($\text{m}^2 \cdot \text{Hz} \cdot \text{ster} \cdot \text{J}^{-1}$). Le taux d'absorption est alors $B_{lu} I_\nu$ (s^{-1}).

Les photons de fréquence ν du rayonnement sont absorbés avec le taux :

$$r_{a\nu} = B_{lu} I_\nu N_l \phi(\nu) \quad (4.8)$$

par unité de volume et de fréquence. N_l est la population du niveau bas de la transition.

Nous voyons dans l'expression précédente l'importance même du profil de raie sur les mécanismes radiatifs : même un photon dont la fréquence n'est pas exactement la fréquence ν de la transition peut être absorbé.

La variation d'intensité dans une unité de volume est :

$$dI_\nu = -dl \times \frac{h\nu B_{lu} N_l \phi(\nu)}{4\pi} I_\nu \quad (4.9)$$

Cette expression est de la même forme que le terme d'atténuation de l'équation 4.5, le terme fractionnaire jouant le rôle du coefficient d'absorption.

Émission stimulée. L'absorption n'est pas le seul phénomène intervenant lors de l'interaction entre un photon et une particule. Si une particule se trouve dans l'état haut d'une transition et qu'un photon de fréquence $\nu \pm \Delta\nu$ arrive, il existe une probabilité pour

que la particule se désexcite et émette un photon. Il s'agit de la désexcitation stimulée, décrite par le coefficient d'Einstein pour l'émission stimulée B_{ul} .

Le taux de création d'un photon de fréquence ν est similaire au taux d'absorption d'un photon :

$$r_{e\nu} = B_{ul}I_\nu N_u \phi(\nu) \quad (4.10)$$

avec N_u la population du niveau haut de la transition.

Ainsi, de par la création de photons par émission stimulée, l'intensité lumineuse augmente le long de la ligne de visée :

$$dI_\nu = +dl \times \frac{h\nu B_{ul} N_u \phi(\nu)}{4\pi} I_\nu \quad (4.11)$$

Ainsi le coefficient d'absorption de l'équation 4.5 est la combinaison linéaire de ces deux processus :

$$\kappa_\nu = \frac{h\nu \phi(\nu)}{4\pi} (B_{ul} N_u - B_{lu} N_l) \quad (4.12)$$

Émission spontanée

Le dernier phénomène à prendre en compte dans le problème de transfert radiatif est le phénomène d'émission spontanée : une particule dans un état excité tend spontanément à se désexciter et à émettre un photon de fréquence ν . Ce processus est décrit par le coefficient d'Einstein pour l'émission spontanée A_{ul} (s^{-1}).

Le taux de photons produit par cette désexcitation dépend de la population du niveau haut de la transition :

$$\epsilon_\nu = \frac{N_u A_{ul} h\nu \phi(\nu)}{4\pi} \quad (4.13)$$

4.2.4 Population des niveaux

Dans la section précédente, nous avons présenté l'équation du transfert radiatif et la forme des différents coefficients entrant dans le calcul de l'intensité lumineuse en chaque point du milieu.

Cela dit nous avons montré que ces coefficients dépendent des populations des niveaux d'énergie des molécules. Pour connaître la valeur de ces coefficients, il nous faut donc connaître la population de chacun des niveaux d'énergie de la molécule.

Équation de l'équilibre statistique

Nous considérons ici le cas général d'une particule possédant N niveaux d'énergie. Pour calculer la population de chaque niveau d'énergie, il faut considérer l'interaction entre un niveau d'énergie J et tous les autres niveaux $J' \neq J$.

La variation de population d'un niveau J se décrit de la sorte :

$$\frac{dN_J}{dt} = \sum_{J'} N_{J'} (A_{J'J} + B_{J'J} W(\nu_{J'J}) + k_{J'J} n) - N_J \sum_{J'} (A_{JJ'} + B_{JJ'} W(\nu_{JJ'}) + k_{JJ'} n) \quad (4.14)$$

avec n la densité du projectile (en général le projectile est H_2 , on considère alors que la densité du projectile est la densité du milieu), $k_{J'J}$ le taux de collision entre le niveau J' et le niveau J . C'est ici que nous voyons que les taux de collision entrent en jeu, et qu'il est donc important de bien les connaître afin de calculer correctement la population de chaque niveau.

$W(\nu_{J'J})$ est l'intensité moyennée sur l'angle solide Ω et sur le profil de la raie $\phi(\nu)$:

$$W(\nu_{J'J}) = \frac{1}{4\pi} \iint I(\nu_{J'J}) \phi(\nu) d\nu d\Omega \quad (4.15)$$

Les temps de population et dépopulation des niveaux d'énergie sont généralement très courts devant la durée de vie chimique de la molécule considérée. C'est pourquoi on considère généralement la forme stationnaire de cette équation :

$$\sum_{J'} N_{J'} (A_{J'J} + B_{J'J} W(\nu_{J'J}) + k_{J'J} n) = N_J \sum_{J'} (A_{JJ'} + B_{JJ'} W(\nu_{J'J})) + k_{JJ'} n \quad (4.16)$$

Cette équation est aussi connue sous le nom d'*équation de l'équilibre statistique*.

Ainsi, si on considère le niveau J , le membre de gauche correspond aux termes le repeuplant, le membre de droite tous les phénomènes le dépeuplant.

Nous voyons que l'équation de l'équilibre statistique dépend de l'intensité du rayonnement par l'intermédiaire de W . Comme l'équation du transfert radiatif dépend de la population des niveaux d'énergie, les deux équations sont interdépendantes. Nous avons donc un système d'équations couplées dont la résolution n'est pas possible analytiquement. Il nous faut donc avoir recours à des approches numériques pour pouvoir résoudre ce problème.

Cas d'une illumination par un corps noir

En marge du problème général du transfert radiatif, il existe un cas particulier où l'implémentation numérique est plus aisée : le cas du corps noir. La particularité que cela implique dans les équations vient dans l'expression de W .

En effet, dans ce cas particulier, il est facile d'exprimer ce paramètre en fonction des constantes et grandeurs physiques du problème :

$$W(\nu) = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3} \frac{1}{\exp(\frac{h\nu}{kT}) - 1} \quad (4.17)$$

avec h la constante de Planck, c la vitesse de la lumière, k la constante de Boltzmann et T la température de radiation associée au corps noir.

Dans ce cas, le calcul de la distribution de population est facile puisque nous connaissons la forme analytique de l'équation. Si l'on considère, de plus, que les phénomènes d'absorption/émission par un photon du corps noir domine les phénomènes d'auto-absorption de la molécule, l'équation de transfert radiatif devient inutile, et il ne reste plus qu'à résoudre l'équation de l'équilibre statistique pour connaître la distribution de population et l'intensité créée.

Cela dit, il s'agit d'un cas particulier, on ne peut pas traiter tous les systèmes par cette méthode. Dans le cas général, les deux équations restent couplées, il nous faut donc trouver un algorithme numérique capable de traiter le problème.

4.2.5 Densité critique

Un des facteurs importants lorsque l'on traite le problème de population de niveaux d'énergie est de savoir quel est le phénomène prépondérant entre les phénomènes radiatifs et collisionnels responsables de la population et dépopulation de ces niveaux.

Afin de comparer ces deux phénomènes, on introduit un facteur appelé *densité critique* :

$$n_{cr}(J) = \frac{\sum_{J>J'} A_{J'J}}{\sum_{J \neq J'} k_{J'J}} \quad (4.18)$$

qui n'est autre qu'une comparaison entre les phénomènes de dépopulation vers un niveau J' faite par les radiations et par les collisions. L'émission stimulée est négligée et on fait l'hypothèse que l'opacité est nulle.

Maintenant, si on prend l'équation de l'équilibre statistique stationnaire (équation 4.16), on peut voir qu'il y a trois grands domaines, dépendant de la densité du milieu.

Tout d'abord, prenons le cas où la densité du milieu est très faible, typiquement si $n \ll n_{cr}$. Nous voyons dans l'équation 4.16 que les seuls termes sensibles à la densité du milieu sont les termes de collisions. Nous pouvons alors négliger les termes de population/dépopulation dus aux collisions :

$$N_l B_{lu} W(\nu_{lu}) = N_u (A_{ul} + B_{ul} W(\nu_{lu})) \quad (4.19)$$

où $W(\nu_{lu})$ est la densité d'énergie d'un bain de photon à une température T_{rad} , décrite par la loi d'un corps noir.

En prenant en compte les relations entre les coefficients d'Einstein :

$$\begin{aligned} B_{ul} &= \frac{g_u}{g_l} B_{lu} \\ A_{ul} &= B_{ul} \frac{8\pi\nu_{ul}^3 h}{c^3} \end{aligned} \quad (4.20)$$

où h est la constante de Planck et c la vitesse de la lumière, on obtient :

$$N_l \frac{g_u}{g_l} \frac{c^3}{8\pi\nu_{ul}^3 h} W(\nu_{lu}) = N_u \left(1 + \frac{c^3}{8\pi\nu_{ul}^3 h} W(\nu_{lu})\right) \quad (4.21)$$

En prenant l'expression de la densité d'énergie W et en transposant, on obtient facilement :

$$\frac{N_u}{N_l} = \frac{g_u}{g_l} \exp\left(-\frac{h\nu_{ul}}{kT_{rad}}\right) \quad (4.22)$$

Ainsi, nous voyons que nous obtenons une population de niveaux se distribuant selon une loi boltzmannienne à la température de radiation du bain de photon. On dit que les molécules sont en équilibre thermodynamique local avec la radiation : les interactions avec les photons thermalisent les molécules.

Le cas opposé se trouve lorsque la densité du milieu est très forte, $n \gg n_{cr}$. Dans ce cas là, l'équation de l'équilibre statistique stationnaire se limite à :

$$N_l k_{lu} n = N_u k_{ul} n \quad (4.23)$$

En considérant le bilan détaillé sur les taux de collisions (voir section 2.5.2) :

$$k_{l \rightarrow u}(T_{cin}) = \frac{g_u}{g_l} k_{u \rightarrow l}(T_{cin}) \exp\left(-\frac{h\nu_{ul}}{kT_{cin}}\right) \quad (4.24)$$

on obtient :

$$\frac{N_u}{N_l} = \frac{g_u}{g_l} \exp\left(-\frac{h\nu_{ul}}{kT_{cin}}\right) \quad (4.25)$$

où T_{cin} est la température cinétique du milieu.

Nous voyons que dans ce cas, la population des niveaux se distribue selon une loi de Boltzmann à la température cinétique du milieu : les collisions thermalisent le milieu. Les molécules sont dit en équilibre thermodynamique local avec le milieu, à la température cinétique des projectiles.

Dans le cas où $n \sim n_{cr}(J')$, les phénomènes radiatifs et collisionnels sont en concurrence dans la population des niveaux et il est nécessaire de faire une simulation numérique précise afin de modéliser au mieux les populations des niveaux.

Nous voyons donc que la densité critique n_{cr} est un facteur déterminant pour comprendre les mécanismes de population des niveaux.

4.3 Approximation de découplage

Comme nous l'avons dit, le problème du transfert radiatif est un système d'équations couplées entre l'équation du transfert de rayonnement et l'équation de l'équilibre statistique. Afin de modéliser au mieux les milieux astrophysiques, il nous faut traiter ce problème avec précision.

Le problème peut se résumer facilement : l'équation du transfert radiatif n'est pas pleinement définie tant que la fonction source S_ν et le coefficient d'absorption κ_ν ne sont pas déterminés. Ces quantités dépendent de la distribution de population des niveaux d'énergie des molécules, qui ne peut être déterminé tant que l'intensité du rayonnement est inconnue. Ainsi, ces équations, couplées par les processus répétés d'absorption/réémission de photons, doivent être résolues simultanément.

Pour une particule à N niveaux d'énergie, résoudre numériquement la population de chaque niveau *et* l'intensité de chaque transition radiative les reliant est rapidement prohibitif au niveau du temps de calcul. C'est pourquoi il faut trouver une méthode afin de simplifier le problème et accélérer le traitement.

4.3.1 La probabilité d'échappement

La façon la plus intuitive de simplifier le problème est de découpler les deux équations. La plus célèbre des méthodes de découplage est celle dite de *la probabilité d'échappement*, initialement développée par Sobolev en 1958 [101].

Le principe de cette approximation est simple : soit un photon dans un environnement absorbant/rémissif, quel est la probabilité qu'il ne soit pas absorbé ?

L'idée est donc d'introduire un facteur multiplicatif décrivant la probabilité pour un photon de s'échapper du nuage après sa création.

Considérons tout d'abord un cas à deux niveaux, sans radiation externe, où seules les radiations générées au sein de la source peuplent et dépeuplent les niveaux d'énergie. La variation de population du niveau u de la transition serait :

$$\frac{dN_u}{dt} = -N_u A_{ul} - W(N_u B_{ul} - N_l B_{lu}) \quad (4.26)$$

où W est due à la radiation générée au sein de la source. Il s'agit de la seule quantité liée à la radiation nécessaire à la détermination de la population du niveau.

Si la source était opaque à sa propre radiation, W approcherait la valeur locale de la fonction source S . Le rapport W/S correspond à la fraction de photon piégé dans le milieu, *i.e.* réabsorbés. Si la probabilité pour un photon de s'échapper est β , l'approximation de probabilité d'échappement dit que W peut s'écrire :

$$W = S(1 - \beta) \quad (4.27)$$

Le découplage tient dans le fait que β ne dépend pas de l'intensité du rayonnement, mais uniquement de la géométrie de la source et de l'épaisseur optique.

Ainsi, en prenant en compte l'expression de κ_ν et ϵ_ν dans S :

$$S = \frac{N_u A_{ul}}{N_l B_{lu} - N_u B_{ul}} \quad (4.28)$$

on obtient :

$$\frac{dN_u}{dt} = -\beta_{ul} A_{ul} N_u \quad (4.29)$$

qui découple effectivement la population du niveau et l'intensité de la radiation. Intuitivement, le résultat signifie que la population du niveau varie par désexcitation spontanée uniquement si le photon émit s'échappe.

Bien que pratique pour le découplage des équations, le facteur de probabilité d'échappement ne sert à rien tant qu'on ne connaît pas sa formulation.

Afin de dériver la forme du facteur β , considérons un rayonnement d'intensité initiale I traversant un milieu plan parallèle absorbant ayant une épaisseur optique τ . L'intensité en sortie du milieu est $I \exp(-\tau)$. Le facteur $\exp(-\tau)$ est alors la probabilité d'échappement d'un rayonnement pour une épaisseur optique $\tau (= \int \kappa_\nu dl$, pour rappel).

Cela dit, pour une radiation générée au sein du milieu, nous ne connaissons pas l'endroit exacte où elle a été émise et donc la quantité de matière qu'elle doit traverser pour s'échapper. C'est pourquoi, afin de connaître la forme de β , nous faisons une moyenne sur les épaisseurs optiques :

$$\beta = \langle \exp(-\tau) \rangle_\tau = \frac{1}{\tau} \int_0^\tau \exp(-\tau') d\tau' = \frac{1 - \exp(-\tau)}{\tau} \quad (4.30)$$

Il s'agit bien sûr d'une approximation, mais qui a l'avantage de donner une expression de β , et ainsi découpler les deux équations.

En suivant cette formule, nous pouvons connaître la valeur de β dans les limites des petites et grandes opacité :

$$\beta \simeq \begin{cases} 1 & \tau \ll 1 \\ \frac{1}{\tau} & \tau \gg 1 \end{cases} \quad (4.31)$$

Dans le cas optiquement fin ($\tau \ll 1$), le milieu est transparent et chaque photon s'échappe de la source sans interaction, donc $\beta = 1$. Dans le cas optiquement épais, la source peut être divisée en τ zones d'épaisseur optique unité. Un photon peut s'échapper, en moyenne, si et seulement si il est produit dans la zone la plus externe, donnant une probabilité de $1/\tau$.

Jusqu'à présent, nous avons uniquement pris en compte le rayonnement généré à l'intérieur de la source. Dans le cas général, chaque source est baignée dans un champ de photon externe, qu'il est important de prendre en compte dans son étude, puisque ces radiations peuvent interagir avec les niveaux d'énergie de la molécule considérée.

On considère, ainsi, qu'un photon externe traversant la source arrive à un point particulier du milieu avec une probabilité égale à celle d'un photon émis en ce même point de s'échapper au nuage.

Ainsi, pour un rayonnement continu externe d'intensité $I_{\nu e}$ et de densité d'énergie F , on peut réécrire W de la sorte :

$$W = S(1 - \beta) + \beta F I_{\nu e} \quad (4.32)$$

4.3.2 La méthode *Large Velocity Gradient* (LVG)

La méthode de probabilité d'échappement que nous avons présentée dans la section précédente est une méthode pratique à utiliser pour l'étude du transfert radiatif dans les milieux absorbants. Elle est, de plus, grandement utilisée pour étudier les milieux à gradient de vitesse, comme, par exemple, les enveloppes en effondrement de protoétoiles.

C'est en 1965 que Capriotti [19] développe une théorie partant de la probabilité d'échappement. Cette théorie, reprise ensuite par Castor *et al.* [21] dans l'étude des enveloppes d'étoile de Wolf-Rayet devient ce qu'on appelle la méthode *Large Velocity Gradient* (LVG dans la suite).

La particularité de cette méthode vient du fait de ce gradient de vitesse : les photons créés dans un milieu à fort gradient de vitesse soit sont absorbés localement, soit s'échappent. L'épaisseur optique est donc directement impactée par ce gradient de vitesse.

Intuitivement, la raison est la suivante : dû au déplacement de matière au sein de l'objet, un photon émis acquiert un déplacement en fréquence dû à l'effet Doppler $\Delta\nu_D$. Ainsi, pour une transition à une fréquence ν , la fréquence d'un photon émis est

$$\nu_{\text{photon}} = \nu_{\text{transition}} + \Delta\nu_D \quad (4.33)$$

La fréquence de ce photon ne correspond à la fréquence d'absorption uniquement dans une région se déplaçant à la même vitesse. Donc, si le photon n'est pas absorbé très localement, il ne pourra plus être absorbé, et donc s'échappera.

La géométrie du problème est présentée figure 4.2. La trajectoire de propagation du rayonnement est choisie comme étant l'axe z . Le point P est situé à une distance $|\vec{r}|$ du centre de symétrie O et l'angle entre la trajectoire du rayonnement et le vecteur rayon \vec{r} de sorte que $z = \mu r$ où $\mu = \cos(\theta)$. Le champ de vitesse est purement radial : $v_r = v(r)$. La composante selon z de la vitesse est donc : $v_z(P) = \mu v(r)$.

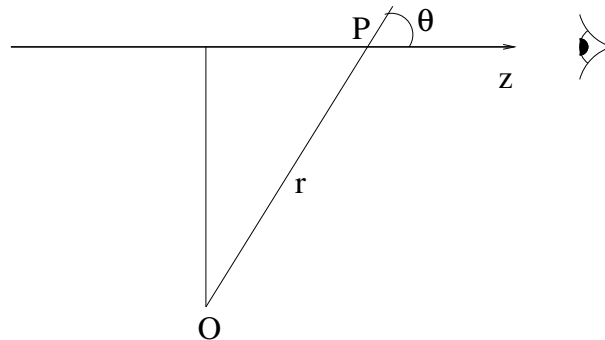


FIGURE 4.2 – Géométrie du transfert radiatif dans le cas d'une symétrie sphérique

4.4. UNE APPLICATION : INFLUENCE DES TAUX DE COLLISIONS SUR UNE MODÉLISATION

Pour un photon créé au point P , les seuls points P' pour lesquels il peut y avoir absorption ceux sont tels que : $|v_z(P') - v_z(P)| < \Delta v_D$. Pour une radiation émise vers l'observateur, l'ensemble de ces points P' occupent un intervalle $[z - s, z]$ où la longueur d'interaction s (dite *longueur de Sobolev*) est définie par :

$$s \frac{\partial v_z}{\partial z} = \Delta v_D \quad (4.34)$$

En utilisant les définitions de z et v_z , on trouve :

$$\frac{\partial v_z}{\partial z} = \frac{v}{r} \sin^2(\theta) + \frac{dv}{dr} \cos^2(\theta) \quad (4.35)$$

On introduit maintenant la dérivée logarithmique de la vitesse $\epsilon_r = \frac{d \ln v}{d \ln r}$ et il vient :

$$\frac{\partial v_z}{\partial z} = \frac{v}{r} [1 - \mu^2(1 - \epsilon_r)] \quad (4.36)$$

On peut, alors, définir une expression pour s :

$$s = r \frac{\Delta v_D / v}{1 - \mu^2(1 - \epsilon_r)} \quad (4.37)$$

Ainsi, seule une petite partie de la source ($\sim \Delta v_D / v$) est connectée radiativement. De plus, si cette région est suffisamment petite, toutes les propriétés physiques peuvent être supposées constantes, et en particulier la fonction source S . Ainsi, l'intensité au point P peut s'exprimer en fonction de la longueur s :

$$I_\nu = S[1 - \exp(-\kappa_\nu s)] \quad (4.38)$$

tous les termes étant considérés au point P . Pour arriver à calculer ensuite la moyenne de l'intensité, W , il suffit d'intégrer sur le profil de raie $\phi(\nu) d\nu = f(v_z) dz$.

En considérant que s est petite, la composante en vitesse v_z est approximativement reliée linéairement à la distance l depuis le point P . Ainsi $f(v_z) dz = dl/s$ et $\kappa_\nu = \kappa l/s$ pour $0 \leq l \leq s$. L'expression de W devient donc :

$$W = S \left[1 - \int \frac{d\Omega}{4\pi} \int_0^s \exp(-\kappa l) \frac{dl}{s} \right] \quad (4.39)$$

ce qui produit une probabilité d'échappement ($W = S(1 - \beta)$ pour rappel) :

$$\beta = \int \frac{d\Omega}{4\pi} \frac{1 - \exp(-\tau(\mu))}{\tau(\mu)} \quad (4.40)$$

où $\tau(\mu) = \kappa s$ est l'épaisseur optique prise au point P . L'expression exacte de $\tau(\mu)$ est facilement dérivable, connaissant l'expression de s et κ_ν (voir equation 3.9).

4.4 Une application : influence des taux de collisions sur une modélisation astrophysique

Nous avons présenté dans tout ce chapitre les méthodes de découplage afin de résoudre le problème du transfert radiatif. Nous n'avons pas parlé de l'influence des paramètres physiques, et en particulier de l'influence de la valeur des taux de collisions sur la modélisation *probabilité d'échappement*.

L'article que nous avons joint dans le chapitre précédent présente les résultats d'une comparaison entre une simulation *probabilité d'échappement* effectuée en utilisant les taux présentées dans la partie précédente et une simulation effectuée avec les taux calculés par Green, 1991 [48].

Nous avons ainsi calculé le flux des huit transitions millimétriques les plus fortes dans un milieu où les seuls moyens d'exciter les molécules sont les collisions et le rayonnement fossile à 2.72 K, et étudié l'impact du collisionneur : ortho-H₂ et He.

Rappelons que nous avons montré dans la première partie de cette thèse que les taux de collisions calculés avec ortho-H₂ sont généralement trois fois supérieurs à ceux calculés avec He. Cette étude a montré que la modélisation effectuée en utilisant nos taux change significativement les résultats, jusqu'à un facteur 10 sur les flux modélisés, en particulier pour des densités hautes ($n(\text{H}_2) > 10^5 \text{ cm}^{-3}$). Cette différence est grande lorsque le régime de densité de l'étude se rapproche de la densité critique du niveau haut de la transition, ou la dépasse, lorsque les taux de collisions jouent un rôle prépondérant dans les mécanismes d'excitation.

Cet effet de densité critique est particulièrement visible lorsque l'on considère des régimes de densité bas, où l'excitation moléculaire est majoritairement due à l'interaction avec le bain de photon. Dans ce cas-là, la différence entre les deux collisionneurs est quasi nulle, montrant ainsi que les taux de collision n'entrent quasiment pas dans l'excitation des molécules.

Cela montre bien que les conditions physiques que nous obtenons en utilisant He au lieu de H₂ ne reflète pas la réalité. Aux mêmes conditions de température et d'abondance, on surestime la densité du milieu en considérant He ou on surestime l'abondance de H₂CO au même conditions de densité et de température.

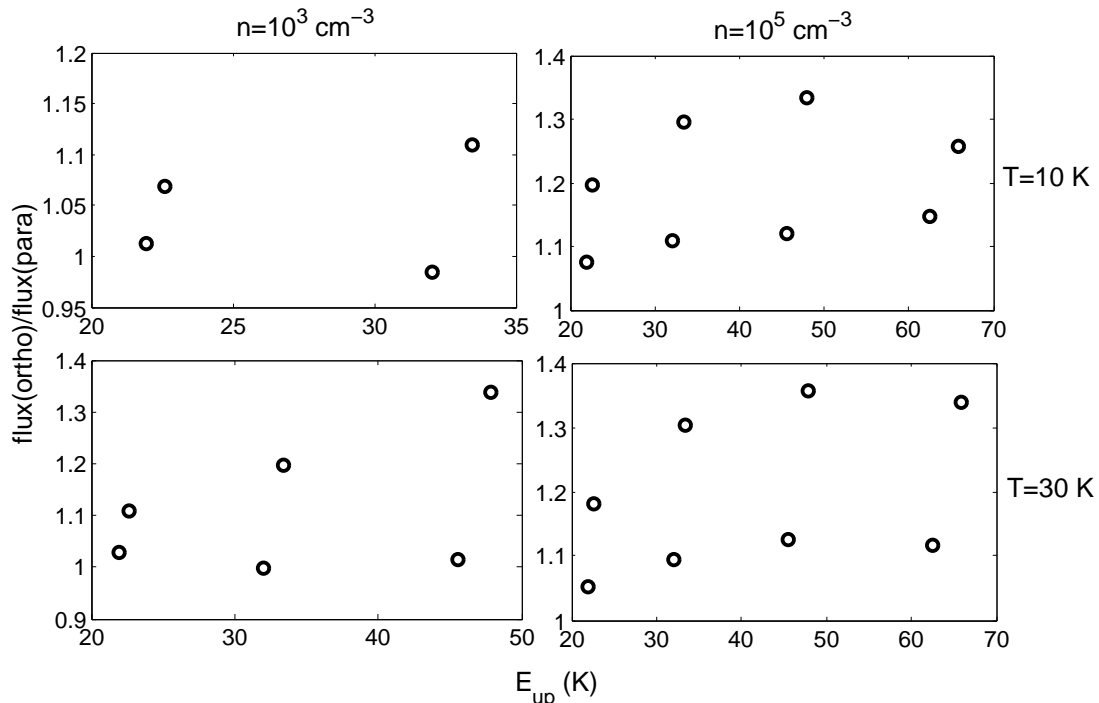


FIGURE 4.3 – Comparaison des flux simulés avec ortho- et para-H₂ des 8 transitions millimétriques les plus fortes pour deux températures (10 K et 30 K) et deux densités différentes (10^3 cm^{-3} et 10^5 cm^{-3}).

4.4. UNE APPLICATION : INFLUENCE DES TAUX DE COLLISIONS SUR UNE MODÉLISATION

Nous présentons le même type de travail dans la figure 4.3. Nous y comparons les flux simulés de ces mêmes transitions millimétriques calculées pour o-H₂ et p-H₂ et N(H₂CO)=8×10¹² cm⁻², pour deux températures (10 K et 30 K) et deux densités différentes (10³ cm⁻³ et 10⁵ cm⁻³) différentes.

Nous voyons des différences dans les flux simulés avec les différentes formes de l'hydrogène moléculaire. Les flux simulés en ne considérant que les collisions avec ortho-H₂ sont généralement supérieurs aux flux calculés avec para-H₂ reflétant directement la différence entre les taux de collisions entre les deux formes (pour rappel $k_{ortho} > k_{para}$). Cela dit le rapport des flux n'excède pas 1.5. Ainsi, les flux des transitions millimétriques sont sensibles à la différence de forme de l'hydrogène moléculaire.

Nous remarquons aussi le même comportement que lors de la comparaison précédente : la différence de propension entre les taux calculés avec les différentes formes de H₂ se répercute sur la modélisation des flux. De plus, nous remarquons aussi que plus l'énergie du niveau supérieur augmente, plus la différence est grande, comportement identique à la comparaison ortho-H₂-He.

Chapitre 5

H₂CO dans le milieu interstellaire : étude des nuages sombres

Sommaire

5.1	Introduction	85
5.1.1	Température d'excitation	86
5.2	« L'absorption anormale » de ortho-H₂CO	87
5.2.1	Preuve observationnelle	87
5.2.2	L'absorption anormale : un phénomène collisionnel	88
5.3	Absorption anormale : une sonde des paramètres physiques	92
5.3.1	Collision avec He, densitométrie	92
5.3.2	Collision avec H ₂ , influence du rapport ortho/para(H ₂)	94
5.4	Structure hyperfine de ortho-H₂CO	96
5.4.1	Niveaux hyperfins et absorption anormale	96
5.5	Analyse des observations spectroscopiques	99
5.5.1	Problématique	99
5.5.2	Différence entre les modélisations : hyperfine vs rotationnelle	100
5.6	Conclusion	105

5.1 Introduction

Nous avons présenté dans la première partie de cette thèse les méthodes de calcul de taux de collision et les résultats que nous avons obtenus en suivant ces méthodes. Dans le chapitre 4 nous avons présenté les modèles de transfert radiatif utilisés en astrophysique afin d'étudier les sources de radiations et de déduire des observations spectroscopiques les conditions physiques régnant dans l'objet, en particulier les conditions de densité et de température.

Dans la plupart des études astrophysiques visant à expliquer les observations spectroscopiques, les chercheurs utilisent des taux de collision présents dans la littérature, ou disponibles en ligne sur des sites tels que la base de données LAMDA¹ de Leiden ou BASECOL². Grâce à ces taux, ils peuvent faire des études de transfert radiatif pour étudier leur objet.

1. Leiden Atomic and Molecular Database, <http://www.strw.leidenuniv.nl/~moldata/>

2. <http://basecol.obspm.fr/>

Pour notre part, comme nous l'avons présenté dans les chapitres précédents, nous avons l'avantage d'avoir calculé des nouveaux taux de collision très précis pour des collisions impliquant l'hydrogène moléculaire en collision avec le formaldéhyde. Afin de ne pas effectuer qu'un travail de production de taux de collision, il est intéressant de profiter de ces nouveaux taux afin de porter un regard nouveau sur un problème astrophysique. Ceci aura un double avantage : de prouver l'utilité de calculer des taux de collisions précis et d'expliquer un phénomène astrophysique.

Il existe une multitude d'objets astrophysiques étudiés grâce aux transitions rotationnelles du formaldéhyde : dans les nuages diffus (par exemple, Liszt *et al.* 2006 [71]), dans les nuages plus denses (Minh *et al.* 1993 [81]), dans les proto-étoiles massives (van der Tak *et al.*, 2000 [114]) ou de faible masse (Maret *et al.* 2004 [77]) et même dans les galaxies à sursaut de formation d'étoiles (*starburst galaxies*) (Mangum *et al.* 2008 [73])... Ce grand nombre d'études montre l'intérêt d'avoir des taux de collisions précis concernant cette molécule.

Mais il existe un phénomène qui est particulièrement intéressant dans l'étude des transitions moléculaires du formaldéhyde : l'étude du formaldéhyde dans les nuages sombres, et en particulier l'observation de la transition fondamentale de ortho-formaldéhyde ($1_{11} \rightarrow 1_{10}$, 6 cm, 4.8 GHz) en absorption dans ces milieux.

Dans la suite de cette thèse nous allons nous intéresser uniquement à ortho- H_2CO . Nous allons utiliser les taux de collisions que nous avons calculés et la théorie du transfert radiatif que nous avons présentée afin d'étudier cette absorption dans les nuages sombres.

5.1.1 Température d'excitation

Dans tout ce chapitre, nous allons parler de *température d'excitation*. Afin de bien connaître cette grandeur, nous allons rapidement présenter ici ce qu'elle représente. Nous conseillons par ailleurs le lecteur du livre de Lequeux *et al.* [69] qui définit très bien toutes les grandeurs utilisées en astrophysique.

Considérons une molécule dans un état d'excitation donné. Considérons une transition entre deux niveaux de cette molécule ayant une population N_u pour le niveau excité et N_l pour l'autre.

Si nous considérons que la population des deux niveaux considérés suit une loi Boltzmannienne, nous pouvons écrire :

$$\frac{N_u}{N_l} = \frac{g_u}{g_l} \exp\left(\frac{-\Delta E}{kT_{ex}}\right) \quad (5.1)$$

où g_u et g_l sont les dégénérescences des deux niveaux, ΔE la différence d'énergie entre les deux niveaux, k la constante de Boltzman et T_{ex} la température d'excitation.

Nous voyons que cette température traduit le rapport de population entre les deux niveaux. Dans le cas général, cette température n'est pas à proprement parler une température physique. Elle le devient quand les molécules sont à l'équilibre thermodynamique local. Dans ce cas, et uniquement dans ce cas, nous avons : $T_{ex} = T_{cin} = T_{rad}$ où T_{cin} est la température du milieu et T_{rad} est sa température de radiation.

Contrairement à T_{cin} , T_{ex} peut être négatif. C'est ce qu'il se passe lors d'inversion de population, dans le cas des Masers.

5.2 « L'absorption anormale » de ortho-H₂CO

5.2.1 Preuve observationnelle

Replaçons-nous dans le contexte des débuts de l'astrophysique moléculaire, dans les années 60. Après la première détection de CH en 1938 (Cabannes *et al.* [17]), la course à la détection de molécule bat son plein. De nombreuses molécules simples sont alors détectées et, en 1969, H₂CO est la première molécule complexe organique à être observée dans le milieu interstellaire (Snyder *et al.* 1969 [100]). Ces observations (voir par exemple la figure 5.1), faite à 4.8 GHz, relatent l'absorption de la transition fondamentale de ortho-H₂CO devant de fortes sources radio, comme le centre galactique ou d'autres sources radio extragalactiques.

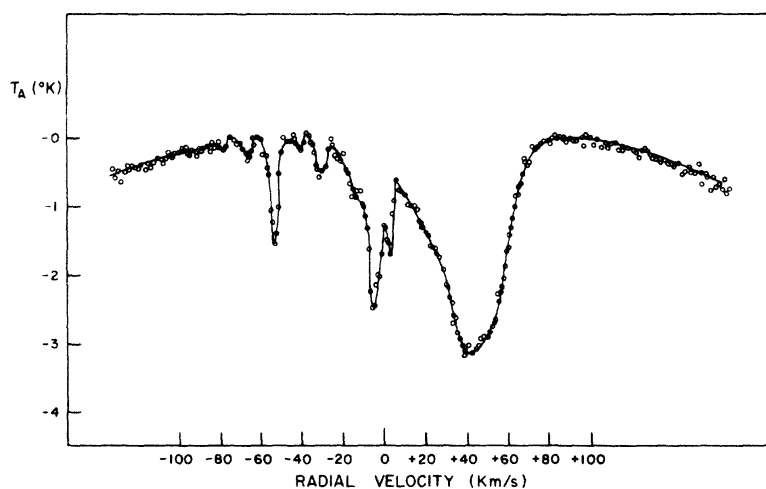


FIGURE 5.1 – Première observation de formaldéhyde dans le milieu interstellaire en direction de Sagittarius A, Snyder *et al.* 1969.

Toujours en 1969, dans la lignée de cette observation, le même groupe observant la même transition dans des objets différents, les nuages sombres, découvre le même genre d'absorption (Palmer *et al.* [92], voir figure 5.2). Si l'absorption de radiation venant de sources radio fortes est compréhensible, cette absorption dans les nuages sombres est plus ardue à comprendre. C'est d'ailleurs dans cet article qu'apparaît pour la première fois la dénomination « d'absorption anormale » puisqu'aucune source de rayonnement ne pouvait fournir de radiations, dans le domaine radio susceptibles d'être absorbées, si ce n'est le fond diffus cosmologique à 2.7 K.

Si le mécanisme de cette absorption n'a pas été tout de suite compris, l'existence de cette absorption est problématique : comment une molécule peut-elle absorber le CMB, rayonnement le moins énergétique de l'Univers ?

De cette observation, les auteurs déduisent la température d'excitation (T_{ex}) de la transition. Ils trouvent une T_{ex} de 1.8 K, logiquement inférieure à la température du FDC (2.72 K). La molécule est donc « refroidie », dans le sens où le niveau inférieur de la transition est beaucoup plus peuplé qu'il ne le serait si on était à l'équilibre thermodynamique local.

A la suite de cette observation, de nombreuses autres études ont pris pour cible les

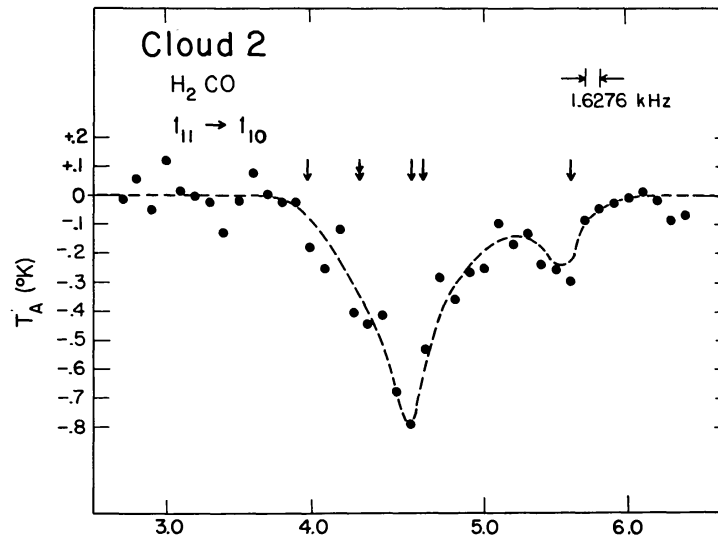


FIGURE 5.2 – Première observation de l’absorption anormale de la transition fondamentale de ortho- H_2CO dans le nuage de Heiles 2, Palmer *et al.* 1969.

nuages sombres dans le but d’observer cette « absorption anormale » et d’essayer de la corréliser avec les observations d’autres molécules : citons par exemple les travaux de Evans *et al.* (1975, [37]), Snell (1981, [98]), Vanden Bout *et al.* (1983, [118]), Mundy *et al.* (1987, [84]), Young *et al.* (2004, [125]) ou encore Rodríguez *et al.* (2006, [97]). Ces exemples ne sont bien entendu pas exhaustifs, la bibliographie est large et les études nombreuses sur cette absorption.

5.2.2 L’absorption anormale : un phénomène collisionnel

Lors de la découverte de cette absorption dans les nuages sombres par Palmer *et al.* en 1969, le phénomène n’était pas attendu et donc l’explication pas connue. Cela dit, il n’a pas fallu attendre longtemps pour avoir cette explication. En effet, en 1969, Townes & Cheung [105] suggèrent un processus de compétition entre les processus radiatifs et collisionnels afin d’expliquer cette absorption.

Nous allons décrire dans la suite les différentes règles de sélection radiative et collisionnelle de ortho- H_2CO comme décrit dans [105] et montrer en quoi cela conduit à l’absorption.

Règles de sélections radiatives

Pour passer d’un niveau d’énergie à un autre, toutes molécules effectuent des transitions (ici rotationnelles). Lorsqu’il s’agit de transitions spontanées (comme la désexcitation spontanée) ou induites par un photon (excitation ou désexcitation induite), on appelle ces transitions *transitions radiatives*. Ce qui va être présenté ici vient principalement de Townes & Schawlow, 1975 [106] et de Gordy & Cook, 1984 [26].

A priori, tous les niveaux d’énergies d’une même molécule devraient être reliés par transitions radiatives. En pratique, beaucoup de ces transitions sont exclues car interdites, dans le sens où la probabilité de transition est négligeable. Elles peuvent être interdites du fait du dipôle de la molécule, ou encore parce qu’elle présente deux formes distinctes

(ortho- et para- par exemple) qui ne peuvent pas être liées par interaction avec un photon.

Prenons le cas de H₂CO. Comme présenté précédemment, il s'agit d'un rotateur asymétrique. Comme la majorité des molécules, la première règle de sélection est donnée par le moment dipolaire de la molécule, qui interdit toutes transitions différentes de :

$$\Delta J = 0, \pm 1 \quad (5.2)$$

De plus, le formaldéhyde présente une forme para- (K_a pair) et une forme ortho- (K_a impair). Ces deux formes ne peuvent pas être liées radiativement (ni collisionnellement d'ailleurs, comme nous l'avons déjà remarqué), ce qui implique d'autres règles de sélection :

$$\Delta K_a = 0, \pm 2, \pm 4, \dots \quad (5.3)$$

Enfin, la dernière règle de sélection se détermine à partir de la géométrie de la molécule et de l'orientation de son moment dipolaire. En suivant Townes & Schawlow, 1975 [106] et Cordy & Cook, 1984 [26], et considérant que le moment dipolaire de H₂CO est suivant la liaison C=O, qui est son axe de plus petit moment angulaire, nous trouvons les règles de sélections :

$$\Delta K_c = \pm 1, \pm 3, \dots \quad (5.4)$$

Règles de propension collisionnelles

Il n'y a pas à proprement parler de transitions collisionnelles interdites, sauf, évidemment, entre deux formes différentes d'une molécule (*e.g.* entre ortho et para). Mais ce que nous entendons ici par règles de propension collisionnelles se rapporte aux règles de propension que nous avons décrites dans le chapitre 3 : quelle transition collisionnelle est préférée aux autres.

Partant des règles de sélections radiatives, Townes & Cheung se sont intéressés aux règles de propension collisionnelles du formaldéhyde en collision avec un atome. Le but avoué de cette étude était de tenter d'expliquer l'absorption anormale de ortho-H₂CO par une compétition entre les processus radiatifs et collisionnels.

L'étude de cet article est purement théorique. Les auteurs considèrent les collisions classiquement et uniquement les quatre premiers niveaux de ortho-H₂CO : 1_{11} , 1_{10} , 2_{12} et 2_{11} .

Ils considèrent que les niveaux bas de chaque doublet (les niveaux 1_{11} et 2_{12}) représentent des rotations autour de l'axe de plus grand moment d'inertie qui est l'axe perpendiculaire au plan de la molécule (y dans notre convention d'axe, voir figure A.2), les niveaux haut (1_{10} et 2_{11}) représentant les rotations autour de l'axe x .

Règle de sélection : un peu de logique. Un collisionneur en interaction avec ortho-H₂CO a plusieurs possibilités de cible : le noyau de carbone, d'oxygène ou les hydrogènes. S'il entre en collision avec le noyau d'oxygène ou de carbone, la probabilité d'engendrer une rotation autour des axes x et y sont sensiblement les mêmes, il n'y a donc pas de règles de sélection qui se dessinent.

Le cas de collisions avec les noyaux d'hydrogène est plus intéressant. En effet, considérons un projectile arrivant perpendiculairement au plan de la molécule et entrant en collision avec un des noyaux d'hydrogène. Comme ces noyaux sont relativement légers, très peu de moment angulaire va être transféré à la molécule. Par contre, s'il arrive dans

le plan de la molécule et entre en collision avec un noyau d'hydrogène, il va transférer beaucoup de son énergie à H_2CO qui va entrer en rotation autour de son axe y .

Avec cette explication intuitive, les auteurs arrivent à déterminer une règle de sélection pour les collisions : puisque les collisions sur les noyaux d'hydrogène excitent principalement les rotations autour de l'axe y , on excite la molécule principalement dans les niveaux bas de chaque doublet.

Règle de sélection : un peu de théorie. Afin de confirmer la détermination logique des règles de propension, Townes & Cheung développent les calculs des moments angulaires de H_2CO suivant chacun des trois axes, que nous présentons dans la suite.

$$\begin{aligned}\Omega_x &= 2mV \frac{y\gamma_z - z\gamma_y}{C} \\ \Omega_y &= 2mV \frac{z\gamma_x - x\gamma_z}{C} \\ \Omega_z &= 2mV \frac{x\gamma_y - y\gamma_x}{C}\end{aligned}\tag{5.5}$$

où x , y et z sont les coordonnées des noyaux par rapport au centre de masse de la molécule, m la masse du collisionneur, V sa vitesse, γ_x , γ_y et γ_z le cosinus de la direction de V suivant les trois axes, I_x , I_y et I_z les principaux moments d'inertie de H_2CO de forme :

$$\begin{aligned}I_x &= 2m_H z_H^2 + m_O z_O^2 + m_C z_C^2 \\ I_y &= m_O z_O^2 + m_C z_C^2 + 2m_H (z_H^2 + x_H^2) \\ I_z &= 2m_H x_H^2\end{aligned}$$

en suivant les conventions d'axe développé dans le chapitre 2. De plus :

$$C = 1 + m \left[\frac{(y\gamma_z - z\gamma_y)^2}{I_x} + \frac{(z\gamma_x - x\gamma_z)^2}{I_y} + \frac{(x\gamma_y - y\gamma_x)^2}{I_z} \right]\tag{5.6}$$

Prenons le cas des collisions sur le noyau de carbone ou d'oxygène, où $x = y = 0$:

$$\Omega_x = -2mV \frac{z\gamma_y}{1 + mz^2 \left[\frac{\gamma_x^2}{I_y} + \frac{\gamma_y^2}{I_x} \right]}\tag{5.7}$$

$$\Omega_y = 2mV \frac{z\gamma_x}{1 + mz^2 \left[\frac{\gamma_x^2}{I_y} + \frac{\gamma_y^2}{I_x} \right]}\tag{5.8}$$

$$\Omega_z = 0\tag{5.9}$$

En considérant $I_x \simeq I_y$ et moyennant sur toutes les directions de V , on trouve $\langle \Omega_x^2 \rangle \simeq \langle \Omega_y^2 \rangle$, comme initialement pensé dans le paragraphe précédent, il n'y a donc pas réellement de règles de propension collisionnelles dans de telles collisions.

Considérons maintenant les collisions avec les noyaux d'hydrogène. Dans ce cas, nous avons uniquement $y = 0$.

$$\begin{aligned}
\Omega_x &= -2mV \frac{z\gamma_y}{1 + m \left[\frac{(z\gamma_x - x\gamma_z)^2}{I_y} + \frac{(x\gamma_y)^2}{I_z} + \frac{(z\gamma_y)^2}{I_x} \right]} \\
\Omega_y &= 2mV \frac{z\gamma_x - x\gamma_z}{1 + m \left[\frac{(z\gamma_x - x\gamma_z)^2}{I_y} + \frac{(x\gamma_y)^2}{I_z} + \frac{(z\gamma_y)^2}{I_x} \right]} \\
\Omega_z &= 2mV \frac{x\gamma_y}{1 + m \left[\frac{(z\gamma_x - x\gamma_z)^2}{I_y} + \frac{(x\gamma_y)^2}{I_z} + \frac{(z\gamma_y)^2}{I_x} \right]}
\end{aligned} \tag{5.10}$$

Nous avons deux cas à considérer, sachant que $I_z = 2m_H x_H^2$ et que les auteurs supposent m_H très petit devant toutes les autres masses :

- γ_y^2 est très petit devant les autres composantes de la vitesse du projectile. Dans ce cas le système 5.2.2 devient :

$$\begin{aligned}
\Omega_x &\sim 0 \\
\Omega_y &= 2mV \frac{z\gamma_x - x\gamma_z}{1 + m \left[\frac{(z\gamma_x - x\gamma_z)^2}{I_y} \right]} \\
\Omega_z &\sim 0
\end{aligned} \tag{5.11}$$

Dans ce cas-là, nous voyons qu'une règle de propension se dessine : on excite principalement la molécule selon l'axe y . Si l'on moyenne sur les directions des vitesses, nous trouvons que $\langle \Omega_y^2 \rangle > \langle \Omega_x^2 \rangle$. Nous confirmons ainsi les arguments intuitifs que nous avons présentés dans le chapitre précédent.

- γ_y^2 n'est pas très petit devant les autres composantes de la vitesse du projectile. Dans ce cas le système 5.2.2 devient :

$$\begin{aligned}
\Omega_x &= -2mV \frac{z\gamma_y}{1 + m \frac{(x\gamma_y)^2}{I_z}} \\
\Omega_y &= 2mV \frac{z\gamma_x - x\gamma_z}{1 + m \frac{(x\gamma_y)^2}{I_z}} \\
\Omega_z &= 2mV \frac{x\gamma_y}{1 + m \frac{(x\gamma_y)^2}{I_z}}
\end{aligned} \tag{5.12}$$

Dans ce cas-là, aucune règle de propension ne se dessine.

Ainsi, si nous suivons les travaux de Townes & Cheung de cet article, il existe une règle de sélection sur les taux de collisions avec ortho-H₂CO : les collisions peuplent préférentiellement les niveaux bas de chaque doublet ($K_c = J$). Cela dit, cette explication semble grevée par l'hypothèse de différence de masse entre les noyaux d'hydrogène et le projectile.

Confrontation règles de sélection radiatives et collisionnelles. Nous avons énoncé précédemment les différentes règles de sélection qui régissent les transitions entre deux niveaux de ortho-H₂CO. En les confrontant, nous aurons alors une tendance sur la population de ces niveaux.

La figure 5.3 résume les différentes règles de sélections que nous avons présentées, en rouge les règles de sélection collisionnelles, en vert les règles de sélection radiatives.

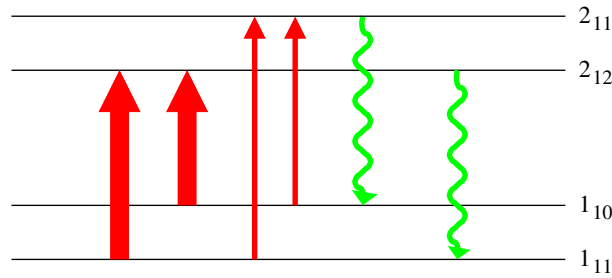


FIGURE 5.3 – Règles de sélection collisionnelles (rouge) et radiatives (vert). L'épaisseur des flèches marque la probabilité de la transition.

Considérons une molécule dont les niveaux sont peuplés selon une loi de Boltzmann à une température de 10 K, par exemple. Dans un milieu collisionnel, les collisions vont exciter ortho- H_2CO préférentiellement dans le niveau 2_{12} et ce, qu'importe le niveau de départ (1_{10} ou 1_{11}). Ce niveau 2_{12} va donc être beaucoup plus peuplé que le niveau 2_{11} .

Or, les règles de sélections radiatives autorisent seulement deux transitions entre ces 4 niveaux : $2_{12} \rightarrow 1_{11}$ et $2_{11} \rightarrow 1_{10}$. Puisque le niveau 2_{12} est beaucoup plus peuplé que le niveau 2_{11} , le niveau fondamental 1_{11} de ortho- H_2CO va devenir surpeuplé par rapport au niveau supérieur 1_{10} , autorisant le moindre rayonnement à être absorbé, et particulièrement le CMB, qui correspond à la bonne gamme de fréquence (~ 6 cm).

Comme nous l'avons déjà fait remarquer, le processus de Townes & Cheung prédit un refroidissement de la molécule, c'est-à-dire une surpopulation du niveau fondamental, qui mène à l'absorption anormale dans les nuages sombres.

Cette absorption est donc un phénomène typiquement en dehors de l'équilibre thermodynamique local : il faut une compétition entre les taux de collisions et le rayonnement pour arriver à la produire, ce qui montre d'ailleurs tout l'importance des taux de collisions.

Il est à noter que ce processus fonctionne si l'on considère les doublets $J = 1$ et $J = 2$, mais également les doublets $J = 2$ et $J = 3$ et ainsi de suite...

5.3 Absorption anormale : une sonde des paramètres physiques

5.3.1 Collision avec He, densitométrie

Si le mécanisme donné par Townes & Cheung dans leur article de 1969 semble expliquer le phénomène de l'absorption anormale dans les nuages sombres, cela reste un mécanisme schématique, rien ne dit que c'est le bon. Il faut donc pouvoir confirmer ce processus.

Pour le confirmer, il nous faut connaître les taux de collisions de ortho- H_2CO . La fin des années 60 voit les balbutiements des calculs de collisions moléculaires, mais il ne faut pas attendre longtemps pour que les premiers taux de collisions concernant le formaldéhyde soient publiés.

Citons par exemple les travaux de Augustin & Miller (1974) [4] qui présentent les premiers calculs semi-classiques des taux de collisions entre H_2CO et He. Profitant de ces calculs, ils tentent de confirmer le schéma de Townes & Cheung et de caractériser cette absorption par des différences entre sections efficaces de collisions.

Leur approche repose sur quelques considérations : (i) la transition radiative spontanée

entre les niveaux $J = 2$ et $J = 1$ est très rapide par rapport aux collisions et (ii) la transition radiative entre les niveaux 1_{11} et 1_{10} est très lente.

Ainsi ils peuvent exprimer le rapport R entre les populations des deux premiers niveaux de ortho- H_2CO comme un rapport entre les sections efficaces de collisions :

$$R = \frac{\sigma(1_{10} \rightarrow 2_{11}) + \sigma(1_{10} \rightarrow 1_{11})}{\sigma(1_{11} \rightarrow 2_{12}) + \sigma(1_{11} \rightarrow 1_{10})} \quad (5.13)$$

Notons par ailleurs que ce rapport peut tout aussi bien se définir avec les taux de collisions :

$$R = \frac{k(1_{10} \rightarrow 2_{11}) + k(1_{10} \rightarrow 1_{11})}{k(1_{11} \rightarrow 2_{12}) + k(1_{11} \rightarrow 1_{10})} \quad (5.14)$$

Ils considèrent ensuite que ce rapport est aussi fonction de la température d'excitation :

$$R \sim \exp\left(\frac{\Delta E}{kT_{ex}}\right) \quad (5.15)$$

où ΔE est l'écart en énergie des deux niveaux.

Ils montrent alors que pour reproduire les absorptions telles qu'observées, le rapport entre les sections efficaces doit être de l'ordre de $R \sim 1.1$. Ils montrent ainsi que la valeur de l'absorption anormale de la transition fondamentale de ortho- H_2CO est directement reliée à la valeur relative des sections efficaces, donc à celle des taux de collisions.

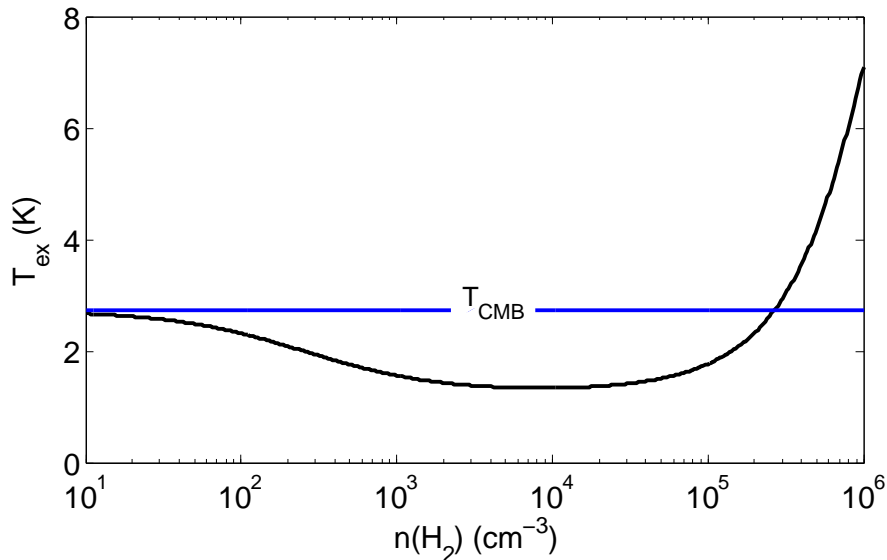


FIGURE 5.4 – Température d'excitation de la transition fondamentale de ortho- H_2CO (6 cm) en fonction de la densité du milieu pour $T=15$ K. La droite horizontale représente la température du CMB.

Un an plus tard, Garrison *et al.* [44] mettent à disposition de la communauté des taux de collisions de H_2CO calculés au niveau quantique pour des collisions avec l'atome d'Hélium. L'avantage des calculs avec He vient du temps de calcul : comme il s'agit d'un atome, il n'a pas de niveau rotationnel, et donc moins de niveaux sont couplés.

Ils calculent les taux de collisions entre les 8 premiers doublets de ortho- H_2CO en utilisant l'approximation coupled states. Il est à noter que Green (1991) utilise la même méthode et ne fait que compléter ce travail.

Utilisant ces taux et un programme de transfert radiatif basique, calculant uniquement la population des niveaux d'énergie de ortho- H_2CO dans un bain de photon à 2.72 K, ils calculent la température d'excitation des diverses transitions, et, en particulier, celle de la transition fondamentale de ortho- H_2CO .

Nous représentons sur la figure 5.4 l'évolution de la température d'excitation de la transition $1_{10} \rightarrow 1_{11}$ obtenue en utilisant les taux de collision et le même type de modélisation que Garrison en 1975. Nous remarquons bien qu'ils reproduisent l'absorption du formaldéhyde en prenant uniquement en compte les collisions avec He et le rayonnement fossile.

De ces travaux, ils concluent deux résultats importants : (i) ils confirment le mécanisme de Townes & Cheung pour les collisions avec He puisqu'ils arrivent à reproduire l'absorption (ii) ils remarquent que si ce mécanisme est correct, ils doivent quand même introduire plus que les 4 niveaux considérés par Townes pour reproduire au mieux l'absorption.

La même année, Evans *et al.* [37] observent l'absorption du formaldéhyde dans des nuages sombres et font le même genre d'étude. Ils trouvent le même résultat que Garrison *et al.*, mais font une remarque importante : la température d'excitation de cette transition à 6 cm est très sensible à la densité du milieu. En effet, comme nous le voyons par exemple sur la figure 5.4, la température d'excitation de cette transition a une valeur inférieure à celle du CMB pour des densités inférieures à $3 \times 10^5 \text{ cm}^{-3}$. Autrement dit, la transition est en absorption pour des densités inférieures à cette densité-là, et est en émission pour des densités supérieures.

Ainsi, l'observation-même de cette transition va nous donner une idée de la densité régnant dans l'objet, ou, du moins, dans la région où est observée cette transition. C'est pourquoi on a défini la transition à 6 cm de ortho- H_2CO comme sonde de densité, ou *densitomètre*. Il est à noter que le même phénomène existe pour la transition $2_{12} \rightarrow 2_{11}$ à 2 cm, mais aussi pour la transition $3_{13} \rightarrow 3_{12}$ à 1.6 cm (modélisée par Garrison *et al.* 1975 [44] mais encore jamais observée). Ces autres transitions sont aussi sensibles à la densité, mais sondent des zones de densités plus élevées.

Cette propriété de densitométrie est très intéressante d'un point de vue astrophysique, tant il est difficile d'avoir une idée précise sur ce paramètre physique. Cela dit, la valeur de la densité pour laquelle la transition passe d'absorption à émission va fluctuer : elle dépend de la valeur des taux, et donc du collisionneur, mais aussi de la température du milieu.

5.3.2 Collision avec H_2 , influence du rapport ortho/para(H_2)

Le processus de Townes & Cheung a donc été confirmé dans le cas de collisions avec l'atome d'hélium. Cela dit, le principal projectile dans le milieu interstellaire est la molécule d'hydrogène. Il nous faut donc confirmer ce processus avec cette espèce.

Le problème qui se pose lorsqu'on parle de collision avec H_2 est la différence dans les collisions entre les formes ortho- et para- de H_2 . Dans le milieu interstellaire, ces deux

formes cohabitent, il est donc naturel d'essayer de modéliser l'absorption anormale en incluant chacune de ces formes.

Il nous faut donc confirmer le processus collisionnel pour les deux formes de H_2 . La figure 3.10 nous donne déjà une première idée : nous y voyons que les taux de collisions calculés pour le niveau 1_{10} avec para- H_2 sont généralement plus forts dans le cas de désexcitations depuis le niveau bas de chaque doublet, ce qui va dans le sens du mécanisme collisionnel alors que dans le cas des collisions avec ortho- H_2 , nous voyons la tendance inverse pour le doublet $J = 2$. Il semble donc que la forme para de H_2 donne lieu à de l'absorption et pas la forme ortho.

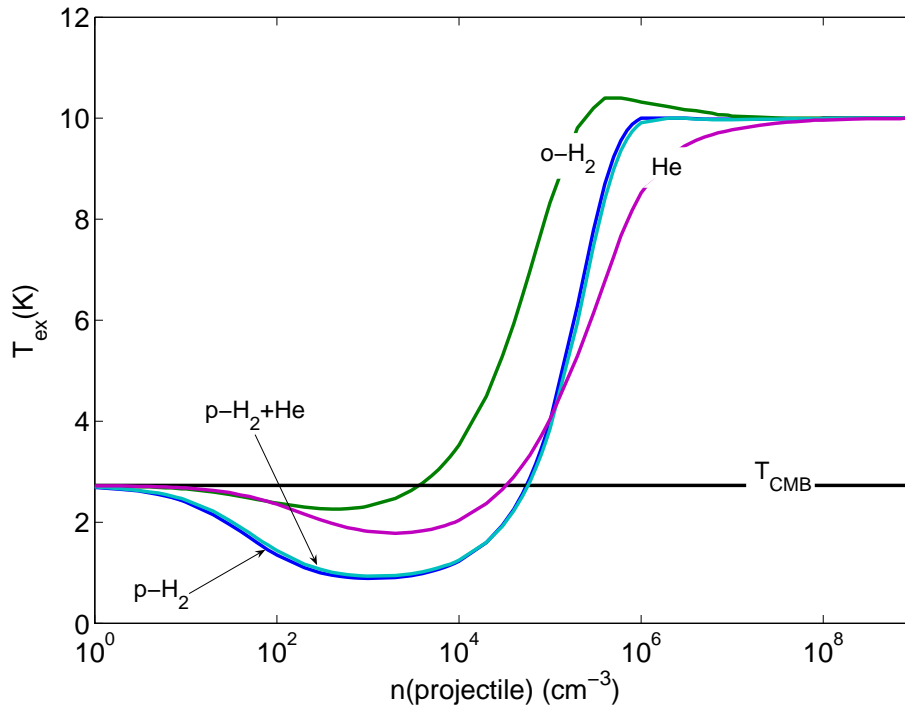


FIGURE 5.5 – Température d'excitation de la transition fondamentale de ortho- H_2CO calculé pour $T=10$ K, $N(H_2CO)=2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ et les trois différents collisionneurs : ortho- H_2 (vert), para- H_2 (bleu), He (magenta), p- H_2+He (cyan)

Nous présentons dans la figure 5.5 la modélisation de la température d'excitation de la transition fondamentale de ortho- H_2CO pour $T=10$ K, $N(H_2CO)=2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$, calculée pour différents collisionneurs : ortho- H_2 , para- H_2 , He et para- H_2+He dans le rapport interstellaire (0,2 He pour 1 H_2). Nous avons uniquement considéré les 10 premiers niveaux de ortho- H_2CO et une largeur de raie de 0.3 km.s^{-1} . Nous avons utilisé les taux présentés dans la première partie de la thèse pour les collisions avec ortho- et para- H_2 , les taux calculés par Green (1991) [48] pour les collisions avec He.

Le résultat avec He était attendu, étant donné que des modélisations avaient déjà été effectuées (voir paragraphe précédent). Cela dit, il ne s'agissait pas de modélisations prenant correctement en compte le transfert radiatif, il était donc nécessaire de le vérifier. Nous voyons, de plus, que les collisions avec He amènent des résultats différents d'avec H_2 (ortho- ou para-) : le minimum en T_{ex} est décalé vers des densités plus fortes et le passage entre absorption et émission de la transition est moins radical. Les collisions avec He sont donc moins sensibles à la densité du milieu.

Le véritable résultat réside dans la différence qui existe entre les calculs faits pour les différents collisionneurs.

En effet, comme initialement pensé, nous voyons que les collisions avec para- H_2 conduisent à une absorption profonde, due aux règles de propension qui suivent celles de Townes & Cheung.

La surprise vient des collisions avec ortho- H_2 . Les règles de propension étaient différentes de celles calculées par Townes & Cheung pour le doublet $J = 2$, ce qui ne devait pas amener d'absorption. Or, nous voyons dans la figure 5.5 qu'il existe quand même de l'absorption avec ce collisionneur, même si elle est plus faible qu'avec para- H_2 . Ceci confirme un des résultats présentés par Garrison *et al.* (1975) : le mécanisme d'absorption n'est pas un phénomène uniquement lié aux 4 premiers niveaux de ortho- H_2CO , mais nécessite aussi les niveaux plus excités.

Le résultat le plus important vient bel et bien de la différence entre les collisions entre ortho- et para- H_2 : plus il y a d'ortho- H_2 dans le milieu, moins la transition absorbe. Donc, si on a une observation de la transition fondamentale de ortho- H_2CO , nous pouvons l'utiliser comme sonde du rapport ortho/para de H_2 dans le milieu observé !

Nous pouvons voir, de plus, que la modélisation effectuée en prenant en compte à la fois para- H_2 et He comme projectiles ne change pas significativement les résultats obtenus en ne prenant en compte que para- H_2 . Nous pouvons donc, dans la suite de cette thèse, ignorer les collisions avec He dans toutes les modélisations que nous allons effectuer.

5.4 Structure hyperfine de ortho- H_2CO

Nous avons vu dans les paragraphes précédents que l'absorption anormale pouvait être une sonde des conditions physiques des nuages sombres et, en particulier, des conditions de densité et du rapport ortho/para de H_2 et ce, en considérant uniquement la température d'excitation de l'observation.

L'intensité de l'absorption dépend principalement de quatre paramètres physiques : la densité du milieu ($n(H_2)$), la densité de colonne de ortho- H_2CO ($N(H_2CO)$, *i.e.* la densité intégrée sur la ligne de visée), la température (T_{cin}) et le rapport ortho/para de H_2 (OPR(H_2)).

Une température d'excitation donnée peut être le résultat d'ensembles de paramètres totalement différents : le résultat est dégénéré. Il nous faut donc trouver d'autres observables et hypothèses sur le milieu afin de lever cette dégénérescence.

5.4.1 Niveaux hyperfins et absorption anormale

Intéressons-nous d'abord à la structure hyperfine de ortho- H_2CO . Comme présenté dans l'annexe A, ortho- H_2CO présente des niveaux hyperfins dus à l'interaction du spin nucléaire des deux atomes d'hydrogène avec le champ magnétique créé par la rotation des noyaux et des électrons de la molécule, ainsi que par effet du couplage spin-spin des noyaux d'hydrogène. Ainsi, chacun des niveaux du formaldéhyde est séparé en trois niveaux hyperfins. Dans la suite, chaque ensemble de trois niveaux hyperfins correspondant au même niveau rotationnel sera appelé « multiplet hyperfin ».

Des transitions radiatives sont possibles entre différents multiplets hyperfins. Comme toutes transitions radiatives, il existe des règles de sélection autorisant certaines transitions et en interdisant d'autres. Dans le cas des niveaux hyperfins, les règles de sélection sont comme suit [106] :

$$\begin{aligned}
\Delta J &= 0, \pm 1 \\
\Delta F &= 0, \pm 1 \\
\Delta I &= 0
\end{aligned}
\tag{5.16}$$

avec l'exception : si $\Delta J = 0$, la transition $F = 0 \rightarrow F' = 0$ est interdite. F est le moment angulaire total, J le moment angulaire rotationnel et I le spin nucléaire total (0 ou 1).

Nous résumons dans le tableau 5.1 l'ensemble des 6 transitions radiatives hyperfines autorisées dans le cas de la transition fondamentale de ortho-H₂CO ($1_{10} \rightarrow 1_{11}$). Comme nous le voyons, ces transitions hyperfines sont très rapprochées : elles sont regroupées dans 30 kHz. Pour comparaison, les transitions hyperfines de NH₃ sont séparées d'environ 2 MHz.

Cela dit, même si elles sont très rapprochées, il est toujours possible de résoudre au moins une transition hyperfine. En effet, la transition $F = 0 \rightarrow F' = 1$ est très décalée par rapport aux autres, ce qui permet de la résoudre, même avec des observations à basse résolution spectrale (comme par exemple sur la figure 5.2).

$F \rightarrow F'$	position (en MHz)	position (en km.s ⁻¹)	intensité relative
0 \rightarrow 1	4829.6414	1.1297	0.267
1 \rightarrow 0	4829.6585	0.0435	0.267
2 \rightarrow 2	4829.6596	0.0000	1
1 \rightarrow 2	4829.6641	-0.2793	0.333
2 \rightarrow 1	4829.6665	-0.4345	0.333
1 \rightarrow 1	4829.6710	-0.7200	0.200

TABLE 5.1 – Résumé de toutes les transitions hyperfines autorisées pour la transition $1_{10} \rightarrow 1_{11}$ de ortho-H₂CO. Les positions sont des mesures expérimentales présentées dans tucker *et al.*(1971) [108]. Les intensités viennent de calculs théoriques (voir ci-dessous), normalisées afin de prendre l'intensité de la composante principale égale à 1.

Transitions hyperfines et épaisseur optique

Revenons maintenant à notre recherche d'observable afin de lever la dégénérescence sur les résultats que nous pourrions obtenir de l'observation de l'absorption de H₂CO à 6 cm.

La dernière colonne du tableau 5.1 présente l'intensité relative théorique de chacune des 6 transitions hyperfines de la transition fondamentale de ortho-H₂CO. Ces intensités relatives sont calculées par les formules théoriques suivantes (voir [106]) :

$$\begin{aligned}
F - 1 \rightarrow F & \quad W = \frac{A(J + F + I + 1)(J + F - I)(J - F - I)(J - F + I - 1)}{F} \\
F \rightarrow F & \quad W = \frac{A[J(J + 1) + F(F + 1) - I(I + 1)]^2 (2F + 1)}{F(F + 1)} \\
F + 1 \rightarrow F & \quad W = \frac{A(J + F + I + 2)(J + F - I + 1)(J - F + I)(J - F - I - 1)}{F + 1}
\end{aligned}$$

Ces intensités relatives sont donc bien connues d'un point de vue théorique. D'un point de vue expérimental, elles correspondent aux intensités mesurées si l'effet de l'auto-absorption est négligeable, c'est-à-dire si la densité de colonne de H_2CO n'est pas trop forte.

Le rapport des épaisseurs optiques de deux transitions hyperfines, lorsque les deux niveaux sont à l'équilibre thermodynamique local est égale au rapport des intensités de chaque transition :

$$\tau_{F_1 \rightarrow F_2} = \frac{R_{F_3 \rightarrow F_4}}{R_{F_1 \rightarrow F_2}} \tau_{F_3 \rightarrow F_4} \quad (5.17)$$

où $\tau_{i \rightarrow j}$ est l'épaisseur optique de la transition $i \rightarrow j$, $R_{i \rightarrow j}$ son intensité relative.

Si la densité de colonne de H_2CO augmente, l'absorption va augmenter. Il arrive un cap où l'absorption de certaines transitions hyperfines va saturer, ce qui va induire une différence entre les intensités relatives observées et les intensités relatives théoriques. Grâce à cette différence, il est possible de connaître l'épaisseur optique τ de la transition, qui va être notre seconde observable.

Afin de pouvoir déterminer sa valeur, considérons que chaque transition hyperfine a la même température d'excitation et que l'intensité mesurée d'une transition est fonction de sa température d'excitation, de la température de rayonnement de l'arrière plan et de son épaisseur optique (Martin & Barret [78]) :

$$I \propto (J(T_{ex}) - J(T_{bg})) (1 - \exp(-\tau)) \quad (5.18)$$

où T_{bg} la température de la radiation absorbée (ici 2.72 K) et $J(T)$ la fonction de Planck à la température T , de forme :

$$J(T) = \frac{h\nu}{k} \frac{1}{\exp\left(\frac{h\nu}{kT}\right) - 1} \quad (5.19)$$

où h est la constante de Planck, k la constante de Boltzmann, ν la fréquence de la transition, nous obtenons une nouvelle équation :

$$\frac{I_{F_1 \rightarrow F_2}}{I_{F_3 \rightarrow F_4}} = \frac{1 - \exp(-\tau_{F_1 \rightarrow F_2})}{1 - \exp(-\tau_{F_3 \rightarrow F_4})} \quad (5.20)$$

avec $I_{i \rightarrow j}$ l'intensité mesurée de la transition $i \rightarrow j$.

Ceci est ni plus ni moins une façon de relier les épaisseurs optiques au rapport des intensités mesurées. Grâce à cette équation et à l'équation 5.17, il est possible de remonter à l'épaisseur optique d'une transition hyperfine. Il est ensuite facile de déduire l'épaisseur optique de chaque transition hyperfine et, ainsi déterminer l'épaisseur optique totale de la transition :

$$\tau_{tot} = \sum_F \sum_{F'} \tau_{F \rightarrow F'} \quad (5.21)$$

Ainsi, nous pouvons définir deux observables afin d'analyser les observations spectrales de l'absorption à 6 cm de ortho- H_2CO : T_{ex} et τ_{tot} . Ces deux observables vont nous permettre de lever la dégénérescence sur les contraintes des conditions physiques au sein des nuages sombres que nous allons étudier.

5.5 Analyse des observations spectroscopiques

L'analyse d'une observation spectroscopique consiste à déduire du spectre les conditions physiques régnant dans l'objet. Comme nous l'avons montré dans le chapitre précédent, pour analyser un spectre, il nous faut reproduire ses caractéristiques (intensité, largeur de raie, position), et pour ceci, on a recours à des simulations numériques du transfert radiatif.

Toutes les simulations numériques que nous allons présenter ici et jusqu'à la fin de cette thèse ont été effectuées grâce au code MOLPOP, développé par M. Elitzur & P. Lockett (voir Krolik *et al.*, 1978, [61]).

5.5.1 Problématique

Comme présenté précédemment, ces modèles de transfert radiatif prennent comme paramètre d'entrée les conditions physiques du milieu (densité, densité de colonne moléculaire, température,...) et donnent en sortie l'intensité et l'épaisseur optique des transitions. Il nous suffit alors de comparer ces valeurs modélisées aux observables tirées des spectres pour trouver le bon ensemble de paramètres physiques.

Les observations spectroscopiques de l'absorption anormale de ortho-H₂CO à 6 cm présentent des transitions hyperfines. Le but des modélisations est de reproduire au mieux les observations. Ici, nous devrions donc faire des modélisations prenant en compte la structure hyperfine de H₂CO.

Le problème est que, comme nous l'avons présenté, les modèles de transfert radiatif nécessitent les taux de collisions, et les coefficients d'Einstein. Si ceux-ci sont bien connus pour les transitions rotationnelles et hyperfines (voir annexe A pour les valeurs de ces coefficients), les taux de collision hyperfins de H₂CO avec H₂, quant à eux, sont inconnus.

Ainsi, pour pouvoir analyser les spectres obtenus, il y a deux solutions :

- Calculer les taux de collision pour les niveaux hyperfins et ainsi faire une modélisation prenant en compte cette structure (appelée *modélisation hyperfine* dans la suite).
- Faire une modélisation prenant uniquement en compte la structure rotationnelle de H₂CO (*modélisation rotationnelle*) et considérer l'observation comme une observation rotationnelle. On considère ainsi la T_{ex} hyperfine observée comme étant celle de la transition rotationnelle et on utilise τ_{tot} comme épaisseur optique de la transition rotationnelle. Cela revient, par conséquent, à négliger la structure hyperfine de la transition.

La première solution a l'avantage évident d'être la solution la plus logique et la plus précise : on observe des transitions hyperfines et on les modélise. L'inconvénient majeur se trouve dans le calcul des taux de collision hyperfins. Si, déjà pour le cas des molécules simples (comme des molécules type bâton, Daniel *et al.* (2004,2005) [28; 29]) ce calcul se trouve compliqué, pour le cas des toupies asymétriques comme H₂CO le formalisme du recouplage hyperfin n'existe simplement pas. Il nous faudrait donc le développer et calculer les taux de collisions, ce qui représente un travail important (et pas forcément nécessaire, comme nous le présentons dans la suite).

La seconde solution présente l'avantage d'être la plus pratique. En effet, les taux de collisions rotationnels sont connus, et il est facile de passer des observables hyperfines aux observables rotationnelles.

5.5.2 Différence entre les modélisations : hyperfine vs rotationnelle

Si négliger la structure hyperfine est pratique, cela induit des erreurs dans la détermination des conditions physiques du milieu étudié.

Le tout est de savoir quantifier l'erreur que l'on induit en faisant ce type d'approximation. Pour cela nous avons suivi l'étude faite par Daniel *et al.* [27] : nous avons effectué une étude comparative des deux modélisations, hyperfines et rotationnelles.

Calcul de taux de collisions hyperfins

Cela dit, pour faire une étude comparative, il nous faut pouvoir comparer les observables simulées par les deux approches. Or, comme nous l'avons dit, pour pouvoir faire une étude de flux par une modélisation hyperfine, il nous faut des taux de collisions hyperfins.

Le problème est que nous ne connaissons pas ces taux, et que nous ne pouvons pas les calculer simplement. C'est pourquoi nous avons essayé de les estimer à partir des taux de collisions rotationnels.

Il existe en effet plusieurs manières de calculer ces coefficients de collisions hyperfins à partir des coefficients rotationnels, mais il y a une règle qui doit toujours s'appliquer : la somme des coefficients provenant d'un niveau hyperfin F d'un multiplet JK_aK_c et allant vers tous les niveaux d'un multiplet $J'K'_aK'_c$ doit être égal au coefficient de collision entre les deux niveaux rotationnels JK_aK_c et $J'K'_aK'_c$. Autrement dit :

$$\sum_{F'} C(JK_aK_cF \rightarrow J'K'_aK'_cF') = C(JK_aK_c \rightarrow J'K'_aK'_c) \quad (5.22)$$

où $C(JK_aK_cF \rightarrow J'K'_aK'_cF')$ sont les taux de collisions hyperfins et $C(JK_aK_c \rightarrow J'K'_aK'_c)$ les taux de collisions rotationnels.

A partir du moment où on respecte cette règle, on peut estimer les coefficients de collisions hyperfins. Comme nous le disions plus haut, il y a différents moyens de calculer les taux de collisions, que l'on peut classer en deux grandes familles : avec ou sans règle de propension.

Si on ne prend pas de règles de propension, la famille est très restreinte : tous les coefficients de collision partant d'un niveau F d'un multiplet hyperfin JK_aK_c vers les niveaux F' d'un multiplet $J'K'_aK'_c$ ont la même valeur.

L'autre choix consiste à inclure des règles de propension dans le calcul des taux de collisions hyperfins, règles favorisant un certain type de transitions collisionnelles par rapport aux autres (par exemple sur N_2H^+ , voir Daniel *et al.* 2005, [29]), généralement du type $\Delta J = \Delta F$.

Comme nous ne connaissons pas les règles de propension des taux de collisions hyperfins de H_2CO , nous en avons calculé plusieurs ensembles en variant les règles de propension.

Poids statistiques. Une des règles de sélection communément utilisée pour calculer les taux de collisions hyperfins à partir des taux de collisions rotationnels est de considérer les *poids statistiques*.

Cette méthode de calcul prend pour principe une dépendance des taux de collisions hyperfins en la dégénérescence des niveaux hyperfins d'arrivée. Ainsi :

$$C(JF \rightarrow J'F') = \frac{g_{F'}}{g_I g_{J'}} C(J \rightarrow J') \quad (5.23)$$

où $g_k = 2k + 1$ est la dégénérescence du niveau k , I la valeur du spin nucléaire total, J' la valeur du nombre rotationnel du niveau final et F' le moment angulaire total.

Ainsi, nous voyons qu'ici, toutes les transitions hyperfines allant vers un grand F' seront privilégiées par rapport aux autres transitions. De plus, si nous sommes ces taux de collisions hyperfins sur tous les états d'arrivée, nous satisfaisons à la relation 5.22. En effet, puisque $F = J + I$, nous avons $\sum_F g_F = g_I \times g_J$.

Règles de sélection *ad hoc*. D'autres choix s'offrent à nous en ce qui concerne le calcul des taux de collisions hyperfins. Ainsi, tout en respectant l'équation 5.22, nous posons artificiellement certaines transitions comme étant nulles. De cette manière, nous pouvons tester plusieurs cas, comme par exemple :

- Ne considérer que les cas où seules sont autorisées les transitions avec $\Delta F = 0$, ou $\Delta F = \pm 1$, ...
- Considérer comme transitions autorisées $\Delta F = 0, \pm 1$.
- $\Delta F = 0, \pm 1, \pm 2$.

Ainsi, en faisant varier les règles de sélection, nous avons créé pas moins de 17 ensembles de taux de collisions hyperfins, et ce afin de pouvoir comparer la modélisation rotationnelle avec le plus grand nombre de modélisations hyperfines différentes.

Dans la suite de ce chapitre, nous allons présenter plusieurs points importants à traiter afin que la comparaison entre modélisations hyperfines et rotationnelles soit la plus juste possible.

Modélisation hyperfine : chevauchement, transitions intra-multiplets

Avant de nous intéresser à la comparaison entre modélisation hyperfine et rotationnelle, arrêtons-nous un instant sur la modélisation hyperfine. Afin de pouvoir être confiant dans nos simulations, il y a deux points importants à traiter lorsque l'on s'intéresse à du transfert radiatif pour une structure hyperfine : la superposition des transitions hyperfines et la valeur des taux de collisions intra-multiplet ($\Delta J = \Delta K_a = \Delta K_c = 0$).

Superposition des transitions hyperfines. Le premier point important à considérer, et c'est tout particulièrement le cas pour H_2CO est la superposition des transitions.

Nous voyons dans le tableau 5.1 la position des 6 transitions hyperfines de la transition à 6 cm de ortho- H_2CO . Comme nous l'avons déjà dit, ces 6 transitions sont regroupées dans un intervalle de 30 kHz. Si l'on compte avec l'élargissement des raies spectrales (thermique, par exemple), certaines de ces raies vont se chevaucher.

Ceci est particulièrement important à prendre en compte dans les simulations numériques. En effet, considérer, ou non, ces chevauchements va changer totalement les valeurs des observables qui vont sortir des simulations.

L'explication est simple :

- Dans le cas où l'on ne considère pas le recouvrement de transitions, les photons créés par une des transitions hyperfines ne sont pas absorbés par la(les) transition(s) qui la chevauche(nt). Ces transitions sont considérées comme indépendantes et sont traitées comme deux transitions éloignées en fréquence, qui n'absorbent pas leur photons respectifs.
- Si nous considérons le recouvrement de transitions, les photons créés par une transition peuvent être absorbés par celles qui la chevauchent. Ainsi, ils participent à la population des niveaux hyperfins voisins et auront donc une influence sur l'état

d'excitation de la molécule. Il est à noter que le code MOLPOP que nous avons utilisé dispose d'un module prenant en compte le recouvrement des transitions.

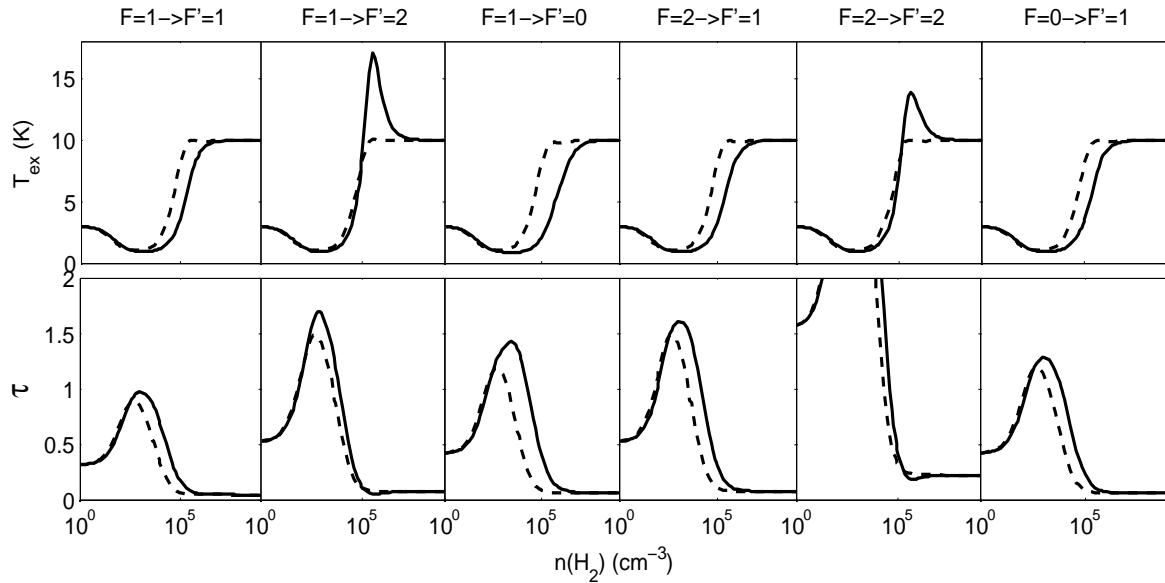


FIGURE 5.6 – Comparaison des modélisations hyperfines (taux de collision inter-multiplets suivant la loi statistique) en tenant compte des superpositions des transitions (tirets) et sans en tenir compte (traits pleins) pour chacune des 6 transitions hyperfines autorisées de la transition à 6 cm de ortho- H_2CO . Les panneaux du haut regroupent les résultats sur les températures d'excitation des transitions, ceux du bas les résultats sur les épaisseurs optiques.

Nous présentons figure 5.6 une comparaison de deux modélisations faites pour $T=10$ K, $N(H_2CO)=10^{14}$ cm^{-2} et $dv=0.29$ $km.s^{-1}$, avec pour seul projectile la molécule de para- H_2 . Nous y comparons les températures d'excitation (panneaux du haut) et les épaisseurs optiques (panneaux du bas) des 6 composantes hyperfines autorisées de la transition à 6 cm de ortho- H_2CO , pour une modélisation prenant en compte la superposition des transitions (tirets) et une modélisation où on ne les prend pas en compte (traits).

Cette figure montre qu'il existe des écarts significatifs entre les deux modélisations.

Si nous regardons les résultats concernant l'épaisseur optique des composantes hyperfines, celles-ci peuvent être différentes jusqu'à un facteur 2 pour certaines transitions.

La différence est encore plus flagrante dans le cas des températures d'excitation : si, pour 4 transitions ($1 \rightarrow 1$, $1 \rightarrow 0$, $2 \rightarrow 1$ et $0 \rightarrow 1$) le comportement des deux modélisations est similaire (augmentation puis saturation à haute densité), bien qu'avec des différences sur les valeurs des T_{ex} pouvant aller jusqu'à un facteur 2, nous voyons que pour les transitions $1 \rightarrow 2$ et $2 \rightarrow 2$ les comportements sont totalement différents.

Si dans le cas de la modélisation prenant en compte le chevauchement des raies la T_{ex} de ces transitions augmente puis sature à la température du milieu, ce n'est pas le cas de l'autre modélisation. En effet, dans ce cas, la T_{ex} augmente brusquement et anormalement jusqu'à 17 K puis diminue jusqu'à 10 K. Cela montre que lorsque nous ne prenons pas en compte la superposition de transition, il existe des inversions de population des niveaux hyperfins (effet Maser).

Nous voyons donc que les valeurs des observables dépendent grandement de l'inclusion de la superposition qui est essentielle.

Taux de collisions intra-multiplet ($JK_aK_c = J'K'_aK'_c$) La deuxième chose à considérer lorsque l'on fait un modélisation hyperfine est la valeur des taux de collisions intra-multiplet, *i.e.* entre niveau appartenant au même multiplet hyperfin JK_aK_c .

Afin de tester l'influence de la valeur des taux de collision intra-multiplets dans la modélisation, nous en avons inclus plusieurs ensembles dans notre modélisation et avons analysé les résultats.

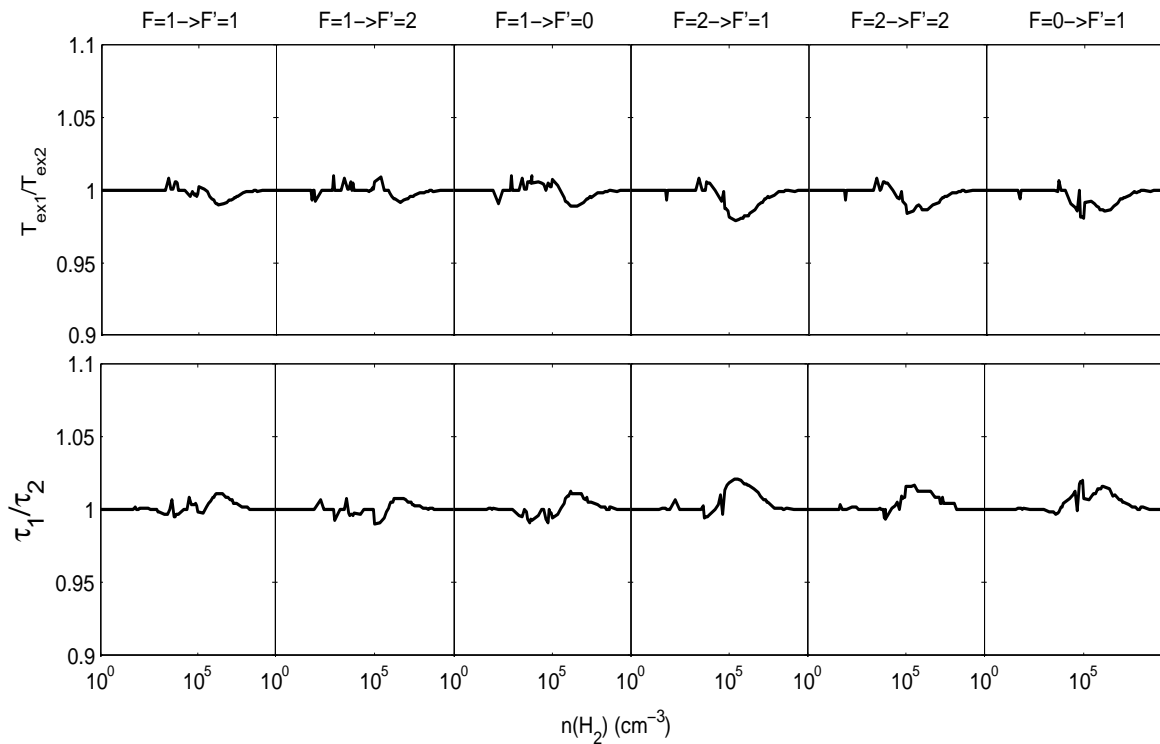


FIGURE 5.7 – Rapport les modélisations faites avec des taux intra-multiplet nuls (modélisation 1 : T_{ex1} , τ_1) et avec des taux intra-multiplets non-nuls(modélisation 2 : T_{ex2} , τ_2). En haut, rapport des températures d'excitation, en bas rapport des épaisseurs optiques.

Nous présentons dans la figure 5.7 une comparaison entre deux modélisations : une modélisation où l'on a supposé tous les taux de collisions intra-multiplets nuls (que l'on nommera modélisation 1, et les observables qui en découlent sont T_{ex1} , τ_1) et une modélisation où les taux intra-multiplets sont non-nuls, égaux au taux de désexcitation rotationnel impliquant le niveau JK_aK_c du multiplet hyperfin et le niveau rotationnel supérieur (que l'on nommera modélisation 2, et les observables qui en découlent sont T_{ex2} , τ_2). Cette valeur est de l'ordre de grandeur des taux de collision intra-multiplet dans le cas de N_2H^+ (Daniel *et al.* 2005 [29]).

La température est fixée à 10 K, $N(H_2CO)=10^{14} \text{ cm}^{-2}$, la largeur de raie à 0.29 km.s^{-1} et on ne considère que les collisions avec para- H_2 . Enfin, les panneaux du haut correspondent au rapport entre les T_{ex1} et T_{ex2} des différentes composantes hyperfines de la transition à 6 cm de ortho- H_2CO et les panneaux du bas aux rapports entre les différents τ_1 et τ_2 .

Nous voyons que l'écart entre les deux modélisations est très faible (inférieur à 2% dans le pire des cas). Ainsi, la valeur des taux de collisions intra-multiplets n'a que très peu d'influence sur les observables. Dans la suite de ce chapitre, nous avons utilisé les taux de collisions de la modélisation 2 pour la comparaison avec les modélisations rotationnelles.

Comparaison modélisation hyperfine/rotationnelle - Largeur de raie

Une fois traités tous les problèmes précédents, nous pouvons maintenant comparer les modélisations hyperfines et rotationnelles. Cela dit, il y a encore une difficulté à surmonter pour la comparaison : la largeur de raie. En effet, les observations nous permettent de résoudre les composantes hyperfines, et donc de déterminer leur largeur spectrale. Quelle est la largeur spectrale que nous devons donner à notre raie rotationnelle pour pouvoir comparer les deux approches ?

Il y a sans doute plusieurs choix pour celui de la largeur de raie rotationnelle. Cela dit, nous avons retenu deux possibilités qui nous semblaient les plus logiques :

1. On modélise l'observation hyperfine par une transition rotationnelle de même flux total (intégré sur les 6 composantes hyperfines) et de même intensité au pic.
2. On modélise l'observation hyperfine par une transition rotationnelle ayant la largeur intrinsèque de chaque composante hyperfine.

Dans les deux cas, on ne peut reproduire tous les paramètres de l'observation.

Considérons le cas où l'on garde le même flux et la même intensité au pic dans le cas rotationnel que dans le cas hyperfin.

Prenons, par exemple, une observation théorique donnant des raies hyperfines de largeur $0,29 \text{ km.s}^{-1}$ et une intensité au pic de la composante principale de $T_m = -2 \text{ K}$. En considérant les 6 transitions comme étant des gaussiennes, nous pouvons calculer le flux total de la transition : $F_{tot} = -1,392 \text{ K.km.s}^{-1}$.

Maintenant, considérons la transition rotationnelle ayant le même flux total F_{tot} et la même intensité au pic T_{pic} . En faisant l'hypothèse que :

$$F_{tot} = T_{pic} \Delta v \quad (5.24)$$

nous avons :

$$\Delta v = \frac{F_{tot}}{T_{pic}} \quad (5.25)$$

et donc $\Delta v = 0,69 \text{ km.s}^{-1}$.

La figure 5.8 présente les résultats de comparaisons faites pour de tels paramètres de raie. Nous avons comparé les résultats de la simulation rotationnelle avec deux ensembles différents de taux de collision, suivant la règle de sélection des poids statistiques, et suivant une règle *ad hoc*, $\Delta F = 0, \pm 1$. La température des simulations est fixée à 10 K, $N(H_2CO) = 10^{14} \text{ cm}^{-2}$. La première colonne de cette figure représente le rapport des températures d'excitation de chaque transition hyperfine avec la température d'excitation de la transition rotationnelle.

Pour comparer les épaisseurs optiques hyperfines et rotationnelles (deuxième colonne de la figure), nous avons suivi Daniel *et al.* 2006 [27] en comparant la somme des épaisseurs optiques hyperfines à l'épaisseur optique rotationnelle

Le résultat est le même pour les deux comparaisons. Une simulation rotationnelle dont les paramètres de raies sont telles que l'on conserve à la fois le flux total et l'intensité au pic de l'observation hyperfine induit des erreurs non négligeables dans la simulation. Nous

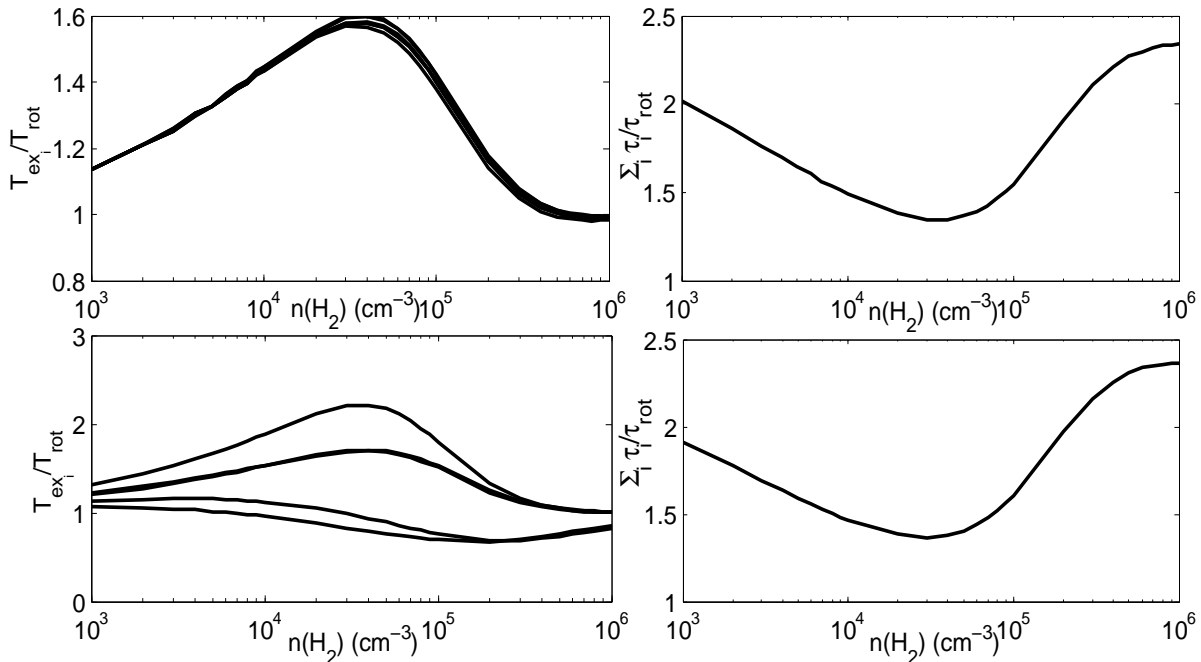


FIGURE 5.8 – Comparaison entre les températures d’excitation et les épaisseurs optiques modélisées des 6 composantes hyperfines ($\Delta v = 0,29 \text{ km.s}^{-1}$) et celles modélisées pour la transition rotationnel de même flux total ($\Delta v = 0,69 \text{ km.s}^{-1}$). Les panneaux du haut regroupent les résultats obtenus pour des taux de collisions hyperfins inter-multiplets suivant la loi des poids statistiques, ceux du bas pour des taux de collision hyperfins inter-multiplets suivant une règle de sélection *ad hoc* ($\Delta F = 0, \pm 1$).

voions dans la figure 5.8 que l’erreur faite dans l’estimation de la température d’excitation peut aller jusqu’à 110% pour certains ensemble de taux de collision (ici $\Delta F = 0, \pm 1$). L’erreur faite sur les épaisseurs optiques sont encore plus grandes, jusqu’à un facteur 2.3 pour de grandes densités.

Nous voyons donc que suivre cette méthode ne nous permet pas de comparer une simulation rotationnelle à une observation hyperfine.

Nous présentons dans la figure 5.9 une comparaison entre une modélisation rotationnelle et hyperfine pour une même largeur de raie, $\Delta v = 0.29 \text{ km.s}^{-1}$.

Nous voyons que lorsque nous considérons la même largeur de raie pour la modélisation rotationnelle et la modélisation hyperfine, l’erreur faite ne dépasse pas les 15%. Ce résultat signifie que, pour modéliser l’observation hyperfine, il faut considérer une modélisation rotationnelle comme venant d’un milieu avec les même conditions physiques que celles qui ont créées l’observation hyperfine, c’est à dire avec le même élargissement de raie.

5.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons évoqué un problème astrophysique particulier : l’absorption anormale de la transition fondamentale de ortho- H_2CO dans les nuages sombres, où aucune autre radiation que le fond diffus cosmologique ne peut être absorbée.

Nous avons présenté l’historique des observations de cette absorption et présenté l’explication théorique mise en place par Townes & Cheung 1960 [105], mettant en relief l’importance des collisions dans ce processus. Ce mécanisme, déjà prouvé avec l’atome de

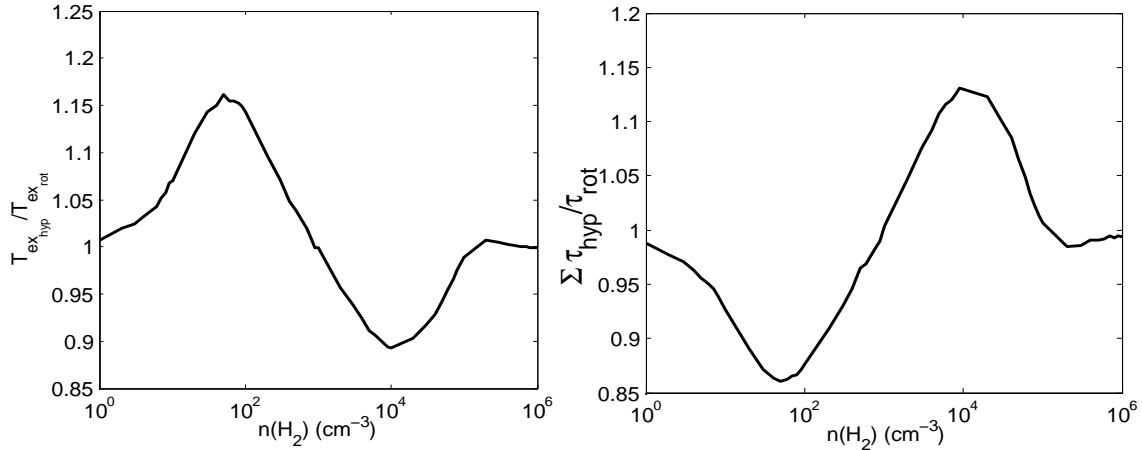


FIGURE 5.9 – Comparaison entre les températures d’excitation et les épaisseurs optiques modélisées des 6 composantes hyperfines ($\Delta v = 0,29 \text{ km.s}^{-1}$) et celles modélisées pour la transition rotationnelle de même largeur de raies. Les taux de collisions inter-multiplet hyperfins sont calculés suivant la loi des poids statistiques.

He par Garrison en 1975 [44] n’avait jamais été prouvé avec H_2 .

Avec un modèle de transfert radiatif (MOLPOP), nous avons modélisé cette absorption et montré l’importance des différences entre ortho- et para- H_2 : plus le milieu contient la forme para- de l’hydrogène moléculaire, plus l’absorption est forte. Le premier résultat est donc que *l’absorption anormale de ortho- H_2CO peut être utilisée comme sonde du rapport ortho-/para- de H_2 dans les milieux où H_2 n’est pas observable.*

Afin de pouvoir contraindre ce rapport, il faut des observables. Grâce aux composantes hyperfines de cette transition, il est possible de mesurer l’épaisseur optique totale de la transition. Comparer T_{ex} et τ_{tot} aux simulations numériques peut nous permettre de contraindre les conditions physiques du milieu, et en particulier la densité du milieu et sa température.

Enfin, nous avons montré qu’il était possible de modéliser les observations hyperfines par une modélisation rotationnelle, pourvu que cette modélisation rotationnelle utilise la même largeur de raie que les observations hyperfines.

Dans la suite de cette thèse, nous allons appliquer cette méthode à l’étude d’objets astrophysiques et essayer de contraindre le rapport ortho-/para- de H_2 au sein de ces objets.

Chapitre 6

Rapport Ortho/Para de H_2 : étude de B68, TMC-1 et L134N

Sommaire

6.1	Introduction	107
6.2	Observations existantes - Résolution spectrale	108
6.2.1	Résolution spectrale	108
6.2.2	Exemple d'observation	108
6.3	Observations menées : Green Bank Telescope	109
6.3.1	Caractéristiques générales	110
6.3.2	Caractéristiques des observations	111
6.4	Observations - Résultats	112
6.4.1	Barnard 68	112
6.4.2	L134N	114
6.4.3	TMC-1	116
6.5	Analyse des observations	118
6.5.1	Détermination des observables	118
6.5.2	B68	120
6.5.3	L134N	121
6.5.4	TMC-1	121
6.6	Détermination du rapport ortho/para de H_2	126
6.6.1	Effet des paramètres sur les simulations numériques	127
6.6.2	H_2 dans B68	129
6.6.3	H_2 dans L134N	131
6.6.4	H_2 dans TMC-1	132
6.7	Discussion des résultats	135
6.7.1	H_2 : densité, rapport ortho/para	135
6.7.2	H_2CO : densité de colonne, localisation de l'absorption anormale	137
6.8	Conclusion	138

6.1 Introduction

Dans tout le corps de cette thèse, nous avons successivement présenté les résultats sur les coefficients de collision que nous avons calculés, puis en quoi ces coefficients de

collision pouvaient être utiles à la détermination des conditions physiques au sein de sources particulières : les nuages sombres.

Nous avons particulièrement mis en exergue une des propriétés de la forme ortho du formaldéhyde : l'absorption anormale de la transition fondamentale de ortho-H₂CO à 6 cm du fond diffus cosmologique à 2,72 K. Nous avons vu comment utiliser cette absorption afin de contraindre les conditions physiques des sources et, en particulier, la densité du milieu (que nous assimilerons à la densité de H₂ dans toute la suite) et surtout le rapport ortho/para de H₂.

L'objet de ce chapitre est d'utiliser la méthode précédemment présentée sur des observations réelles, afin de déterminer le rapport ortho/para de sources où il n'est pas possible de l'observer directement. Nous allons tout d'abord présenter les observations existantes et les problèmes en résultant, puis les observations que nous avons menées et enfin les contraintes sur les conditions physiques que nous en avons déduit.

6.2 Observations existantes - Résolution spectrale

6.2.1 Résolution spectrale

Avant de nous intéresser aux observations proprement dites, ouvrons une parenthèse sur une des caractéristiques importantes des observations spectroscopiques auxquelles nous allons nous intéresser par la suite : *la résolution spectrale*.

Par définition, la résolution spectrale d'un détecteur est une mesure de sa capacité à résoudre des transitions. Elle est définie par :

$$R = \frac{\lambda}{\Delta\lambda} \quad (6.1)$$

où λ est la longueur d'onde d'observation et $\Delta\lambda$ est la plus petite différence en longueur d'onde pouvant être distinguée.

Pratiquement, cela signifie qu'à une longueur d'onde λ , un détecteur ayant une résolution spectrale R pourra séparer deux transitions différentes uniquement si elles ont des longueurs d'onde différentes d'au moins $\Delta\lambda$.

Un détecteur sera d'autant plus sensible qu'il aura une résolution spectrale grande, c'est-à-dire qu'il pourra différencier des transitions proches en longueur d'onde.

6.2.2 Exemple d'observation

Comme nous l'avons signalé dans le chapitre précédent, afin de pouvoir déduire des observations les conditions physiques qui nous intéressent, il nous faut deux observables : la température d'excitation T_{ex} et l'épaisseur optique de la transition τ .

Il se trouve que, grâce à ses propriétés de densitométrie et à la grande abondance de H₂CO dans le milieu interstellaire, il existe de nombreuses observations de cette transition. Il nous suffirait donc d'analyser des spectres publiés pour en déduire les observables.

Nous présentons dans la figure 6.1 des observations faites par Kalenskii *et al.* au télescope Arecibo en 2004. Nous y présentons aussi l'ajustement fait grâce à la méthode HFS du programme CLASS¹. Nous ne développerons pas le principe de cette méthode ici, elle fait l'objet du paragraphe 6.5.1.

1. <http://iram.fr/IRAMFR/GILDAS/>

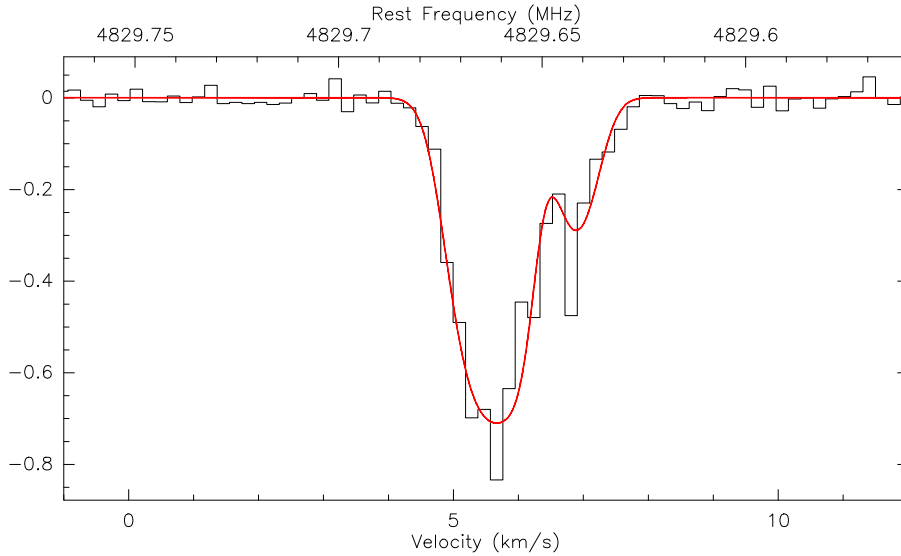


FIGURE 6.1 – Exemple de spectre de l’absorption anormale à 6 cm de ortho- H_2CO et de son ajustement. Objet : pic de cyanopolyyne de TMC-1, Kalenskii *et al.* 2004 [60].

A priori, à partir d’un bon ajustement, nous pouvons déterminer la valeur des deux observables. Cela dit, l’ajustement présenté dans cette figure n’est pas parfait : un pixel du pic principal n’est pas reproduit, ainsi qu’un pixel de l’aile à $\sim 7 \text{ km.s}^{-1}$.

Ces pixels sont-ils significatifs ? Nous ne pouvons pas le savoir avec l’observation en l’état, l’ajustement présenté est le meilleur que nous avons pu faire avec les données. Ceci est représentatif d’un des problèmes récurrents des observations de la transition à 4.8 GHz de ortho- H_2CO que l’on peut trouver dans la littérature : le manque de résolution spectrale.

Pour pouvoir déterminer les deux observables avec le plus de précision possible, il nous faut des observations où les transitions hyperfines sont suffisamment résolues, c’est-à-dire séparées. Il nous faut donc des observations faites avec un détecteur pouvant séparer les transitions hyperfines, ayant une résolution spectrale assez grande pour les séparer. En se référant au tableau 5.1, il nous faudrait en théorie un détecteur capable de distinguer des transitions séparées de $\sim 1 \text{ kHz}$ pour des observations faites à 4.8 GHz, soit ayant une résolution spectrale $R \sim 5 \times 10^6$. Ceci est évidemment théorique, la largeur intrinsèque des raies rendant impossible la séparation de toutes les composantes.

Une telle résolution n’est pas atteignable dans l’état actuel des technologies, donc résoudre parfaitement chacune des transitions hyperfines est impossible. Cela dit, atteindre une résolution spectrale plus faible, mais permettant d’identifier avec confiance les composantes hyperfines principales (ce qui n’est pas le cas du spectre de la figure 6.1) serait un plus non négligeable.

6.3 Observations menées : Green Bank Telescope

Ayant fait le bilan des observations existantes et leur manque de résolution spectrale, nous avons décidé de mener une campagne d’observation pour palier à ce problème, et ainsi avoir des spectres à partir desquels nous pourrions déterminer les observables avec

précision.

6.3.1 Caractéristiques générales

Les observations que nous avons menées ont été faite au Robert C. Byrd Green Bank Telescope (GBT) en Virginie Occidentale. Nous allons présenter succinctement ici les raisons pour lesquelles nous avons choisi ce télescope pour nos observations. Ce qui va être dit ici peut être retrouvé sur le guide des proposants du GBT².



FIGURE 6.2 – Robert C. Byrd Green Bank Telescope.

Flux collecté

Lors d'observations astrophysiques, plus nous pouvons collecter de flux lumineux grâce au réflecteur primaire d'un télescope, meilleures seront les observations. Ce flux collecté dépend typiquement de deux caractéristiques du télescope : sa surface collectrice et son efficacité d'ouverture, qui représente la fraction de la surface n'étant pas occultée et, ainsi, pouvant réfléchir le rayonnement, mais qui tient aussi compte des imperfections de la surface par rapport à une parabole parfaite.

Avec une surface de 100 m de diamètre, le GBT est l'un des plus grands radiotélescopes du monde (derrière le télescope d'Arecibo qui, lui fait 300 m de diamètre). Sa structure particulière, avec le réflecteur secondaire hors axe lui permet une efficacité d'ouverture grande par rapport aux autres télescopes (voir figure 6.3). Il est à noter qu'à la fréquence où l'on observe (4.8 GHz), l'efficacité d'ouverture est très grande : $\eta_a = 0.71$.

Ainsi nous avons pu collecter le maximum de flux des sources que nous avons observées.

2. <http://www.gb.nrao.edu/gbtprops/man/GBTpg.pdf>

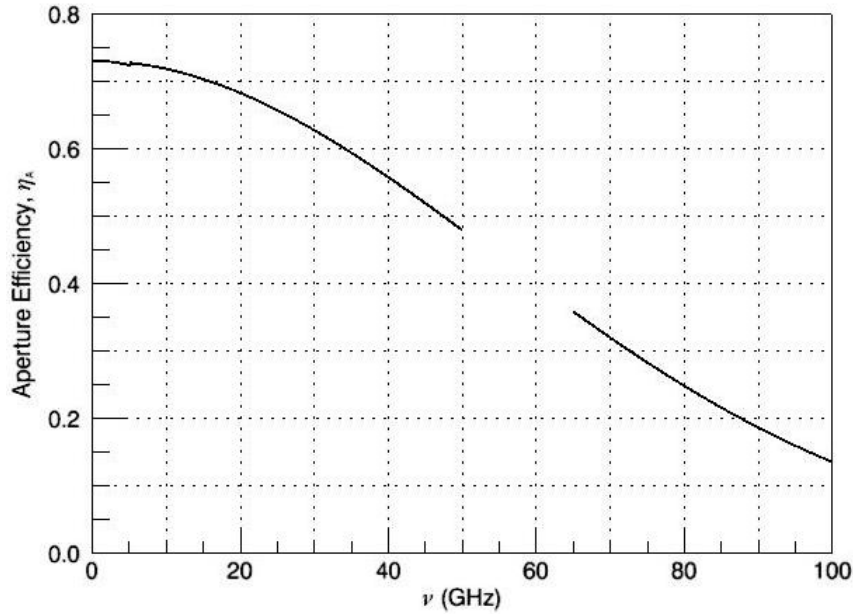


FIGURE 6.3 – Efficacité d’ouverture du GBT en fonction de la fréquence d’observation.

Taille de lobe

La surface collectrice du télescope entre aussi en compte dans une autre caractéristique du télescope : la taille du lobe d’observation (FWHM pour *Full Width at Half Maximum*). Cette taille de lobe correspond à la résolution angulaire de l’observation.

Cette valeur dépend de la fréquence d’observation : plus la fréquence augmente, plus le lobe est petit. Pour le GBT, la taille du lobe peut être calculée comme suit :

$$\text{FWHM} = \begin{cases} \frac{747.6 \rightarrow 763.800''}{f_{GHz}} & f_{GHz} > 1 \text{ GHz} \\ \frac{763.8 \rightarrow 797.400''}{f_{GHz}} & f_{GHz} < 1 \text{ GHz} \end{cases} \quad (6.2)$$

Pour nos observations à 4.8 GHz, la taille du lobe du GBT est de 152''.

6.3.2 Caractéristiques des observations

Nous avons donc demandé du temps de télescope au GBT, demande classée A en avril 2008. Les observations ont été faites en deux parties : du 02 septembre 2009 au 10 septembre 2009, puis le 17 octobre 2009.

Pour ces observations, nous avons utilisé le GBT équipé du récepteur en bande C (3.95-6.1 GHz) relié à un auto-corrélateur à 9 niveaux, nous permettant ainsi de ne pas perdre de sensibilité lorsque les intensités sont faibles. Avec cette configuration, et à cette longueur d’onde, la résolution spectrale est de 762.9 Hz (0.047 km.s^{-1} à la fréquence d’observation).

Comme nous l’avons dit, à 4.8 GHz, la taille du lobe du télescope est de 152''. De plus, l’efficacité du lobe principal du télescope est $\eta_{mb} = 0.97$, correspondant à la fraction du flux collecté venant du lobe principal du télescope.

Profitant du fait qu’il n’y ait aucune autre transition moléculaire à des fréquences proches de celle d’observation, nous avons utilisé le mode d’observation « frequency-

switching », avec un écart de 100 MHz entre la fréquence d'observation et la fréquence de référence.

Enfin, nous avons utilisé la procédure TRACK du logiciel ASTRID du GBT afin de pouvoir suivre la source tout au long du temps d'intégration.

6.4 Observations - Résultats

Nous allons présenter dans ce paragraphe les sources que nous avons choisies d'observer ainsi que les spectres que nous avons obtenus.

Nous nous sommes focalisés sur trois types de nuages sombres, à différents stades d'évolution, ce qui nous permettra de comprendre les différences entre ces types de nuages : B68, TMC-1, L134N.

Dans toute la suite, les barres verticales que nous indiquons sur les spectres correspondent aux positions et aux intensités relatives théoriques des 6 composantes hyperfines de la transition à 6 cm.

6.4.1 Barnard 68

Généralités



FIGURE 6.4 – Image composite de B68, prise à $0.44 \mu\text{m}$, $0.55 \mu\text{m}$, $0.90 \mu\text{m}$. Voir Alves *et al.* 2001 [1] pour plus de détails.

La première source sur laquelle nous nous sommes penchés est le cœur préstellaire Barnard 68 (B68). Située à ~ 125 pc avec un diamètre apparent de $\sim 120''$ (Bergin *et al.* 2006 [7]), B68 est l'un des cœurs préstellaires les plus étudiés.

Il est communément admis qu'il s'agit du prototype même du cœur sur le point de s'effondrer. Les études de structure physique (Alves *et al.* 2001 [1]) ont conclu que la structure en densité de ce nuage se rapproche fortement d'une sphère de Bonnor-Ebbert (voir figure 6.5), profil en densité d'une sphère isotherme en équilibre hydrostatique dans

un champ de pression extérieur P_0 . Cette sphère s'effondre seulement si le critère de stabilité $\frac{dP_0}{dR} < 0$ (où R est le rayon de la source) n'est pas vérifié.

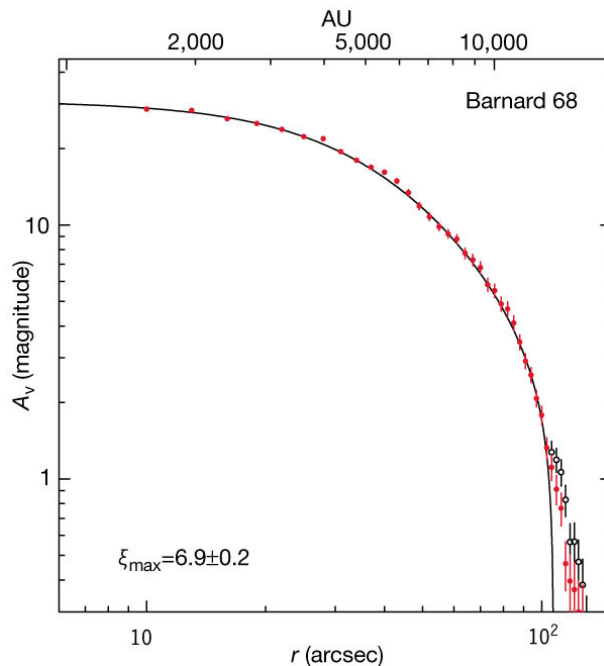


FIGURE 6.5 – Evolution de l'extinction visuelle du milieu en fonction de la distance au centre, déterminée par une étude de comptage d'étoile. Voir Alves *et al.* 2001 [1] pour plus de détails.

De plus Alves *et al.* ont estimé la densité au centre de l'objet aux alentours de $n(H_2) \sim 6 \times 10^5 \text{ cm}^{-3}$ et, en faisant l'hypothèse d'un objet sphérique, une densité de l'enveloppe externe aux alentours de $n(H_2) \sim 2 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$.

En plus des études de comptage d'étoiles, de nombreuses études spectroscopiques ont été menées sur cet objet, contraignant la majorité des conditions physiques du milieu.

Ainsi, la structure en température a été contrainte par des études des transitions de CO et de ses isotopologues, donnant une gamme entre 7 K au centre et 12 K dans les couches les plus externes (Bergin *et al.* 2006 [7]).

La structure en vitesse de l'objet a été étudiée grâce aux transitions de CO, HCO^+ et leurs isotopologues aussi bien que N_2H^+ (Maret *et al.* 2007 [75]), résultant en une structure bien particulière : un cœur en expansion et des couches externes en effondrement.

Le fait que ce soit un objet bien connu, ainsi qu'un prototype des coeurs pré-stellaires fait de B68 une cible intéressante pour notre étude. Ainsi, si nous arrivons à connaître l'état de spin de l'hydrogène moléculaire, nous connaissons la majorité des conditions physiques du milieu, et ainsi avancerons dans la compréhension de la première étape de l'évolution stellaire.

Observations

Nous présentons dans la figure 6.6 l'observation effectuée sur B68 lors de notre campagne. Elle a été faite aux coordonnées R.A. = $17^h 22^m 38.2^s$, Dec. = $-23^\circ 49' 34''$ [J2000] à une fréquence de 4.82966 GHz et est une moyenne de 4 scans de 10 minutes, soit un temps d'intégration total de 40 minutes.

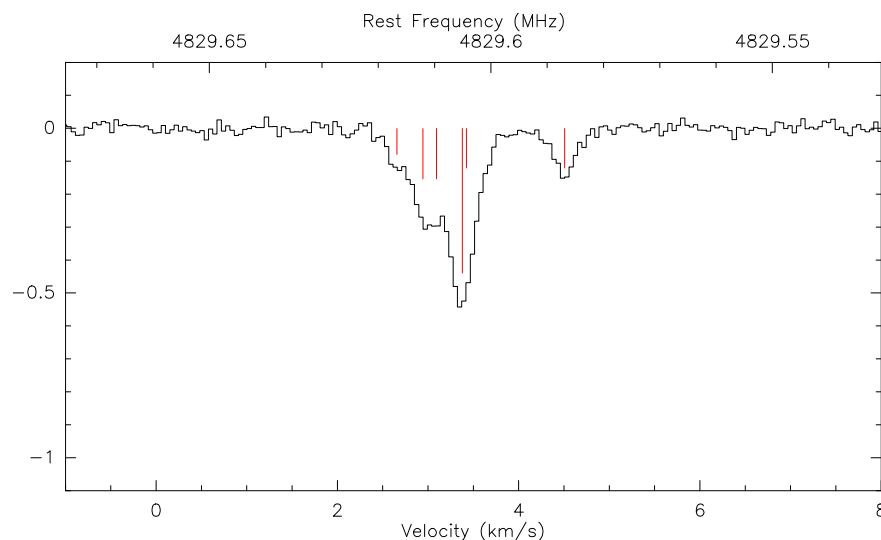


FIGURE 6.6 – Spectre observationnel de la transition à 4.82966 GHz de ortho- H_2CO dans B68

Nous avons obtenu un rapport signal sur bruit de 25 avec un bruit rms sur la température d'antenne de $\sigma = 0.03$ K.

De plus, la résolution spectrale de l'observation nous permet de résoudre les 4 composantes hyperfines principales de la transition rotationnelle, ce qui va nous permettre de déterminer avec précision les observables. Nous avons indiqué dans la figure 6.6 les positions théoriques des composantes hyperfines, qui correspondent parfaitement aux pics du spectre observationnel.

6.4.2 L134N

Généralités

La seconde source que nous avons observé est L134N (ou L183), située à environ 100 pc (Franco *et al.* 1989 [42]).

Les observations menées sur cet objet semblent indiquer qu'il s'agit d'un nuage très froid : les observations faites sur N_2H^+ et N_2D^+ par Pagani *et al.* (2007) [89] semblent montrer une température du cœur du nuage aux alentours de 7 K. De plus, la même étude montre que la densité régnant au centre de cette source est élevée, aux alentours de 10^6 cm^{-3} . Cela dit, des études plus anciennes (citons par exemple Dickens *et al.* 2000 [30]) se basant sur des observations de NH_3 , HC_3N , CS et N_2H^+ trouvent des résultats différents : une température de 10 K et une densité plus faible au centre, aux alentours de 2×10^4 cm^{-3} .

De plus, une étude récente a tenté de déterminer la valeur du rapport ortho/para de H_2 dans cette source (Pagani *et al.* 2009 [91]) grâce aux observations de N_2H^+ , N_2D^+ et H_2D^+ et à un modèle de chimie. Il détermine ainsi que les valeurs de ce rapport se situent entre 0.01 et 0.1. Avoir un point de comparaison par une méthode observationnelle est ainsi une bonne opportunité.

Observations

Nous avons effectué ces observations le 17 octobre 2009. Nous avons fait deux points d'observation sur cette source, une au centre, de coordonnées R.A. = $15^h54^m12.2^s$, Dec. = $-02^\circ49'42''$, et une en décalant la télescope de $2.5'$ en ascension droite.

Le premier spectre que nous présentons dans la figure 6.7 est une moyenne de 3 observations pour un total de 40 minutes d'intégration, le deuxième est une moyenne de 3 observations, pour un total de 30 minutes d'intégration.

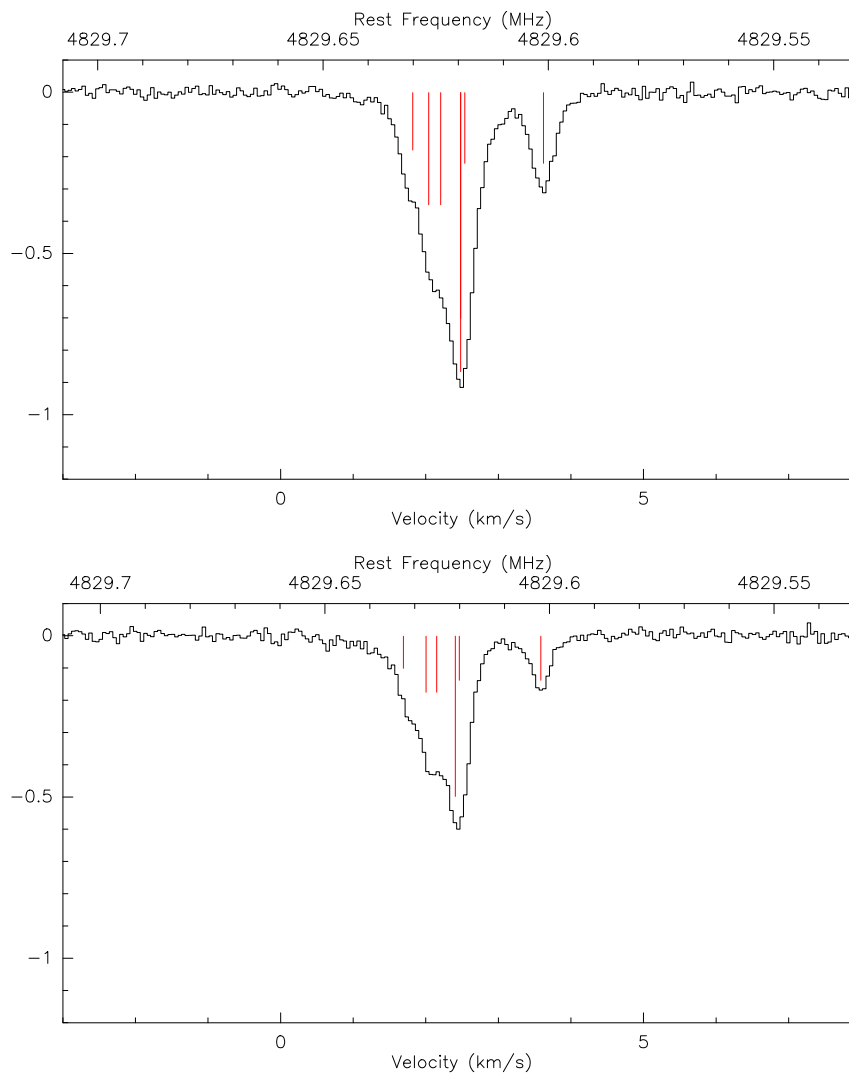


FIGURE 6.7 – Observations effectuées sur L134N. En haut, sur la position de référence, en bas le télescope décalé de $2,5'$ en ascension droite.

En guise de première analyse, nous pouvons voir sur la figure 6.7 que lorsque nous décalons le télescope de la source, l'intensité diminue, mais ne disparaît pas. Cela peut signifier qu'un halo de H_2CO s'étend à des distances relativement étendues autour de l'objet.

De plus, nous remarquons que les composantes hyperfines de cet objet ne sont pas aussi résolues que dans le cas de B68. Cela peut provenir des turbulences au sein de la source, qui élargissent les raies spectroscopiques et qui, par conséquent, brouillent le spectre. En

effet, une première analyse faite sur la composante hyperfine la plus isolée montre que la largeur des raies des observations de L134N est à peu près deux fois plus grande que celle des raies observées dans B68.

6.4.3 TMC-1

Généralités

Enfin, la dernière source que nous avons observée est le nuage moléculaire 1 du Taureau (TMC-1 pour *Taurus Molecular Cloud 1*), situé à ~ 140 pc. Tout comme B68, il s'agit d'un nuage moléculaire bien connu, qui a été le sujet de nombreuses études ayant pour but de contraindre ces conditions physiques.

Citons par exemple l'étude détaillée faite par Pratap *et al.* (1997) [95] qui effectuent des observations de nombreuses molécules comme CH_3CCH , NH_3 , HC_3N et CO . De ces observations, ils contraignent la température du nuage à $10\text{ K} \pm 2\text{ K}$ et la densité du milieu entre $5,6 \times 10^3\text{ cm}^{-3}$ et $2 \times 10^5\text{ cm}^{-3}$.

Contrairement à B68 qui est relativement peu étendu ($\sim 2' \times 2'$), TMC-1 est un nuage moléculaire se trouvant sous la forme d'un bras étendu ($\sim 5' \times 15'$). De plus, des structures en densité sont observées le long de ce bras, caractérisées par des pics d'émission de certaines molécules. Ainsi, Pratap *et al.* (1997) se réfèrent à trois pics d'émission différents : le pic de cyanopolyine HC_3N , le pic d'ammoniac NH_3 et le pic de monoxyde de soufre SO .

De nombreuses molécules ont été détectées au sein de cet objet. Citons par exemple les anions (C_8H^- , Brünken *et al.* 2007 [16]), les molécules métalliques ($MgNC$, $AlNC$, Turner *et al.* 2005 [110])... Des études sur de larges bandes de fréquence ont été menées, comme celle de Kaifu *et al.* (2004) [60], qui ont permis la détection de 38 molécules dans une gamme de fréquence entre 8.8 et 50 GHz. Enfin, notons que la plus grande chaîne carbonée a été détectée dans cette source par Kalenskii *et al.* (2004) [60], $HC_{11}N$, observations qui ont aussi montré l'existence de H_2CO dans le pic de cyanopolyine.

Toutes ces observations de chaînes carbonées montrent une des caractéristiques de TMC-1 : il s'agit d'un nuage moléculaire jeune, contrairement à B68, qui, lui, est sur le point de s'effondrer. En effet, les modèles de chimie montrent que l'abondance des chaînes carbonées augmente dans les premiers stades du nuage moléculaire. Puis, plus le temps passe, plus cette abondance diminue.

Ainsi, comparer les deux résultats pourrait s'avérer très intéressant dans la compréhension de l'évolution dans le temps de la valeur du rapport ortho/para de H_2 dans les nuages sombres.

Observation

Comme nous l'avons dit, TMC-1 est une source très étendue, bien plus étendue que la taille du lobe du GBT. C'est pourquoi nous avons pu pointer différents endroits de cette source afin de pouvoir faire une carte de l'absorption de la transition à 4.8 GHz de ortho- H_2CO . Les observations ont été effectuées lors de notre première phase d'observation, du 2 septembre au 10 septembre 2009.

Nous avons pu faire 15 points d'observation sur cette source. La position de référence a été prise sur le pic de cyanopolyine de coordonnées : R.A. = $4^h 41^m 42.49^s$, Dec. = $25^\circ 41' 26.95''$ [J2000]. Chacun des 14 points suivants a été pris tel que chaque point d'observation est séparé d'un diamètre du lobe des autres points d'observation ($2.5'$).

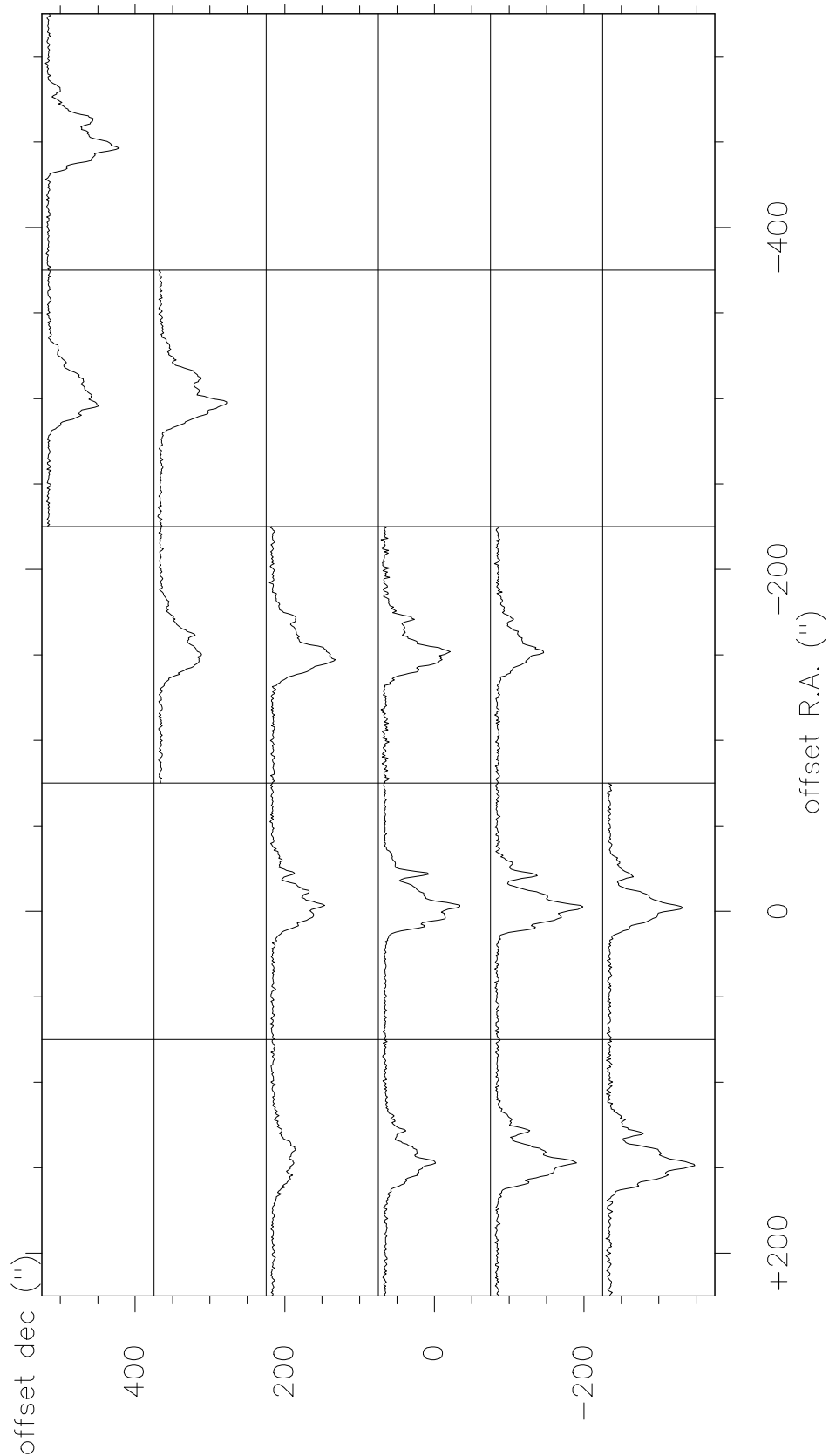


FIGURE 6.8 – Spectres obtenus lors des observations de TMC-1 à 4.82966 GHz. Les offsets sont donnés en seconde d’arc.

Chaque spectre est le résultat de moyennes faites sur plusieurs observations, d’une

durée totale se situant entre 15 min et 1 heure.

On atteint ainsi un rapport signal sur bruit de 30, et même allant jusqu'à 40 pour la position de référence.

Nous présentons dans la figure 6.8 les spectres résultant des observations en fonction de la position des points par rapport à la référence. Le point ($0'',0''$) correspond à la position de référence, nous déterminons les coordonnées des autres points par deux offsets : un sur l'ascension droite, l'autre sur la déclinaison. L'échelle en flux et en vitesse sont les mêmes sur chacun des spectres : $-1.5 \text{ K} < T_a^* < 0.1 \text{ K}$ en ordonnée, $1 \text{ km.s}^{-1} < V_{lsr} < 10 \text{ km.s}^{-1}$ en abscisse.

La première chose que nous pouvons déduire de ces observations est la variation de l'intensité de l'absorption en fonction de la position. Il y a trois possibilités que cette intensité varie selon où on se trouve dans le nuage : soit le rapport ortho/para de H_2 varie, soit il s'agit de la densité de H_2 , soit de l'abondance de H_2CO . La deuxième chose que nous observons est la différence entre ces spectres et le spectre obtenu pour B68, par exemple : si la structure hyperfine est bien présente dans le cas de TMC-1, les spectres semblent beaucoup plus compliqués. En effet, si nous prenons par exemple le spectre ($0'', 150''$), nous voyons une série de 7 pics, ce qui est plus que ce que nous attendions.

6.5 Analyse des observations

6.5.1 Détermination des observables

Nous allons présenter dans ce paragraphe la méthode d'analyse des spectres observationnels obtenus ainsi que la détermination des valeurs des observables. Il est à noter que, pour ajuster les spectres, il nous faut tout d'abord retirer la ligne de base des spectres. Dans le cas de toutes nos observations, la ligne de base a été correctement corrigée par un polynôme de degré 1 et a été retirée.

La méthode HFS du logiciel CLASS

Une fois que nous avons obtenu les observations spectroscopiques, il nous faut pouvoir les analyser. Le premier pas dans l'analyse de telles observations est de pouvoir déterminer les valeurs des observables, qui sont, dans notre cas, la température d'excitation T_{ex} et l'épaisseur optique τ au centre de chaque composante hyperfine.

Comme nous l'avons présenté dans le chapitre précédent, les deux observables vont être déterminées grâce à la structure hyperfine de la transition.

Pour cela, nous avons utilisé la méthode HFS de CLASS. Cette méthode consiste à ajuster l'ensemble des composantes hyperfines en même temps, connaissant leur position et leur intensité relative. Les valeurs que nous avons utilisées peuvent être trouvées dans le tableau 5.1.

Pour pouvoir ajuster correctement le spectre, cette méthode pose plusieurs hypothèses :

1. Toutes les composantes hyperfines ont la même température d'excitation.
2. Le profil de l'épaisseur optique est une gaussienne de la fréquence. Cette hypothèse vient du fait que l'épaisseur optique au centre de chaque composante est dépendante du profil de la raie, supposée gaussienne en fréquence.
3. Toutes les raies ont la même largeur.

4. Les composantes hyperfines ne se chevauchent pas.
5. La température du lobe principal du télescope est bien défini pour la source.

Dans le cas qui nous intéresse, la majorité des hypothèses sont vérifiées, sauf celle concernant le chevauchement des raies. Ce n'est pas vraiment un problème dans l'analyse des spectres que nous avons : l'épaisseur optique attendue est faible. Il nous faudra juste faire attention aux ajustements que CLASS fera.

En lui spécifiant la position relative des composantes hyperfines, la méthode HFS peut calculer la vitesse relative du multiplet.

Les intensités relatives, quant à elles, permettent de calculer à la fois T_{ex} et τ . Il est à noter que cette méthode ne donne pas directement ces deux observables, elles donnent : $T_{a_m}^* \times \tau_m$ et τ_m , où τ_m et $T_{a_m}^*$ sont respectivement l'épaisseur optique et la température d'antenne de la transition hyperfine principale, du fait de la normalisation adoptée pour les intensités relatives.

Le calcul de l'épaisseur optique de la composante hyperfine principale est fait par comparaison entre les valeurs théoriques des intensités et celles observées. Si les rapports sont différents, cela signifie qu'une ou plusieurs transitions sont épaisses, ce qui permet de déterminer les valeurs des opacités.

Observables

Comme nous avons dit, la méthode HFS ne nous donne pas les observables directement, mais plutôt τ_m et T_a^* . Il nous faut donc trouver le moyen de passer de ces valeurs aux observables proprement dites.

Epaisseur Optique totale. Une des observables que nous allons reproduire par simulation numérique n'est pas l'épaisseur optique de la composante principale de la transition à 4.8 GHz, mais l'épaisseur optique totale de la transition :

$$\tau_{tot} = \sum_i \tau_i \quad (6.3)$$

où τ_i est l'épaisseur optique de la transition hyperfine i .

Le tout est de pouvoir calculer les épaisseurs optiques de toutes les composantes hyperfines de la transition. En suivant Martin & Barret (1978) [78], celles-ci peuvent se calculer à partir de l'épaisseur optique de la composante principale et de l'intensité relative des composantes hyperfines :

$$\tau_i = R_i \tau_m \quad (6.4)$$

où R_i est le poids relatif de la transition hyperfine i par rapport à la composante principale.

Ainsi, l'épaisseur optique totale de la transition se dérive simplement :

$$\tau_{tot} = \sum_i R_i \tau_m \quad (6.5)$$

Température d'excitation. La méthode HFS de CLASS nous donne la température d'antenne de la transition. Il nous faut obtenir la température d'excitation observationnelle, afin de pouvoir la comparer à nos simulations numériques.

Il existe pour cela une formule donnant la température d'excitation de la transition en fonction de la température d'antenne (voir Martin & Barrett, 1978 [78]) :

$$T_{a_i}^* = \eta_{mb} f (J(T_{ex}) - J(T_{bg})) (1 - \exp(-\tau_i)) \quad (6.6)$$

où η_{mb} est l'efficacité du lobe principal du télescope, correspondant à la fraction de flux mesuré venant du lobe principal du télescope, f le facteur de dilution de la source dans le lobe, T_{bg} la température de la radiation absorbée (ici 2.72 K) et $J(T)$ la fonction de Planck à la température T , de forme :

$$J(T) = \frac{h\nu}{k} \frac{1}{\exp\left(\frac{h\nu}{kT}\right) - 1} \quad (6.7)$$

où h est la constante de Planck, k la constante de Boltzmann, ν la fréquence de la transition.

Dans le cas des grandes longueurs d'onde, comme c'est le cas dans nos observations, nous pouvons utiliser l'approximation de Rayleigh-Jeans :

$$T_{a_i}^* = \eta_{mb} f (T_{ex} - T_{bg}) (1 - \exp(-\tau_i)) \quad (6.8)$$

Dans le cas d'observation à 4.8 GHz au GBT, l'efficacité du lobe principal est très grand : $\eta_{mb} = 0.97$, ce qui induit une correction minimale. Le vrai problème vient du facteur de remplissage du lobe, qui sera discuté pour chaque source.

Ainsi, nous voyons que nous pouvons déterminer les valeurs des deux observables à partir des valeurs des paramètres de sortie de la méthode HFS de CLASS.

6.5.2 B68

Nous allons présenter ici les résultats de l'ajustement HFS de CLASS ainsi que la valeur des observables que nous en déduisons. La figure 6.9 présente l'ajustement effectué grâce à cette méthode.

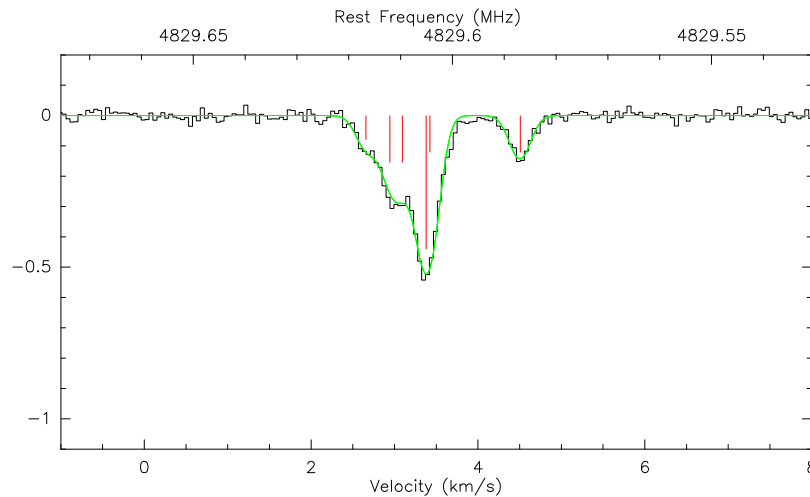


FIGURE 6.9 – Ajustement HFS de l'observation faite sur B68. En rouge l'ajustement. Les lignes verticales représentent la position théorique des composantes hyperfines de la transition.

Nous voyons sur cette figure que même si nous ne satisfaisons pas toutes les hypothèses de la méthode HFS, l'ajustement des composantes hyperfines est très bon. Toutes les composantes sont reproduites, l'erreur faite sur l'ajustement est de l'ordre de $\sim 10^{-2}$ K.

T_a^* (K)	V_{LSR} (km.s ⁻¹)	Δv (km.s ⁻¹)	T_{ex} (K)	τ_{tot}
-0.441 ± 0.036	3.374 ± 0.003	0.294 ± 0.007	$1.63_{-0.25}^{+0.19}$	1.29 ± 0.19

TABLE 6.1 – Paramètre de l’ajustement de la transition $1_{11} \rightarrow 1_{10}$ de ortho-H₂CO à 4.82966 GHz pour B68, déduit de l’ajustement HFS de CLASS

Nous voyons donc que grâce à de très bonnes observations, nous avons un ajustement très correct du spectre qui va nous donner des valeurs avec des barres d’erreur faibles.

Nous présentons dans le tableau 6.1 les paramètres de l’ajustement déduits de la méthode HFS de CLASS ainsi que les valeurs des observables calculées à partir de ces valeurs.

Au vu de l’extension spatiale de B68 ($\sim 2'$) et de la taille du lobe du GBT a cette fréquence ($\sim 2.5'$), nous avons choisi un facteur de remplissage du lobe $f = 1$.

6.5.3 L134N

Les ajustements faits sur les spectres d’observation de L134N sont présentés dans la figure 6.10.

Le tableau 6.2 regroupe les paramètres des ajustements. Tout comme pour B68, de par l’extension spatiale de L134N, nous avons considéré un facteur de remplissage du lobe de 1. Il est à noter que nous trouvons des vitesses propres équivalentes aux observations NH₃ (voir Pagani *et al.* 2007, [89]).

offset(" , ")	T_a^* (K)	V_{LSR} (km.s ⁻¹)	Δv (km.s ⁻¹)	T_{ex} (K)	τ_{tot}
(0,0)	-1.121 ± 0.018	2.474 ± 0.002	0.401 ± 0.002	$1.52_{-0.05}^{+0.08}$	2.36 ± 0.09
(+2.5,0)	-0.765 ± 0.082	2.409 ± 0.003	0.376 ± 0.009	$1.91_{-0.07}^{+0.15}$	2.28 ± 0.15

TABLE 6.2 – Récapitulatif des paramètres de l’ajustement des deux points d’observation sur L134N

Nous remarquons que les ajustements des deux spectres ne sont pas parfaits. Cela dit, il s’agit des meilleurs ajustements possibles en ne considérant qu’une seule composante en vitesse. Comme aucune autre observation ne permet de conclure à la présence de plusieurs composantes de vitesse, nous garderons ces ajustements pour la suite.

6.5.4 TMC-1

Attachons-nous enfin à présenter les résultats des ajustements des spectres obtenus sur TMC-1.

Comme nous l’avons déjà remarqué précédemment, les spectres obtenus pour TMC-1 semblent plus complexes que pour B68 ou L134N. En effet, certains spectres ont un nombre de pics d’absorption supérieur au nombre de composantes hyperfines contenues dans la transition.

Prenons par exemple le spectre obtenu au point de référence. Nous présentons dans la figure 6.11 le spectre brut (notons par ailleurs qu’il s’agit du même point d’observation que dans la figure 6.1, nous pouvons donc remarquer le gain en résolution spectrale) et deux ajustements faits en ne considérant qu’une composante en vitesse. Le premier ajustement

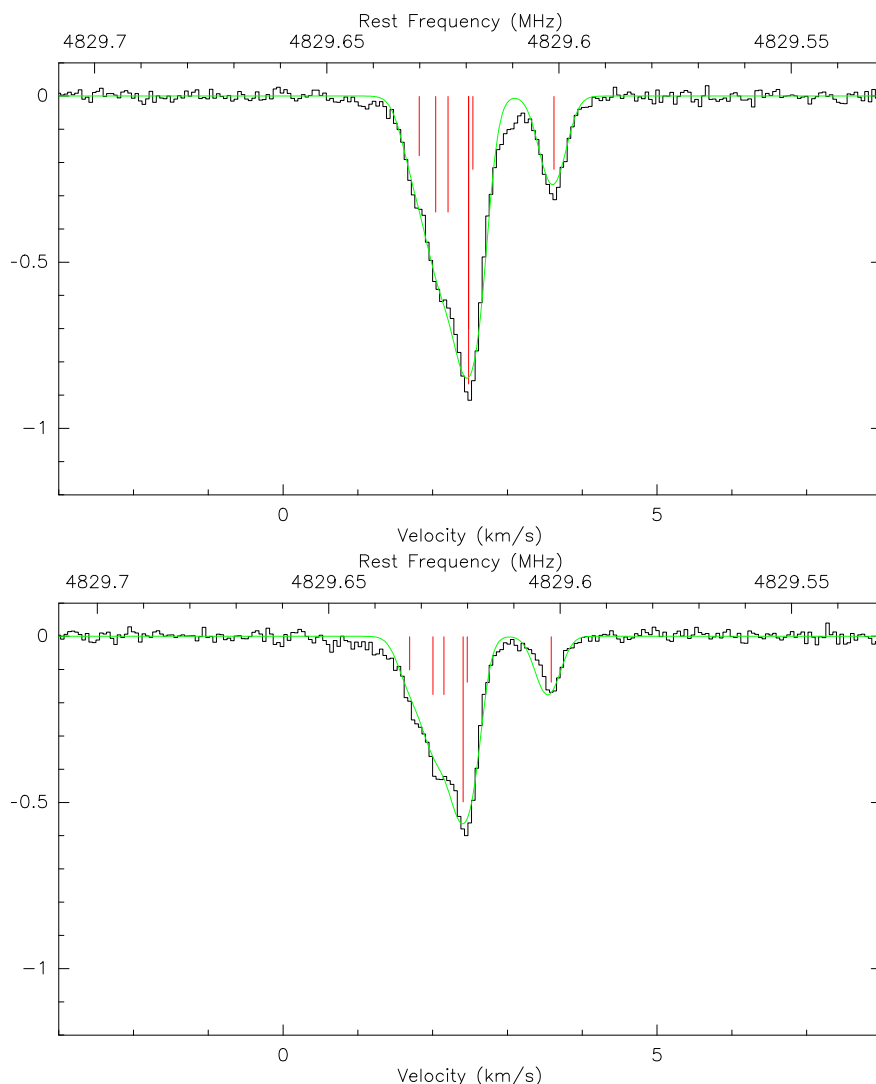


FIGURE 6.10 – Ajustement des spectres obtenus sur L134N. A gauche le spectre sur la position de référence, à droite décalé de $2.5'$ en ascension droite.

tient en compte toute la raie, le deuxième ne considère que les pics avec une petite largeur de raie.

Nous voyons clairement qu'un ajustement en ne tenant compte que d'une seule composante en vitesse ne reproduit pas correctement le spectre. Il nous faut considérer qu'il y a 2 voire plusieurs composantes. En effet, comme nous allons le présenter dans la suite, sur les 15 spectres, 7 doivent être ajustés par deux composantes en vitesse, les 8 autres par trois composantes.

Spectres à deux composantes

La première famille de spectres obtenue lors de notre campagne d'observation sur TMC-1 nécessite deux composantes en vitesse différentes pour pouvoir donner de bons ajustements. Ces observations concernent les points situés à des offsets R.A. = $[+150'', -150'']$, Dec. = $[-300'', 0'']$, excepté le point [R.A. = $150''$, Dec. = $0''$].

Comme nous pouvons le voir sur la figure 6.12, chacun des 7 spectres est très bien

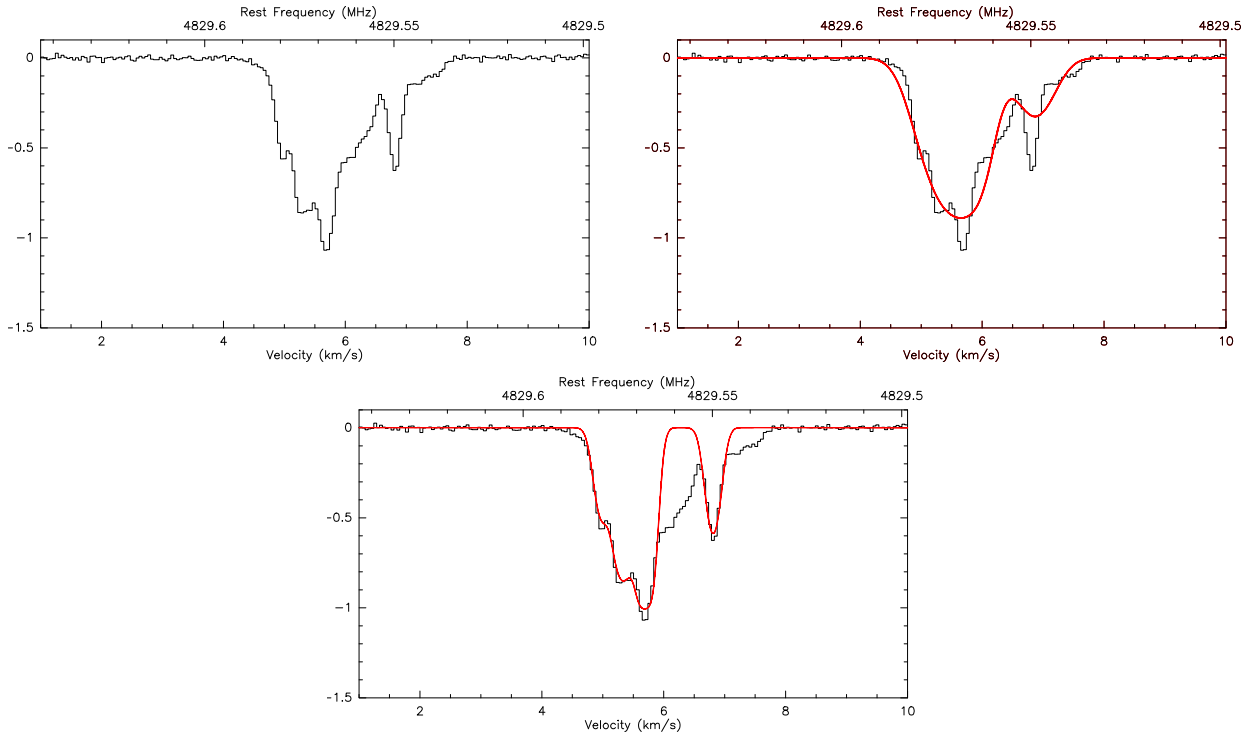


FIGURE 6.11 – Spectre observationnel obtenu pour le point de référence. En haut à gauche, le spectre brut, en haut à droite l’ajustement fait en tenant compte de toute la raie, en bas en ne tenant pas compte des ailes.

ajusté avec deux composantes en vitesse, indiquant qu’il y aurait deux sources sur la ligne de visée. Les paramètres de l’ajustement ainsi que les valeurs des observables pour chacun des points de chacune des sources sont résumés dans les tableaux 6.3 et 6.4.

Spectres à trois composantes

La deuxième famille de spectres nécessite trois composantes en vitesse pour être ajustés. Notons que tous ces spectres sont regroupés à des offsets R.A. = $[-300'', +150'']$ et Dec. $> +150''$, plus le point à $[R.A. = -150'', Dec. = 0'']$. Les paramètres des ajustements sont regroupés dans les tableaux 6.3, 6.4, 6.5.

Paramètre des ajustements

Nous discutons ici les paramètres des ajustements pour les trois objets que nous avons différenciés lors de l’analyse des spectres. Chacun de ces objets a une vitesse propre différente : $5.5 \text{ km.s}^{-1} < V_{\text{LSR}} < 5.7 \text{ km.s}^{-1}$ (objet 1), $5.8 \text{ km.s}^{-1} < V_{\text{LSR}} < 6.2 \text{ km.s}^{-1}$ (objet 2) et $5.1 \text{ km.s}^{-1} < V_{\text{LSR}} < 5.4 \text{ km.s}^{-1}$ (objet 3).

Tout d’abord, comme dans les autres sources, et au vu de l’extension spatiale de TMC-1 (bien plus grand que le lobe du télescope), nous avons utilisé un facteur de remplissage de lobe de 1 afin de pouvoir déterminer la température d’excitation des observations.

Il est à noter que différentes composantes en vitesse de TMC-1 ont déjà été identifiées grâce à d’autres molécules (voir en particulier Pratap *et al.* (1997) [95], qui en comptent 6), validant de fait l’utilisation de plusieurs composantes pour ajuster les spectres. De

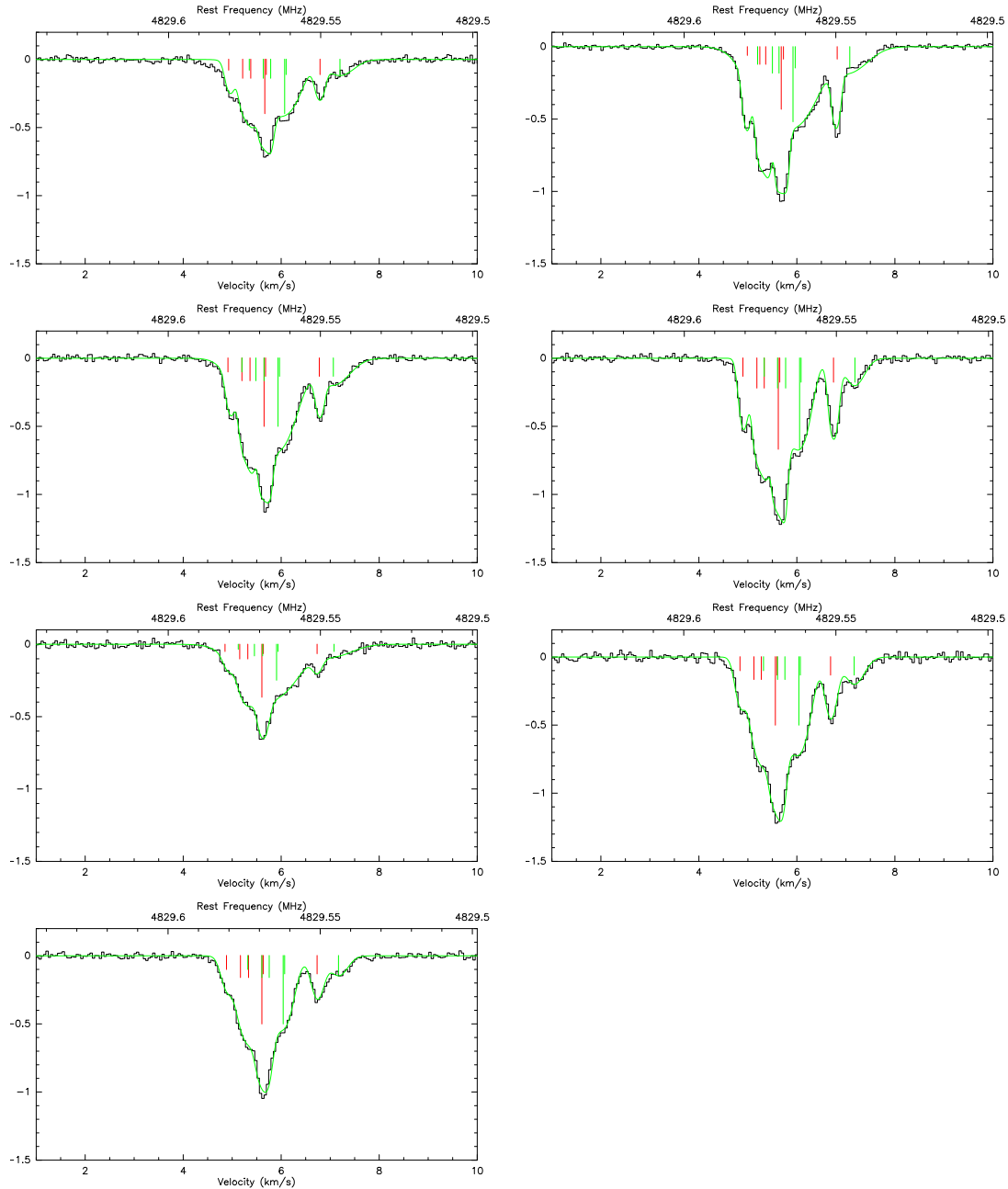


FIGURE 6.12 – Spectres et ajustements pour les spectres nécessitant deux composantes en vitesse.

plus, cela permet aussi d'expliquer le problème d'ajustement du spectre de la figure 6.1 : la résolution spectrale faible ne permet pas de séparer les diverses composantes.

Mis à part la différence dans leur vitesse propre, nous pouvons remarquer d'autres différences entre les objets : l'objet 1 présente des épaisseurs optiques en général supérieures aux autres objets, avec un pic à $\tau_{tot} = 44$, qui indiquerait, par exemple une plus grande abondance de H_2CO , ou une plus grande profondeur que les deux autres objets. L'objet 2, quant à lui, semble indiquer une plus grande turbulence, au vu des différences existant dans les largeurs de raies entre les différents offsets.

Nous présentons dans la figure 6.14 les valeurs de T_{ex} , τ_{tot} et Δv pour les différents objets. Les courbes de niveau rouge correspondent aux plus grandes valeurs, les bleues

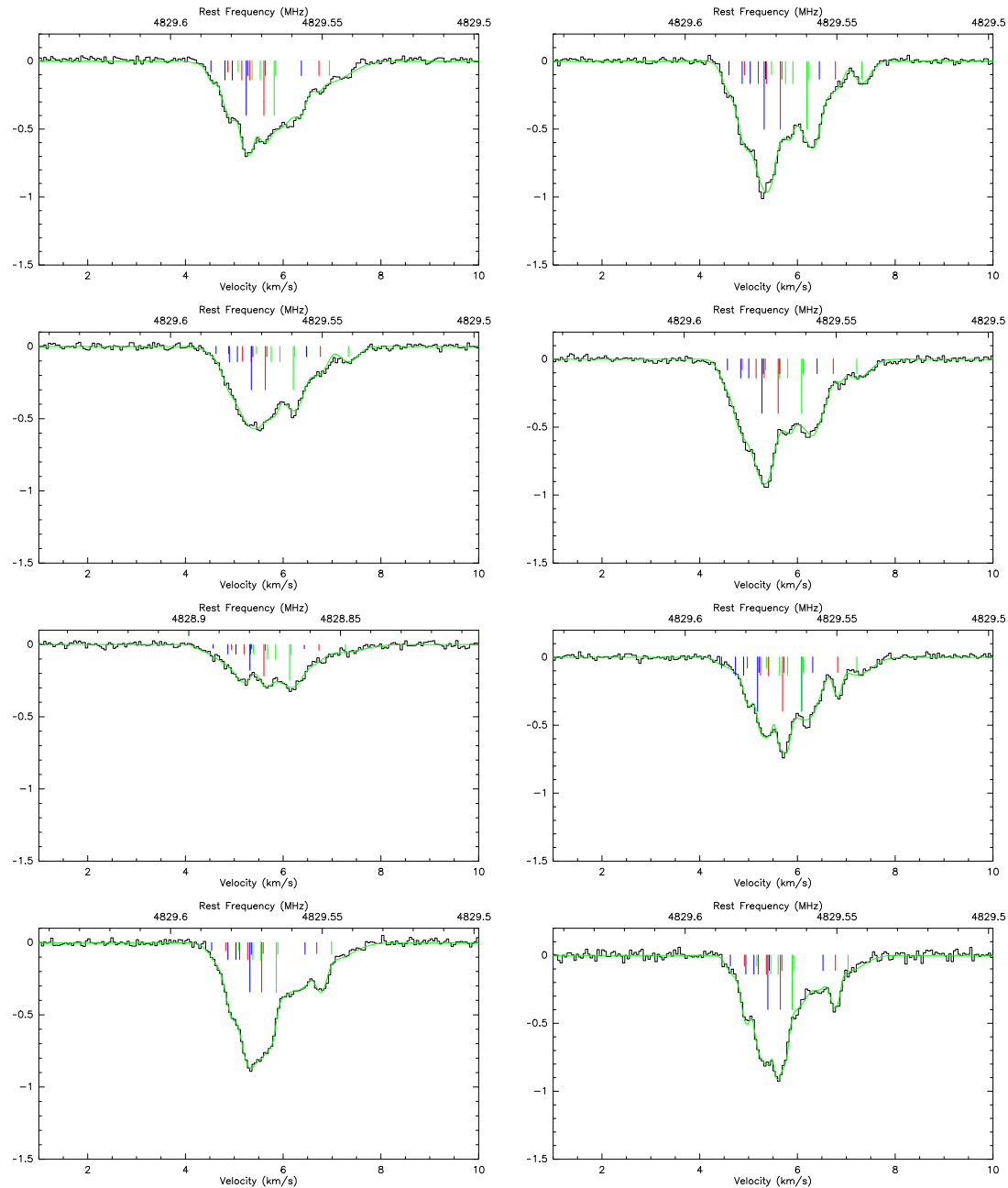


FIGURE 6.13 – Spectre et ajustement pour les spectres nécessitant trois composantes en vitesse.

aux plus faibles. Les croix symbolisent les coordonnées d'observation.

Ces premières interprétations restent évidemment à confirmer durant l'analyse des résultats qui se fera par la suite. L'intérêt d'avoir un grand nombre de points d'observation dans la même source est naturellement de pouvoir faire des cartes de grandeurs physiques au sein de cet objet.

offset (",")	T _a [*] (K)	V _{LSR} (km.s ⁻¹)	Δv (km.s ⁻¹)	T _{ex} (K)	τ _{tot}
(0,0)	-0.43±0.04	5.675±0.001	0.16±0.002	2.26±0.04	15.79±0.65
(0,-150)	-0.67±0.04	5.619±0.001	0.19±0.001	2±0.04	15.54±0.47
(0,-300)	-0.71±0.08	5.61±0.003	0.28±0.007	1.96±0.08	4.86±0.31
(0,+150)	-0.29±0.05	5.69±0.003	0.17±0.005	2.42±0.05	9.87±0.75
(+150,0)	-0.32±0.12	5.66±0.005	0.19±0.01	2.39±0.12	11.84 ±1.95
(+150,-150)	-0.37±0.08	5.657±0.005	0.172±0.004	2.34±0.1	11.59 ±1.18
(+150,-300)	-0.73±0.08	5.567±0.006	0.248±0.005	1.95±0.08	7.68±0.6
(+150,+150)	-0.40±0.18	5.611±0.014	0.25±0.011	2.3±0.19	0.48±0.14
(-150,0)	-0.37±0.09	5.65±0.005	0.178±0.022	2.34±0.09	11.48±1.4
(-150,-150)	-0.37±0.14	5.611±0.014	0.22±0.008	2.33±0.14	2.76±0.53
(-150,+150)	-0.34±0.08	5.653±0.006	0.228±0.009	2.37±0.09	7.63±0.91
(-150,+300)	-0.17±0.02	5.636±0.009	0.285±0.015	2.54±0.02	14.68±0.3
(-300,+300)	-0.11±0.05	5.604±0.016	0.251±0.016	2.61±0.05	44.85 ±9.36
(-300,+450)	-0.1 ±0.09	5.604±0.013	0.161±0.022	2.64±0.1	6.02±2.44
(-450,+450)	-0.22 ±0.01	5.655±0.005	0.257±0.005	2.49±0.01	17.37±0.28

TABLE 6.3 – Récapitulatif des paramètres des ajustements pour l’objet 1 observé dans TMC-1.

offset (",")	T _a [*] (K)	V _{LSR} (km.s ⁻¹)	Δv (km.s ⁻¹)	T _{ex} (K)	τ _{tot}
(0,0)	-0.63±0.05	5.917 ±0.005	0.884±0.012	2.05±0.05	2.83±0.12
(0,-150)	-0.94±0.12	6.05±0.002	0.446±0.009	1.72±0.13	2.04±0.16
(0,-300)	-1.11±0.43	6.045±0.009	0.414±0.012	1.53±0.45	1.12±0.25
(0,+150)	-0.51±0.06	6.08±0.016	0.689±0.024	2.18±0.06	2.64±0.17
(+150,0)	-0.54±0.16	6.07±0.011	0.623±0.046	2.14±0.16	1.96 ±0.25
(+150,-150)	-0.84±0.07	5.931±0.008	0.736±0.011	1.82±0.07	2.35 ±0.11
(+150,-300)	-1.09±0.24	6.045±0.007	0.458±0.016	1.56±0.25	1.74±0.23
(+150,+150)	-0.51±0.01	6.136±0.027	0.922±0.011	2.18±0.01	0.9±0.02
(-150,0)	-0.53±0.13	5.894±0.024	0.718±0.008	2.16±0.14	2.2±0.3
(-150,-150)	-0.6±0.11	5.914±0.008	0.909±0.022	2.09±0.11	1.26±0.14
(-150,+150)	-0.43±0.09	5.868±0.02	0.912±0.037	2.26±0.1	2.92±0.3
(-150,+300)	-0.81±0.08	6.21±0.008	0.439±0.019	1.86±0.08	1.21±0.05
(-300,+300)	-0.61±0.12	6.091±0.009	0.565±0.02	2.08±0.13	2.08 ±0.24
(-300,+450)	-0.59 ±0.07	5.818±0.009	0.954±0.022	2.1±0.07	2.75±0.17
(-450,+450)	-0.74 ±0.02	6.195±0.003	0.388±0.004	1.93±0.02	2.12±0.05

TABLE 6.4 – Récapitulatif des paramètres des ajustements pour l’objet 2 observé dans TMC-1.

6.6 Détermination du rapport ortho/para de H₂

Une fois déduites les valeurs des observables, il ne nous reste plus qu’à effectuer des calculs numériques afin de pouvoir comparer les valeurs simulées et les valeurs observationnelles.

Le principe de cette comparaison est simple : calculer les valeurs de T_{ex} et τ_{tot} en utilisant des simulations rotationnelles (cf. section 5.5). Ces simulations prennent 4 para-

- $1 < n(\text{H}_2) < 10^9 \text{ cm}^{-3}$
- $10^{11} < N(\text{H}_2\text{CO}) < 10^{17} \text{ cm}^{-2}$
- $0 < \text{OPR}(\text{H}_2) < 3$

Chacun des triplets ($n(\text{H}_2)$, $N(\text{H}_2\text{CO})$, $\text{OPR}(\text{H}_2)$) donne lieu à un couple (T_{ex} , τ). Il « suffit » de trouver les triplets qui reproduisent les observables dans leurs barres d'erreur pour contraindre les conditions physiques des sources.

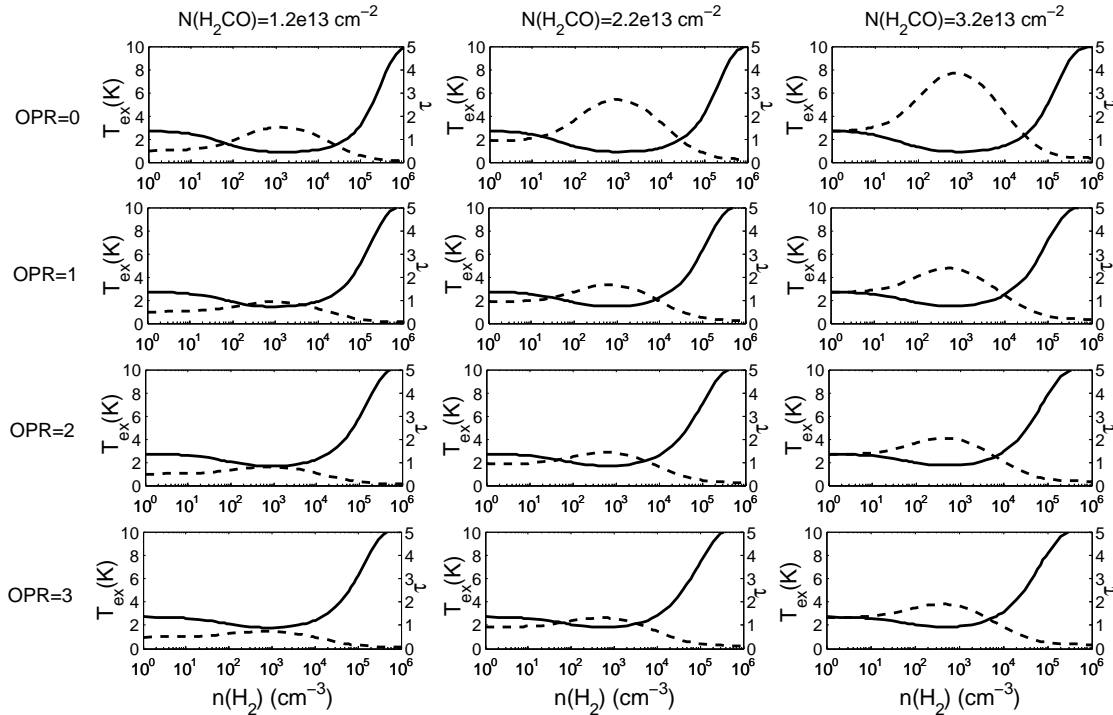


FIGURE 6.15 – Variations des valeurs de T_{ex} (traits pleins) et τ (tirets) en fonction des valeurs des paramètres de la simulation.

Nous présentons dans la figure 6.15 un exemple de variation des valeurs simulées de T_{ex} (en bleu) et τ (en rouge). Nous faisons varier la densité de colonne de H₂CO dans les simulations d'une colonne à l'autre (1.2×10^{13} , 2.2×10^{13} et $3.2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$), et le rapport ortho/para de H₂ d'une ligne à l'autre (0, 1, 2 et 3). Toutes les simulations ont été faites pour une température de 10 K, température typique des nuages sombres.

Nous n'allons pas décrire l'effet ni de la densité de H₂ ni de $\text{OPR}(\text{H}_2)$ sur la T_{ex} , il en a déjà question dans la figure 5.5. La variation de $N(\text{H}_2\text{CO})$, quant à elle, n'a que très peu d'influence sur la valeur de T_{ex} .

Nous voyons dans cette figure que la variation du rapport ortho/para de H₂ a le même effet sur l'épaisseur optique que sur la température d'excitation : plus OPR est grand, plus τ est petit. τ est aussi très sensible à la valeur de la densité, et nous remarquons que τ est maximum pour des densités pour lesquelles la T_{ex} est minimum. Enfin, nous voyons une grande sensibilité de τ à la valeur de la densité de colonne de H₂CO : plus la densité de colonne augmente, plus l'épaisseur optique est haute, comme attendu. Cette forte dépendance va nous être très utile dans l'estimation de la densité de colonne de H₂CO dans la source.

6.6.2 H₂ dans B68

Comme nous l'avons présenté précédemment les simulations numériques sont très sensibles à la valeur des paramètres physiques. C'est pourquoi l'absorption anormale peut être utilisée pour contraindre les conditions physiques.

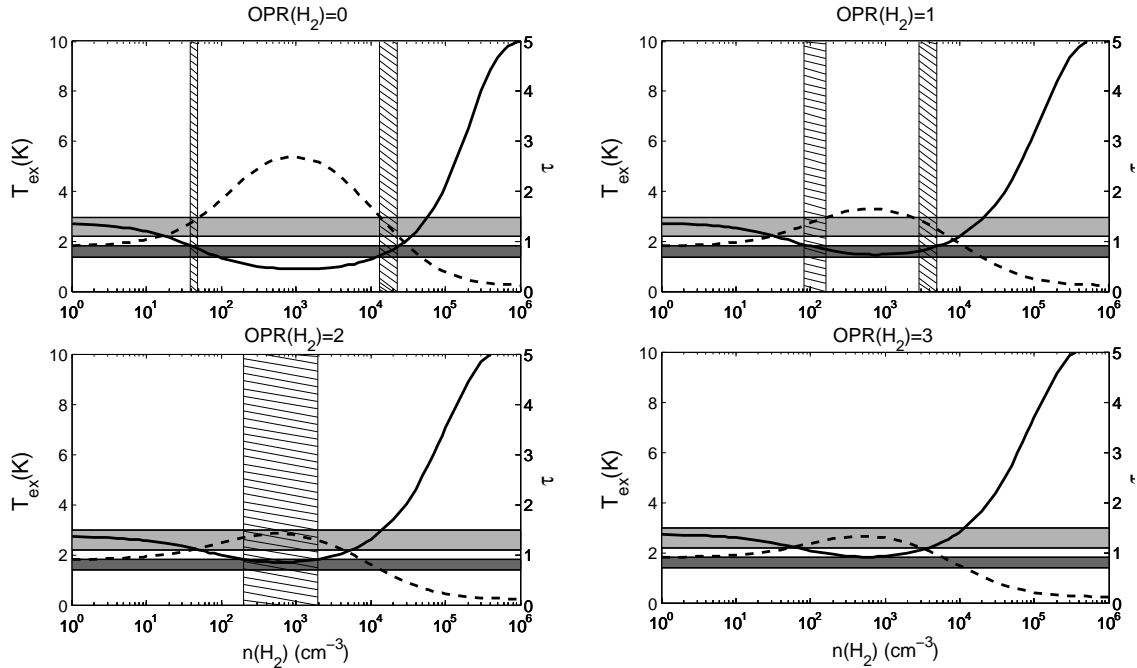


FIGURE 6.16 – Valeurs simulées de τ et T_{ex} pour différentes valeur de $OPR(H_2)$ (0, 1, 2 et 3) pour $T=10$ K, $N(H_2CO)=2.2\times 10^{13}$ cm⁻². La courbe rouge en traits pleins représente T_{ex} , la courbe en tiret τ . La zone colorée grise claire représente les valeurs de τ observées (avec les barres d'erreur), la zone grise foncée la même chose pour T_{ex} . Les zones hachurées représentent les gammes de densité où les deux observables peuvent être reproduite simultanément.

Nous présentons dans la figure 6.16 des simulations que nous avons effectuées sur B68, pour une température de 10 K, compatible avec les travaux précédent (Bergin *et al.* [7]). Les quatre différents panneaux correspondent à des simulations faites pour quatre valeurs différentes de $OPR(H_2)$. La courbe en traits pleins de chaque panneau correspond aux valeurs de T_{ex} simulées, la courbe en tirets aux valeurs de τ simulées, pour les différentes valeurs de la densité du milieu. Les simulations sont faites pour une densité de colonne de H₂CO de 2.2×10^{13} cm⁻².

Les zones colorées de chacun des panneaux correspondent aux valeurs observées de T_{ex} et τ déduites des observations.

Le but de ces comparaisons est de trouver les ensembles de paramètres physiques qui permettent de reproduire les deux observations à la fois dans leurs barres d'incertitude.

La valeur de densité de colonne que nous avons choisi correspond à la valeur moyenne de l'échelle de densité de colonne pour laquelle les observables peuvent être reproduites. La gamme de $N(H_2CO)$ que nous obtenons lors des simulations est très restreinte : $1.2\times 10^{13} < N(H_2CO) < 3.4\times 10^{13}$ cm⁻². Ceci vient directement du fait que l'épaisseur optique est très sensible à la valeur de la densité de colonne de H₂CO.

Les zones hachurées des 4 graphiques de la figure 6.16 représentent les gammes de densité pour lesquelles les 2 observables peuvent être reproduites simultanément. Ainsi, nous pouvons reproduire les observations GBT pour toutes les valeurs du rapport ortho/para de H_2 , sauf pour $OPR=3$. De plus, plus le rapport ortho/para augmente, plus la gamme de densité pour laquelle les deux observables peuvent être reproduite baisse ; on passe de $\sim 2 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$ pour $OPR=0$ à $\sim 3 \times 10^3$ pour $OPR=2$.

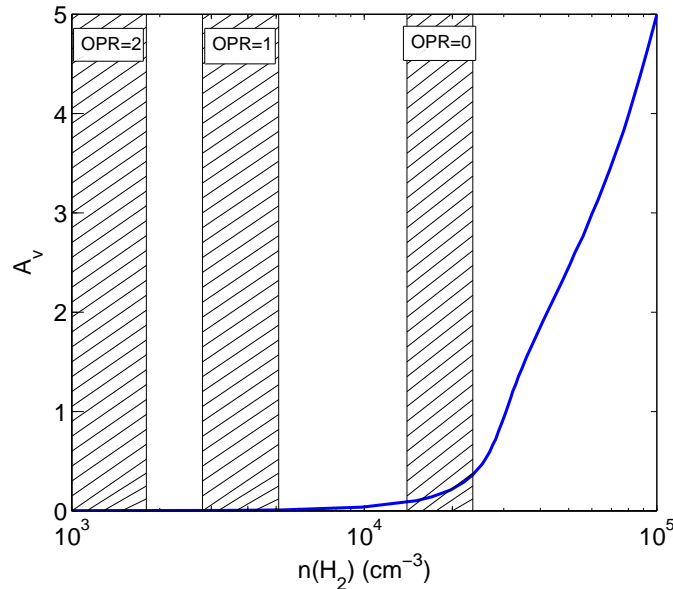


FIGURE 6.17 – Extinction visuelle en fonction de la densité de H_2 dans B68 (Alves *et al.* [1]). Les zones hachurées correspondent aux gammes de densités autorisées pour reproduire les deux observables simultanément, pour différentes valeurs du rapport ortho/para de H_2 .

Ces résultats ont deux inconvénients :

- On ne contraint pas le rapport ortho/para de H_2 , puisque quasiment toutes les valeurs de $OPR(H_2)$ peuvent reproduire les observables.
- Toutes les gammes de densité reproduisant les observables ne correspondent pas aux valeurs typiques des nuages moléculaires (10^4 - 10^6 cm^{-3}).

En fait, ces deux problèmes sont liés : si on arrive à contraindre une limite inférieure à la densité de H_2 pour laquelle la molécule de H_2CO peut survivre, on contraint par la même occasion une limite supérieure au rapport ortho/para de H_2 , puisque les valeurs hautes du rapport ortho/para de H_2 correspondent aux basses gammes de densités.

Pour palier à ce problème, nous avons utilisé la structure physique de B68, contrainte par les études de comptage d'étoile faites par Alves *et al.* [1], dont nous pouvons voir le principal résultat dans la figure 6.5. Grâce à cette étude, nous avons à notre disposition une correspondance entre extinction visuelle et densité du milieu.

Nous présentons dans la figure 6.17 la courbe représentant la relation entre cette extinction visuelle et la densité pour B68, déduite de l'étude d'Alves *et al.* . Nous y avons aussi reporté les gammes de densité autorisées pour B68 en fonction de la valeur du rapport ortho/para de H_2 . Nous voyons que plus le rapport ortho/para de H_2 augmente, plus l'extinction visuelle est basse, et que nous ne pouvons reproduire l'absorption de ortho- H_2CO que pour des couches externes de l'objet, où $A_v \leq 0.5 \text{ mag}$.

Ainsi, nous avons une limite supérieure en extinction visuelle, mais pas encore de limite inférieure en densité.

Le tout est donc maintenant de savoir à partir de quelle valeur de l'extinction il est légitime de penser que H₂CO commence à survivre au rayonnement ambiant. Pour des régions où l'extinction visuelle est très basse ($A_v < 0.1$ mag) le champ de rayonnement UV est trop fort pour permettre à une quelconque molécule de survivre : toutes les molécules sont photo-dissociées et forment ce qu'on appelle la *région de photo-dissociation*. Nous pouvons donc légitimement penser que la densité pour laquelle $A_v=0.1$ mag est une limite inférieure pour la densité.

Cela dit, afin de contraindre un peu mieux les extinctions visuelles pour lesquelles H₂CO n'est pas photo-dissocié, il est important de savoir vers quel A_v il existe un pic d'abondance. Il n'existe pas d'étude de chimie contraignant la formation de H₂CO dans les nuages sombres. Par contre, les travaux de Pineda & Bench (2007) [94] contraignent le pic d'abondance de CO à $A_v \simeq 0.4$ mag. H₂CO est une molécule proche de CO, nous nous attendons donc à ce que le pic de H₂CO soit dans des régions ayant les mêmes extinctions visuelles, ou un peu supérieures.

Pour de telles A_v , la valeur du rapport ortho/para de H₂ est donc inférieure à 1. Ainsi, *il s'agit de la première contrainte observationnelle de la valeur de ce rapport dans un nuage sombre*. Nous discuterons de l'implication d'un pic de H₂CO à ces valeurs de l'extinction visuelle dans le paragraphe 6.7.2.

Cela dit, nous pouvons remarquer que nos travaux sont linéaires, et non pas logarithmiques. Nous ne pouvons donc pas différentier si l'OPR(H₂) vaut 10^{-3} ou 10^{-2} .

Dans la suite, nous présentons les travaux préliminaires concernant l'analyse des observations des deux autres sources que nous avons observées.

6.6.3 H₂ dans L134N

Nous présentons ici les résultats obtenus dans l'analyse des observations de L134N. Le tableau 6.6 résume les paramètres physiques que nous déduisons des observations grâce au modèle.

offset (",")	N(H ₂ CO) (cm ⁻²)	n(H ₂) (cm ⁻³)	OPR(H ₂)
(0,0)	$5.1 \pm 0.8 \times 10^{13}$	$5 \times 10^2 - 1.1 \times 10^4$	0–1.3
(150,0)	$5.5 \pm 1.1 \times 10^{13}$	$3.3 \times 10^2 - 1.4 \times 10^4$	0–3

TABLE 6.6 – Valeur des paramètres physiques pour les deux points observés dans L134N.

Nous voyons dans ce tableau que, comme dans le cas de B68, la densité de colonne de H₂CO est très bien contrainte par les observations, la barre d'erreur étant minime. L'autre résultat important se trouve dans l'observation de la position de référence. En effet, nous voyons que même sans contrainte sur une valeur inférieure de la densité du milieu, les observables ne sont pas reproduites par des valeurs du rapport ortho/para de H₂ supérieures à 1.3. Cela nous donne une indication que, dans cette source aussi, le rapport ortho/para de H₂ est bas.

De plus, nous voyons que les gammes de densité que nous obtenons sont larges (entre $\sim 10^2$ et $\sim 10^4$ cm⁻³) et que les valeurs les plus basses correspondent aux OPR(H₂) les plus grands. Si nous parvenons à définir une limite inférieure à la densité, nous pourrions définir une limite supérieure au rapport ortho/para de H₂ dans L134N.

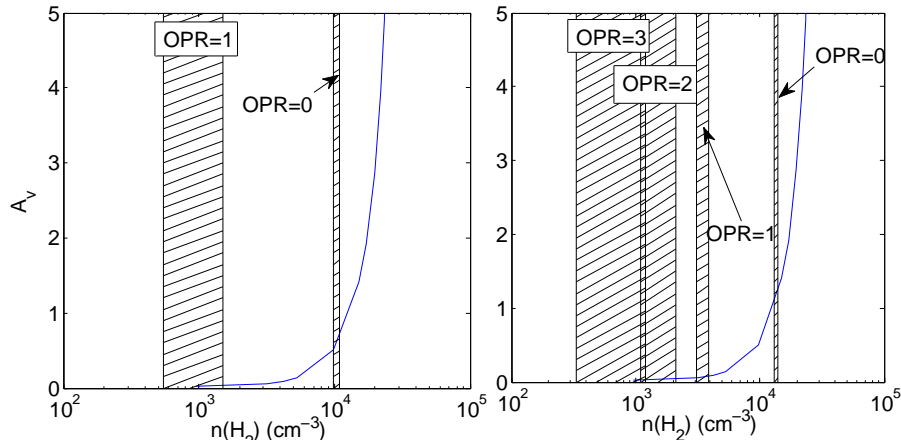


FIGURE 6.18 – Extinction visuelle en fonction de la densité de H_2 dans L134N, relation dérivée de la relation pour B68. Les zones hachurées correspondent aux gammes de densités autorisées pour reproduire les deux observables, pour différentes valeurs du rapport ortho/para de H_2 . A gauche les résultats pour la position de référence, à droite pour la position décalée.

Il n'existe pas, dans la littérature, de structure en densité clairement définie pour cet objet. C'est pourquoi, afin d'avoir une première estimation de la contrainte sur le rapport ortho/para de H_2 , nous avons utilisé la relation A_v /densité de B68 que nous avons adaptée pour L134N. Techniquement, nous avons pondéré cette relation par le rapport des tailles des deux sources, supposées sphériques. Ainsi, puisque L134N mesure ~ 1 pc (Clarck *et al.* 1981 [24], Ungerechts *et al.* 1980 [111]) et B68 ~ 0.073 pc, tous les A_v sont multipliés par 13.7 pour tenir compte de la différence entre les nuages.

Nous présentons dans la figure 6.18 le même graphique que la figure 6.17 dans le cas de L134N. En bleu, la courbe d' A_v en fonction de la densité de H_2 , en hachurés, les gammes de densité reproduisant les observations. A gauche, le cas pour la position de référence, à droite pour le point décalé.

Dans le cas de la position de référence, nous avons uniquement spécifié les gammes de densité pour OPR=0 et 1, les autres possibilités étant pour des A_v trop petits. Le rapport ortho/para de H_2 à la position de référence est inférieur à 1, et si nous considérons la limite $A_v=0.1$ mag comme limite inférieure, nous nous retrouvons avec le même résultat que pour B68, c'est-à-dire une limite supérieure du rapport ortho sur para de H_2 proche de 0 (aux alentours de 0.2).

Dans le cas de la position décalée, nous savions que tous les rapports ortho/para de H_2 étaient théoriquement possibles. Cela dit, en prenant la même limite inférieure ($A_v > 0.1$) nous pouvons restreindre l'espace des solutions et voyons que toutes les solutions ayant des $OPR(H_2) > 0.8$ ne peuvent convenir. Cela dit, le travail doit être fait avec une structure en densité plus précise, afin de pouvoir contraindre avec plus de justesse la valeur de ce rapport.

6.6.4 H_2 dans TMC-1

Nous avons suivi le même schéma de travail dans le cas de TMC-1. Pour chaque composante de chaque point d'observation, nous avons effectué une grille de simulation

sur les paramètres physiques, en gardant la température du milieu à 10 K, compatible avec les études faites par Pratap *et al.* [95].

Le résultat de ce travail est présenté dans les tableaux 6.7, 6.8 et 6.9 où nous présentons les paramètres que nous avons déduits de l'étude numérique pour l'objet 1 (5.6-5.8 km.s⁻¹) l'objet 2 (5.8-6.2 km.s⁻¹) et l'objet 3 (5.1-5.4 km.s⁻¹).

Idéalement, il faudrait conduire le même type d'étude que celles faites précédemment. Cela dit, le cas de TMC-1 n'est pas un cas simple à traiter. Le problème de cet objet réside dans la complexité de cette source : plusieurs composantes, nuages étendus, cœurs denses... Il n'est pas aisé de définir sa structure en densité, d'autant qu'il faudrait pouvoir arriver à la définir pour chacune des trois sources observées.

offset (",")	Objet 1		
	N(H ₂ CO) (×10 ¹⁴ cm ⁻²)	n(H ₂) (×10 ⁴ cm ⁻³)	OPR(H ₂)
(0,0)	1.67-3.42	0.02-0.32	0-3
(0,-150)	1.85-2.42	0.01-0.25	0-3
(0,-300)	0.77-1.17	0.02-0.6.9	0-3
(0,+150)	1.25-1.92	0.07-0.41	0-3
(+150,0)	1.57-2.8	0.05-0.33	0-3
(+150,-150)	1.34-2.22	0.05-0.35	0-3
(+150,-300)	1.1-1.71	0.02-0.45	0-3
(+150,+150)	0.06-0.17	0.81-4.8	0-3
(-150,+0)	1.35-2.39	0.05-0.35	0-3
(-150,-150)	0.36-0.73	0.18-1.2	0-3
(-150,+150)	1.2-2.02	0.08-0.51	0-3
(-150,+300)	3.52-4.62	0.05-0.31	0-3
(-300,+300)	7.74-15.6	0.02-0.1	0-3
(-300,+450)	0.53-1.47	0.02-0.51	0-3
(-450,+450)	3.77-4.75	0.04-0.26	0-3

TABLE 6.7 – Conditions physiques déduites des observations pour l'objet 1 de TMC-1.

C'est pourquoi nous n'avons pas pu conduire notre étude jusqu'au bout sur TMC-1 et, ainsi, nous n'avons pas pu restreindre le domaine de OPR(H₂). Il est quand même à noter que certains points des objets de TMC-1 ne peuvent pas être reproduits par des OPR(H₂) grands, ce qui pourrait nous permettre de penser qu'il existe une distribution non uniforme de ce rapport dans le nuage.

Le problème est donc de pouvoir contraindre une structure en densité de TMC-1. Mais comment le faire ? La réponse la plus simple semble être de faire des études multi-moléculaires et multi-transitions des milieux. Le seul problème serait de trouver une molécule dont une ou plusieurs transitions pourraient provenir de la même région que l'absorption anormale de ortho-H₂CO.

Certaines études sur la molécule CS semblent prometteuses (voir Snell *et al.* 1982 [99]). Du fait de son grand moment dipolaire, la molécule de CS se thermalise à des densités élevées, de l'ordre de 5×10⁴ cm⁻³. Observer des transitions entre des niveaux de faible énergie pourrait nous aider à déterminer la structure en densité des objets où nous ne la connaissons pas. De plus, les études faites par Lucas & Liszt (2002) [72] montrent que cette molécule est très abondante dans les milieux diffus (N(CS)~ 10¹² cm⁻²), ce qui

semble faire de CS une très bonne cible pour ce type d'étude dans les milieux froids.

offset (",")	Objet 2		
	N(H ₂ CO) ($\times 10^{14}$ cm ⁻²)	n(H ₂) ($\times 10^4$ cm ⁻³)	OPR(H ₂)
(0,0)	1.52-2.15	0.9-1.1	0-3
(0,-150)	0.48-0.71	0.04-1.2	0-3
(0,-300)	0.19-0.45	0.07-2.1	0-3
(0,+150)	1.2-1.72	0.14-1.1	0-3
(+150,0)	0.67-1.27	0.11-1.6	0-3
(+150,-150)	0.93-1.32	0.03-1.2	0-3
(+150,-300)	0.39-0.61	0.05-1.3	0-3
(+150,+150)	0.6-0.79	0.4-3.2	0-3
(-150,+0)	0.91-1.7	0.12-1.3	0-3
(-150,-150)	0.66-1.12	0.23-2.2	0-3
(-150,+150)	1.67-2.82	0.16-1.3	0-3
(-150,+300)	0.28-0.44	0.05-2.1	0-3
(-300,+300)	0.66-1.12	0.11-1.4	0-3
(-300,+450)	1.62-2.42	0.11-1.1	0-3
(-450,+450)	0.46-0.67	0.04-1.5	0-2.8

TABLE 6.8 – Conditions physiques déduites des observations pour l'objet 2 de TMC-1.

offset (",")	Objet 3		
	N(H ₂ CO) ($\times 10^{14}$ cm ⁻²)	n(H ₂) ($\times 10^4$ cm ⁻³)	OPR(H ₂)
(0,+150)	0.75-1.61	0.21-0.92	0-3
(+150,+150)	0.51-1.52	0.3-1	0-3
(-150,0)	2.32-5.12	0.07-0.29	0-3
(-150,+150)	0.46-1.32	0.21-1.05	0-3
(-150,+300)	0.09-0.16	0.13-3.9	0-3
(-300,+300)	0.64-0.96	0.03-0.98	0-3
(-300,+450)	0.76-1.42	0.15-0.65	0-3
(-450,+450)	0.75-0.96	0.06-0.91	0-3

TABLE 6.9 – Conditions physiques déduites des observations pour l'objet 3 de TMC-1.

Cela dit, au vu des tableaux 6.7, 6.8 et 6.9, nous pouvons déjà déduire des caractéristiques des objets. En effet, l'objet 1, bien qu'ayant de plus grandes épaisseurs optiques que les autres objets, semblent avoir des densités bien plus faibles que les deux autres objets. Cela semble indiquer que cet objet a une extension spatiale bien plus grande que les deux autres.

L'objet 2 semble plus dense que les deux autres objets. Nous voyons aussi qu'il possède un point où le rapport ortho/para de H₂ ne peut pas être 3 (offset (-450,+450)).

Nous remarquons, dans les tableaux 6.7, 6.8 et 6.9, que la densité limite inférieure déduite de nos modèles est généralement très basse pour chaque point, *i.e.* inférieure à

10^3 cm^{-3} , densité limite admise des nuages sombres. Il serait intéressant de voir quelles conclusions nous pouvons tirer sur les limites supérieures de $\text{OPR}(\text{H}_2)$ pour les trois objets si nous imposons une telle valeur pour la limite inférieure en densité.

offset (",")	lim. sup. $\text{OPR}(\text{H}_2)$		
	Objet 1	Objet 2	Objet 3
(0,0)	0.9	2.9	
(0,-150)	0.6	2.5	
(0,-300)	2.1	2.9	
(0,+150)	2.1	3	3
(+150,0)	1.9	3	
(+150,-150)	1.6	2.6	
(+150,-300)	1.2	2.5	
(+150,+150)	3	3	3
(-150,+0)	1.9	3	
(-150,-150)	3	3	
(-150,+150)	2.9	3	3
(-150,+300)	1.2	2.9	3
(-300,+300)	0	3	2.7
(-300,+450)	3	3	3
(-450,+450)	0.9	2.9	2.2

TABLE 6.10 – Limite supérieure de $\text{OPR}(\text{H}_2)$ pour chacun des trois objets détectés dans TMC-1, si nous imposons une limite inférieure en densité $n(\text{H}_2)=10^3 \text{ cm}^{-3}$.

Nous présentons dans le tableau 6.10 les valeurs supérieures de $\text{OPR}(\text{H}_2)$ pour chacun des points des trois objets, si nous imposons une limite inférieure en densité $n(\text{H}_2)=10^3 \text{ cm}^{-3}$.

Nous voyons ainsi que nous arrivons à restreindre la gamme de $\text{OPR}(\text{H}_2)$ en particulier pour l'objet 1, qui semblait présenter une densité plus faible que les deux autres objets. Les résultats pour ceux-ci ne semblent pas très influencés par cette limite inférieure en densité.

Nous remarquons, dans le cas de l'objet 1, que les valeurs supérieures ainsi déterminées varient très fortement selon le point de mesure (de 0.6 à 3), ce qui pourrait indiquer que le rapport ortho/para de H_2 varie en fonction de la région étudiée.

6.7 Discussion des résultats

6.7.1 H_2 : densité, rapport ortho/para

Les premiers résultats que nous avons obtenus lors de notre étude porte sur la détermination de la densité du milieu et de l'état physique de l'hydrogène moléculaire dans les nuages sombres.

Densité de H_2 . Nous concluons dans notre étude que les densités régnant dans les nuages se trouvent aux alentours de 10^4 cm^{-3} , là où H_2CO absorbe. Cette valeur est en accord avec la gamme de densité acceptée au sein des nuages sombres, *i.e.* 10^3 - 10^6 cm^{-3} .

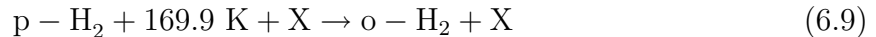
Rapport Ortho/Para de H₂. Le véritable résultat concernant H₂ est son état de spin, c'est à dire son rapport ortho/para dans les milieux d'études. Dans chacune des sources où nous avons pu mener notre étude, nous avons contraint ce rapport à des valeurs faibles (aux alentours de 0). Ce résultat est le premier du genre dans l'étude des nuages sombres, puisque, avant ces travaux, la valeur de ce rapport était soumise à un véritable débat, l'hydrogène moléculaire n'étant pas observable directement dans ces sources.

Cela dit, il est intéressant de comparer nos résultats avec d'autres études ayant eu pour but de contraindre ce rapport dans les nuages moléculaires.

Comme nous l'avons dit dans l'introduction de cette thèse, les chocs résultant des interactions entre les jets moléculaires venant de protoétoiles et le milieu interstellaire sont de très bonnes cibles pour les études de la valeur de OPR(H₂). En effet, dans de tels milieux, la température est assez élevée pour exciter les niveaux rotationnels de H₂ et ainsi permettre à la molécule de rayonner. Il est donc possible de contraindre directement ce rapport par les observations.

Ainsi, les observations faites par Neufeld *et al.* (1998 et 2006) [85; 86], Lefloch *et al.* [68] ou, plus récemment Maret *et al.* (2009) [76] ont mesuré directement les rapports ortho/para de H₂ de différentes zones de chocs en comparant les intensités des différentes raies rotationnelles de H₂. Des cartes ont été faites et les valeurs mesurées de ce rapport dans ces régions sont comprises entre 0.5 et 2.

L'effet principal du choc est d'injecter de l'énergie dans le nuage moléculaire, ce qui a la particularité de permettre à la réaction endothermique de passage entre (p)H₂ et (o)H₂ de se produire et, ainsi, d'augmenter la valeur du rapport ortho/para de H₂ :



Ces études concluent que, pour atteindre de telles valeurs de OPR(H₂) dans les chocs, il est nécessaire que la valeur initiale au sein du nuage moléculaire soit inférieure à ce qui est mesuré dans le choc, donc inférieure à 2. Ceci est une première contrainte du rapport ortho/para de H₂ dans les nuages moléculaires, en accord avec nos résultats.

D'autre part, d'autres études indirectes ont été menées dans le but de contraindre ce rapport ortho/para de H₂ dans les nuages moléculaires. Ainsi, des études menées sur L134N par Pagani *et al.* (2009) [91] consistant à expliquer les observations de N₂D⁺, N₂H⁺ et ortho-H₂D⁺ par un modèle de chimie ont montré que, pour reproduire l'abondance des isotopologues deutérés de ces molécules, un rapport ortho/para de H₂ inférieur à 0.1 était nécessaire.

En effet, comme nous l'avons déjà fait remarqué, ortho-H₂ détruit la molécule de base des réactions de deutération des molécules (H₂D⁺). Ainsi, pour expliquer une forte abondance de molécules deutérées, il nous faut OPR(H₂) proche de zéro. Ce phénomène est aussi mis en évidence par les études numériques de Flower *et al.* 2006 [41], qui présentent la variation de l'abondance des divers isotopologues de H₃⁺ en fonction du rapport ortho/para de H₂ : ils montrent que l'abondance de D₃⁺ par rapport à H₂ passe de 10⁻⁹ lorsque OPR(H₂)=0 à 10⁻¹⁶ lorsque OPR(H₂)=3.

Nous pouvons aussi citer les études faites sur B68 par Maret & Bergin en 2007 [75], qui ont utilisé des observations faites sur DCO⁺ et HCO⁺ afin de contraindre le rapport ortho/para de H₂ dans les nuages sombres. En modélisant l'intensité relative des transitions des deux espèces et en utilisant un modèle de chimie, ils donnent une contrainte sur la valeur de ce rapport, aux alentours de 0.015.

Les résultats que nous montrons lors de notre analyse sont dans la lignée de ceux-ci. Nous montrons que nous devons avoir un rapport ortho/para de H₂ proche de zéro pour

pouvoir reproduire l'absorption anormale de ortho-H₂CO dans l'enveloppe des sources.

Autre résultat intéressant : nous montrons que dans le cas de L134N lorsque nous nous éloignons de l'objet, le rapport ortho/para de H₂ semblerait augmenter.

6.7.2 H₂CO : densité de colonne, localisation de l'absorption anormale

Densité de colonne de H₂CO. Nous avons vu que la densité de colonne de H₂CO, était extrêmement bien contrainte par les observations, et ce grâce à l'épaisseur optique qui en dépend fortement.

Nous avons conclu que cette densité de colonne pour les trois sources se situait entre $2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ (pour B68) et 1×10^{15} (pour les points les plus denses de TMC-1). Il est à noter que les valeurs typiques de $N(\text{H}_2\text{CO})$ déduites des observations millimétriques dans les nuages moléculaires sombres (voir Pratap *et al.* [95] pour TMC-1 par exemple) donnent des gammes entre 10^{12} et 10^{14} cm^{-2} , ce qui est tout à fait comparable avec nos valeurs.

Localisation de l'absorption anormale. Le résultat que nous n'attendions pas vient de la localisation de l'absorption anormale de ortho-H₂CO. En effet, les simulations que nous avons menées sur B68 ont montré que l'absorption anormale provenait des régions externes du nuage, à des extinctions visuelles basses ($A_v \leq 0.5 \text{ mag}$). Ce résultat peut paraître surprenant, puisqu'il est généralement admis qu'à de telles extinctions, le champ UV ambiant est trop élevé pour permettre à une quelconque molécule de survivre.

Cela dit, il existe des études qui montrent la présence de H₂CO dans des milieux très dilués. Citons par exemple les travaux de Liszt & Lucas (1995) [70] qui montrent l'existence d'absorption de ortho-H₂CO à 6 cm et 2 cm dans les nuages diffus, devant des radiosources extragalactiques fortes. Ils déduisent même de ces études une abondance de H₂CO par rapport à H₂ assez forte, de l'ordre de $X(\text{H}_2\text{CO})=4 \times 10^{-9}$, alors qu'on s'attendrait à des abondances beaucoup plus faibles (de l'ordre de 10^{-11} , voir Federman & Allen 1991, [40]).

De plus, la présence de H₂CO dans les couches externes des nuages sombres a déjà été déduite dans des études précédentes. Citons par exemple, en 1975, Minn & Greenberg [82] sur l'étude de NGS 2264, Henkel *et al.* (1981) [50] sur TMC-1 ou Vanden Bout *et al.* (1983) [119] sur 7 nuages sombres.

La véritable surprise vient de l'abondance de H₂CO dans ces parties externes. En utilisant la relation décrite dans Frerking *et al.* (1982) [43] reliant l'extinction visuelle à la densité de colonne de H₂ :

$$N(\text{H}_2) = 0.94 \times 10^{21} \times A_v \quad (6.10)$$

nous trouvons une abondance $X(\text{H}_2\text{CO}) \sim 6 \times 10^{-8}$.

L'explication d'une telle abondance n'est pas aisée. Considérons les différentes manières de former H₂CO :

- En phase gazeuse, H₂CO est formé par réaction de l'oxygène atomique avec CH₃. Le problème est que, à des A_v si bas, il n'y a pas assez de CH₃ pour former autant de H₂CO qu'observé. De plus, H₂CO est rapidement détruit par réaction avec C⁺, ce qui tend à montrer que H₂CO ne peut pas être formé *in situ* dans la phase gazeuse (Federman & Allen 1991, [40]). Il est d'ailleurs montré dans cet article que si les modèles de chimie en phase gazeuse parviennent à reproduire les abondances de

H_2CO dans les parties internes des nuages moléculaires, ils échouent à l'expliquer dans les parties externes.

- A la surface des grains, H_2CO est formé par protonation successive de CO déplété dans les manteaux des grains (Tielens & Hagen 1982, [104]). Ce mécanisme est bien plus efficace que le mécanisme en phase gazeuse, mais nécessite que le CO soit collé sur les grains. Ceci n'arrive que lorsque la température baisse, c'est-à-dire au cœur des nuages moléculaires. Ce scénario nécessiterait alors des mouvements de mélange, amenant des grains du cœur moléculaire dans les parties externes, où H_2CO serait alors photo-évaporé par les rayons UV (Federman & Allen 1991, [40]).

Cela dit, les études faites sur la turbulence, par exemple sur B68, semblent indiquer que celle-ci est faible (étude des observations $C^{18}O$ et ^{13}CO par Lada *et al.* (2003) [63]), ne pouvant donc pas amener des grains provenant du cœur aux parties les plus externes.

Aucune des deux voies ne semble ainsi pouvoir expliquer l'abondance de H_2CO dans les couches externes des nuages sombres.

Ceci montre bien notre connaissance partielle de la chimie des milieux astrophysiques et les progrès que nous devons encore faire pour pouvoir comprendre parfaitement ces milieux.

6.8 Conclusion

Nous avons montré dans cette partie qu'il nous est possible de déterminer des contraintes précises sur les conditions physiques des objets que nous étudions et ce grâce à des observations nous permettant de résoudre les composantes hyperfines de la transition fondamentale de ortho- H_2CO en absorption.

Si la densité de colonne de H_2CO sont très bien contraintes en supposant uniquement la température de la source, ce n'est pas le cas du rapport ortho/para de H_2CO . En effet, pour pouvoir contraindre une limite supérieure à ce paramètre, nous avons besoin d'une idée sur la structure en densité des objets, provenant d'études complémentaires (études de comptage d'étoile, autres transitions moléculaires provenant des mêmes couches de la source). Ceci n'est pas encore connu pour toutes les sources, ce qui limite encore l'utilisation de cette méthode.

Constraining the ortho-to-para ratio of H₂ with anomalous H₂CO absorption [★]

N. Troscompt, A. Faure, S. Maret, C. Ceccarelli, P. Hily-Blant, and L. Wiesenfeld

Laboratoire d'Astrophysique de Grenoble, Université Joseph Fourier, UMR 5571-CNRS, Grenoble, France

Received / Accepted

Abstract

Context. The ortho-to-para ratio (OPR) of molecular hydrogen is a fundamental parameter to understand the physics and chemistry of molecular clouds. In dark and cold regions, however, H₂ is not directly observable and the OPR of H₂ in these sources has remained so far elusive.

Aims. We show that the 6 cm absorption line of ortho-formaldehyde (H₂CO) can be employed to constrain both the density and the OPR of H₂ in dark clouds.

Methods. Green Bank Telescope (GBT) observations of ortho-H₂CO toward the molecular cloud Barnard 68 (B68) are reported. Non-LTE radiative transfer calculations combined with the well-constrained structure of B68 are then employed to derive the physical conditions in the absorption region.

Results. We provide the first firm confirmation of the Townes & Cheung mechanism: propensity rules for collisions of H₂CO with H₂ molecules are responsible for the sub-2.7 K cooling of the 6 cm doublet. Non-LTE calculations show that in the absorption region of B68 the kinetic temperature is ~ 10 K, the ortho-H₂CO column density amounts to $\sim 2.2 \times 10^{13}$ cm⁻², the H₂ density lies in the range $1.4 - 2.4 \times 10^4$ cm⁻³ and the OPR of H₂ is close to zero. Our observations thus provide a new evidence that H₂ is mostly in its para form in the cold gas, as expected from theoretical considerations. Our results also suggest that formaldehyde absorption originates at the edge of B68, at visual extinctions $A_V \lesssim 0.5$ mag.

Key words. Astrochemistry – ISM: molecules – ISM: abundances – ISM: individual objects: Barnard 68

1. Introduction

The ortho-to-para ratio (OPR) of molecular hydrogen (H₂) is a fundamental parameter to understand the physics and chemistry of interstellar molecular clouds. Chemical models have shown, in particular, that the degree of deuteration of molecular ions and molecules during the pre-protostellar collapse is very sensitive to the form of H₂ (Flower et al. 2006; Pagani et al. 2009). In such environments, H₂ forms on grain surfaces and it is generally assumed that the initial OPR is equal to the statistical value of 3. Although details of the H₂ formation mechanism are still uncertain, it is also commonly accepted that ortho-to-para conversion of H₂ subsequently occurs in gas phase through proton exchange reactions with H⁺ and H₃⁺. Although the timescales associated with these reactions are large, the OPR of H₂ is expected to decrease toward zero (the Boltzmann equilibrium value at 10 K is 3.6×10^{-7}) over the lifetime of a molecular cloud and it is, therefore, a potentially valuable probe of the age of the cloud. This ratio is however expected to be not fully thermalized in dark clouds owing to the recycling of hydrogen *via* gas phase reactions and catalysis on grains (Le Bourlot 1991). The chemical modelling of Flower et al. (2006) for $n_H = 10^4$ cm⁻³ and $T = 10$ K thus suggests that the OPR is $\sim 10^{-3}$ at steady-state, that is exceeds the Boltzmann equilibrium value by 4 orders of magnitude. In addition, in the warm gas associated with molecular shocks ($T_{\text{kin}} > 300$ K), direct observations of H₂ rovibrational lines have shown that the OPR is generally not equal

to the Boltzmann equilibrium value of 3, but lies in the range 0.5–2 (e.g. Neufeld et al. 1998; Lefloch et al. 2003; Maret et al. 2009, and references therein). Such relatively low values are interpreted as the legacy of earlier stages in the thermal history of the gas. There are therefore a number of evidences, both observational and theoretical, that H₂ is mostly in its para form in the cold and dark progenitor molecular clouds. However, since the gas temperature in these latter is too low to populate excited levels of H₂, a direct measure of the OPR of cold H₂ has remained so far elusive.

The OPR of H₂ is also important for collisional excitation processes at low temperature because the interaction potential is different for ground state para-H₂ ($J=0$) and ortho-H₂ ($J=1$). This is because the permanent quadrupole moment of H₂ vanishes when H₂ lies in its spherically symmetric ground para state ($J=0$). As a result, rate coefficients with ortho-H₂ ($J=1$) are generally higher than those with para-H₂ ($J=0$). Collisional propensity rules can also be different for the two forms of H₂, as shown for example by Flower et al. (1990) in the case of ammonia and, more recently, by Troscompt et al. (2009) in the case of formaldehyde (H₂CO). One particularly interesting observation of (ortho) H₂CO is the absorption of the 6 cm line ($\mathbf{1}_{10} \leftarrow \mathbf{1}_{11}$) against the 2.7 K Cosmic Microwave Background (CMB). This 'anomalous' absorption, which implies an excitation temperature $T_{\text{ex}} < 2.7$ K for the doublet, was first discovered by Palmer et al. (1969) in the direction of dark nebulae. Numerous theoretical studies (in particular Townes & Cheung 1969; Evans et al. 1975; Garrison et al. 1976) have proposed an explanation in terms of competing radiative and collisional population transfer mechanisms. The H₂CO absorption was thus found to provide

[★] This work has been inspired by our colleague and friend Pierre Valiron, who passed away in August 2008. This paper is dedicated to his memory.

a sensitive probe of the temperature and density conditions in dark sources. All previous studies were however hampered by *i*) the lack of accurate collisional rates between H₂CO and H₂ (He atoms were employed as substitutes for H₂ molecules) and *ii*) low spectral resolution which did not allow to properly resolve the hyperfine structure.

In this study, we present the first high spectral resolution observation of the H₂CO 6 cm absorption line toward Barnard 68 (hereafter B68), the prototype of a dense molecular cloud core (Burkert & Alves (2009) and references therein). Non-local thermodynamic equilibrium (LTE) radiative transfer calculations based on the theoretical collisional rates of Troscompt et al. (2009) are then employed to derive the physical conditions in the absorption region, including constraints on the OPR of H₂ in this source. The observations and data reduction are described in Sect. 2. Radiative transfer modelling is presented in Sect. 3 and results are discussed in Sect. 4.

2. Observations

We observed the $\mathbf{1}_{10} \leftarrow \mathbf{1}_{11}$ transition of ortho-H₂CO ($\nu = 4.82966$ GHz) towards B68 (R.A. = $17^{\text{h}}22^{\text{m}}38.2^{\text{s}}$, $\delta = -23^{\circ}49'34''$ [J2000]) using the NRAO Robert C. Byrd Green Bank Telescope (GBT). The observation was made on October 17, 2008. The C-Band (3.95 – 6.1 GHz) receiver was used together with the GBT auto-correlator in nine-level sampling mode, providing a spectral resolution of 762.9 Hz (0.047 km s⁻¹). At the observed frequency, the HPBW of the GBT is 2.5' and the main beam efficiency is $\eta_{mb} = 0.97$. The observations were performed in frequency switching mode, with a frequency throw of 100 MHz. Finally, the observation is an average of 4×10 minutes scans, for a total integration time of 40 minutes.

The data has been reduced with the CLASS software package¹. A first order polynomial baseline has been subtracted from the spectrum which is shown in Fig 1. Thanks to the high resolution and high signal-to-noise ratio of the spectrum, several hyperfine components are resolved. Notably, the $F = 1 - 1$ and the (blended) $F = 1 - 2$ and $2 - 1$ components are clearly distinguishable from the (blended) $F = 2 - 2$ and $0 - 1$ components. The $F = 1 - 0$ component is also easily resolved. The line parameters were fitted with the HFS method in CLASS, which allows the simultaneous fitting of all the hyperfine components of a rotational transition, under the assumption that the excitation temperature is the same for all hyperfine components and the lines do not overlap. Note that the frequencies and relative intensities of hyperfine components were taken from the laboratory measurements of Tucker et al. (1971). As shown in Fig. 1, an excellent fit to the observed spectrum is obtained, with a rms of $\sim 10^{-2}$ K.

We derived an antenna temperature T_a^* of the main hyperfine component ($F = 2 - 2$) of -0.44 ± 0.04 K, a source velocity $v_{\text{LSR}} = 3.374 \pm 0.003$ km s⁻¹, a total opacity of the transition $\tau_{\text{tot}} = 1.29 \pm 0.19$, and a line width $\Delta\nu = 0.294 \pm 0.007$ km s⁻¹. The excitation temperature was then derived from T_a^* within the Rayleigh-Jeans approximation (e.g. Martin & Barrett 1978) and assuming **no clumping**, that is a beam dilution factor of 1 since the spatial extent of B68 (2') and the beam extension (2.5') are similar. We obtained $T_{\text{ex}} = 1.63^{+0.19}_{-0.25}$ K. The present excitation temperature and opacity are thus in good agreement with those obtained by Heiles (1973) who found an average excitation temperature of 1.6 K and total opacities of ~ 1 for a sample of dark clouds.

3. Non-LTE modelling

The collisional pumping mechanism invoked to explain the anomalous absorption of H₂CO was first proposed by Townes & Cheung (1969). It was based on a classical formulation showing that collisions with neutral particles should favor excitation to the lower level of each doublet of ortho-H₂CO. This collisional propensity rule, combined with the dipolar radiative selection rules, leads to an overpopulation of the $\mathbf{1}_{11}$ level and a cooling of the excitation temperature of the $\mathbf{1}_{10} \leftarrow \mathbf{1}_{11}$ transition below 2.7 K². This scheme was subsequently supported by semi-classical and quantum calculations (Garrison et al. 1976). However, as mentioned in the Introduction, He atoms were employed as substitutes for H₂ in all previous studies. Troscompt et al. (2009) have shown that the propensity rule is actually weaker for H₂ than for He and, furthermore, that it depends significantly on the ortho/para form of H₂.

This is clearly illustrated in Fig. 2 where we have plotted the results of a non-LTE computation based on collisional excitation by either para-H₂ ($J=0$) and He atoms or ortho-H₂ ($J=1$) and He atoms. It is to be noted, however, that excitation by H₂ is entirely dominant, that is the contribution by He atoms was found to be negligible. Excitation by the much less abundant free electrons was neglected³. The hyperfine structure of H₂CO levels was neglected in the calculations (see below). We have employed the MOLPOP program, written by Moshe Elitzur and Philip Lockett, to solve the radiative transfer equations using the escape probability method for a homogeneous slab (Krolik & McKee 1978). The 10 first levels of ortho-H₂CO were considered in the computation with the following basic parameters: the ortho-H₂CO column density is fixed at $N(\text{H}_2\text{CO})=1.0 \times 10^{13}$ cm⁻², the kinetic temperature is $T_{\text{kin}}=10$ K and the Doppler linewidth is 1 km s⁻¹. The 2.7 K CMB radiation field was obviously included but all other possible sources of radiation were neglected. Collisional data are those of Troscompt et al. (2009) and Green (1991) for excitation by H₂ and He, respectively. It is first observed, in agreement with previous calculations based on He as collider, that cooling of the 6 cm doublet below 2.7 K does occur for density below a few 10^4 cm⁻³. This provides the first firm confirmation of the Townes & Cheung mechanism in the case of H₂ as collider. Second, it is noticed that the cooling is significantly stronger for para-H₂ ($J=0$) than for ortho-H₂ ($J = 1$) and that it occurs over a wider range of density. Hence, the cooling of the doublet is expected to depend markedly on the OPR of H₂, with diminishing intensity of the 6 cm absorption line as the OPR increases.

As mentioned above, we have neglected the hyperfine splitting of the H₂CO transitions in our radiative transfer treatment. This approximation is strictly valid only when the separation of the hyperfine lines is negligible compared to the line broadening. For linear molecules with large splittings, e.g. HCN or N₂H⁺, detailed treatments have shown that the total opacity of rotational lines can be in error by up to a factor of two (for $\tau_{\text{tot}} \gg 1$) if the hyperfine structure is neglected (Daniel et al. 2006). In the case of H₂CO, accurate hyperfine collisional rates are not available because the two-spin recoupling formalism (see Daniel et al. 2004) has not been extended yet to asymmetric tops. We have, however, assessed the effect of the hyperfine structure by

² This phenomenon is also observed for the $2_{11} \leftarrow 2_{12}$ transition of ortho-H₂CO at 2 cm.

³ We note that electron excitation of H₂CO can play an important role at high electron fraction ($x_e \gtrsim 10^{-5}$), in particular in diffuse clouds where electron collisions are expected to cancel the anomalous 6 cm absorption (Turner 1993).

¹ GILDAS package, <http://www.iram.fr/IRAMFR/GILDAS>

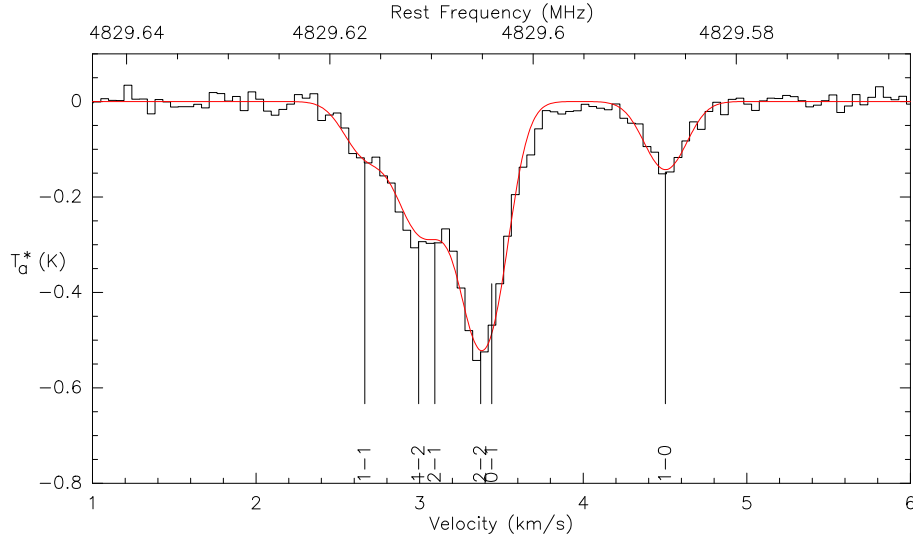


Figure 1. Spectrum of the $1_{10} \leftarrow 1_{11}$ absorption line of ortho-H₂CO at 4.82966 GHz toward B68. The GBT spectrum is given by the black line while the green line denotes the CLASS HFS fit. The hyperfine transitions $1_{10} F' \leftarrow 1_{11} F$ are marked at their respective frequencies.

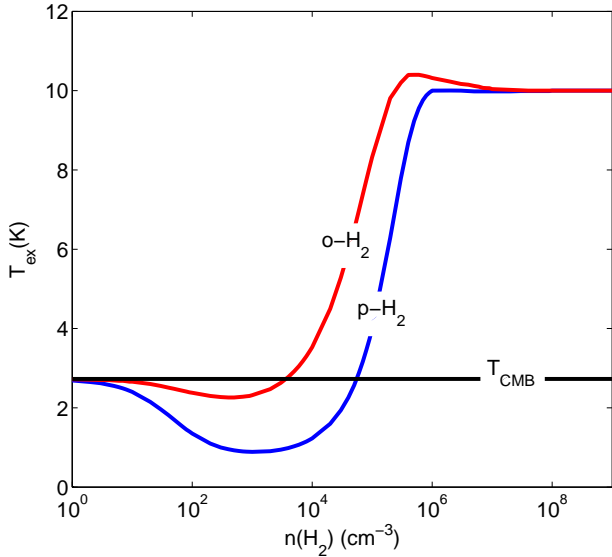


Figure 2. Excitation temperature for the $1_{10} \leftarrow 1_{11}$ transition as a function of the H₂ density. The blue and red lines correspond to para-H₂ ($J=0$) and ortho-H₂ ($J=1$) as collider, respectively. The black horizontal solid line denotes the background temperature $T_{\text{CMB}}=2.7$ K. See text for details.

resorting to the approximation that hyperfine rates are proportional to the degeneracy ($2F'+1$) of the final hyperfine level. *Ad hoc* selection rules like $\Delta F=0$ were also tested at both low and high opacities ($0 < \tau_{\text{tot}} < 50$). Line overlap was included using the absorption probability method (Lockett & Elitzur 1989). The total opacity and excitation temperature (common for all hyperfine levels) were found to agree within 10 % with calculations considering only the rotational structure. As a result, in contrast to molecules containing a ¹⁴N nucleus, the hyperfine structure in H₂CO can be safely neglected.

Based on the previous considerations, grids of models were constructed by varying the H₂ density between 10^3 and 10^6 cm⁻³ and the kinetic temperature between 7 and 12 K, in accordance with the known physical structure of B68 (Bergin et al. 2006);

the ortho-H₂CO column density was varied between 10^{11} and 10^{15} cm⁻², and the OPR of H₂ between 0 and 3, with the objective of reproducing both the total opacity τ_{tot} and the excitation temperature T_{ex} reported in Section 2. The line width was fixed at 0.294 km.s⁻¹, as deduced from the CLASS HFS fit. It should be noted that the impact of temperature variation (7–12 K) was found negligible in our modelling. In the following we will therefore assume a constant temperature of 10 K. On the other hand, the ortho-H₂CO column density was found to be very well constrained by our observations, with a value of $2.2 \pm 0.8 \times 10^{13}$ cm⁻². Interestingly, both the excitation temperature and line total opacity were found to depend strongly on the assumed H₂ density and OPR. This is illustrated in Fig. 3, which shows the predicted opacity and excitation temperature as a function of the H₂ density, assuming an OPR equal to zero. In this particular case, our observations constrain the H₂ density to the narrow range $1.4 \times 10^4 - 2.4 \times 10^4$ cm⁻³.

For a higher OPR, the observed τ_{tot} and T_{ex} can still be reproduced simultaneously but for much lower H₂ densities. This is shown in Fig. 4 where we have plotted the allowed range of densities for an OPR of 0, 1, and 2 respectively. It should be noted that the dependence of our model on the OPR is linear and not logarithmic. As a result, we can obviously not discriminate between an OPR of zero and, e.g., 10^{-3} . We have also reported in Fig. 4 the visual extinction of B68 as a function of density, as derived by Alves et al. (2001). The case OPR=3 is not plotted because it is not compatible with the observations. This Figure shows that the H₂ densities compatible with our H₂CO observation lie at low visual extinction, $A_V \lesssim 0.5$ mag, that is in the outer parts of the core. In the following paragraph, we discuss the implications of this result.

4. Discussion

Our observations and modelling demonstrates that the H₂CO abnormal absorption originates in regions of the core of moderate extinction. However, the exact origin of the absorption depends on the H₂ OPR. Conversely, one can place constraints on the OPR from simple arguments on the chemistry of the molecule. In particular, it is unlikely that the absorption of H₂CO occurs in

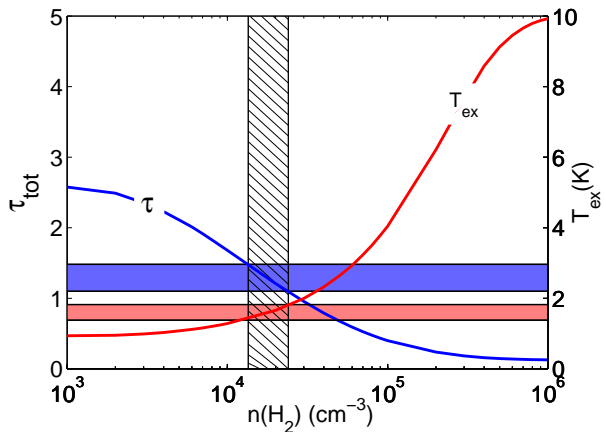


Figure 3. Total opacity, τ_{tot} , and excitation temperature, T_{ex} , as a function of density. The blue and red shaded area denote respectively the range of observed τ_{tot} and T_{ex} . The blue and red lines denote the results of the present model for a kinetic temperature of 10 K, an ortho-H₂CO column density of $2.2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ and an OPR of H₂ of zero. The dashed area gives the density range where both τ_{tot} and T_{ex} are reproduced.

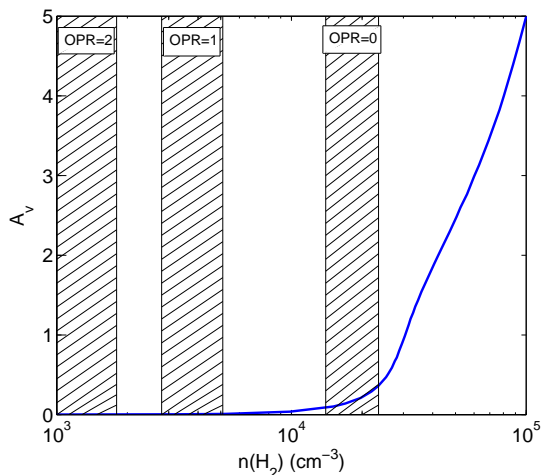


Figure 4. Visual extinction A_v in B68 as a function of H₂ density adopted from the model of Alves et al. (2001). The dashed areas denote the ranges of H₂ densities compatible with our H₂CO observation for OPR equal to 0, 1 and 2, respectively

regions where $A_v < 0.1$ mag. In these regions, the external UV field dissociates molecules and form a photon-dominated layer. For example, in their detail modelling of the photon-dominated region (PDR) surface layer of B68, Pineda & Bensch (2007) found that the CO abundance peaks at larger visual extinctions ($A_v \sim 0.4$ mag). Although Pineda & Bensch do not present predictions for H₂CO, we expect its abundance to peak at a similar or slightly greater A_v because, unlike CO, H₂CO should not be self-shielded from the UV field. Deeper in the cloud, the abundance of both molecules are expected to decrease, because of the freeze-out on grain mantles (e.g. Bergin et al. 2002; Maret & Bergin 2007, in the case of B68). If we assume that the observed H₂CO originates from a region where $A_v \sim 0.4$ mag, our modelling indicates that the OPR is close to 0 (see Fig. 4). As mentioned above, it is very unlikely that the absorption originates from region where $A_v < 0.1$ mag, and therefore the OPR is

necessarily smaller than 1. Thus our modelling and observations are consistent with $0 \leq \text{OPR} \lesssim 1$, that is with H₂ mostly in para form.

Furthermore, we have shown that the absorption originates in regions where $A_v \lesssim 0.5$ mag, that is the ortho-H₂CO 6 cm absorption line probes the most outer envelope of B68. Indeed, this conclusion was first reached by Minn & Greenberg (1975). Additional evidence supporting this scenario was subsequently obtained by Henkel et al. (1981) for TMC-1 and by Vanden Bout et al. (1983) for a sample of seven dark clouds. It is interesting to note that our estimate of the ortho-H₂CO column density in B68 ($2.2 \pm 0.8 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$) is consistent with the range obtained by the previous authors ($10^{12} - 10^{14} \text{ cm}^{-2}$). Assuming $A_v = 0.4$ mag and using the relation $N(\text{H}_2)/A_v = 0.94 \times 10^{21} \text{ cm}^{-2} \text{ mag}^{-1}$ (Frerking et al. 1982), we obtained an H₂CO relative abundance (in the absorption region) of $X(\text{H}_2\text{CO}) \sim 6 \times 10^{-8}$. In the envelope of dark clouds, such a large abundance cannot be reproduced by gas phase chemistry models, as first pointed out by Federman & Allen (1991). In the gas phase, H₂CO is mainly formed from the reaction of atomic oxygen with CH₃. However, there is never enough CH₃ in the tenuous envelopes of dark clouds and, in addition, H₂CO is rapidly destroyed by photodissociation and by reactions with C⁺ (Federman & Allen 1991). Alternatively, H₂CO may form by successive hydrogenation of CO at the surface of the grains (Tielens & Hagen 1982). This mechanism is expected to be more efficient in the innermost regions of the cores, where the depletion of CO is the highest. Thus, this scenario would require an efficient mixing mechanism to bring the grains from the interior to the surface, where CO and H₂CO can be photo-evaporated. However, turbulence is observed to be small in B68 with C¹⁸O and ¹³CO line width close to the thermal line width (Lada et al. 2003). Complex radial motions have been observed in this source, but their amplitude is also small (< 0.05 km/s; Maret et al. 2007). As a result, we cannot currently distinguish between gas phase and grain surface chemistry for the H₂CO formation, which has long been enigmatic in a variety of objects (e.g. Roueff et al. 2006). Future studies will address this important issue further. It will be interesting, in particular, to model other observable H₂CO lines, in particular the 2 mm emission ($2_{11} \rightarrow 1_{11}$) and 2 cm absorption ($2_{11} \leftarrow 2_{12}$). These two lines are however thought to arise from higher density regions than does the 6 cm line (Vanden Bout et al. 1983). Interferometric observations would be also clearly desirable to probe the spatial distribution of H₂CO absorption in B68. We note that such observations were undertaken by Zhou et al. (1990) in a VLA study of the Bok globule B335.

It is finally interesting to compare the OPR we derive in B68 to other estimates. Based on observations and modelling of the DCO⁺ and HCO⁺ emission in this source, Maret & Bergin (2007) inferred an OPR of 0.015, a value which is consistent with the one obtained here. Furthermore, Pagani et al. (2009) have used N₂D⁺, N₂H⁺ and ortho-H₂D⁺ observations to derive the OPR in the L183 prestellar core, and found that it is of 0.1 in most part of the cloud. Finally, Maret et al. (2009) have recently obtained maps of the H₂ OPR in the shocked gas in NGC1333 cloud, from which they conclude that the OPR in cold, pre-shock gas is lower than 1. Thus all these studies are consistent with the result presented here, that is H₂ is mostly in para form in the cold gas.

Acknowledgements. Part of this work is funded by the french national program ‘‘Physico-Chimie du Milieu Interstellaire’’ (PCMI). Michel Guélin is acknowledged for fruitful suggestions. We specially thank Jim Braatz and all the staff of the Green Bank Telescope for all the valuable help they provided for a very successful observation.

References

- Alves, J. F., Lada, C. J., & Lada, E. A. 2001, *Nature*, 409, 159
- Bergin, E. A., Alves, J., Huard, T., & Lada, C. J. 2002, *ApJ*, 570, L101
- Bergin, E. A., Maret, S., van der Tak, F. F. S., et al. 2006, *ApJ*, 645, 369
- Burkert, A. & Alves, J. 2009, *ApJ*, 695, 1308
- Daniel, F., Cernicharo, J., & Dubernet, M.-L. 2006, *ApJ*, 648, 461
- Daniel, F., Dubernet, M.-L., & Meuwly, M. 2004, *J. Chem. Phys.*, 121, 4540
- Evans, II, N. J., Morris, G., Sato, T., & Zuckerman, B. 1975, *ApJ*, 196, 433
- Federman, S. R. & Allen, M. 1991, *ApJ*, 375, 157
- Flower, D. R., Offer, A., & Schilke, P. 1990, *MNRAS*, 244, 4P
- Flower, D. R., Pineau Des Forêts, G., & Walmsley, C. M. 2006, *A&A*, 449, 621
- Frerking, M. A., Langer, W. D., & Wilson, R. W. 1982, *ApJ*, 262, 590
- Garrison, B. J., Lester, Jr., W. A., & Miller, W. H. 1976, *J. Chem. Phys.*, 65, 2193
- Green, S. 1991, *ApJS*, 76, 979
- Heiles, C. 1973, *ApJ*, 183, 441
- Henkel, C., Wilson, T. L., & Pankonin, V. 1981, *A&A*, 99, 270
- Krolik, J. H. & McKee, C. F. 1978, *ApJS*, 37, 459
- Lada, C. J., Bergin, E. A., Alves, J. F., & Huard, T. L. 2003, *ApJ*, 586, 286
- Le Bourlot, J. 1991, *A&A*, 242, 235
- Lefloch, B., Cernicharo, J., Cabrit, S., et al. 2003, *ApJ*, 590, L41
- Lockett, P. & Elitzur, M. 1989, *ApJ*, 344, 525
- Maret, S. & Bergin, E. A. 2007, *ApJ*, 664, 956
- Maret, S., Bergin, E. A., & Lada, C. J. 2007, *ApJ*, 670, L25
- Maret, S., Bergin, E. A., Neufeld, D. A., et al. 2009, *ApJ*, 698, 1244
- Martin, R. N. & Barrett, A. H. 1978, *ApJS*, 36, 1
- Minn, Y. K. & Greenberg, J. M. 1975, *A&A*, 38, 81
- Neufeld, D. A., Melnick, G. J., & Harwit, M. 1998, *ApJ*, 506, L75
- Pagani, L., Vastel, C., Hugo, E., et al. 2009, *A&A*, 494, 623
- Palmer, P., Zuckerman, B., Buhl, D., & Snyder, L. E. 1969, *ApJ*, 156, L147+
- Pineda, J. L. & Bensch, F. 2007, *A&A*, 470, 615
- Roueff, E., Dartois, E., Geballe, T. R., & Gerin, M. 2006, *A&A*, 447, 963
- Tielens, A. G. G. M. & Hagen, W. 1982, *A&A*, 114, 245
- Townes, C. H. & Cheung, A. C. 1969, *ApJ*, 157, L103
- Troscompt, N., Faure, A., Wiesenfeld, L., Ceccarelli, C., & Valiron, P. 2009, *A&A*, 493, 687
- Tucker, K. D., Tomasevich, G. R., & Thaddeus, P. 1971, *ApJ*, 169, 429
- Turner, B. E. 1993, *ApJ*, 410, 140
- Vanden Bout, P. A., Snell, R. L., & Wilson, T. L. 1983, *A&A*, 118, 337
- Zhou, S., Evans, II, N. J., Butner, H. M., et al. 1990, *ApJ*, 363, 168

Chapitre 7

Conclusions et perspectives

Nous allons tout d'abord présenter ici un récapitulatif des résultats que nous avons présentés durant cette thèse. Nous allons ensuite faire un point de perspectives qui pourraient compléter l'étude que nous avons faite.

7.1 Conclusions

Au cours du travail de thèse que nous avons présenté tout au long de ce manuscrit, nous avons pu appréhender toute la chaîne d'étude de transfert radiatif au sein de milieux astrophysiques, depuis les calculs *ab initio* de surface d'énergie potentielle jusqu'au transfert radiatif à proprement parler, en passant par le calcul de taux de collision et aux observations astronomiques.

Toute cette chaîne d'analyse s'est concentrée sur l'étude complète d'un système moléculaire particulier : (ortho,para)-H₂CO–(ortho,para)-H₂.

Dans la première partie de ce travail, nous avons présenté les processus et les résultats des calculs de production de taux de collision pour le système molécule asymétrique-diatome. Nous avons montré que l'état de spin du projectile influençait grandement les valeurs des sections efficaces de collision : les collisions avec ortho-H₂ donnent lieu à des sections efficaces de collision généralement plus grande que les collisions avec para-H₂, et ce peu importe l'état de spin de la cible, puisque les tendances sont les mêmes avec ortho- ou para-H₂CO.

Nous avons vu que cette tendance se répercute sur les taux de collision et, de plus, avons signalé les différences qu'il existe entre les taux calculés avec l'hydrogène moléculaire et ceux calculés avec l'hélium : les taux calculés avec ortho-H₂ sont toujours ~ 3 fois plus élevé que les taux calculés avec He. Par contre, aucune conclusion de ce type ne peut être déduite des taux calculés avec para-H₂.

Enfin nous avons mis en avant le fait que, pour traiter correctement les problèmes de transfert radiatif dans des milieux dilués, il faut absolument prendre en compte les collisions avec H₂, *i.e.* ne pas utiliser les taux de collision calculés avec He, même corrigés du rapport des masses des projectiles. Nous avons déduit ceci grâce aux différences entre les taux de collision calculés avec les deux projectiles (H₂ et He), mais aussi en comparant les flux simulés des 8 transitions millimétriques les plus fortes de ortho-H₂CO : les flux calculés avec les taux calculés avec He sont systématiquement plus faibles que ceux calculés avec ortho-H₂, et la différence pouvant aller jusqu'à un facteur 10. Par conséquent, toutes les études faites en utilisant les taux existants avant cette thèse surestiment systématiquement la densité des milieux étudiés.

Grâce à ces taux de collision, nous avons pu nous intéresser à des milieux astrophysiques particuliers : les nuages sombres et, en particulier, à une des caractéristiques de ces nuages sombres, « l'absorption anormale » de la transition fondamentale ($1_{11} \rightarrow 1_{10}$) de ortho- H_2CO à 6 cm (4.8 GHz). Grâce aux taux de collision que nous avons calculés, nous avons pu confirmer le mécanisme décrit par Townes & Cheung en 1969 [105], c'est-à-dire une compétition entre phénomène collisionnel et phénomène radiatif dans le cas de H_2 , responsable d'une surpopulation du niveau fondamental de ortho- H_2CO , provoquant l'absorption du fond diffus cosmologique à 2.72 K.

En plus de la capacité de densitomètre de cette absorption, connue depuis les années 1970 (Garrison *et al.* 1975 [44]), nous avons présenté dans cette thèse l'effet du rapport ortho/para de H_2 sur la valeur de cette absorption : plus il y a de ortho- H_2 dans le milieu, moins l'absorption est forte. Ceci est dû aux différentes règles de propension des différents projectiles : les collisions avec para- H_2 suivent les règles décrites par Townes & Cheung, celles avec ortho- H_2 moins. Nous en avons déduit que cette absorption pouvait aussi être une sonde du rapport ortho/para de H_2 dans les nuages sombres, là où il n'était pas possible de le mesurer directement.

Cela dit, afin de pouvoir contraindre ce rapport ortho/para de H_2 dans les nuages sombres, il nous faut trouver des observables que nous pouvons déterminer avec précision. Pour cela, nous avons tiré parti de la présence de transitions hyperfines dans la transition à 6 cm de ortho- H_2CO pour déterminer la température d'excitation de la transition et son épaisseur optique. Pour avoir une détermination avec la plus faible barre d'erreur possible, nous avons montré que des observations à haute résolution spectrale étaient nécessaires, et ce afin de résoudre le mieux possible les composantes hyperfines.

Ainsi nous avons mené des observations spectroscopiques à haute résolution spectrale sur 3 sources : B68, TMC-1 et L134N. Ces observations ont été faites au Green Bank Telescope. A la fréquence d'observation (4.8 GHz), nous avons obtenu une résolution spectrale nous permettant de résoudre 4 des 6 composantes hyperfines de la transition. De plus, le rapport signal sur bruit est grand (≥ 10). Ces deux caractéristiques nous permettent de pouvoir déterminer la valeur des observables avec précision.

Nous avons utilisé la méthode HFS du logiciel CLASS pour déterminer la valeur des observables. Ces observables sont ensuite simulées grâce à un programme de transfert radiatif (MOLPOP). Nous comparons enfin les simulations et les observations afin de contraindre les paramètres physiques des milieux.

Ces comparaisons nous ont conduits à plusieurs conclusions :

- La densité de colonne de H_2CO que nous trouvons dans les trois sources sont compatibles avec les gammes de densités de colonne déjà contraintes par des études précédentes : $10^{12} - 10^{14} \text{ cm}^{-2}$.
- Afin de pouvoir contraindre réellement le rapport ortho/para de H_2 , nous avons besoin de connaître avec précision la structure en densité des sources, et en particulier leur relation extinction visuelle-densité, sans quoi la détermination se trouve limitée.
- Le rapport ortho/para de H_2 que nous déduisons de nos modèles se trouve être très bas : $\text{OPR}(\text{H}_2) \sim 0$, en tenant compte des structures en densité des sources. Ceci est compatible avec les études précédentes, basées sur des modèles de chimie.
- Enfin, nous trouvons que l'absorption anormale est localisée dans les parties les plus externes des nuages moléculaires, à des extinctions visuelles basses ($A_v \leq 0.5$). Ceci pose la question de la chimie de H_2CO dans ces nuages.

Ainsi, dans toute cette thèse, nous avons montré que, à partir d'une étude théorique de calcul de taux de collision, nous avons pu contraindre les paramètres physiques importants

de milieux astrophysiques. Le calcul de taux de collision inélastique montre ici tout son intérêt : sans des taux de collision précis calculés pour plusieurs projectiles, nous n'aurions pas pu mener cette étude à son terme.

7.2 Perspectives

Les perspectives du travail que nous avons fournis ici sont multiples.

1. Tout d'abord, d'un point de vue physique moléculaire, la validation par l'expérience des taux de collision calculés serait un plus non négligeable afin d'avoir confiance en ces taux. Les seules valeurs expérimentales connues à ce jour faites par van Hulst *et al.* (1987 [117; 116]) le sont pour des énergies bien supérieures aux énergies auxquelles nous nous sommes intéressées. Cela dit, un des problèmes liés à la validation expérimentale de ces calculs vient de la difficulté à séparer les états ortho- et para- des molécules de H_2 .
2. Les coefficients de collision que nous avons présentés ici ne sont valables que pour des températures inférieures à 30 K et pour les premiers niveaux de H_2CO . Le but serait de calculer maintenant les coefficients de collision pour les niveaux plus excités, et pour des températures plus hautes. Plusieurs choix s'offrent à nous : soit effectuer les mêmes calculs que ceux que nous avons présentés ici, au prix de temps de calcul long, soit effectuer des calculs approchés en utilisant des approximations de découplage, au prix d'une perte de précision, soit, enfin, d'extrapoler ces taux.
3. D'un point de vue astrophysique, il reste beaucoup à faire dans l'étude de l'absorption anormale de ortho- H_2CO . Nous avons étudié l'impact des collisions avec H_2 , les études précédentes ont étudié l'impact des collisions avec He. Nous avons déterminé, de par nos études, que l'absorption anormale se situait à des extinctions visuelles basses, où la proportion d'électrons libres n'est pas négligeable ($X(e^-)=1e-8$). Quel est l'impact des collisions avec ces électrons sur l'absorption ? Ceci est une piste intéressante à creuser.
4. De plus, comme nous l'avons signalé dans le dernier chapitre de cette thèse, pour avoir une estimation du rapport ortho/para de H_2 dans les nuages moléculaires, il nous faut une estimation de la structure en densité de la source étudiée. Comme toutes les structures en densité des nuages moléculaires ne sont pas connues, nous voyons donc ici qu'il reste un travail considérable de cartographie des extinctions visuelles de ces nuages. Si des études du type de celles menées par Alves *et al.* (2001) [1] (comptage d'étoiles) doivent être menées, on peut aussi considérer des méthodes plus simples et plus rapides de détermination de densité dans les milieux où est observée l'absorption de H_2CO : des observations faites en simultanée sur d'autres molécules qui se thermalisent à haute densité (comme CS par exemple) semblent être un moyen potentiel de contraindre cette densité.
5. Avoir H_2CO dans des lieux si externes des sources pose aussi des questions sur la chimie de cette molécule. Comment peut-elle survivre ? Comment peut-il y avoir une si forte abondance ? Cela montre bien notre connaissance seulement partielle de la chimie dans les milieux astrophysiques, et en particulier dans les milieux dilués. Un autre point qu'il faudrait regarder serait d'évaluer si d'autres molécules complexes (4-5 atomes voire plus) peuvent aussi survivre à des extinctions visuelles aussi basses. Ainsi, nous verrions qu'il s'agit d'un phénomène global et non pas d'une spécificité de H_2CO .

En guise de conclusion générale, j'aimerais faire une conclusion personnelle. Durant cette thèse, j'ai pu effectuer un travail théorique, un travail observationnel et un travail de modélisation. Avoir eu l'opportunité de faire les trois aspects du travail d'astrophysicien au cours de la même thèse a été très enrichissant pour moi et m'a permis d'appréhender la chaîne d'étude que tout astrophysicien est susceptible de suivre. De plus, tout au long de cette thèse, j'ai pu comprendre comment un phénomène à l'échelle quantique, les collisions moléculaires, pouvait nous renseigner sur l'état global d'un objet macroscopique, les nuages sombres. Ainsi, d'une certaine manière, je me suis rendu compte qu'il n'était pas possible de dissocier les échelles en astrophysique.

Bibliographie

- [1] J. F. Alves, C. J. Lada, and E. A. Lada. Internal structure of a cold dark molecular cloud inferred from the extinction of background starlight. *Nature*, 409 :159–161, January 2001.
- [2] R. Arquilla and P. F. Goldsmith. A detailed examination of the kinematics of rotating dark clouds. *ApJ*, 303 :356–374, April 1986.
- [3] A. M. Arthurs and A. Dalgarno. The Theory of Scattering by a rigid rotator. *Proc. R. Soc. A*, 256 :560, October 1960.
- [4] S. D. Augustin and W. H. Miller. Semiclassical treatment of atom-asymmetric rotor collisions - Rotational excitation of formaldehyde at low energies. *J. Chem. Phys.*, 61 :3155–3163, October 1974.
- [5] E. E. Barnard. On the dark markings of the sky, with a catalogue of 182 such objects. *ApJ*, 49 :1–24, January 1919.
- [6] E. A. Bergin, J. Alves, T. Huard, and C. J. Lada. N_2H^+ and C^{18}O Depletion in a Cold Dark Cloud. *ApJL*, 570 :L101–L104, May 2002.
- [7] E. A. Bergin, S. Maret, F. F. S. van der Tak, J. Alves, S. M. Carmody, and C. J. Lada. The Thermal Structure of Gas in Prestellar Cores : A Case Study of Barnard 68. *ApJ*, 645 :369–380, July 2006.
- [8] E. A. Bergin and M. Tafalla. Cold Dark Clouds : The Initial Conditions for Star Formation. *Annual Rev. A&A*, 45 :339–396, September 2007.
- [9] J. H. Black and E. F. van Dishoeck. Fluorescent excitation of interstellar H_2 . *ApJ*, 322 :412–449, November 1987.
- [10] R. Bocquet. The Ground State Rotational Spectrum of Formaldehyde. *Journal of Molecular Spectroscopy*, 177 :154–159, May 1996.
- [11] B. J. Bok. Dimensions and Masses of Dark Nebulae. *Harvard Observatory Monographs*, 7 :53–+, 1948.
- [12] W. B. Bonnor. Boyle’s Law and gravitational instability. *MNRAS*, 116 :351–+, 1956.
- [13] M. Born and R. Oppenheimer. Zur Quantentheorie der Molekeln. *Annalen der Physik*, 84 :457–484, 1927.
- [14] F. Boys, S. F.; Bernardi. The calculation of small molecular interactions by the differences of separate total energies. Some procedures with reduced errors. *Mol. Phys.*, 19 :553, 1970.
- [15] J. Brown and A. Carrington. *Rotational spectroscopy of diatomic molecules*. Cambridge University Press, 2003.
- [16] S. Brünken, H. Gupta, C. A. Gottlieb, M. C. McCarthy, and P. Thaddeus. Detection of the Carbon Chain Negative Ion C_8H^- in TMC-1. *ApJL*, 664 :L43–L46, July 2007.
- [17] J. Cabannes, J. Dufay, and J. Gauzit. CH Bands in the Night Sky Spectrum. *Nature*, 142 :718–719, October 1938.

- [18] L. Cambr esy. Mapping of the extinction in giant molecular clouds using optical star counts. *A&A*, 345 :965–976, May 1999.
- [19] E. R. Capriotti. Mean Escape Probabilities of Line Photons. *ApJ*, 142 :1101–+, October 1965.
- [20] P. Caselli, C. M. Walmsley, A. Zucconi, M. Tafalla, L. Dore, and P. C. Myers. Molecular Ions in L1544. I. Kinematics. *ApJ*, 565 :331–343, January 2002.
- [21] J. I. Castor. Spectral line formation in Wolf-Rayet envelopes. *MNRAS*, 149 :111–127, 1970.
- [22] C. Ceccarelli, P. Caselli, E. Herbst, A. G. G. M. Tielens, and E. Caux. Extreme Deuteration and Hot Corinos : The Earliest Chemical Signatures of Low-Mass Star Formation. In B. Reipurth, D. Jewitt, and K. Keil, editors, *Protostars and Planets V*, pages 47–62, 2007.
- [23] M.S. Child. *Molecular Collisions Theory*. Academic Press, 1984.
- [24] F. O. Clark and D. R. Johnson. The L134-L183-L1778 system of interstellar clouds. *ApJ*, 247 :104–111, July 1981.
- [25] D. J. Clouthier and D. A. Ramsey. *Ann. Rev. Phys. Chem.*, 34 :31, 1983.
- [26] W. Cordy and R.L. Cook. *Microwave Molecular Spectra*. Wiley Interscience, 1984.
- [27] F. Daniel, J. Cernicharo, and M.-L. Dubernet. The Excitation of N_2H^+ in Interstellar Molecular Clouds. I. Models. *ApJ*, 648 :461–471, September 2006.
- [28] F. Daniel, M.-L. Dubernet, and M. Meuwly. Selective hyperfine excitation of N_2H^+ by He : Potential energy surface, cross sections, and propensity rules. *J. Chem. Phys.*, 121 :4540–4549, September 2004.
- [29] F. Daniel, M.-L. Dubernet, M. Meuwly, J. Cernicharo, and L. Pagani. Collisional excitation rate coefficients of N_2H^+ by He. *MNRAS*, 363 :1083–1091, November 2005.
- [30] J. E. Dickens, W. M. Irvine, R. L. Snell, E. A. Bergin, F. P. Schloerb, P. Pratap, and M. P. Miralles. A Study of the Physics and Chemistry of L134N. *ApJ*, 542 :870–889, October 2000.
- [31] B. T. Draine and F. Bertoldi. Structure of Stationary Photodissociation Fronts. *ApJ*, 468 :269–+, September 1996.
- [32] M.-L. Dubernet and A. Grosjean. Collisional excitation rates of H_2O with H_2 . I. Pure rotational excitation rates with para- H_2 at very low temperature. *A&A*, 390 :793–800, August 2002.
- [33] W. W. Duley and D. A. Williams. The formation of interstellar H_2 on amorphous silicate grains. *MNRAS*, 223 :177–182, November 1986.
- [34] J. L. Duncan. *Mol. Phys.*, 28 :1177, 1974.
- [35] R. Ebert. ber die Verdichtung von H I-Gebieten. *Z. Astrophysik*, 1955.
- [36] M. Elitzur. *Astronomical Masers*. Springer, 1992.
- [37] N. J. Evans, II, G. Morris, T. Sato, and B. Zuckerman. Interstellar H_2CO . I - Absorption studies, dark clouds, and the cosmic background radiation. *ApJ*, 196 :433–456, March 1975.
- [38] A. Faure and E. Josselin. Collisional excitation of water in warm astrophysical media. I. Rate coefficients for rovibrationally excited states. *A&A*, 492 :257–264, December 2008.
- [39] A. Faure, P. Valiron, M. Wernli, L. Wiesenfeld, C. Rist, J. Noga, and J. Tennyson. A full nine-dimensional potential-energy surface for hydrogen molecule-water collisions. *J. Chem. Phys.*, 122 :1102–+, June 2005.
- [40] S. R. Federman and M. Allen. Formaldehyde in envelopes of interstellar dark clouds. *ApJ*, 375 :157–162, July 1991.

- [41] D. R. Flower, G. Pineau Des Forêts, and C. M. Walmsley. The importance of the ortho :para H₂ ratio for the deuteration of molecules during pre-protostellar collapse. *A&A*, 449 :621–629, April 2006.
- [42] G. A. P. Franco. High latitude molecular clouds - Distances derived from accurate photometry. *A&A*, 223 :313–320, October 1989.
- [43] M. A. Frerking, W. D. Langer, and R. W. Wilson. The relationship between carbon monoxide abundance and visual extinction in interstellar clouds. *ApJ*, 262 :590–605, November 1982.
- [44] B. J. Garrison, W. A. Lester, Jr., W. H. Miller, and S. Green. Cooling of the 6-centimeter and 2-centimeter doublets of interstellar H₂CO by collision - an accurate quantum-mechanical calculation. *ApJL*, 200 :L175–L177, September 1975.
- [45] D. Gerlich. Ortho-para transitions in reactive H⁺+H₂ collisions. *J. Chem. Phys.*, 92 :2377–2388, February 1990.
- [46] P. F. Goldsmith. Molecular Depletion and Thermal Balance in Dark Cloud Cores. *ApJ*, 557 :736–746, August 2001.
- [47] P. F. Goldsmith and W. D. Langer. Molecular cooling and thermal balance of dense interstellar clouds. *ApJ*, 222 :881–895, June 1978.
- [48] S. Green. Collisional excitation of formaldehyde in 'hot' interstellar molecular regions. *ApJS*, 76 :979–983, July 1991.
- [49] D.R. Hartree. *The calculation of atomic structure*. Wiley, 1957.
- [50] C. Henkel, T. L. Wilson, and V. Pankonin. H₂CO and CO observations of TMC1. *A&A*, 99 :270–273, June 1981.
- [51] E. Herbst. Astrochemistry in the gas and on dust particles. In A. Wilson, editor, *ESA Special Publication*, volume 577 of *ESA Special Publication*, pages 205–210, January 2005.
- [52] W. Hershel. On the construction of the Heavens. *Philos. Trans. Ser. I*, 75 :213, 1785.
- [53] D. G. Hummer and G. Rybicki. The Formation of Spectral Lines. *Annual Rev. A&A*, 9 :237–+, 1971.
- [54] J. M. Hutson and S. Green. *MOLSCAT computer code, version 14 (1994)*. distributed by Collaborative Computational Project No. 6 of the Engineering and Physical Sciences Research Council UK, 1994.
- [55] J. H. Jeans. The Stability of a Spherical Nebula. *Royal Society of London Philosophical Transactions Series A*, 199 :1–53, 1902.
- [56] M. Jeziorska, P. Jankowski, K. Szalewicz, and B. Jeziorski. On the optimal choice of monomer geometry in calculations of intermolecular interaction energies : Rovibrational spectrum of Ar-HF from two- and three-dimensional potentials. *J. Chem. Phys.*, 113 :2957–2968, August 2000.
- [57] B. R. Johnson. The Multichannel Log-Derivative Method for Scattering Calculations. *Journal of Computational Physics*, 13 :445–+, November 1973.
- [58] B. R. Johnson. New numerical methods applied to solving the one-dimensional eigenvalue problem. *Journal of Chemical Physics*, 67 :4086–4093, November 1977.
- [59] N. Kaifu, M. Ohishi, K. Kawaguchi, S. Saito, S. Yamamoto, T. Miyaji, K. Miyazawa, S.-I. Ishikawa, C. Noumaru, S. Harasawa, M. Okuda, and H. Suzuki. A 8.8–50GHz Complete Spectral Line Survey toward TMC-1 I. Survey Data. *Publ. Astr. Soc. Jap.*, 56 :69–173, February 2004.
- [60] S. V. Kalenskii, V. I. Slysh, P. F. Goldsmith, and L. E. B. Johansson. A 4-6 GHz Spectral Scan and 8-10 GHz Observations of the Dark Cloud TMC-1. *ApJ*, 610 :329–338, July 2004.

- [61] J. H. Krolik and C. F. McKee. Hydrogen emission-line spectra in quasars and active galactic nuclei. *ApJS*, 37 :459–483, August 1978.
- [62] T. B. H. Kuiper, W. D. Langer, and T. Velusamy. Evolutionary Status of the Pre-protostellar Core L1498. *ApJ*, 468 :761–+, September 1996.
- [63] C. J. Lada, E. A. Bergin, J. F. Alves, and T. L. Huard. The Dynamical State of Barnard 68 : A Thermally Supported, Pulsating Dark Cloud. *ApJ*, 586 :286–295, March 2003.
- [64] C. J. Lada and N. D. Kylafis. Book-Review - the Physics of Star Formation and Early Stellar Evolution. *Journal of the British Astronomical Association*, 101 :364–+, December 1991.
- [65] J. Le Bourlot. Ammonia formation and the ortho-to-para ratio of H₂ in dark clouds. *A&A*, 242 :235–240, February 1991.
- [66] J. Le Bourlot. Ortho to para conversion of H₂ on interstellar grains. *A&A*, 360 :656–662, August 2000.
- [67] J. Le Bourlot, G. Pineau des Forets, E. Roueff, A. Dalgarno, and R. Gredel. Infrared Diagnostics of the Formation of H₂ on Interstellar Dust. *ApJ*, 449 :178–+, August 1995.
- [68] B. Lefloch, J. Cernicharo, S. Cabrit, A. Noriega-Crespo, A. Moro-Martín, and D. Cesarsky. Warm Molecular Hydrogen and Ionized Neon in the HH 2 Outflow. *ApJL*, 590 :L41–L44, June 2003.
- [69] J. Lequeux, E. Falgarone, and C. Ryter. *Le milieu interstellaire*. EDP Sciences Editions, 2002.
- [70] H. Liszt and R. Lucas. λ 6cm and λ 2mm H₂CO absorption toward compact extragalactic mm-wave continuum sources. *A&A*, 299 :847–+, July 1995.
- [71] H. S. Liszt, R. Lucas, and J. Pety. Comparative chemistry of diffuse clouds. V. Ammonia and formadehyde. *A&A*, 448 :253–259, March 2006.
- [72] R. Lucas and H. S. Liszt. Comparative chemistry of diffuse clouds. III. Sulfur-bearing molecules. *A&A*, 384 :1054–1061, March 2002.
- [73] J. G. Mangum, J. Darling, K. M. Menten, and C. Henkel. Formaldehyde Densitometry of Starburst Galaxies. *ApJ*, 673 :832–846, February 2008.
- [74] D.E. Manolopoulos. An improved log derivative method for inelastic scattering. *J. Chem. Phys.*, 85 :6425–+, December 1986.
- [75] S. Maret, E. A. Bergin, and C. J. Lada. Using Chemistry to Unveil the Kinematics of Starless Cores : Complex Radial Motions in Barnard 68. *ApJL*, 670 :L25–L28, November 2007.
- [76] S. Maret, E. A. Bergin, D. A. Neufeld, J. D. Green, D. M. Watson, M. O. Harwit, L. E. Kristensen, G. J. Melnick, P. Sonnentrucker, V. Tolls, M. W. Werner, K. Willacy, and Y. Yuan. Spitzer Mapping of Molecular Hydrogen Pure Rotational Lines in NGC 1333 : A Detailed Study of Feedback in Star Formation. *ApJ*, 698 :1244–1260, June 2009.
- [77] S. Maret, C. Ceccarelli, E. Caux, A. G. G. M. Tielens, J. K. Jørgensen, E. van Dishoeck, A. Bacmann, A. Castets, B. Lefloch, L. Loinard, B. Parise, and F. L. Schöier. The H₂CO abundance in the inner warm regions of low mass protostellar envelopes. *A&A*, 416 :577–594, March 2004.
- [78] R. N. Martin and A. H. Barrett. Microwave spectral lines in galactic dust globules. *ApJS*, 36 :1–51, January 1978.
- [79] P. McGuire and D. J. Kouri. Quantum mechanical close coupling approach to molecular collisions. j_z-conserving coupled states approximation. *J. Chem. Phys.*, 60 :2488–2499, March 1974.
- [80] A. Messiah. *Mécanique Quantique*. Dunod, 2003.

- [81] Y. C. Minh, W. M. Irvine, and D. McGonagle. Search for H_2COH^+ and H_2^{13}CO in Dense Interstellar Molecular Clouds. *J.Kor.Astro.Soc.*, 26 :99–101, October 1993.
- [82] Y. K. Minn and J. M. Greenberg. H_2CO and H I observations of dark clouds in NGC 2264. *A&A*, 38 :81–85, January 1975.
- [83] F. Mrugala and D. Secrest. The generalized log-derivative method for inelastic and reactive collisions^a. *Journal of Chemical Physics*, 78 :5954–5961, May 1983.
- [84] L. G. Mundy, N. J. Evans, II, R. L. Snell, and P. F. Goldsmith. Models of molecular cloud cores. III - A multitransition study of H_2CO . *ApJ*, 318 :392–409, July 1987.
- [85] D. A. Neufeld, G. J. Melnick, and M. Harwit. Infrared Space Observatory Observations of Molecular Hydrogen in HH 54 :Measurement of a Nonequilibrium Ratio of Ortho- to Para- H_2 . *ApJL*, 506 :L75–L78, October 1998.
- [86] D. A. Neufeld, G. J. Melnick, P. Sonnentrucker, E. A. Bergin, J. D. Green, K. H. Kim, D. M. Watson, W. J. Forrest, and J. L. Pipher. Spitzer Observations of HH 54 and HH 7-11 : Mapping the H_2 Ortho-to-Para Ratio in Shocked Molecular Gas. *ApJ*, 649 :816–835, October 2006.
- [87] T. Oka. Interstellar H_3^+ . *PNAS*, 103 :12235, 2006.
- [88] J. R. Oppenheimer. On the Quantum Theory of Electronic Impacts. *Physical Review*, 32 :361–376, September 1928.
- [89] L. Pagani, A. Bacmann, S. Cabrit, and C. Vastel. Depletion and low gas temperature in the L183 (=L134N) prestellar core : the N_2H^+ - N_2D^+ tool. *A&A*, 467 :179–186, May 2007.
- [90] L. Pagani, G. Lagache, A. Bacmann, F. Motte, L. Cambr esy, M. Fich, D. Teyssier, M.-A. Miville-Desch enes, J.-R. Pardo, A. J. Apponi, and B. Stepnik. L183 (L134N) Revisited. I. The very cold core and the ridge. *A&A*, 406 :L59–L62, July 2003.
- [91] L. Pagani, C. Vastel, E. Hugo, V. Kokoouline, C. H. Greene, A. Bacmann, E. Bayet, C. Ceccarelli, R. Peng, and S. Schlemmer. Chemical modeling of <ASTROBJ>L183</ASTROBJ> (<ASTROBJ>L134N</ASTROBJ>) : an estimate of the ortho/para H_2 ratio. *A&A*, 494 :623–636, February 2009.
- [92] P. Palmer, B. Zuckerman, D. Buhl, and L. E. Snyder. Formaldehyde Absorption in Dark Nebulae. *ApJL*, 156 :L147+, June 1969.
- [93] T. R. Phillips, S. Maluendes, A. D. McLean, and S. Green. Anisotropic rigid rotor potential energy function for $\text{H}_2\text{O}-\text{H}_2$. *J. Chem. Phys.*, 101 :5824–5830, October 1994.
- [94] J. L. Pineda and F. Bensch. Photon-dominated region modeling of the CO and [C i] line emission in Barnard 68. *A&A*, 470 :615–623, August 2007.
- [95] P. Pratap, J. E. Dickens, R. L. Snell, M. P. Miralles, E. A. Bergin, W. M. Irvine, and F. P. Schloerb. A Study of the Physics and Chemistry of TMC-1. *ApJ*, 486 :862–+, September 1997.
- [96] H. Rabitz. Effective Potentials in Molecular Collisions. *J. Chem. Phys.*, 57 :1718–1725, August 1972.
- [97] M. I. Rodr guez, R. J. Allen, L. Loinard, and T. Wiklind. Anomalous H_2CO Absorption toward the Galactic Anticenter : A Blind Search for Dense Molecular Clouds. *ApJ*, 652 :1230–1239, December 2006.
- [98] R. L. Snell. A study of the nine interstellar dark clouds. *ApJS*, 45 :121–175, January 1981.
- [99] R. L. Snell, W. D. Langer, and M. A. Frerking. Determination of density structure in dark clouds from CS observations. *ApJ*, 255 :149–159, April 1982.

- [100] L. E. Snyder, D. Buhl, B. Zuckerman, and P. Palmer. Microwave Detection of Interstellar Formaldehyde. *Physical Review Letters*, 22 :679–681, March 1969.
- [101] V.V. Sobolev. *Theoretical Astrophysics*. Ed. V.A. Ambertsumyan, Pergamon Press, Ltd, 1958.
- [102] J. Takahashi. The Ortho/Para Ratio of H₂ Newly Formed on Dust Grains. *ApJ*, 561 :254–263, November 2001.
- [103] K. Takayanagi, K. Sakimoto, and K. Onda. Para/ortho abundance ratio of molecular hydrogen in NGC 2023. *ApJL*, 318 :L81–L84, July 1987.
- [104] A. G. G. M. Tielens and W. Hagen. Model calculations of the molecular composition of interstellar grain mantles. *A&A*, 114 :245–260, October 1982.
- [105] C. H. Townes and A. C. Cheung. A Pumping Mechanism for Anomalous Microwave Absorption in Formaldehyde in Interstellar Space. *ApJL*, 157 :L103+, August 1969.
- [106] C.H. Townes and A.L. Schawlow. *Microwave Spectroscopy*. Dover Publications, 1975.
- [107] N. Troscompt, A. Faure, L. Wiesenfeld, C. Ceccarelli, and P. Valiron. Rotational excitation of formaldehyde by hydrogen molecules : ortho-H₂CO at low temperature. *A&A*, 493 :687–696, January 2009.
- [108] K. D. Tucker, G. R. Tomasevich, and P. Thaddeus. Laboratory Measurement of the 6-centimeter Formaldehyde Transitions. *ApJ*, 169 :429–+, October 1971.
- [109] B. E. Turner. Deuterated Molecules in Translucent and Dark Clouds. *ApJS*, 136 :579–629, October 2001.
- [110] B. E. Turner, S. Petrie, R. C. Dunbar, and G. Langston. A Search for MgNC and AlNC in TMC-1 : The Status of Metals in Dark Cloud Cores. *ApJ*, 621 :817–830, March 2005.
- [111] H. Ungerechts, C. M. Walmsley, and G. Winnewisser. Ammonia and cyanoacetylene observations of the high density core of L 183 /L 134 n/. *A&A*, 88 :259–266, August 1980.
- [112] J. Čížek. On the Correlation Problem in Atomic and Molecular Systems. Calculation of Wavefunction Components in Ursell-Type Expansion Using Quantum-Field Theoretical Methods. *J. Chem. Phys.*, 45 :4256–4266, December 1966.
- [113] P. Valiron, M. Wernli, A. Faure, L. Wiesenfeld, C. Rist, Kedzuch S., and J. Noga. R12-calibrated H₂O-H₂ interaction : Full dimensional and vibrationally averaged potential energy surfaces. *J. Chem. Phys.*, 129 :134306–+, October 2008.
- [114] F. F. S. van der Tak, E. F. van Dishoeck, and P. Caselli. Abundance profiles of CH₃OH and H₂CO toward massive young stars as tests of gas-grain chemical models. *A&A*, 361 :327–339, September 2000.
- [115] E. F. van Dishoeck. ISO Spectroscopy of Gas and Dust : From Molecular Clouds to Protoplanetary Disks. *Annual Rev. A&A*, 42 :119–167, September 2004.
- [116] N. F. van Hulst, J. J. Ter Meulen, and A. Dymanus. Cross sections for rotationally inelastic scattering of formaldehyde. III - Differential measurements on D₂CO-H₂ scattering. *J. Chem. Phys.*, 87 :2750–2759, September 1987.
- [117] N. F. van Hulst, J. J. Ter Meulen, and A. Dymanus. Cross sections for rotationally inelastic scattering of H₂CO. II. Collisions with CO₂, N₂, O₂, and H₂. *J. Chem. Phys.*, 86 :4461–4470, April 1987.
- [118] P. A. Vanden Bout, R. L. Snell, and T. L. Wilson. Six-centimeter H₂CO observations - Envelopes of dark clouds. *A&A*, 118 :337–340, February 1983.

- [119] P. A. Vanden Bout, R. L. Snell, and T. L. Wilson. Six-centimeter H₂CO observations - Envelopes of dark clouds. *A&A*, 118 :337–340, February 1983.
- [120] D. Ward-Thompson, P. André, and J. M. Kirk. The initial conditions of isolated star formation - V. ISOPHOT imaging and the temperature and energy balance of pre-stellar cores. *MNRAS*, 329 :257–276, January 2002.
- [121] D. Ward-Thompson, P. F. Scott, R. E. Hills, and P. Andre. A Submillimetre Continuum Survey of Pre Protostellar Cores. *MNRAS*, 268 :276–+, May 1994.
- [122] S. Weinreb. Radio Observations of OH in the Interstellar Medium. *Nature*, 200 :829–831, November 1963.
- [123] M. D. Wheeler and A. M. Ellis. *Chem. Phys. Lett.*, 374 :392, 2003.
- [124] R. W. Wilson, K. B. Jefferts, and A. A. Penzias. Carbon Monoxide in the Orion Nebula. *ApJL*, 161 :L43+, July 1970.
- [125] K. E. Young, J.-E. Lee, N. J. Evans, II, P. F. Goldsmith, and S. D. Doty. Probing Pre-Protostellar Cores with Formaldehyde. *ApJ*, 614 :252–266, October 2004.

Annexe A

Annexe : H₂CO, généralités

Sommaire

A.1 Géométrie interne	157
A.2 Spectroscopie	158
A.2.1 Spectre de vibration	158
A.2.2 Spectre de rotation	158
Constantes de rotation	158
Constante de distorsion	159
Niveaux d'énergie	159
A.2.3 Spectre hyperfin	160
Structure hyperfine moléculaire	160
Le cas H ₂ CO	161
A.3 Ortho H₂CO : Coefficients d'Einstein	162
A.3.1 Rotation	162
A.3.2 Hyperfin	162

A.1 Géométrie interne

Nous présentons ici les géométries internes pour H₂CO utilisées pour le calcul de la SEP. Les valeurs présentées sont celles calculées dans le cadre la géométrie moyenne de la molécule. Les distances et angles sont tirés de Duncan *et al.* [34].

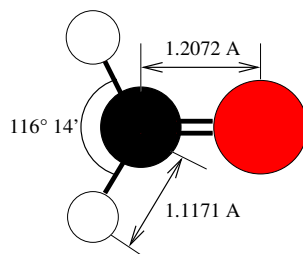


FIGURE A.1 – Géométrie choisie pour le formaldéhyde. Code de couleur : blanc : hydrogène, noir : Carbone, Rouge : oxygène.

A.2 Spectroscopie

Comme toute molécule, la molécule de formaldéhyde présente différents niveaux spectroscopiques. Nous allons ici présenter trois types de spectroscopie de la molécule de formaldéhyde : vibrationnel, rotationnel et hyperfin.

A.2.1 Spectre de vibration

Nous présentons dans le tableau A.1 les valeurs des seuils de vibration de la molécule de formaldéhyde. Nous voyons que le premier niveau vibrationnel excité est haut en énergie ($\nu_4 = 1167,3 \text{ cm}^{-1}$), ce qui conforte notre approche de considérer la molécule comme rigide.

Mode de vibration	Energie (cm ⁻¹)	
ν_1	2782,5	élongation symétrique C-H
ν_2	1746,0	élongation C-O
ν_3	1500,2	flexion \widehat{HCH}
ν_4	1167,3	flexion en dehors du plan
ν_5	2843,3	élongation antisymétrique C-H
ν_6	1249,1	oscillation du groupe CH ₂

TABLE A.1 – Valeur en énergie des seuils de vibration de la molécule de formaldéhyde. Les valeurs sont tirées de Clouthier *et al.* 1977 [25]

A.2.2 Spectre de rotation

Si on considère les niveaux vibrationnels un à un, ceux-ci sont composés de niveaux rotationnels, correspondant aux mouvements de rotation de H₂CO.

Constantes de rotation

La molécule de formaldéhyde est une molécule à symétrie C_{2v}, autrement dit une toupie asymétrique. Comme telle, elle possède trois axes de rotation qui ont, chacun, une constante de rotation différente :

$B_{rot} \text{ (cm}^{-1}\text{)}$	$C = 1.134191$
	$B = 1.295431$
	$A = 9.405525$

TABLE A.2 – Résumé des constantes du formaldéhyde dans l'état vibrationnel fondamental. Les valeurs sont prises de Bocquet *et al.* (1996) [10].

Les axes respectifs des constantes de rotation sont spécifiés dans la figure A.2 : C suivant z , B suivant x et A suivant y , le système de coordonnées étant décrit dans le chapitre 2.

Il est à noter que deux des trois constantes de rotation sont très proches, ce qui fait que l'on définit H₂CO comme un rotateur *peu* asymétrique.

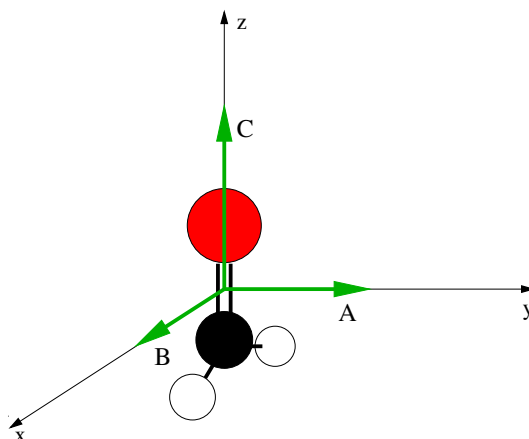


FIGURE A.2 – Constante de rotation de la molécule de formaldéhyde. Flèches vertes : axes d’inertie pour les constantes de rotation, voir tableau A.2.2 pour les valeurs.

Constante de distorsion

Dans le cas de H_2CO , il existe donc trois constantes rotationnelles correspondant à chaque axe de symétrie de la molécule. Cela dit, si la molécule « tourne » trop vite, *i.e.* lorsque les niveaux à haut J sont peuplés, la géométrie de la molécule peut être modifiée : c’est la distorsion centrifuge. Cette distorsion est caractérisée par des constantes, dites « constantes de distorsion » (voir tableau A.3).

ΔJ (cm^{-1})	$2.51255155 \times 10^{-6}$
ΔJ_K (cm^{-1})	$4.306202422 \times 10^{-5}$
ΔK (cm^{-1})	$6.475446467 \times 10^{-4}$

TABLE A.3 – Valeur des constantes de distorsion. H_2CO a trois constantes de distorsion, décrivant les distorsions suivant les trois axes de symétrie de la molécule [10].

Niveaux d’énergie

Les niveaux rotationnels de H_2CO sont décrits par trois nombres quantiques : J , nombre principal de rotation, K_a et K_c , correspondant aux projections de J sur les axes d’inertie a et c .

De plus, du fait de la présence de deux noyaux d’hydrogène indiscernables, la molécule de formaldéhyde présente deux formes distinctes :

- une forme ortho- lorsque les spins nucléaires des deux noyaux d’hydrogène sont parallèles et dont les niveaux sont décrits par des nombres K_a impair.
- Une forme para- lorsque les spins nucléaires des deux noyaux d’hydrogène sont anti-parallèles et dont les niveaux sont décrits par des nombres K_a pair.

Nous présentons dans la figure A.3 la position des premiers niveaux rotationnels de H_2CO dans son état vibrationnel fondamental. Nous avons séparés les niveaux rotationnels de para- H_2CO (gauche) et les niveaux pour ortho- H_2CO (droite).

Nous remarquons que les deux formes de H_2CO ont des diagrammes de niveaux d’énergie totalement différents. En effet, les niveaux pour ortho- H_2CO présentent une structure

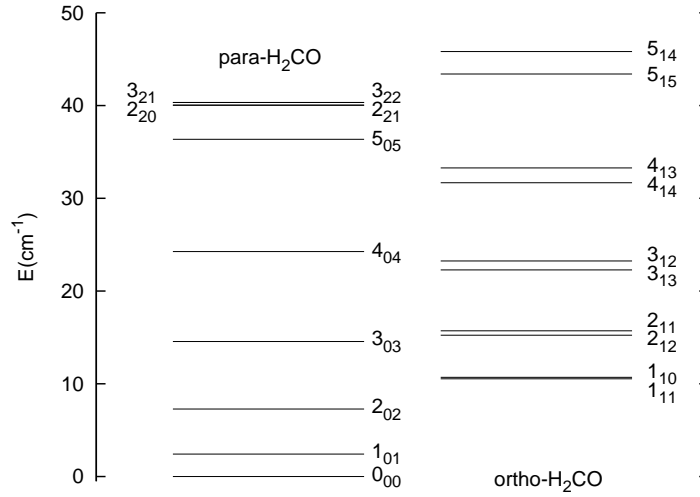


FIGURE A.3 – Premiers niveaux rotationnels de H₂CO. A gauche les niveaux pour para-H₂CO, à droite pour ortho-H₂CO.

en doublet (les « doublet K_a ») dont la séparation en énergie augmente quand J augmente, structure qui n'est présente que pour les niveaux ayant $K_a > 1$ pour para-H₂CO.

A.2.3 Spectre hyperfin

Structure hyperfine moléculaire

Dans le cas de molécules, le Hamiltonien hyperfin inclut un certain nombre d'effets spécifiques au cas moléculaire (voir [15]).

Le premier des effets que l'on rajoute dans le traitement de la structure hyperfine des molécules est l'interaction entre les moments dipolaires magnétiques de tous les noyaux. En effet, chaque noyau ayant $I > 0$ a un moment magnétique non nul qui est, à la fois, source du champ magnétique et siège de l'interaction avec le champ magnétique créé par tous les autres noyaux et électrons de la molécule.

La somme du produit de chaque moment magnétique par le champ magnétique dû aux autres moments magnétiques donne le couplage spin-spin nucléaire dans le Hamiltonien hyperfin :

$$\hat{H}_{II} = - \sum_{i \neq j} \vec{\mu}_i \cdot \vec{B}_j \quad (\text{A.1})$$

avec i et j les indices représentant les différents noyaux contribuant à l'interaction. En utilisant l'expression du moment dipolaire que nous avons présentée auparavant avec R_{ij} la distance entre le noyau i et j , on obtient :

$$\hat{H}_{II} = \frac{\mu_0 \mu_N}{4\pi} \sum_{i \neq j} \frac{g_i g_j}{R_{ij}^3} \left[\vec{I}_i \cdot \vec{I}_j - 3(\vec{I}_i \cdot \hat{R}_{ij})(\vec{I}_j \cdot \hat{R}_{ij}) \right] \quad (\text{A.2})$$

Enfin, le dernier effet à prendre en compte dans le cas d'une molécule est l'interaction spin-rotation. Cette interaction a lieu si le moment magnétique d'un noyau se trouve dans un champ magnétique engendré par la rotation des noyaux et électrons de la molécule :

$$\hat{H}_{IR} = \frac{e\mu_0\mu_N\hbar}{4\pi} \sum_{i \neq j} \frac{1}{R_{ij}^3} \left[\frac{Z_i g_j}{M_i} \vec{I}_j + \frac{Z_j g_i}{M_j} \vec{I}_i \right] \cdot \vec{T} \quad (\text{A.3})$$

où Z_i est la charge du noyau i , M_i sa charge.

Le cas H₂CO

Dans le cas de H₂CO, les seuls noyaux présentant un spin nucléaire non-nul sont les noyaux d'hydrogène, $I = 1/2$ pour les deux. Nous n'avons donc pas d'interaction quadrupolaire électrique, uniquement les interactions dipolaires magnétiques.

C'est l'interaction entre ce spin nucléaire des noyaux d'hydrogène et le faible champ magnétique créé par la rotation des particules qui donne une structure hyperfine à la molécule de H₂CO. Il est à noter que seule la forme ortho de H₂CO a une structure hyperfine.

Ainsi, on définit le moment angulaire total F , ou nombre quantique hyperfin, comme étant la somme (quantique) de ces deux moments :

$$\vec{F} = \vec{J} + \vec{I}$$

$$|J - I| \leq F \leq J + I$$

Chaque atome d'hydrogène a un spin nucléaire de $1/2$, ce qui donne un spin nucléaire total $I = 0, 1$. Ainsi, chaque niveau rotationnel de ortho-H₂CO se décompose en 3 niveaux hyperfins.

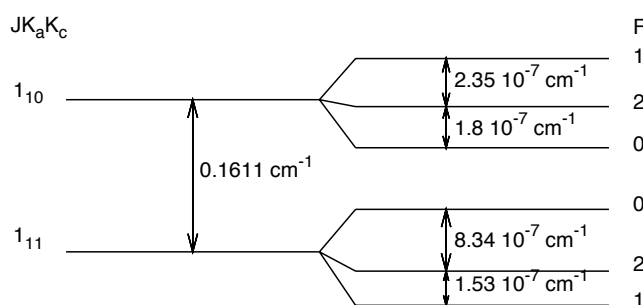


FIGURE A.4 – Séparation hyperfine des deux premiers niveaux d'énergie rotationnels de ortho-H₂CO (l'échelle n'est pas respectée pour plus de visibilité).

La figure A.4 montre la valeur des séparations entre les différents niveaux hyperfins des deux premiers niveaux de ortho-H₂CO. L'écart typique entre deux niveaux hyperfins est d'environ 10^{-7} cm^{-1} . Il est à noter que cet écart est très faible par rapport aux couplages du moment magnétique du noyau d'azote dans HCN ou NH₃ par exemple.

A.3 Ortho H₂CO : Coefficients d'Einstein

A.3.1 Rotation

Nous présentons ici les coefficients d'Einstein mesurés pour ortho-H₂CO, tirés du *Leiden Atomic and Molecular Database*.

$J_{K_a K_c}$ initial	$J_{K_a K_c}$ final	$A_{ij}(\text{s}^{-1})$
1 ₁₀	1 ₁₁	3.564e-09
2 ₁₂	1 ₁₁	5.304e-05
2 ₁₁	2 ₁₂	3.208e-08
2 ₁₁	1 ₁₀	6.472e-05
3 ₁₃	2 ₁₂	2.271e-04
3 ₁₂	3 ₁₃	1.283e-07
3 ₁₂	2 ₁₁	2.772e-04
4 ₁₄	3 ₁₃	5.883e-04
4 ₁₃	4 ₁₄	3.564e-07
4 ₁₃	3 ₁₂	7.178e-04
5 ₁₅	4 ₁₄	1.202e-03
5 ₁₄	5 ₁₅	8.017e-07
5 ₁₄	4 ₁₃	1.466e-03

TABLE A.4 – Coefficients A d'Einstein pour les 10 premiers niveaux d'ortho-H₂CO.

A.3.2 Hyperfin

Les coefficients d'Einstein inter-multiplets et intra-multiplets hyperfins sont tirés du CDMS (Holger Muller communication privée).

Les coefficients entre niveaux rotationnels et niveaux hyperfins ont été calculés à partir des coefficients d'Einstein rotationnels suivant la formule :

$$A(J \rightarrow J'F') = \frac{g_{F'}}{g_I g_{J'}} A(J \rightarrow J') \quad (\text{A.4})$$

tout en tenant compte de vérifier :

$$\sum_{F'} A(J \rightarrow J'F') = A(J \rightarrow J') \quad (\text{A.5})$$

$J_{K_a K_c(F)}$ initial	$J_{K_a K_c(F)}$ final	$A_{ij}(\text{s}^{-1})$
1 ₁₀₀	1 ₁₁₁	3.564E-09
1 ₁₀₂	1 ₁₁₁	8.912E-10
1 ₁₀₂	1 ₁₁₂	2.674E-09
1 ₁₀₁	1 ₁₁₁	8.911E-10
1 ₁₀₁	1 ₁₁₂	1.485E-09
1 ₁₀₁	1 ₁₁₀	1.188E-09
2 ₁₂₃	1 ₁₁₂	5.304E-05
2 ₁₂₂	1 ₁₁₁	3.977E-05
2 ₁₂₂	1 ₁₁₂	1.327E-05
2 ₁₂₁	1 ₁₁₁	2.210E-05
2 ₁₂₁	1 ₁₁₂	1.450E-06
2 ₁₂₁	1 ₁₁₀	2.950E-05
2 ₁₁₁	1 ₁₀₀	3.591E-05
2 ₁₁₁	1 ₁₀₂	1.800E-06
2 ₁₁₁	1 ₁₀₁	2.701E-05
2 ₁₁₁	2 ₁₂₂	8.019E-09
2 ₁₁₁	2 ₁₂₁	2.406E-08
2 ₁₁₃	1 ₁₀₂	6.472E-05
2 ₁₁₃	2 ₁₂₃	2.851E-08
2 ₁₁₃	2 ₁₂₂	3.564E-09
2 ₁₁₂	1 ₁₀₂	1.621E-05
2 ₁₁₂	1 ₁₀₁	4.851E-05
2 ₁₁₂	2 ₁₂₃	4.990E-09
2 ₁₁₂	2 ₁₂₂	2.227E-08
2 ₁₁₂	2 ₁₂₁	4.811E-09

TABLE A.5 – Coefficients A d'Einstein pour les 10 premiers niveaux rotationnels d'ortho-H₂CO dont les 6 premiers niveaux ont été décomposés dans leurs états hyperfins, tirés du *Cologne Database for Molecular Spectroscopy*.

$J_{K_a K_c(F)}$ initial	$J_{K_a K_c(F)}$ final	$A_{ij}(s^{-1})$
3 ₁₃₄	2 ₁₂₃	2.271E-04
3 ₁₃₃	2 ₁₂₃	2.520E-05
3 ₁₃₃	2 ₁₂₂	2.019E-04
3 ₁₃₂	2 ₁₂₂	3.530E-05
3 ₁₃₂	2 ₁₂₁	1.914E-04
3 ₁₂₂	2 ₁₁₁	2.330E-04
3 ₁₂₂	2 ₁₁₂	4.310E-05
3 ₁₂₂	3 ₁₃₂	1.140E-07
3 ₁₂₄	2 ₁₁₃	2.772E-04
3 ₁₂₄	3 ₁₃₄	1.203E-07
3 ₁₂₄	3 ₁₂₂	1.000E-18
3 ₁₂₃	2 ₁₁₃	3.080E-05
3 ₁₂₃	2 ₁₁₂	2.464E-04
3 ₁₂₃	3 ₁₃₃	1.078E-07
4 ₁₄	3 ₁₃₄	2.521E-04
4 ₁₄	3 ₁₃₃	1.961e-04
4 ₁₄	3 ₁₃₂	1.401E-04
4 ₁₃	3 ₁₂₂	1.709E-04
4 ₁₃	3 ₁₂₄	3.076E-04
4 ₁₃	3 ₁₂₃	2.393E-04
4 ₁₃	4 ₁₄	3.564e-07
5 ₁₅	4 ₁₄	1.202e-03
5 ₁₄	4 ₁₃	1.466e-03
5 ₁₄	5 ₁₅	8.017e-07

TABLE A.6 – Pareil que le tableau précédent.

Excitation collisionnelle du formaldéhyde interstellaire : Théorie et observations

L'hydrogène moléculaire est la molécule la plus simple et la plus répandue dans l'Univers. Elle se présente sous deux formes, ortho- et para- H_2 , correspondant aux différents alignements des spins de ses deux noyaux. Le rapport ortho/para de H_2 est un paramètre essentiel pour comprendre les processus collisionnels inélastiques et réactifs dans les milieux astrophysiques moléculaires.

Dans cette thèse, nous nous sommes intéressés à la détermination de ce rapport dans les nuages sombres, régions où H_2 ne peut pas être observée directement. Dans ce but, nous avons utilisé la molécule de formaldéhyde (H_2CO) dont l'excitation rotationnelle dans ces sources est dominée par les collisions avec H_2 . Une transition particulière a été choisie pour cette étude : la raie à 6 cm (4,8 GHz) de ortho- H_2CO observée en absorption devant le fond diffus cosmologique. Si des études précédentes ont montré que cette absorption (antimaser) peut être expliquée par des effets collisionnels, aucune n'a étudié jusqu'à présent l'impact des formes ortho- et para- H_2 sur l'absorption.

Nous présentons, dans un premier temps, nos calculs haute-précision des taux d'excitation rotationnelle entre (ortho-,para-) H_2CO et (ortho-,para-) H_2 . Nous montrons qu'il existe des différences significatives sur les taux de collisions selon le type de projectiles, et en particulier qu'il existe des différences entre ortho- et para- H_2 . Nous présentons ensuite l'utilisation de ces taux dans un modèle de transfert radiatif afin de reproduire les observations que nous avons menées au Green Bank Telescope sur la transition à 6 cm de ortho- H_2CO en direction de 3 nuages sombres (B68, L134N et TMC-1). Nous montrons que les différences dans les taux de collisions calculés avec ortho- et para- H_2 ont un impact significatif sur les simulations, nous permettant ainsi d'apporter des contraintes sur la valeur du rapport ortho/para de H_2 dans ces milieux. Nous traitons en particulier l'exemple de B68, prototype de cœur pre-stellaire.

Collisional excitation of interstellar formaldehyde : Theory and observations

Molecular hydrogen is the simplest and most abundant molecule in the Universe. Owing to the possible different nuclear spin alignments, it presents two forms, ortho- and para- H_2 . The ortho-to-para ratio of H_2 is a fundamental parameter to understand the (inelastic and reactive) collisional processes in molecular astrophysical media.

In this thesis, we focus on the determination of the ortho-to-para ratio of H_2 in dark clouds, where H_2 cannot be directly observed. To this aim, we use the formaldehyde molecule (H_2CO) whose rotational excitation in these sources is dominated by H_2 collisions. A peculiar transition has been selected in our study : the 6-cm transition (4.8 GHz) of ortho- H_2CO observed in absorption against the cosmic microwave background. Previous studies have shown that collisional effects can explain this (antimaser) absorption but the impact of the ortho- and para- form of H_2 on this absorption has been so far ignored. We first present high-precision computations of the (de)excitation rates of (ortho-, para-) H_2CO by (ortho-, para-) H_2 . Significant differences are observed between ortho- and para- H_2 rates. We then use these collisional rates in radiative transfer calculations in order to model 6-cm observations carried out with the Green Bank Telescope towards 3 different dark clouds (B68, L134N and TMC-1). We show that the differences in para and ortho- H_2 collisional rates have a significant impact on the modeling, allowing us to put interesting constraints on the ortho-to-para ratio of H_2 in dark clouds. We consider in detail the example of B68, prototype of pre-stellar cores.