



HAL
open science

Etude des processus bi-électroniques induits par impact d'ions sur des cibles atomiques

Aicha Ibaaz

► **To cite this version:**

Aicha Ibaaz. Etude des processus bi-électroniques induits par impact d'ions sur des cibles atomiques. Chimie-Physique [physics.chem-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2017. Français. NNT : 2017PA066360 . tel-01754040

HAL Id: tel-01754040

<https://theses.hal.science/tel-01754040>

Submitted on 30 Mar 2018

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

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



Université Pierre et Marie Curie - Paris VI

École Doctorale 388 : Chimie Physique et Chimie Analytique de
Paris-Centre

**Etude des processus bi-électroniques
induits par impact d'ions sur des cibles
atomiques**

Thèse présentée par

Aicha IBAAZ

Soutenance le 28 Septembre 2017 devant le jury composé de

Henri BACHAU	Université Bordeaux	Rapporteur
Jean-Yves CHESNEL	Université de Caen Normandie	Rapporteur
Alexa COURTY	Université Pierre et Marie Curie	Présidente
Danielle DOWEK	Université Paris Sud	Examinatrice
Alain DUBOIS	Université Pierre et Marie Curie	Directeur de thèse

*À mes chéris d'amours : Ibaaz Ikhlef, Ouhaddou Aicha,
Bassou, Mohammed, khalid,
Fatima et Aouatif.*

Remerciements

Je tiens à remercier tout d'abord mon directeur de thèse, monsieur Alain Dubois, pour la confiance qu'il m'a témoignée en acceptant d'encadrer mon travail doctoral, puis pour m'avoir guidé, conseillé et encouragé, en me disant tout le temps "Aicha j'ai confiance en toi, tu va arriver ". Je lui suis reconnaissante de m'avoir fait bénéficier de sa grande compétence et pour ses qualités pédagogiques et scientifiques. J'ai beaucoup apprécié ses qualités humaines d'écoute et de compréhension tout au long de mon travail doctoral, surtout pendant la période de rédaction du manuscrit de thèse où il a fait preuve de patience à mon égard. J'ai beaucoup appris à ses côtés, et j'ai pris un grand plaisir à travailler avec lui. Je lui adresse ma profonde gratitude pour tout cela.

J'adresse de chaleureux remerciements aux membres de jury qui ont accepté de juger mon travail doctoral et qui ont consacré du temps pour une meilleure amélioration de ce manuscrit : Un grand merci à Jean-Yves Shesnel et Henri Bachau, rapporteurs de ma thèse, pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail. Je voudrai remercier aussi Alexa Courty d'avoir présidé la soutenance et j'associe à ces remerciements Danielle Dowek, pour avoir accepté d'examiner mon travail.

Je remercie chaleureusement mes très chers parents qui ne cessent jamais de m'encourager et de me soutenir. Merci pour votre amour et votre éducation. Sachez

que grâce à vous j'ai pu réussir et j'ai pu tenir le coup jusqu'à la fin. Je suis très fière d'être votre fille. Bassou, Fatima, Mohammed, Khalid et Aouatif je vous remercie d'être toujours à mes côtés vous êtes la source de mon bonheur, sans vous rien de tout ça n'aurait pu exister.

Mes remerciements profonds vont aussi à la famille Ait-karrou et El-mansouri qui m'ont accueilli chaleureusement, ont rendu mon séjour agréable en France et m'ont considéré un membre de leur famille. Mes très chers Rachida et Rachid je vous exprime ma profonde gratitude, merci de m'avoir supportés, soutenus et être à mes côtés pendant les moments difficiles de la thèse. Je voudrais remercier vivement Fatiha, Ghizlane, Imene, Sarah, Nawel et Souhaila pour les moments qu'on a partagés ensemble. Je remercie le grand dieu de m'avoir offert des cousines en or comme vous.

Mes sincères remerciements s'adressent aussi à Nicolas Sisourat pour le temps qu'il a consacré à vérifier mes calculs des intégrales de couplage et de recouvrement. Je tiens à remercier particulièrement Hicham Agueny pour son partage scientifique et les discussions très riches que j'ai eues avec lui depuis le début de la thèse. Je remercie profondément Abdelmalek pour son agréable compagnie pendant les premières années de thèse. Merci aussi à Solène, Selma, Alessandra, Tsveta, Bastien, Junwen et Basile pour l'ambiance dans l'open space ça m'a fait énormément plaisir de partager avec vous pleins de souvenirs que je n'oublierai jamais. Un grand merci aux théoriciens permanents que j'apprécie beaucoup : Richard, Jérémie, Patricia, Stéphane, Natalie et Alfred. Sans oublier bien sûr l'équipe technique : Angela, David, Léna et Fadila. Je vous remercie tous pour votre sympathie et votre joie de vivre.

Table des matières

Introduction	21
I Approche semi-classique non-perturbative	27
I.1 Présentation	27
I.2 Description semi-classique	29
I.2.1 Description classique du mouvement nucléaire	29
I.2.2 Description quantique du mouvement électronique	31
I.2.3 L'équation eikonale	37
I.3 Résolution de l'équation eikonale	38
I.3.1 L'approximation asymptotique	40
I.3.2 Développement de la fonction d'onde électronique	41
I.3.3 Système d'équations différentielles couplées	44
I.4 Sections efficaces	48
II Mise en œuvre	51
II.1 Structuration du programme	51

II.1.1	Optimisation des GTOs	52
II.1.2	Evaluation des intégrales de couplage et de recouvrement	54
II.1.3	Résolution du système d'équations différentielles couplées	55
II.1.4	Les collisions $A^{q+} - He(1s^2)$ $2 \leq q \leq 10$	56
III Collisions $A^{q+} - He(1s^2)$		65
III.1	Introduction	65
III.2	Etude de la convergence	67
III.3	Processus électroniques	69
III.3.1	Simple capture	73
III.3.2	Double capture	76
IV Collisions $Li^{3+} - He(1s^2)$		83
IV.1	Introduction	83
IV.2	Mise en œuvre	84
IV.2.1	États du projectile	86
IV.3	Résultats et discussion	89
IV.3.1	Simple capture	89
IV.3.2	Double capture	96
IV.4	Conclusion	101
V Collisions $O^{8+} - He$		103
V.1	Introduction	103
V.2	Mise en œuvre	104

TABLE DES MATIÈRES

V.3	Résultats et discussion	108
V.3.1	Simple capture	109
V.3.2	Double capture	114
V.4	Conclusion	118
Conclusion		121
A Base d'orbitales gaussiennes		125
A.1	Ensembles de GTOs pour He^+ et de He	126
A.2	Collisions $Li^{3+} - He(1s^2)$	129
A.2.1	Exposants des GTOs centrées sur le projectile Li^{3+}	130
A.2.2	États de $Li^{2+}(1e^-)$ et de $Li^+(2e^-)$	131
A.3	Système de collision $B^{5+} - He$	134
A.3.1	Exposants des GTOs centrées sur le projectile $^{10}B^{5+}$	134
A.3.2	États de $B^{4+}(1e^-)$ et de $B^{3+}(2e^-)$	135
A.4	Système de collision $^{13}C^{6+} - He$	137
A.4.1	Exposants des GTOs centrées sur le projectile C^{6+}	137
A.4.2	États de $C^{5+}(1e^-)$ et de $C^{4+}(2e^-)$	138
A.5	Système de collision $^{15}N^{7+} - He$	140
A.5.1	Exposants des GTOs centrées sur le projectile N^{7+}	140
A.5.2	États de $N^{6+}(1e^-)$ et de $N^{5+}(2e^-)$	142
A.6	Système de collision $^{18}O^{8+} - He$	144
A.6.1	Exposants des GTOs centrées sur le projectile O^{8+}	144

A.6.2 États de $O^{7+}(1e^-)$ et de $O^{6+}(2e^-)$	146
A.7 Système de collision $^{19}F^{9+} - He$	148
A.7.1 Exposants des GTOs centrées sur le projectile F^{9+}	148
A.7.2 États de $F^{8+}(1e^-)$ et de $F^{7+}(2e^-)$	149
A.8 Système de collision $^{20}Ne^{10+} - He$	151
A.8.1 Exposants des GTOs centrées sur le projectile Ne^{10+}	151
A.8.2 États de $Ne^{9+}(1e^-)$ et de $Ne^{8+}(2e^-)$	152
 Bibliographie	 155

Table des figures

I.1	Image classique de la collision : la trajectoire classique $\vec{R}(t)$ du projectile P par rapport à la cible T prise comme origine du référentiel xyz : $\vec{v} // Oz$ et $\vec{b} // Ox$. Les vecteurs \vec{b} et \vec{v} sont la vitesse et le paramètre d'impact, \vec{R}_{min} représente la position de moindre approche pour le projectile et θ l'angle de diffusion.	30
I.2	Collisions atomique (a) et moléculaire (b) dans le cas de systèmes à deux électrons actifs : la cible atomique T est prise comme origine du repère (pour la cible moléculaire, l'origine est le centre de masse des deux noyaux A et B). \vec{R} , \vec{r}_1 , \vec{r}_2 indiquent respectivement la position relative du projectile et celles des deux électrons e_1^- et e_2^- par rapport à la cible. La position relative des noyaux de la cible moléculaire est repérée par le vecteur \vec{R}_{AB}	32
III.1	Sections efficaces totales (10^{-16} cm^2) de simple capture pour les systèmes de collision $A^{q+} - He(1s^2)$ en fonction de la vitesse d'impact (u.a.).	74

III.2 Sections efficaces (10^{-16} cm^2) de double capture vers les états liés ($1snl$) pour les systèmes de collision $A^{q+} - He(1s^2)$ en fonction de la vitesse d'impact ν (<i>u.a.</i>).	79
III.3 Sections efficaces (10^{-16} cm^2) de double capture vers les états auto-ionisants ($nln'l'$) pour les systèmes de collision $A^{q+} - He(1s^2)$ en fonction de la vitesse d'impact ν (<i>u.a.</i>).	80
IV.1 Sections efficaces de simple capture pour le système de collision $Li^{3+} - He$. Nous indiquons les mesures expérimentales effectuées par Shah et al. [51], Allison et al. [107], et Wirkner-Bott et al. [105], et aussi le calcul théorique de Stich et al. [115].	92
IV.2 Sections efficaces des processus électroniques au cours de la collision $Li^{3+} - He$ à $v = 1 \text{ u.a.}$, en fonction de l'énergie des états bi-électroniques. Les points rouges, bleus et verts correspondent respectivement à des transitions vers des états où les deux électrons sont centrés sur He^{2+} , un sur He^{2+} et un sur Li^{3+} et finalement deux sur Li^{3+} . Les flèches vertes montrent les seuils d'ionisation successifs de Li^+ , la flèche noire descendante le 1 ^{er} seuil d'ionisation de He	94
IV.3 Sections efficaces de simple capture pour le système de collision $Li^{3+} - He$, et les sections efficaces partielles vers les niveaux disponibles dans la base.	95
IV.4 Sections efficaces de double capture totale pour le système de collision $Li^{3+} - He$ en fonction de la vitesse d'impact. Nos présents résultats sont comparées à ceux expérimentaux de Shah et al. [51], et de Nikolaev et al. [108], et aussi au calcul théorique de Stich et al. [115].	98

TABLE DES FIGURES

IV.5 Spectre partiel des états contribuant majoritairement aux collisions $Li^{3+} - He$. Les couleurs rouge, bleue, verte, violette et orange, correspondent respectivement à des états S, P, D, F et G. La symétrie des états $Li^{2+} - He^+$ n'est pas représentée (traits noirs). Les traits en pointillés dans les colonnes du He et Li^+ représentent leurs premiers seuils d'ionisation, les niveaux indiqués entre ces seuils étant soit des états auto-ionisants soit des pseudo-états. $He^+(Ep)$ indique un pseudo-état d'énergie positive de He^+ 101

IV.6 Sélection de courbes d'énergie moléculaire représentatives des processus qui concernent le système de collision $Li^{3+} - He$ 102

V.1 Spectre partiel des états importants pour le système de collision $O^{8+} - He$. Les couleurs rouge bleue, verte, violette et orange, correspondent respectivement à des états S, P, D, F et G. La symétrie des états $O^{7+} - He^+$ n'est pas représentée (traits noirs). Les traits en pointillés dans les colonnes du He et O^{6+} représentent leurs premiers seuils d'ionisation, les niveaux indiqués entre ces seuils étant soit des états auto-ionisants soit des pseudo-états. 108

V.2 Sections efficaces de simple capture pour le système de collision $O^{8+} - He$ en fonction de la vitesse d'impact. Les données expérimentales correspondent à Guffey et al. [40], Hippler et al. [44], Iwai et al. [41], Greenwood et al. [116] Afrosimov et al. [123]. Les données théoriques correspondent à Harel et al. [85, 125]. 110

V.3 Sections efficaces des différents processus électroniques présentées en fonction de l'énergie des états finaux concernés par le processus, pour une vitesse d'impact $v = 1$ u.a. Les points rouges, bleus et verts correspondent respectivement à des transitions vers des états où les deux électrons sont centrés sur He^{2+} , un sur He^{2+} et un sur O^{8+} et finalement deux sur O^{8+} . Les flèches verticales en trait mixte représentent les différents seuils d'ionisation de O^{6+} , la flèche noire descendante représente le 1^{er} seuil d'ionisation de l'He. 112

V.4 Sections efficaces totales et partielles de simple capture pour le système de collision $O^{8+} - He$ en fonction de la vitesse d'impact. 113

V.5 Sections efficaces de double capture totale pour le système de collision $O^{8+} - He$ en fonction de la vitesse d'impact (u.a.) : nos résultats sont présentés en ligne droite. Nous reportons aussi les différentes données expérimentales : Macdonald et al. [124], Afrosimov et al. [125], Hippler et al. [44], et Greenwood et al. [116]. Les résultats théoriques de Harel et al. sont extraits de [85,125]. 115

V.6 Courbes d'énergie moléculaires pour le système de collision $O^{8+} - He$. Nous présentons en couleur rouge (bleue) les courbes d'énergie moléculaires corrélées asymptotiquement à des états de simple (double) capture. Pour chacune des deux couleurs, le trait plein indique l'état le plus peuplé, les deux traits pointillés aux deux états qui l'encadrent. Le trait noir à -2.9 u.a. correspond à la voie de réaction initiale. 118

Liste des tableaux

II.1	Bases \mathcal{B}_1 et \mathcal{B}'_1 : énergies (en u.a.) des premiers états de l'ion He^+ et de He obtenus par diagonalisation sur respectivement \mathcal{G}_1 et \mathcal{G}'_1 , comparées aux énergies exactes E_{exacte} pour l'ion He^+ et les valeurs E_{exp} pour He tirées de la référence [27].	60
II.2	Base \mathcal{B}_2 : énergies en u.a. des premiers états de l'ion He^+ et de He obtenus par diagonalisation sur \mathcal{G}_2 , comparées aux énergies exactes E_{exacte} pour l'ion He^+ et les valeurs E_{exp} pour He tirées de la référence [27].	61
II.3	Bases \mathcal{B}_1 et \mathcal{B}_2 : énergies (en u.a.) des premiers états doublement excités de l'atome d'hélium obtenus par diagonalisation de l'hamiltonien bi-électronique sur le produit des GTOs des bases \mathcal{G}_1 et \mathcal{G}_2 respectivement. Les énergies sont comparées aux données expérimentales [27] et obtenues par E. Lindroth [33].	63

III.1 Sections efficaces (10^{-16} cm^2) de processus électroniques induits au cours de collisions $He^{2+} - He(1s^2)$, pour cinq vitesses d'impact. Ex \equiv excitation; SC \equiv la simple capture, He^+ étant dans son état fondamental; TE \equiv transfert-excitation; DC \equiv double capture vers des états liés; ADC \equiv double capture vers des états auto-ionisants; IO \equiv ionisation.	69
III.2 Sections efficaces (10^{-16} cm^2) des processus électroniques les plus probables pour les collisions $A^{q+} - He$ à la vitesse $v = 0.1 \text{ u.a.}$ Ex \equiv excitation; SC \equiv la simple capture, He^+ étant dans son état fondamental; TE \equiv transfert-excitation; TI \equiv transfert-ionisation; DC \equiv double capture vers des états liés; ADC \equiv double capture vers des états auto-ionisants; IO \equiv ionisation.	71
III.3 Comme Tableau III.2 pour $v = 1 \text{ u.a.}$	71
IV.1 Ensemble de processus probables au cours de la collision $Li^{3+} - He$	85
IV.2 Énergies en u.a. des états fondamentaux et premiers excités des ions Li^{2+} et Li^+ inclus dans nos simulations E_{sim} . Les énergies exactes pour l'ion hydrogénoïde Li^{2+} sont reportées et les valeurs E_{exp} sont tirées de la référence [27].	87
IV.3 Énergies en u.a. des premiers états autoionisants $Li^+(2ln'l')$. E_{sim} sont les valeurs obtenues dans nos simulations et sont comparées aux valeurs mesurées par Diehl [102] et calculées par Lipsky [103] et Chung et Lin [104].	88
V.1 Énergies en u.a. de l'état fondamental et des premiers états excités de l'ion O^{7+} . Nous reportons les énergies exactes et les valeurs du Viriel.	106

LISTE DES TABLEAUX

V.2 Énergies en u.a. des premiers états liés $O^{6+}(1sn'l')$ et des premiers états auto-ionisants compris entre le deuxième et le troisième seuil d'ionisation de O^{6+} . E_{sim} sont les énergies obtenues par notre simulation, comparées avec des données expérimentales E_{exp} [27] et théoriques de Bachau [119], et de Ho [120, 121]. 107

A.1 \mathcal{G}_1 : exposants et nombres quantiques ℓ caractérisant les GTOs optimisées pour He^+ et He 126

A.2 \mathcal{G}'_1 : exposants et nombres quantiques ℓ caractérisant les GTOs optimisées pour He^+ et He 127

A.3 \mathcal{G}_2 : exposants et nombres quantiques ℓ caractérisant les GTOs optimisées pour He^+ et He 128

A.4 Bases \mathcal{B}_1 et \mathcal{B}_2 : énergies (en u.a.) des quelques états de l'atome d'hélium obtenus par diagonalisation de l'hamiltonien bi-électronique sur le produit des GTOs des bases \mathcal{G}_1 et \mathcal{G}_2 respectivement. Les valeurs du Viriel sont données dans les deux cas. 129

A.5 Constitution de la base bâtie sur l'ion projectile Li^{3+} 130

A.6 Exposants et nombres quantiques ℓ caractérisant les GTOs optimisées pour Li^{2+} et Li^+ 131

A.7 Énergies en u.a. de l'état fondamental et des premiers états excités de l'ion Li^{2+} obtenues par diagonalisation de l'hamiltonien mono-électronique sur les combinaisons linéaires de GTOs. Nous reportons les énergies exactes et les valeurs du viriel correspondant. 132

A.8 Énergies en u.a. des premiers états liés $Li^+(1sn'l')$ et des états autoionisants $Li^+(2ln'l')$ et $Li^+(3ln'l')$. E_{sim} sont les énergies obtenues par notre simulation, nous reportons aussi les énergies tabulées [27], celles mesurées expérimentalement par Diehl [102] et celles obtenues par des calculs théoriques de Bachau et al. [119]. 133

A.9 Constitution de la base bâtie sur le projectile B^{5+} 134

A.10 Exposants et nombres quantiques ℓ caractérisant les GTOs optimisées pour B^{4+} et B^{3+} 135

A.11 Énergies en u.a. de l'état fondamental et des premiers états excités de l'ion B^{4+} obtenues par diagonalisation de l'hamiltonien mono-électronique sur les combinaisons linéaires des GTOs. Nous reportons les énergies exactes et les valeurs du viriel correspondant. 135

A.12 Énergies en u.a. des premiers états liés $B^{3+}(1sn'l')$ et des premiers états autoionisants $B^{3+}(2ln'l')$. E_{sim} sont les énergies obtenues par notre simulation, nous reportons aussi les énergies tabulées E_{exp} [27], et celles mesurées expérimentalement par Kramida et al. [126]. 136

A.13 Constitution de la base bâtie sur le projectile C^{6+} 137

A.14 Exposants et nombres quantiques ℓ caractérisant les GTOs optimisées pour C^{5+} et C^{4+} 138

A.15 Énergies en u.a. de l'état fondamental et des premiers états excités de l'ion $C^{5+}(nl)$ obtenues par diagonalisation de l'hamiltonien mono-électronique sur les combinaisons linéaires des GTOs. Nous reportons les énergies exactes et les valeurs du viriel correspondant. 139

LISTE DES TABLEAUX

A.16 Énergies en u.a. des premiers états liés $C^{4+}(1sn'l')$ et des premiers états autoionisants $C^{4+}(2ln'l')$ nous avons reporté aussi les énergies des états pour lesquels la double capture est dominante. E_{sim} sont les énergies obtenues par notre simulation, nous reportons aussi les énergies tabulées E_{exp} [27], et celles mesurées expérimentalement par Hansen et al. [127]. 139

A.17 Constitution de la base bâtie sur le projectile N^{7+} 140

A.18 Exposants et nombres quantiques ℓ caractérisant les GTOs optimisées pour N^{6+} et N^{5+} 141

A.19 Énergies en u.a. de l'état fondamental et des premiers états excités de l'ion $N^{6+}(nl)$ obtenues par diagonalisation de l'hamiltonien mono-électronique sur les combinaisons linéaires des GTOs. Nous reportons les énergies exactes et les valeurs du viriel correspondant. 142

A.20 Énergies en u.a. des premiers états liés $N^{5+}(1sn'l')$ et des états autoionisants $N^{5+}(2ln'l')$ et $N^{5+}(3ln'l')$. E_{sim} sont les énergies obtenues par notre simulation, nous reportons aussi les énergies tabulées [27], celles mesurées expérimentalement par Ho et al. [128] et celles obtenues par des calculs théoriques de Bachau et al. [119]. 143

A.21 Constitution de la base bâtie sur le projectile O^{8+} 144

A.22 Exposants et nombres quantiques ℓ caractérisant les GTOs optimisées pour O^{7+} et O^{6+} 145

A.23 Énergies en u.a. de l'état fondamental et des premiers états excités de l'ion $O^{7+}(nl)$ obtenues par diagonalisation de l'hamiltonien mono-électronique sur les combinaisons linéaires des GTOs. Nous reportons les énergies exactes et les valeurs du viriel correspondant. 146

A.24 Énergies en u.a. des premiers états liés $O^{6+}(1sn'l')$ et des premiers états autoionisants $O^{6+}(nln'l')$ avec $n = 2, 3$. E_{sim} sont les énergies obtenues par notre simulation, nous reportons aussi les énergies tabulées E_{exp} [27], et celles obtenues par Bachau [119] et Ho [120,121]. 147

A.25 Constitution de la base bâtie sur l'ion projectile F^{9+} 148

A.26 Exposants et nombres quantiques ℓ caractérisant les GTOs optimisées pour F^{8+} et F^{7+} 149

A.27 Énergies en u.a. de l'état fondamental et des premiers états excités de l'ion F^{8+} obtenues par diagonalisation de l'hamiltonien mono-électronique sur les combinaisons linéaires des GTOs. Nous reportons les énergies exactes et les valeurs du viriel correspondant. 149

A.28 Énergies en u.a. des premiers états liés $F^{7+}(1sn'l')$ et des premiers états autoionisants $F^{7+}(nln'l')$ avec $n = 2, 3$. E_{sim} sont les énergies obtenues par notre simulation, nous reportons aussi les énergies tabulées E_{exp} [27], et celles obtenues par Bachau [119] et Ho ([120,121]. 150

A.29 Constitution de la base bâtie sur l'ion projectile Ne^{10+} 151

A.30 Exposants et nombres quantiques ℓ caractérisant les GTOs optimisées pour Ne^{9+} et Ne^{8+} 152

A.31 Énergies en u.a. de l'état fondamental et des premiers états excités de l'ion Ne^{9+} obtenues par diagonalisation de l'hamiltonien mono-électronique sur les combinaisons linéaires des GTO. Nous reportons les énergies exactes et les valeurs du viriel correspondant. 153

LISTE DES TABLEAUX

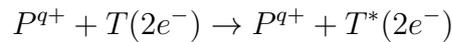
A.32 Les énergies en u.a. des premiers états liés $Ne^{8+}(1sn'l')$ et des états autoionisants $Ne^{8+}(2ln'l')$ et $Ne^{8+}(3ln'l')$. E_{sim} sont les énergies obtenues par notre simulation, nous reportons aussi les énergies tabulées [27], et celles obtenues par des calculs théoriques de Bachau et al. [119] et par Ho et al. [120–122]. 154

Introduction

La physique des collisions représente un champ très vaste de la physique fondamentale. En se limitant aux énergies d'impact inférieures à celles caractéristiques de la physique des particules, elle concerne la dynamique d'espèces atomiques ou moléculaires, neutres ou chargées, en interaction, et notamment l'étude des processus électroniques et diffusifs induits lors de ces interactions. Les collisions peuvent aussi impliquer des faisceaux d'électrons, de noyaux nus (H^+ , He^{2+} par exemple), mais aussi des faisceaux laser ; dans ce dernier cas, ce sont des collisions dites assistées dont l'étude s'est considérablement développée dans les trente dernières années [1, 2]. L'étude de processus électroniques ayant lieu au cours de collisions est d'une grande importance tant du point de vue fondamental qu'appliqué. En effet, l'étude des processus électroniques induits dans ces collisions est essentielle car elle touche à notre compréhension du problème complexe de la dynamique des systèmes quantiques à N-corps. Les processus collisionnels se retrouvent aussi au cœur de nombreux systèmes complexes, par exemple en astrophysique, en physique des plasmas et des lasers, mais aussi en chimie. Un exemple d'applications particulièrement importantes concerne les plasmas de fusion à confinement magnétique (tokamak) qui représente une voie de recherche très active actuellement en raison de son impact potentiel sur les problèmes énergétiques qui touchent aux besoins futurs de la population mondiale. Dans ces réacteurs, les processus collisionnels sont omniprésents dans la dynamique du plasma,

notamment pour la perte d'énergie qu'ils peuvent entraîner par émission radiative induite par transfert d'électrons entre particules neutres et chargées mais aussi pour le rendement du chauffage du plasma par injections régulières de faisceaux d'isotopes de l'hydrogène. Les processus collisionnels sont aussi importants dans les zones froides des plasmas tokamak, proches des murs de l'enceinte du réacteur mais aussi directement dans l'interaction des composants du plasma avec les matériaux (C, W) du mur [3]. Le diagnostic par spectroscopie de ces systèmes complexes nécessite aussi la connaissance précise des sections efficaces des processus électroniques induits par les particules injectées (notamment le lithium). Dans ce contexte et celui de mon travail, des collisions impliquant des ions multichargés (impuretés présentes dans le plasma) et des atomes neutres (notamment l'hélium, produit de la fusion) sont caractérisées par la présence de nombreux canaux de réaction entraînant des transitions multiélectroniques entre partenaires des collisions. Pour un atome cible (T) à deux électrons qui interagit avec un ion projectile (P) de charge q , le problème se décompose en processus simples qui peuvent être définis comme suit :

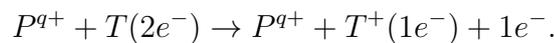
- l'excitation : l'un des deux électrons de la cible subit une transition vers un état excité



- la capture ou transfert électronique : l'un des deux électrons est capturé par l'ion projectile



- l'ionisation : l'interaction de la cible T avec le projectile P^{q+} induit l'éjection d'un électron



A ces processus impliquant un seul électron, s'ajoutent des processus bi-électroniques, tels que :

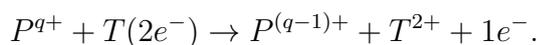
- la double capture : elle se traduit par la capture par le projectile des deux électrons



- le transfert excitation : un électron est capturé tandis que l'autre, resté lié à la cible, subit une excitation



- le transfert-ionisation : le second électron étant éjecté de la cible



L'importance de ces différents processus simples et doubles, dépend de la gamme des vitesses dans laquelle l'étude de la collision est effectuée. Cette gamme de vitesse est déterminée vis-à-vis du rapport de la vitesse du projectile notée v_p et celle, classique, des électrons de la cible, notée v_e . Selon la valeur de ce rapport, on peut distinguer trois régimes de vitesse :

1/ le régime perturbatif ($\frac{v_p}{v_e} \gg 1$) : il correspond au domaine des hautes vitesses de collision. Dans ce domaine où le temps de la collision est très court, les processus électroniques sont peu probables et dominés par l'ionisation. Les transitions électroniques peuvent être attribuées à la perturbation créée par le projectile et un traitement perturbatif à deux états (initial et final) [4] est approprié.

2/ le régime quasi-moléculaire ($\frac{v_p}{v_e} \ll 1$) : il correspond au domaine des basses vitesses pour lesquelles le système de collision peut être vu comme une molécule transitoire. Dans ce régime, une approche moléculaire [5,6] du système de collision est donc adap-

tée. En effet, dans ces collisions lentes la capture électronique, qui est le processus dominant, peut se décrire au travers de croisements évités entre courbes d'énergie moléculaire adiabatiques de la structure globale $(TP)^{q+}$. Pour les projectiles multichargés, la présence de la répulsion coulombienne entre les partenaires de la collision est la raison principale de l'existence de croisements aux grandes distances internucléaires.

3/ le régime des vitesses intermédiaires ($\frac{v_p}{v_e} \approx 1$) : dans ce régime, la vitesse d'impact du projectile est du même ordre de grandeur que la vitesse des électrons de la cible autour de leur orbite. Dans ce cas, tous les processus électroniques sont souvent importants et sont donc couplés. L'étude des processus électroniques dans ce domaine nécessite donc un traitement non perturbatif, généralement semi-classique. Les approches semi-classiques de *close couplings* se sont révélées fiables et incontournables dans l'étude des collisions dans le domaine d'énergie du keV [7] mais des méthodes purement classiques telles que la méthode Monte Carlo des trajectoires classiques [8,9] ont été aussi développées lorsque les précédentes méthodes étaient difficilement utilisables.

Dans le cadre de ma thèse, j'ai modélisé les processus électroniques ayant lieu au cours de collisions d'ions nus ($Z = 2 - 10$) avec une cible atomique d'hélium dans son état fondamental, dans la gamme des vitesses intermédiaires. J'ai utilisé une approche semiclassique non perturbative en portant un intérêt particulier sur la description des processus de simple et de double capture, en raison de leur importance dans la gamme de vitesses considérées. L'étude des tels systèmes est très intéressante du fait que l'atome d'hélium est l'un des constituants prédominants dans les dispositifs de fusion et peut interagir avec des ions multichargés des impuretés présentes au sein des réacteurs de fusion. D'un point de vue théorique, l'intérêt de ces systèmes est qu'ils constituent de vrais systèmes à deux électrons, tels qu'il ne soit pas nécessaire d'inclure d'approximation supplémentaires dans le traitement théorique, telles que l'approximation du cœur gelé nécessitant l'utilisation de potentiel modèle *ad hoc*.

L'objectif de mon travail est la description de ces processus à l'aide d'un traitement, d'un code informatique et d'une mise en œuvre aboutis permettant la convergence des résultats pour l'ensemble des systèmes étudiés.

Dans le premier chapitre de ce manuscrit, nous présentons le formalisme mathématique basé sur une approche non perturbative accompagnée du traitement semi-classique dit du paramètre d'impact. Le formalisme est développé pour établir l'équation de Shrödinger dépendante du temps (ou équation eikonale) décrivant les systèmes de collision composés d'atomes cibles à deux électrons actifs (l'atome d'hélium dans notre cas) et un ion projectile nu. Le deuxième chapitre est divisé en deux parties principales dont la première concerne la méthode d'implémentation adoptée au sein de notre équipe. Nous y rappelons les grandes lignes de notre programme informatique ayant pour but la résolution de l'équation de Shrödinger décrivant les systèmes de collision à deux électrons. La seconde partie de ce chapitre est consacrée à la mise en œuvre des calculs, notamment celle concernant l'atome d'hélium, commun à l'ensemble des systèmes de collision étudiés au cours de la thèse. Nous avons établi pour cet atome une base d'états adéquates exprimées sous forme d'orbitales de Gauss (GTO) optimisées et de leurs produits. Une étude systématique des collisions entre l'atome cible d'hélium et huit types d'ions nus ($Z = 2, 3, 5, 6, 7, 8, 9, 10$) dans une large gamme d'énergie (0.25 – 625 keV/u) est présentée dans le troisième chapitre, cette étude ayant pour objectif d'extraire un comportement général reliant les sections efficaces, les processus électroniques favorables, la charge du projectile et la gamme des énergies considérées. Dans les deux derniers chapitres, nous traitons en détail deux systèmes de collisions particuliers dont les comportements et les caractéristiques sont différents : le premier implique un projectile de faible charge, Li^{3+} , le deuxième un projectile plus chargé, O^{8+} . Au cours de l'étude de ces deux systèmes, nous avons comparé nos résultats aux données théoriques et expérimentales existantes et analysé l'influence de la charge du projectile sur le peuplement des états des deux partenaires de la collision, et notamment

les contributions relatives des processus de simple et de double capture. Finalement, nous présentons une conclusion générale et les perspectives envisagées à notre travail.

Chapitre I

Approche semi-classique non-perturbative

I.1 Présentation

Les collisions d'ions lourds avec des atomes ou des molécules définissent un des domaines très actifs de la physique atomique et moléculaire depuis la naissance de la mécanique quantique. Au cours de ces dernières décennies, à la fois la conception et la construction d'accélérateurs nécessaires aux expériences : par exemple, pour des projets récents, le projet FAIR à GSI en Allemagne [10] ou le projet SPIRAL2 du GANIL à Caen [11], et le développement de modèles théoriques et de codes informatiques de simulation de plus en plus sophistiqués ont considérablement fait progresser notre connaissance sur ces collisions et les processus électroniques qu'elles induisent. Du point de vue théorique, la dynamique des systèmes quantiques atomiques et moléculaires en interaction est décrite par l'équation de Schrödinger indépendante du temps. Néanmoins, la résolution de cette équation n'est pas réalisable analytiquement pour ces systèmes complexes et il est clairement nécessaire d'introduire des méthodes

approchées pour la résoudre et modéliser les processus physiques. Le type de ces approches dépend fortement de la gamme d'énergie dans laquelle l'étude des collisions est effectuée.

Dans le cadre de notre travail de recherche, nous nous sommes intéressés à l'étude des processus électroniques dans la gamme d'énergie allant de 0.1 keV/u à 500 keV/u, c'est-à-dire pour des vitesses d'impact proches de la vitesse classique ($v_e \approx 1$ u.a.) d'un électron de valence d'une structure atomique ou moléculaire neutre. Au cours de ce chapitre, nous allons décrire par étapes successives le traitement théorique adopté pour décrire les systèmes de collision composés d'un ion projectile nu et d'une cible atomique à deux électrons actifs (l'atome d'hélium en l'occurrence) dans cette gamme d'énergie d'impact. Le traitement consiste à établir une description semi-classique valable lorsque l'énergie cinétique des noyaux des partenaires de la collision est très grande devant l'énergie électronique du système de collision étudié ; cela permet de séparer le système global en deux sous-systèmes : il s'agit du système nucléaire dont le mouvement relatif est traité classiquement, et du système électronique qui obéit aux lois de la mécanique quantique. Dans le cadre de cette approximation semi-classique, le problème se réduit à la résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps pour la fonction d'onde électronique qui décrit l'évolution des électrons au cours de la collision. Elle n'admet pas non plus de solution exacte et le recours à des méthodes semi-analytiques ou numériques s'avère primordial pour la résoudre le plus exactement possible, c'est-à-dire sans passer par des approximations supplémentaires.

Bates et McCarroll [7] ont développé dans les années cinquante une méthode non-perturbative qui consiste à représenter la fonction d'onde du système de collision sur une base dont les composantes sont des orbitales atomiques/moléculaires (pour les collisions ion-atome/molécule) centrées sur chaque partenaire, en mouvement, de la collision. Le problème revient donc à résoudre pour une énergie donnée un système d'équations différentielles couplées pour les coefficients de ce développement. C'est sur

cette méthode que notre étude est basée.

I.2 Description semi-classique

I.2.1 Description classique du mouvement nucléaire

Nous considérons un ion (ou un atome, de masse M_P) se déplaçant avec une vitesse \vec{v} et entrant en interaction avec une cible (atome ou molécule, de masse M_T). L'approche semi-classique de paramètre d'impact [12] repose sur le fait que le mouvement des électrons est traité quantiquement, tandis que le mouvement relatif entre le projectile et la cible est traité classiquement. La figure I.1 schématise ce phénomène et montre les différentes grandeurs importantes pour la suite de ce chapitre. Il faut remarquer que pour des raisons de simplicité nous avons représenté la collision dans un référentiel dont la cible est l'origine ; ce choix n'entache en aucun cas la généralité des équations que nous présenterons dans la suite. La vitesse d'impact (ou, de façon générale, relative entre cible et projectile) \vec{v} définit l'axe Oz qui caractérise la symétrie cylindrique du système pour les collisions ion-atome. Le second paramètre important pour décrire la collision classique est le paramètre d'impact \vec{b} qui définit la distance de moindre approche ($R_{min} = b$) pour des particules sans interaction et représente la position latérale de la trajectoire du projectile par rapport à l'axe Oz asymptotiquement, c'est-à-dire à un temps $t \rightarrow -\infty$. Le plan défini par les vecteurs \vec{v} et \vec{b} est appelé plan de collision et l'angle de diffusion θ représenté en Fig. 1.1 réfère à l'asymptote à $t \rightarrow +\infty$ de la trajectoire du projectile par rapport à la cible. La représentation classique de la collision donnée dans la Fig. I.1 illustre en fait très bien l'approximation que nous allons utiliser dans la suite de ce travail.

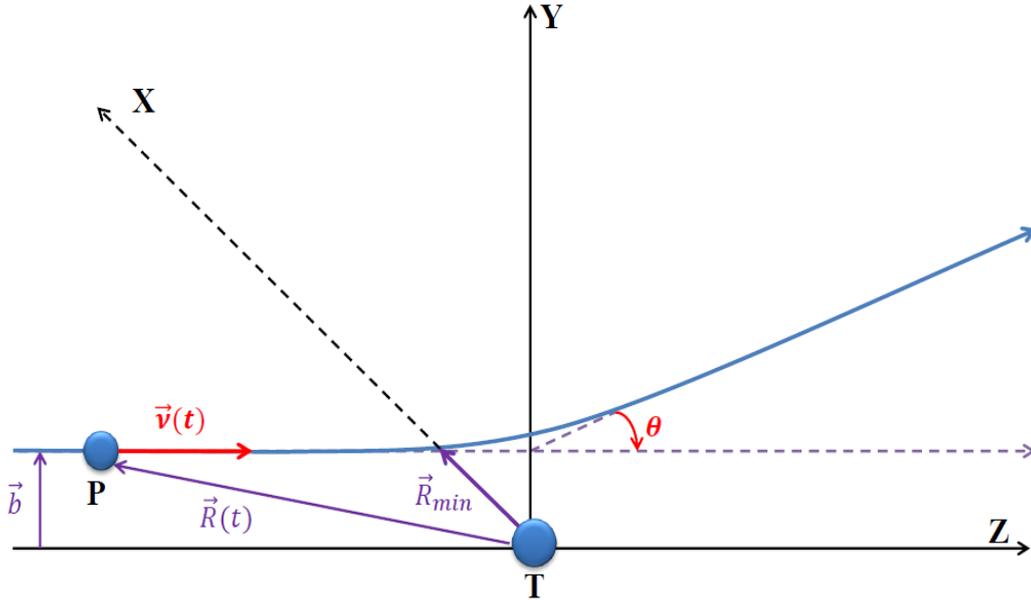


Figure I.1 – Image classique de la collision : la trajectoire classique $\vec{R}(t)$ du projectile P par rapport à la cible T prise comme origine du référentiel xyz : $\vec{v} // Oz$. et $\vec{b} // Ox$. Les vecteurs \vec{b} et \vec{v} sont la vitesse et le paramètre d'impact, \vec{R}_{min} représente la position de moindre approche pour le projectile et θ l'angle de diffusion.

En effet, aux vitesses considérées ($v_e \approx 1$ u.a.) et pour des collisions impliquant des particules lourdes ($M_T, M_P \gg m_e$, avec $m_e = 1$ u.a, masse de l'électron), la quantité de mouvement liée au mouvement relatif entre la cible et le projectile (de masse réduite μ) est très grande devant l'unité de telle sorte que la longueur d'onde de de Broglie associée à ce mouvement

$$\lambda_d = \frac{2\pi}{\mu v} \quad (\text{I.1})$$

est petite par rapport à la taille typique de la zone de collision, $a \approx 1$ u.a. Autrement dit, les paquets d'onde décrivant quantiquement le mouvement des noyaux sont extrêmement étroits en comparaison de a de telle sorte que ce mouvement peut être décrit classiquement. Les énergies d'impact considérées dans notre travail sont beaucoup plus grandes que les différences d'énergie associées aux transitions électroniques induites pendant la collision : la vitesse cible-projectile après la collision est très proche

de la vitesse initiale v de telle sorte qu'elle peut-être considérée comme constante, c'est-à-dire $v(t) \equiv v$.

De plus, les valeurs des paramètres d'impact caractéristiques des processus électroniques étudiés sont relativement élevées, $b \approx 4$ u.a : aux vitesses considérées la diffusion n'a lieu qu'à de très faibles valeurs de l'angle de diffusion ($\theta \approx 1$ mrad) de telle sorte que les trajectoires puissent être considérées comme rectilignes dans la zone de collision. C'est donc dans l'approximation semiclassique des trajectoires rectilignes uniformes caractérisées par

$$\vec{R}(t) = \vec{b} + \vec{v}t \quad \text{avec } \vec{b} \cdot \vec{v} = 0 \quad (\text{I.2})$$

que nous développerons la seconde partie de l'approche théorique utilisée.

I.2.2 Description quantique du mouvement électronique

On considère un système de collision composé d'un ion projectile P et d'une cible atomique (ou moléculaire) T à deux électrons actifs. En ne tenant compte que des termes d'interaction coulombienne, ce système de collision est gouverné par l'équation de Schrödinger indépendante du temps. Dans un référentiel quelconque, cette équation s'écrit

$$\hat{H}^{tot} \Psi_{sys} = E^{tot} \Psi_{sys} \quad (\text{I.3})$$

où \hat{H}^{tot} et E^{tot} sont respectivement l'opérateur hamiltonien et l'énergie correspondante du système dans ce référentiel. L'opérateur hamiltonien se décompose en deux opérateurs :

$$\hat{H}^{tot} = \hat{T}^{tot} + \hat{V}^{tot} \quad (\text{I.4})$$

Dans la suite, nous allons présenter la suite logique des approximations qui permettent de passer de l'équation de Schrödinger indépendante du temps à un problème dépendant du temps dans le cas de collisions ion-atome et ion-molécule.

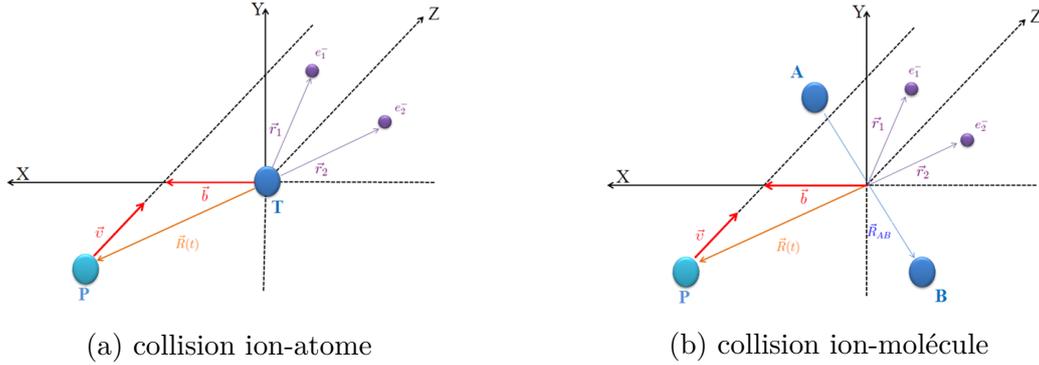


Figure I.2 – Collisions atomique (a) et moléculaire (b) dans le cas de systèmes à deux électrons actifs : la cible atomique T est prise comme origine du repère (pour la cible moléculaire, l'origine est le centre de masse des deux noyaux A et B). \vec{R} , \vec{r}_1 , \vec{r}_2 indiquent respectivement la position relative du projectile et celles des deux électrons e_1^- et e_2^- par rapport à la cible. La position relative des noyaux de la cible moléculaire est repérée par le vecteur \vec{R}_{AB} .

I.2.2.1 Les collisions ion-atome

L'opérateur énergie cinétique regroupe les termes associés aux deux électrons et aux deux noyaux et s'exprime en unités atomiques sous la forme

$$\hat{T}^{tot} = -\frac{1}{2}\nabla_{r_1}^2 - \frac{1}{2}\nabla_{r_2}^2 - \frac{1}{2M_T}\nabla_{R_T}^2 - \frac{1}{2M_P}\nabla_{R_P}^2, \quad (I.5)$$

L'opérateur énergie potentielle est la somme des énergies d'interaction entre les différentes particules constituant le système de collision : "noyau-noyau", "électron-électron" et "noyau-électron"

$$\hat{V}^{tot} = \hat{V}^{N-N} + \hat{V}^{e-e} + \hat{V}^{N-e} = V_{TP} + V_{e_1e_2} + V_{Te_1} + V_{Te_2} + V_{Pe_1} + V_{Pe_2} \quad (I.6)$$

Dans le référentiel du centre de masse, et dans l'approximation de la masse nucléaire infinie ($M_T, M_P \gg m_e = 1$ u.a.), l'opérateur énergie cinétique s'exprime en fonction d'un ensemble de variables indépendant du centre de masse G du système de collision ($\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{R}$, : coordonnées internes représentées sur la figure I.2), et du vecteur position \vec{R}_G de ce centre

$$\hat{T}^{tot} = -\frac{1}{2}\nabla_{r_1}^2 - \frac{1}{2}\nabla_{r_2}^2 - \frac{1}{M_P + M_T}\nabla_{R_G}^2 - \frac{1}{2}\left(\frac{1}{M_P} + \frac{1}{M_T}\right)\nabla_R^2 \quad (\text{I.7})$$

$$= -\frac{1}{2}\nabla_{r_1}^2 - \frac{1}{2}\nabla_{r_2}^2 - \frac{1}{M_{tot}}\nabla_{R_G}^2 - \frac{1}{2\mu_{TP}}\nabla_R^2 \quad (\text{I.8})$$

$$= \hat{T}_{int} - \frac{1}{M_{tot}}\nabla_{R_G}^2. \quad (\text{I.9})$$

où nous avons fait apparaître l'opérateur d'énergie cinétique interne au système \hat{T}_{int} qui ne depend que de jeu de coordonnées internes, et avons défini les masses

$$M_{tot} = M_T + M_P, \quad \text{et} \quad \mu_{TP} = \frac{M_T M_P}{M_T + M_P} \quad (\text{I.10})$$

L'opérateur énergie potentielle, quant à lui, ne dépend que des coordonnées internes du système; on peut donc écrire l'hamiltonien du système sous la forme

$$\hat{H}^{tot} = \hat{H}_{int}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{R}) - \frac{1}{2M_{tot}}\nabla_{R_G}^2. \quad (\text{I.11})$$

où l'hamiltonien interne \hat{H}_{int} peut s'exprimer en fonction de l'hamiltonien électronique \hat{H}_{el} sous la forme

$$\hat{H}_{int} = \hat{H}_{el} - \frac{1}{2\mu_{TP}}\nabla_R^2 \quad \text{avec} \quad \hat{H}_{el} = -\frac{1}{2}\nabla_{r_1}^2 - \frac{1}{2}\nabla_{r_2}^2 + \hat{V}^{tot} \quad (\text{I.12})$$

Par ailleurs, en séparant les coordonnées du centre de masse, la fonction d'onde totale et l'énergie du système s'écrivent successivement comme

$$\Psi_{sys} = \Psi_{int}\Psi_G \qquad E^{tot} = E_{int} + E_G \qquad (I.13)$$

où $\Psi_G = e^{ik_G \cdot \vec{R}_G}$ et $E_G = \frac{k_G^2}{2M_{tot}}$ sont la fonction d'onde et l'énergie du centre de masse, particule libre sans champ extérieur. La fonction d'onde interne Ψ_{int} qui ne depend que des coordonnées internes est solution de l'équation

$$H_{int}\Psi_{int} = E_{int}\Psi_{int} \qquad (I.14)$$

et peut s'écrire sous une forme approchée d'un produit d'une fonction électronique $\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{R})$ et d'une fonction nucléaire $\Xi(\vec{R})$

$$\Psi_{int} = \Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{R})\Xi(\vec{R}) \qquad (I.15)$$

L'utilisation de cette forme approchée étant justifiée par le fait que dans la gamme des vitesses considérées (de l'ordre de 1 u.a.) et en tenant en compte du fait que les noyaux sont beaucoup plus massifs que les électrons, l'énergie cinétique associée au mouvement relatif des partenaires T et P de la collision, $-\frac{1}{2\mu_{TP}}\nabla_R^2$, est largement plus grande que l'énergie interne (électronique) du système. Il est alors naturel de traiter le mouvement des noyaux indépendamment de celui des électrons. La dépendance de $\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{R})$ en \vec{R} est très faible, il est donc aussi possible de négliger le terme $\vec{\nabla}_R^2\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{R})$ dans le traitement de la collision

$$\vec{\nabla}_R^2\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{R}) \approx 0. \qquad (I.16)$$

Par ailleurs la description de la fonction d'onde nucléaire par une onde plane est pertinente car la diffusion se fait principalement vers l'avant, dans un cône de quelques

degrés [23, 24] par rapport à la direction initiale du projectile

$$\Xi(\vec{R}) = e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}} \quad (\text{I.17})$$

où \vec{k} est le vecteur d'onde du mouvement relatif, de module $k = \sqrt{2\mu_{TP}E_{int}}$. En introduisant les équations (I.12), (I.15), et (I.17) dans l'équation de Schrödinger pour la fonction d'onde interne (I.14), nous obtenons l'équation de Schrödinger pour la fonction d'onde $\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{R})$

$$[\hat{H}_{el} - \frac{i}{\mu_{TP}}\vec{k}\cdot\vec{\nabla}_R]\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{R}) = 0. \quad (\text{I.18})$$

I.2.2.2 Les collisions ion-molécule

Dans le cas de la collision d'un ion projectile avec une cible moléculaire composée de deux noyaux A et B et à deux électrons actifs, l'opérateur énergie cinétique est de la forme

$$\hat{T}^{tot} = -\frac{1}{2}\nabla_{r_1}^2 - \frac{1}{2}\nabla_{r_2}^2 - \frac{1}{2M_A}\nabla_{R_A}^2 - \frac{1}{2M_B}\nabla_{R_B}^2 - \frac{1}{2M_P}\nabla_{R_P}^2,$$

et s'écrit dans le système de coordonnées internes $(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{R}, \vec{R}_{AB})$ comme

$$\hat{T}^{tot} = -\frac{1}{2}\nabla_{r_1}^2 - \frac{1}{2}\nabla_{r_2}^2 - \frac{1}{2\mu_{TP}}\nabla_R^2 - \frac{1}{2\mu_{AB}}\nabla_{R_{AB}}^2 - \frac{1}{M_{tot}}\nabla_{R_G}^2 \quad (\text{I.19})$$

avec

$$\mu_{TP} = \frac{(M_A + M_B)M_P}{M_A + M_B + M_P}, \quad \mu_{AB} = \frac{M_A M_B}{M_A + M_B}, \quad M_{tot} = M_A + M_B + M_P. \quad (\text{I.20})$$

En portant l'expression de l'opérateur énergie cinétique dans l'hamiltonien du système, nous pouvons extraire l'hamiltonien interne

$$\hat{H}_{int} = \hat{H}_{el} - \frac{1}{2\mu_{TP}} \nabla_R^2 - \frac{1}{2\mu_{AB}} \nabla_{R_{AB}}^2. \quad (\text{I.21})$$

De façon similaire au cas précédent, la fonction d'onde interne du système s'écrit comme un produit de fonctions respectivement associées aux trois termes énergétiques : l'énergie électronique, l'énergie cinétique associée au mouvement relatif entre la cible et le projectile, et l'énergie cinétique associée au mouvement relatif des noyaux de la cible

$$\Psi_{int} = \Xi(\vec{R})\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{R}, \vec{R}_{AB})\Gamma(\vec{R}_{AB}). \quad (\text{I.22})$$

En remplaçant les expressions (I.21) et (I.22) dans l'équation de Schrödinger pour la fonction d'onde interne (I.14), nous obtenons

$$[\hat{H}_{el} - \frac{1}{2\mu_{TP}} \nabla_R^2 - \frac{1}{2\mu_{AB}} \nabla_{R_{AB}}^2 - E_{int}]\Xi(\vec{R})\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{R})\Gamma(\vec{R}_{AB}) = 0. \quad (\text{I.23})$$

En prenant en compte le fait que la fonction Ψ dépend très faiblement de \vec{R} et de \vec{R}_{AB} , la condition (I.16) est bien vérifiée ; de plus, on peut factoriser la fonction Γ puisque \vec{R}_{AB} n'apparaît que dans l'opérateur scalaire d'énergie potentielle. L'équation (I.23) diffère ainsi de celle obtenue dans le cas de la collision ion-atome (I.18) par la présence du terme en $\nabla_{R_{AB}}^2$, complexe à mettre en œuvre car il couple la dynamique des noyaux de la cible à celles des électrons. En cherchant à le négliger, cette approximation nous permettra de traiter la collision et les processus engendrés par celle-ci d'une façon similaire dans les deux types de collisions considérées.

Pour cela, nous appliquons l'approximation soudaine pour décrire le mouvement relatif des noyaux de la molécule cible. Le fait que ceux-ci soient beaucoup plus massifs que les électrons tandis que les forces agissant sur ces particules soient du même

ordre de grandeur [12], permet de considérer le mouvement nucléaire comme lent par rapport à celui des électrons. De plus, dans la gamme de vitesse d'impact considérée les processus électroniques prennent place dans un intervalle de temps inférieur à la femtoseconde (10^{-15} s), temps court comparé au temps caractéristique de vibration d'une molécule diatomique ($10^{-14} - 10^{-12}$ s). La molécule sera donc modélisée dans le cadre de l'approximation soudaine : le mouvement interne des noyaux de la cible est gelé durant le passage de projectile de telle sorte que la distance internucléaire \vec{R}_{AB} est constante et

$$-\frac{1}{2\mu_{AB}}\nabla_{\vec{R}_{AB}}^2\Psi_{int} = 0. \quad (\text{I.24})$$

Nous obtenons donc la même équation que celle obtenue dans le cas des collisions ion-atome

$$[\hat{H}_{el} - \frac{i}{\mu_{TP}}\vec{k}\cdot\vec{\nabla}_R]\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{R}) = 0, \quad (\text{I.25})$$

la seule différence résidant dans la forme du potentiel associé aux interactions cible-électron.

I.2.3 L'équation eikonale

L'étape suivante de notre développement est d'introduire la notion de temps dans les équations (I.18) et (I.25). Ceci est possible en utilisant la notion des trajectoires classiques pour le mouvement relatif entre la cible et le projectile définies par l'équation (I.2) et compatibles avec le domaine d'énergie d'impact considéré. La vitesse du mouvement relatif entre la cible et le projectile (suivant la direction Oz) étant reliée au vecteur d'onde \vec{k} par l'équation

$$\vec{v} = \frac{1}{\mu_{TP}}\vec{k}, \quad (\text{I.26})$$

on peut écrire

$$\frac{1}{\mu_{TP}} \vec{k} \cdot \vec{\nabla}_R = \vec{v} \cdot \vec{\nabla}_R = v \frac{\partial}{\partial Z} = \frac{\partial}{\partial t}. \quad (\text{I.27})$$

En insérant cette dernière expression dans les équations (I.18) et (I.25), nous obtenons finalement l'équation eikonale

$$[\hat{H}_{el} - i \frac{\partial}{\partial t}] \Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = 0 \quad (\text{I.28})$$

Cette équation est formellement équivalente à l'équation de Schrödinger dépendante du temps écrite pour la fonction d'onde électronique, et non pas pour celle associée à l'ensemble du système de collision. Elle prend cette forme familière en raison de l'utilisation de l'approximation des trajectoires rectilignes uniformes et comprendrait des termes supplémentaires dans le cas de trajectoires complexes, par exemple paraboliques. La fonction d'onde électronique ne dépend que des coordonnées des électrons et du temps (variables indépendantes du système) et elle décrit la dynamique des électrons du système de collision dans le champ des noyaux se déplaçant suivant des trajectoires classiques. Elle porte toutes les informations nécessaires pour décrire les différents processus électroniques engendrés au cours de la collision. Dans le prochain chapitre, nous allons présenter la méthode de résolution de cette équation que nous avons utilisé pour obtenir nos résultats.

I.3 Résolution de l'équation eikonale

Un travail technique considérable a été fourni depuis l'avènement de la mécanique quantique pour décrire les systèmes atomiques et moléculaires soumis à un champ externe non-stationnaire. Différentes techniques de résolution robustes ont été développées et le domaine d'application de celles-ci dépend de la nature du potentiel dé-

pendant du temps et du type de processus considérés.

Parmi les méthodes de résolution de l'équation de Schrödinger, les méthodes de grille originellement développées pour les collisions nucléaires [13–15] ont été adaptées ensuite à la description des collisions ion-atome [16–18]. Elles sont basées sur l'idée de discrétisation du temps et de l'espace (des électrons) et de l'utilisation de la méthode des différences finies pour le traitement des opérateurs différentiels. Ces méthodes purement numériques ne permettent pas de fournir une forme analytique de la fonction d'onde, mais elles donnent sa valeur sur des points d'une grille spatiale, à un instant donné. Néanmoins, l'utilisation de ces méthodes est généralement limitée à des systèmes modèles pour lesquels les dimensions de l'espace sont réduites à une ou deux dimensions [19]. Il s'ensuit donc que les calculs de collisions à deux électrons actifs dans un espace à trois dimensions ne sont pas du tout envisageables actuellement. Il est donc évident d'adopter des méthodes semi-analytiques qui consistent à porter le plus loin possible le développement analytique de l'équation de Schrödinger dépendante du temps. Ces méthodes reposent sur le développement de la fonction d'onde électronique sur un espace de Hilbert le plus vaste possible (pour obtenir la convergence des résultats) mais de dimension finie, dont les états de base sont des orbitales bien définies analytiquement. L'équation de Schrödinger ainsi obtenue est équivalente à un ensemble d'équations différentielles couplées pour les coefficients du développement. La résolution numérique de ce système d'équations est nécessaire afin de déterminer les amplitudes de transition après la collision (coefficients de développement) et de calculer les sections efficaces caractérisant les processus électroniques étudiés.

Cette méthode est parfaitement adaptée à la description des processus " état lié-état lié ", et elle présente l'avantage d'être utilisable pour l'étude des systèmes à un électron actif [20, 21] mais aussi poly-électroniques [22]. Dans ce qui suit, nous rappelons succinctement le formalisme utilisé pour un système à deux électrons actifs [19].

I.3.1 L'approximation asymptotique

Lors de la collision d'un ion projectile avec une cible atomique à deux électrons actifs, trois conditions asymptotiques sont envisageables pour le système de collision :

1. Avant ou après la collision, les deux partenaires de la collision sont infiniment éloignés l'un de l'autre de telle sorte qu'on puisse considérer nulle leur interaction mutuelle. Les deux électrons peuvent être liés à la cible (c'est le cas de l'état initial des systèmes de collision étudiés dans la suite) et le projectile se situe asymptotiquement du système $(T + 2e^-)$ qui est décrit par l'équation de Schrödinger

$$H_{el}^{TT} \Phi_i^{TT}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = E_i^T \Phi_i^{TT}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \quad (\text{I.29})$$

avec

$$\hat{H}_{el}^{TT} = -\frac{1}{2} \nabla_{r_1}^2 + V_{Te_1} - \frac{1}{2} \nabla_{r_2}^2 + V_{Te_2} + V_{e_1 e_2} = h_1^T + h_2^T + V_{e_1 e_2} \quad (\text{I.30})$$

Les fonctions d'onde $\Phi_i^{TT}(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ bi-électroniques décrivent les états de la cible, d'énergie E_i^T .

2. Après la collision, deux électrons peuvent être capturés par le projectile. Si le projectile capture les deux électrons, l'hamiltonien du système $(P + 2e^-)$ s'exprime

$$\hat{H}_{el}^{PP} = -\frac{1}{2} \nabla_{r_1^P}^2 + V_{Pe_1} - \frac{1}{2} \nabla_{r_2^P}^2 + V_{Pe_2} + V_{e_1 e_2} = h_1^P + h_2^P + V_{e_1 e_2} \quad (\text{I.31})$$

avec $\vec{r}_i^P = \vec{r}_i - \vec{R}$ ($i \equiv 1, 2$). Les fonctions d'ondes $\Phi_j^{PP}(\vec{r}_1^P, \vec{r}_2^P)$ décrivent les états du projectile et sont associées aux énergies E_j^P . Elles vérifient l'équation de Schrödinger

$$(H_{el}^{PP} - E_j^P) \Phi_j^{PP}(\vec{r}_1^P, \vec{r}_2^P) = 0 \quad (\text{I.32})$$

3. En revanche, si un seul électron est capturé par le projectile, l'autre restant lié à la cible, on a à faire asymptotiquement à deux systèmes mono-électroniques, chacun d'eux vérifiant l'équation de Schrödinger

$$h_{1(2)}^{T(P)} \Phi_{i(j)}^{T(P)} = \varepsilon_{i(j)}^{T(P)} \Phi_{i(j)}^{T(P)} \quad (\text{I.33})$$

où

$$h_{1(2)}^T = -\frac{1}{2} \nabla_{r_1(r_2)}^2 + V_{Te_1(e_2)} \quad h_{1(2)}^P = -\frac{1}{2} \nabla_{r_1(r_2)}^2 + V_{Pe_1(e_2)}. \quad (\text{I.34})$$

et ε_i^T et ε_j^P sont les énergies associées respectivement aux états mono-électroniques Φ_i^T de la cible et Φ_j^P du projectile, telles que

$$h_i^T \Phi_i^T = \varepsilon_i^T \Phi_i^T \quad h_j^P \Phi_j^P = \varepsilon_j^P \Phi_j^P. \quad (\text{I.35})$$

Ce sont ces trois types d'états asymptotiques qui sont utilisés dans le développement de la fonction d'onde électronique $\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t)$ (Eq. I.28). Avant de présenter ce développement, il est nécessaire de décrire succinctement la forme analytique choisie pour ces états asymptotiques.

I.3.2 Développement de la fonction d'onde électronique

Les états asymptotiques mono- et bi-électroniques mentionnés ci-dessus susceptibles d'être peuplés pendant la collision sont développés sur une base d'orbitales de Gauss (GTO) centrées soit sur la cible, soit sur le projectile. Le choix de l'utilisation de telles fonctions est motivé par le fait qu'elles permettent l'obtention de formes analytiques simples des intégrales à calculer pour la résolution de l'équation eikonale. Ceci n'est le cas avec les orbitales de Slater qui obligent à l'évaluation beaucoup plus

longue d'intégrales doubles pour le calcul des éléments de matrice à plusieurs centres. Les GTOs sont définies en coordonnées sphériques par

$$G_{\alpha,\ell,m}(\vec{r}) = Y_{\ell,m}(\vec{r})r^\ell e^{-\alpha r^2} \quad (\text{I.36})$$

Les états mono-électroniques de la cible et du projectile sont décrits par des combinaisons linéaires de GTOs

$$\Phi_i^I(\vec{r}) = \sum_{i=1}^{N^I} C_i^I G_{\alpha_i,\ell_i,m_i}(\vec{r}) \quad (I = T, P \text{ et } \vec{r} \equiv \vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_1^P, \vec{r}_2^P) \quad (\text{I.37})$$

tandis que les états bi-électroniques quant à eux sont exprimés comme une somme de produits de GTOs pour chacun des électrons

$$\Phi_i^I(r, r') = \sum_{i=1}^{N^I} \sum_{j=1}^{N^I} C_{ij}^I \left[G_{\alpha_i,\ell_i,m_i}(\vec{r}) G_{\alpha_j,\ell_j,m_j}(\vec{r}') \pm G_{\alpha_j,\ell_j,m_j}(\vec{r}) G_{\alpha_i,\ell_i,m_i}(\vec{r}') \right] \quad (\text{I.38})$$

avec $I = \text{TT}$ ou PP , $\vec{r} = \vec{r}_1, \vec{r}_1^P$ et $\vec{r}' = \vec{r}_2, \vec{r}_2^P$. Le + et le - dans l'équation précédente correspondent à des produits respectivement symétrisés (états singulet) et antisymétrisés (états triplet). En effet, il est important d'indiquer que l'hamiltonien \hat{H}_{el} ne dépend pas des coordonnées de spin des électrons (le couplage spin-orbite est négligé) de telle sorte que le spin total du système est conservé pendant la collision. Pour les systèmes à deux électrons la fonction de spin totale peut se factoriser trivialement et n'a donc pas été introduite dans notre traitement. Pour les systèmes de collision (ions nus-hélium) que nous allons étudier par la suite, le système est singulet et seuls les produits symétrisés seront utilisés de la fonction d'onde électronique.

La diagonalisation de l'hamiltonien de la cible (ou projectile) à un ou à deux électrons sur l'ensemble de fonctions mono- ou bi-électroniques considérées permet d'obtenir les coefficients C_i^I et C_{ij}^I .

Sans perdre la généralité de notre traitement du problème de collision, et pour des raisons de simplicité d'écriture uniquement, nous avons choisi d'exprimer la suite des équations en prenant la cible comme origine du repère (ou, pour une cible moléculaire, le centre de masse des deux noyaux). Dans ce référentiel, le projectile étant en mouvement de translation par rapport à la cible, on applique à ses états une phase adéquate pour prendre en compte ce même déplacement pour chaque électron lié à ce centre et pour assurer l'invariance galiléenne des résultats : il s'agit du facteur de translation électronique [7, 12] défini par

$$F(\vec{r}_i, t) = e^{i\vec{v}\cdot\vec{r}_i} e^{-\frac{i}{2}v^2 t} \quad (\vec{r}_i = \vec{r}_1, \vec{r}_2). \quad (\text{I.39})$$

Pour décrire le système de collision, nous développons la fonction d'onde totale sur l'ensemble des états mono- et bi-électroniques centrés sur la cible et sur le projectile comme suite

$$\begin{aligned} \Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) &= \sum_{i=1}^{N^{TT}} a_i^{TT}(t) \Phi_i^{TT}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{-iE_i^T t} \\ &+ \sum_{k=1}^{N^T} \sum_{l=1}^{N^P} a_{kl}^{TP}(t) \left[\Phi_k^T(\vec{r}_1) \Phi_l^P(\vec{r}_2) e^{i\vec{v}\cdot\vec{r}_2} + \Phi_l^P(\vec{r}_1) \Phi_k^T(\vec{r}_2) e^{i\vec{v}\cdot\vec{r}_1} \right] e^{-i[\frac{v^2}{2} + \varepsilon_k^T + \varepsilon_l^P] t} \\ &+ \sum_{j=1}^{N^{PP}} a_j^{PP}(t) \Phi_j^{PP}(\vec{r}_1^P, \vec{r}_2^P) e^{+i\vec{v}\cdot(\vec{r}_1 + \vec{r}_2)} e^{-i(E_j^P + v^2)t} \end{aligned} \quad (\text{I.40})$$

avec $a_{kl}^{TP}(t) = \frac{1}{\sqrt{2}} a'_{kl}{}^{TP}(t)$, et N^T, N^{TT}, N^P, N^{PP} sont les nombres d'états mono- ou bi-électroniques, centrés soit sur la cible, soit sur le projectile.

I.3.3 Système d'équations différentielles couplées

La résolution de l'équation eikonale (I.28) revient à appliquer $(\hat{H}_{el} - i\frac{\partial}{\partial t})$ sur chaque terme de $\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t)$. Pour les états bi-électroniques de la cible, on obtient après dérivation par rapport au temps

$$\left[\hat{H}_{el} - i\frac{\partial}{\partial t}\right] \sum_{i=1}^{N^{TT}} a_i^{TT} \Phi_i^{TT}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{-iE_i^T t} = \sum_{i=1}^{N^{TT}} \left[-i\dot{a}_i^{TT} + a_i^{TT}[\hat{H}_{el} - E_i^T]\right] \Phi_i^{TT}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{-iE_i^T t} \quad (\text{I.41})$$

Pour les états (mono- et bi-électroniques) du projectile, il est nécessaire de passer dans le référentiel local pour effectuer les dérivées par rapport au temps

$$\begin{aligned} -i\frac{\partial}{\partial t}\Big|_{\vec{r}_i} \Phi_l^P(\vec{r}_i^P) &= i\vec{v}\cdot\vec{\nabla}_{r_i} \Phi_l^P(\vec{r}_i^P), \\ -i\frac{\partial}{\partial t}\Big|_{\vec{r}_1, \vec{r}_2} \Phi_j^{PP}(\vec{r}_1^P, \vec{r}_2^P) &= i[\vec{v}\cdot\vec{\nabla}_{r_1} + \vec{v}\cdot\vec{\nabla}_{r_2}] \Phi_j^{PP}(\vec{r}_1^P, \vec{r}_2^P). \end{aligned} \quad (\text{I.42})$$

Les termes du type $\vec{v}\cdot\vec{\nabla}_{r_i}$ sont annulés par les dérivées

$$\begin{aligned} -\frac{1}{2}\nabla_{r_i}^2 [\Phi_l^P(\vec{r}_i^P) e^{i\vec{v}\cdot\vec{r}_i}] &= \left[-\frac{1}{2}\nabla_{r_i}^2 - i\vec{v}\cdot\vec{\nabla}_{r_i} + \frac{v^2}{2}\right] \Phi_l^P(\vec{r}_i^P) e^{i\vec{v}\cdot\vec{r}_i}, \\ -\frac{1}{2}\nabla_{r_i}^2 [\Phi_j^{PP}(\vec{r}_1^P, \vec{r}_2^P) e^{i\vec{v}\cdot(\vec{r}_1+\vec{r}_2)}] &= \left[-\frac{1}{2}\nabla_{r_i}^2 - i\vec{v}\cdot\vec{\nabla}_{r_i} + \frac{v^2}{2}\right] \Phi_j^{PP}(\vec{r}_1^P, \vec{r}_2^P) e^{i\vec{v}\cdot(\vec{r}_1+\vec{r}_2)}. \end{aligned} \quad (\text{I.43})$$

En dérivant les états bi-électroniques du projectile par rapport au temps, on obtient

$$\begin{aligned} &\left[\hat{H}_{el} - i\frac{\partial}{\partial t}\right] \sum_{j=1}^{N^{PP}} a_j^{PP} \Phi_j^{PP}(\vec{r}_1^P, \vec{r}_2^P) e^{-i(E_j^P + v^2)t + i\vec{v}\cdot(\vec{r}_1 + \vec{r}_2)} \\ &= \sum_{j=1}^{N^{PP}} \left[-i\dot{a}_j^{PP} + a_j^{PP}[\hat{H}_{el} - E_j^P]\right] \Phi_j^{PP}(\vec{r}_1^P, \vec{r}_2^P) e^{-i(E_j^P + v^2)t + i\vec{v}\cdot(\vec{r}_1 + \vec{r}_2)} \end{aligned} \quad (\text{I.44})$$

En ce qui concerne les états mono-électroniques de la cible et de projectile, l'application

de $(\hat{H}_{el} - i\frac{\partial}{\partial t})$ sur ces états nous permet d'écrire

$$\begin{aligned} & \left[\hat{H}_{el} - i\frac{\partial}{\partial t} \right] \sum_{k=1}^{N^T} \sum_{l=1}^{N^P} a_{kl}^{TP}(t) \left[\Phi_k^T(\vec{r}_1) \Phi_l^P(\vec{r}_2) e^{i\vec{v} \cdot \vec{r}_2} + \Phi_l^P(\vec{r}_1) \Phi_k^T(\vec{r}_2) e^{i\vec{v} \cdot \vec{r}_1} \right] e^{-i[\frac{v^2}{2} + \varepsilon_k^T + \varepsilon_l^P]t} \\ &= \sum_{k=1}^{N^T} \sum_{l=1}^{N^P} \left[-i\dot{a}_{kl}^{TP} + a_{kl}^{TP} [\hat{H}_{el} - \varepsilon_k^T - \varepsilon_l^P] \right] \left[\Phi_k^T(\vec{r}_1) \Phi_l^P(\vec{r}_2) e^{i\vec{v} \cdot \vec{r}_2} + \Phi_l^P(\vec{r}_1) \Phi_k^T(\vec{r}_2) e^{i\vec{v} \cdot \vec{r}_1} \right] e^{-i[\frac{v^2}{2} + \varepsilon_k^T + \varepsilon_l^P]t} \end{aligned} \quad (\text{I.45})$$

Nous appliquons le principe variationnel dépendant du temps [12] à la fonction d'onde électronique $\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t)$. Autrement dit, en utilisant la notation de Dirac nous projetons sur l'ensemble des *bra* de la base des états asymptotiques mono- et bi-électroniques le *ket* représentant l'équation de Schrödinger

$$\left\{ \begin{array}{l} \langle \Phi_f^{TT} | \hat{H}_{el} - i\frac{\partial}{\partial t} | \Psi \rangle \\ \langle \Phi_m^T \Phi_n^P e^{i\vec{v} \cdot \vec{r}_2} + \Phi_n^P \Phi_m^T e^{i\vec{v} \cdot \vec{r}_1} | \hat{H}_{el} - i\frac{\partial}{\partial t} | \Psi \rangle \\ \langle \Phi_f^{PP} e^{i\vec{v} \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2)} | \hat{H}_{el} - i\frac{\partial}{\partial t} | \Psi \rangle ; \end{array} \right. \quad (\text{I.46})$$

à partir de ces projections, nous obtenons un système d'équations différentielles couplées pour les coefficients de développement qui s'écrit sous forme matricielle

$$i\mathbf{S}\dot{\mathbf{a}} = \mathbf{M}\mathbf{a} \quad (\text{I.47})$$

La matrice \mathbf{S} de recouvrement est définie par

$$\mathbf{S} = \begin{pmatrix} S_{f,i}^{TT,TT} & S_{f,kl}^{TT,TP} & S_{f,j}^{TT,PP} \\ S_{mn,i}^{TP,TT} & S_{mn,kl}^{TP,TP} & S_{mn,j}^{TP,PP} \\ S_{f,i}^{PP,TT} & S_{f,kl}^{PP,TP} & S_{f,j}^{PP,PP} \end{pmatrix},$$

dont les différents termes sont des matrices partielles pour lesquelles les éléments sont définis comme suit

$$\begin{aligned}
 S_{f,i}^{TT,TT} &= \delta_{f,i}^{TT,TT} \\
 S_{f,kl}^{TT,TP} &= \left[\langle \Phi_f^{TT} | e^{i\vec{v} \cdot \vec{r}_2} | \Phi_k^T \Phi_l^P \rangle + \langle \Phi_f^{TT} | e^{i\vec{v} \cdot \vec{r}_1} | \Phi_l^P \Phi_k^T \rangle \right] e^{-i \left[\frac{v^2}{2} + (\epsilon_m^T + \epsilon_n^P) - E_f^T \right] t} \\
 S_{f,j}^{TT,PP} &= \langle \Phi_f^{TT} | e^{i\vec{v} \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2)} | \Phi_j^{PP} \rangle e^{-i \left[E_j^P - E_f^T + v^2 \right] t} \\
 S_{mn,i}^{TP,TT} &= \left[\langle \Phi_m^T \Phi_n^P | e^{-i\vec{v} \cdot \vec{r}_2} | \Phi_i^{TT} \rangle + \langle \Phi_n^P \Phi_m^T | e^{-i\vec{v} \cdot \vec{r}_1} | \Phi_i^{TT} \rangle \right] e^{-i \left[E_i^T - (\epsilon_m^T + \epsilon_n^P) - \frac{v^2}{2} \right] t} \\
 S_{mn,kl}^{TP,TP} &= \left[2\delta_{mk}^{TT} \delta_{np}^{PP} + 2 \langle \Phi_m^T \Phi_n^P | e^{i\vec{v} \cdot (\vec{r}_1 - \vec{r}_2)} | \Phi_l^P \Phi_k^T \rangle \right] \\
 S_{mn,j}^{TP,PP} &= \left[\langle \Phi_m^T \Phi_n^P | e^{i\vec{v} \cdot \vec{r}_1} | \Phi_j^{PP} \rangle + \langle \Phi_n^P \Phi_m^T | e^{i\vec{v} \cdot \vec{r}_2} | \Phi_j^{PP} \rangle \right] e^{-i \left[E_j^P - (\epsilon_m^T + \epsilon_n^P) - \frac{v^2}{2} \right] t} \\
 S_{f,i}^{PP,TT} &= \langle \Phi_f^{PP} | e^{-i\vec{v} \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2)} | \Phi_i^{TT} \rangle e^{-i \left[E_i^T - E_f^P - v^2 \right] t} \\
 S_{f,kl}^{PP,TP} &= \left[\langle \Phi_f^{PP} | e^{-i\vec{v} \cdot \vec{r}_1} | \Phi_k^T \Phi_l^P \rangle \langle \Phi_f^{PP} | e^{-i\vec{v} \cdot \vec{r}_2} | \Phi_l^P \Phi_k^T \rangle \right] e^{-i \left[\epsilon_k^T + \epsilon_l^P - E_f^P - \frac{v^2}{2} \right] t} \\
 S_{f,j}^{PP,PP} &= \delta_{f,j}^{PP,PP}.
 \end{aligned}$$

De la même façon, la matrice de couplage \mathbf{M}

$$\mathbf{M} = \begin{pmatrix} M_{f,i}^{TT,TT} & M_{f,kl}^{TT,TP} & M_{f,j}^{TT,PP} \\ M_{mn,i}^{TP,TT} & M_{mn,kl}^{TP,TP} & M_{mn,j}^{TP,PP} \\ M_{f,i}^{PP,TT} & M_{f,kl}^{PP,TP} & M_{f,j}^{PP,PP} \end{pmatrix}$$

est une matrice globale dont les éléments sont des matrices partielles pour lesquelles

on définit les éléments comme suit

$$M_{f,i}^{TT,TT} = \langle \Phi_f^{TT} | V_{Pe_1} + V_{Pe_2} | \Phi_i^{TT} \rangle e^{-i[E_i^T - E_f^T]t}$$

$$M_{f,kl}^{TT,TP} = \left[\langle \Phi_f^{TT} | e^{i\vec{v} \cdot \vec{r}_2} (\hat{H}_{el} - \varepsilon_k^T - \varepsilon_l^P) | \Phi_k^T \Phi_l^P \rangle + \langle \Phi_f^{TT} | e^{i\vec{v} \cdot \vec{r}_1} (\hat{H}_{el} - \varepsilon_k^T - \varepsilon_l^P) | \Phi_l^P \Phi_k^T \rangle \right] e^{-i\left[\frac{v^2}{2} + \varepsilon_k^T + \varepsilon_l^P - E_f^T\right]t}$$

$$M_{f,j}^{TT,PP} = \langle \Phi_f^{TT} | e^{i\vec{v} \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2)} (\hat{H}_{el} - E_j^P) | \Phi_j^{PP} \rangle e^{-i[v^2 + E_j^P - E_f^T]t}$$

$$M_{mn,i}^{TP,TT} = \left[\langle \Phi_m^T \Phi_n^P | e^{-i\vec{v} \cdot \vec{r}_2} (\hat{H}_{el} - E_i^T) | \Phi_i^{TT} \rangle + \langle \Phi_n^P \Phi_m^T | e^{-i\vec{v} \cdot \vec{r}_1} (\hat{H}_{el} - E_i^T) | \Phi_i^{TT} \rangle \right] e^{-i\left[E_i^T - \varepsilon_m^T - \varepsilon_n^P - \frac{v^2}{2}\right]t}$$

$$M_{mn,kl}^{TP,TP} = \left[2 \langle \Phi_m^T \Phi_n^P | V_{ee} | \Phi_k^T \Phi_l^P \rangle + 2 \langle \Phi_m^T \Phi_n^P | e^{-i\vec{v} \cdot (\vec{r}_1 - \vec{r}_2)} (\hat{H}_{el} - \varepsilon_k^T - \varepsilon_l^P) | \Phi_l^P \Phi_k^T \rangle \right] e^{-i\left[\varepsilon_k^T + \varepsilon_l^P - \varepsilon_m^T - \varepsilon_n^P\right]t}$$

$$M_{mn,j}^{TP,PP} = \left[\langle \Phi_m^T \Phi_n^P | e^{i\vec{v} \cdot \vec{r}_1} (\hat{H}_{el} - E_j^P) | \Phi_j^{PP} \rangle + \langle \Phi_n^P \Phi_m^T | e^{i\vec{v} \cdot \vec{r}_2} (\hat{H}_{el} - E_j^P) | \Phi_j^{PP} \rangle \right] e^{-i\left[E_j^P - \varepsilon_m^T - \varepsilon_n^P - \frac{v^2}{2}\right]t}$$

$$M_{f,i}^{PP,TT} = \langle \Phi_f^{PP} | e^{-i\vec{v} \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2)} (\hat{H}_{el} - E_i^T) | \Phi_i^{TT} \rangle e^{-i[E_i^T - E_f^P - v^2]t}$$

$$M_{f,kl}^{PP,TP} = \left[\langle \Phi_f^{PP} | e^{-i\vec{v} \cdot \vec{r}_1} (\hat{H}_{el} - \varepsilon_k^T - \varepsilon_l^P) | \Phi_k^T \Phi_l^P \rangle + \langle \Phi_f^{PP} | e^{-i\vec{v} \cdot \vec{r}_2} (\hat{H}_{el} - \varepsilon_k^T - \varepsilon_l^P) | \Phi_l^P \Phi_k^T \rangle \right] e^{-i\left[\varepsilon_k^T + \varepsilon_l^P - E_f^P - \frac{v^2}{2}\right]t}$$

$$M_{f,j}^{PP,PP} = \langle \Phi_f^{PP} | V_{Te_1} + V_{Te_2} | \Phi_j^{PP} \rangle e^{-i[E_j^P - E_f^P]t}.$$

Les vecteurs colonnes $\mathbf{\hat{a}}$ et \mathbf{a} s'expriment respectivement comme

$$\dot{\mathbf{a}} = \begin{pmatrix} \dot{a}^{TT} \\ \dot{a}^{TP} \\ \dot{a}^{PP} \end{pmatrix}, \quad \mathbf{a} = \begin{pmatrix} a^{TT} \\ a^{TP} \\ a^{PP} \end{pmatrix}.$$

dont les éléments sont donnés sous les formes

$$\begin{cases} \dot{a}^{TT} = (\dot{a}_i^{TT})_{1 \leq i \leq N^{TT}} \\ \dot{a}^{TP} = (\dot{a}_{kl}^{TP})_{\substack{1 \leq k \leq N^T \\ 1 \leq l \leq N^P}} \\ \dot{a}^{PP} = (\dot{a}_j^{PP})_{1 \leq j \leq N^{PP}} \end{cases} \quad \begin{cases} a^{TT} = (a_i^{TT})_{1 \leq i \leq N^{TT}} \\ a^{TP} = (a_{kl}^{TP})_{\substack{1 \leq k \leq N^T \\ 1 \leq l \leq N^P}} \\ a^{PP} = (a_j^{PP})_{1 \leq j \leq N^{PP}} \end{cases}$$

La détermination des coefficients de développement \mathbf{a} se fait par la résolution des équations différentielles pour les coefficients $a(t)$ pour des conditions données : elles sont définies à $t \rightarrow -\infty$ par l'état initial i , la vitesse v et le paramètre d'impact b . A la fin d'une propagation, c'est-à-dire $t \rightarrow +\infty$, la résolution de ces équations par une méthode du type prédicteur-correcteur, permet d'évaluer les amplitudes de probabilité $a_f^{(i)}(+\infty)$ pour un état donné f et les probabilités de transition correspondantes

$$P_{i \rightarrow f}(v, b) = |a_f^{(i)}(+\infty)|^2$$

I.4 Sections efficaces

Les sections efficaces caractérisent l'importance relative des processus électroniques engendrés au cours d'une collision. Elles fournissent aussi les informations nécessaires pour une compréhension approfondie de la dynamique collisionnelle des systèmes considérés. Dans le cadre de l'approximation semi-classique, le calcul des sections

efficaces totales se fait à partir des probabilités de transition et nécessite systématiquement une intégration sur le paramètre d'impact \vec{b} pour prendre en compte l'intégralité du faisceau incident (supposé uniforme).

Dans le cas de la collision d'un ion projectile avec une cible atomique, la section efficace totale $\sigma_{i \rightarrow f}$ d'un processus induisant une transition électronique d'un état initial $\Phi_i^{TT}(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ vers un état final $\Phi_f^{PP}(\vec{r}_1^P, \vec{r}_2^P)$ par exemple, ne dépend que de la vitesse d'impact et s'exprime comme suite

$$\sigma_{i \rightarrow f}(v) = \int_0^{2\pi} d\phi_b \int_0^\infty b db P_{i \rightarrow f}(v, b). \quad (\text{I.48})$$

Compte tenu de la symétrie cylindrique du système (les états sont quantifiés suivant l'axe z parallèle à la direction de \vec{v}), les probabilités ne dépendent pas de l'angle azimutal ϕ_b , ce qui permet d'écrire $\sigma_{i \rightarrow f}$ sous une forme plus simple

$$\sigma_{i \rightarrow f}(v) = 2\pi \int_0^\infty b db P_{i \rightarrow f}(v, b). \quad (\text{I.49})$$

Le calcul des sections efficaces pour les collisions ion-molécule est plus complexe du fait des degrés de liberté de la molécule qui doivent être pris en compte. Notamment, la dépendance des probabilités vis-à-vis de la distance internucléaire R_{AB} et de l'orientation (Φ_m, Θ_m) vis-à-vis de la vitesse du projectile rendent le calcul des probabilités de transition relativement long. Les sections efficaces totales sont obtenues par intégration de ces probabilités sur b et moyennées sur les degrés de liberté de la molécule

$$\bar{\sigma}_{i \rightarrow f}(v) = \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \int_0^\infty \rho(R_{AB}) \rho(\Phi_m) \rho(\Theta_m) b P_{i \rightarrow f}(v, b, R_{AB}, \Phi_m, \Theta_m) dR_{AB} d\Phi_m d\Theta_m db. \quad (\text{I.50})$$

Compte tenu de la lourdeur des simulations ion-molécule, diverses approximations sont utilisées afin de réduire le nombre de calculs à effectuer. En premier lieu, dans des conditions standards, la cible moléculaire est dans son état vibrationnel fondamental (à titre d'exemple voir les travaux faites sur la molécule H_2^+ [21]) : la fonction d'onde nucléaire est une fonction de Gauss centrée sur la distance d'équilibre de la molécule et il est raisonnable de considérer la contribution de cette distance à la section efficace comme maximale. C'est l'approximation Franck-Condon dans laquelle on évalue la section efficace uniquement à la distance d'équilibre ; cette approximation, très simplificatrice quant aux calculs à effectuer, est néanmoins généralement justifiée quand les sections efficaces varient faiblement et de façon monotone autour de cette valeur. En second lieu, les intégrations sur l'orientation de la molécule peuvent être simplifiées en ne réalisant qu'une moyenne arithmétique des sections efficaces calculées pour trois orientations caractéristiques de la molécule (voir [21] et les références citées dans cette article)

$$\bar{\sigma}_{i \rightarrow f}(\Phi_m, \Theta_m) = \frac{1}{3}(\bar{\sigma}_{i \rightarrow f}(0, 0) + \bar{\sigma}_{i \rightarrow f}(0, \frac{\pi}{2}) + \bar{\sigma}_{i \rightarrow f}(\frac{\pi}{2}, \frac{\pi}{2})). \quad (I.51)$$

Chapitre II

Mise en œuvre

II.1 Structuration du programme

L'étude des processus électroniques engendrés lors d'une collision exige la détermination et l'analyse des sections efficaces caractérisant ces processus. Pour cela, un programme informatique original a été développé dans l'équipe depuis plusieurs années. Initialement mis en œuvre par Jan-Petter Hansen et Alain Dubois en 1990 [25] pour les collisions ion-atome, ce programme a été étendu pour les collisions ion-molécule par Jérémie Caillat [21], puis pour des systèmes à deux électrons actifs dans les travaux de thèse de Nicolas Sisourat [19]. Il a été généralisé récemment pour des systèmes polyélectroniques par Gabriel Labaigt en 2014 [22]. Ce programme qui résout les équations différentielles couplées pour les amplitudes de probabilité (I.47) nécessitent des paramètres d'entrée dont les plus importants sont les paramètres relatifs aux potentiels¹ portés par chacun des partenaires de la collision (cible et projectile), la vitesse du projectile v , les coordonnées du paramètre d'impact (b, φ_b) , et les caractéristiques (ex-

1. Le code est développé pour permettre l'utilisation de potentiel coulombien ou de potentiel modèle, dans l'approximation du cœur gelé dans laquelle on ne considère que les électrons de valence.

posants, moments angulaires) des GTOs. Ces dernières sont utilisées pour construire la base des états asymptotiques adéquats sur laquelle la fonction d'onde électronique est construite pour décrire la dynamique du système. La définition de cet ensemble de GTOs est cruciale pour la partie dynamique des calculs : bien que faiblement demandeuse en temps de calcul, elle nécessite une longue série de tests (vis-à-vis de conditions physiques et techniques, numériques), le choix des GTOs reposant sur trois critères :

- le premier critère concerne les états permettant de décrire la dynamique du système. Couplés pendant la dynamique, ils doivent permettre de faire converger les calculs et décrire correctement (fonction d'onde et énergie) les états asymptotiques des partenaires de la collision, notamment ceux qui correspondent aux processus dominants.
- le deuxième critère concerne les temps de calcul. Pour une précision donnée pour les états importants, le nombre de GTOs doit être gardé raisonnable pour minimiser les temps de calcul et la taille de la mémoire nécessaire.
- finalement, il faut assurer un bon conditionnement des GTOs pour éviter des problèmes numériques et des divergences.

Pour cela, un programme d'optimisation a été développé pour l'obtention d'exposants de GTOs adaptés aux spécificités des systèmes considérés. Par ailleurs, l'évaluation des sections efficaces des différents processus étudiés est effectuée à l'aide d'un programme que j'ai développé et qui lit directement les fichiers de sortie du programme de collision.

II.1.1 Optimisation des GTOs

L'optimisation d'une base d'états nécessite la prise en compte de différents facteurs : la taille de la base, la qualité des états (état fondamental et premiers états excités) et la convergence des sections efficaces. Ces facteurs sont fortement liés au

système de collision étudié et peuvent dépendre de la vitesse de collision et des processus électroniques considérés. Par exemple, une base permettant de faire converger des sections efficaces à vitesses intermédiaires peut être insuffisante pour de plus basses vitesses pour lesquelles les mécanismes des processus sont liés à des effets moléculaires. Nous avons choisi de bâtir des bases adaptées au large domaine de vitesses que nous avons considéré de telle sorte qu'une seule et unique base par atome/ion considéré est utilisée dans les calculs de collision.

Les états des bases utilisées pour décrire la dynamique des différents systèmes de collision sont décrits par des combinaisons linéaires de fonctions gaussiennes ou des produits de ces fonctions (voir Eq. I.37-38), qui présentent l'avantage de pousser les calculs analytiques le plus loin possible et d'écrire les intégrales de recouvrement ou de couplage sous une forme plus compacte (et plus rapide à évaluer) que celle obtenue avec les fonctions de Slater. Les exposants des GTOs sont optimisés dans le but d'obtenir une bonne description des états importants dans la collision, avec un nombre minimum de fonctions de base. De plus, nous avons choisi de bâtir les états mono- et bi-électroniques des partenaires de collision sur un même ensemble de GTOs, en limitant l'optimisation au critère de qualité des états uniquement mono-électroniques. Par exemple pour l'atome d'hélium, les GTOs sont optimisés pour obtenir le plus précisément possible les premiers états de He^+ et les produits de ces mêmes GTOs sont utilisés pour construire les états de He .

L'ensemble des GTOs est préparé à partir d'un programme d'optimisation développé dans l'équipe et qui utilise l'algorithme génétique. Ce dernier est basé sur une méthode d'optimisation multidimensionnelle très efficace, mis au point initialement par John Holland [26]. Elle s'inspire de la théorie de la sélection naturelle² et permet

2. La théorie de la sélection naturelle de Charles Darwin repose sur le fait que, pour une population d'individus donnée, il existe une différence plus au moins importante entre les individus, ce qui permet

de trouver rapidement un ensemble d'exposants de GTOs optimal pour décrire, après diagonalisation, l'état fondamental et les premiers états excités de l'atome/ion considéré. Les exposants sont optimisés de telle sorte que l'écart énergétique entre les états mono-électroniques obtenus par diagonalisation et les états exacts soit minimal. Il est à noter que la diagonalisation permet d'obtenir des pseudo-états (états diagonaux ne correspondant à aucun état vrai du système) qui peuvent être d'énergie négative ou positive. Ils sont aussi appelés absorbeurs de probabilité, en modélisant de façon approchée un ensemble d'états fortement excités ou du continuum. Les états bi-électroniques sont alors obtenus par diagonalisation en utilisant les mêmes GTOS pour permettre de réduire le nombre d'intégrales à évaluer dans la partie dynamique : si les énergies de ces états ne sont pas satisfaisantes par rapport aux données tabulées [27],³ l'obtention d'un nouvel ensemble de GTOs est réalisée à partir des états mono-électroniques.

Nous présentons dans l'annexe A l'ensemble des orbitales gaussiennes utilisées pour décrire l'ensemble des atomes et ions étudiés au cours de la thèse.

II.1.2 Evaluation des intégrales de couplage et de recouvrement

L'évaluation des intégrales de couplage et de recouvrement constitue l'étape la plus lourde et la plus coûteuse en temps CPU⁴ et en occupation de mémoire. Une procédure d'évaluation des intégrales (voir Eqs. I.47 et les suivantes) a été implémentée dans le groupe en cherchant à pousser le plus loin possible le développement analytique pour leur évaluation. Cette procédure a été adoptée par Wang et al. [28] et par Caillat et al. [29] pour évaluer respectivement les intégrales bi- et mono-électroniques bi-

à certains d'entre eux de se reproduire d'avantage que d'autres. Les variations avantageuses sont sélectionnées au cours de l'évolution à condition de les transmettre aux descendants.

3. Dans le cas d'absence de données expérimentales, la qualité des états bi-électroniques doublement excités est évaluée par rapport à la valeur du Viriel, qui doit être égal à l'unité pour des états propres.

4. Le temps CPU est le temps passé par un programme sur le processeur. Ce temps est une constante : il ne dépend pas de la charge de travail de la machine.

centriques et qui a été étendue à l'évaluation des intégrales mono- et bi-électroniques multicentriques par Sisourat et al. [30].

Malgré l'efficacité de cette procédure, la lourdeur des calculs nécessaires nous a motivé à développer une nouvelle technique moins coûteuse en temps de calcul et en mémoire pour évaluer les éléments de matrice de couplage et de recouvrement. Cette nouvelle technique repose sur le fait d'évaluer ces éléments selon des relations de récurrence qui réduisent de manière significative la mémoire nécessaire, en particulier lorsque sont considérées des GTOs de moment angulaire élevé ($\ell > 4$, et des GTOs jusqu'à $\ell = 7$ ont été testées). Nous avons implémenté et utilisé cette stratégie pour un système de collision à un électron actif, $Li^{3+} - H$ [31], et nous l'avons étendue plus récemment pour des systèmes à deux électrons actifs. J'ai participé à l'extension de ce développement, mais je ne l'ai pas présenté dans ma thèse.

II.1.3 Résolution du système d'équations différentielles couplées

La résolution numérique de l'équation de Schrödinger dépendante du temps nécessite l'utilisation de méthodes de propagation temporelles dont un grand nombre peut être trouvée dans la littérature. Le choix des méthodes utilisées dépendent des systèmes ou des processus étudiés (ionisation ou transitions vers états liés) mais aussi de la précision recherchée. Elles consistent à propager temporellement une fonction d'onde initiale pendant un temps suffisamment long, tout en assurant la convergence de la propagation pas après pas pour que son sens physique soit assuré et qu'elle permette d'avoir une vision plus précise de la dynamique électronique.

Dans notre cas, pour résoudre le système d'équations différentielles couplées (I.47) équivalent à l'équation eikonale, une méthode du type prédicteur-correcteur a été utilisée au sein de notre groupe en raison de sa stabilité et de sa grande précision. La propagation de la fonction initiale (état initial du système) exige de restreindre l'espace

de travail temporelle à une zone bien définie T , caractérisée par le pas d'intégration noté Δt et un certain nombre N_g de stops pour atteindre T ; ces deux paramètres dépendent de la vitesse de collision et des interactions qui gouvernent la dynamique des électrons. Leur choix est réalisé afin d'assurer une convergence des résultats obtenus par une méthode numérique d'intégration d'équations différentielles avec ceux obtenus par interpolation (à un ordre donné). Cette procédure permet également de déterminer le pas d'intégration optimal, c'est-à-dire permettant de conserver la précision demandée en minimisant les temps de calcul. Nous avons utilisé une méthode de type prédictor-correcteur mise au point par L.F. Shampine et M.K. Gordon [32], très robuste et qui demeure optimale pour l'obtention de la précision souhaitée et la stabilité de la propagation. En raison de l'utilisation de cette méthode à pas variable, les éléments des matrices de couplage et de recouvrement (Eqs. I.47 et les suivantes) sont évalués sur une grille temporelle fixe et interpolés systématiquement pour les temps nécessaires à la convergence de la stratégie prédictor-correcteur.

Dans la suite, nous allons présenter des résultats dits convergés, c'est-à-dire ayant fait l'objet de tests poussés pour en assurer l'exactitude numérique. En ce qui concerne la convergence vis-à-vis du nombre de GTOs et d'états inclus dans les calculs, des tests ont été également réalisés mais ne peuvent pas être considérés comme absolus, des temps de calcul prohibitifs empêchant une démarche systématique.

II.1.4 Les collisions $A^{q+} - He(1s^2)$ $2 \leq q \leq 10$

II.1.4.1 Introduction

Les systèmes de collision atomiques sont souvent explorés comme bancs d'essai pour l'étude de la dynamique quantique de systèmes à N-corps. Pour des systèmes à deux électrons actifs, les collisions entre une cible d'hélium et des ions totalement

épiluchés représentent des systèmes de collision modèles. En effet, ce sont de vrais systèmes à deux électrons⁵ pour lesquels les processus collisionnels ne peuvent engendrer que des systèmes hydrogénoïdes et héliumoïdes dont les structures électroniques sont exactement (ou très précisément) connus de telle sorte que "seule" la dynamique, notamment des corrélations électroniques, est à sonder. L'étude de ces systèmes est aussi motivée par la simplicité de l'utilisation de l'hélium dans des expériences de collision mais aussi sur la disponibilité de faisceaux d'ions multichargés très variés dans une large gamme d'énergie. Cela a mené à de très nombreux travaux de recherche, à la fois théoriques [8, 34–39] et expérimentaux [40–45].

Au cours de la thèse, nous avons étudié d'une manière systématique les différents processus engendrés lors de la collision entre une cible atomique d'hélium dans son état fondamental et des ions projectiles nus A^{+q} ($q = 2, \dots, 10$) dans la gamme d'énergie 0.25 – 625 keV/u. Notre intérêt s'est porté en particulier sur l'étude des processus de simple et de double capture qui présentent un intérêt pour certains aspects de la technologie des faisceaux d'ions et de la recherche dans le domaine de la fusion thermonucléaire contrôlée. En effet, la capture électronique par des ions multichargés à partir des atomes neutres peut conduire à la population sélective d'états spécifiques [46, 47, 49, 50, 114] dont la spectroscopie peut être utilisée comme diagnostic de plasmas de laboratoire tels que les plasmas tokamak où il y a une injection continue de gaz neutres dans un milieu contenant des impuretés multichargés. Les processus de double capture quant à eux peuvent être considérés comme des processus les plus probables dans la détermination des propriétés de transport d'ions dans les plasmas de fusion thermonucléaire contrôlée à haute température. Comme ces deux processus affectent les domaines de la recherche des plasmas, de la fusion thermonucléaire mais aussi indirectement de détection du rayonnement, il s'avère important de les étudier.

5. Ils ne nécessitent pas l'utilisation d'approximations supplémentaires telles que celle du cœur gelé.

A cet égard, de nombreux efforts expérimentaux et théoriques ont été réalisés : des auteurs ont mesuré les sections efficaces totales de simple et double capture [43, 51–54] tandis que plusieurs travaux théoriques ont été effectués dans ce contexte [8, 55–61]. Ces travaux ont montré que bien que la simple capture domine généralement la collision, la double capture vers des états doublement excités est également importante pour les ions projectiles ayant une charge $q \geq 5$ [62, 63]. A titre d'exemple, les mesures spectroscopiques effectuées par Bordenave-Montesquieu [65–67] ont montré que le processus de double capture conduit à la formation d'états di-excités de l'ion résiduel $A^{+(q-2)}$, ces états se désintégrant essentiellement par auto-ionisation. Ce type de mesures permet d'avoir une information détaillée sur le processus de double capture, notamment sur les sections efficaces résolues en état, pour les états auto-ionisants les plus peuplés.

De façon générale, les niveaux majoritairement peuplés par les deux processus diffèrent d'un système à un autre, selon la charge du projectile. L'optimisation de nos bases d'états a donc été réalisée de telle sorte à reproduire au mieux les niveaux les plus peuplés et individualisée pour chaque ion considéré : pour les systèmes peu chargés ($q = 2, 3$), la simple capture est dominante sur les niveaux les plus bas ($n = 1, 2$) et la double capture favorise le niveau fondamental et les premiers niveaux mono-excités. Par contre, pour les projectiles de charge supérieure, la double capture est dominée par des transitions vers des états auto-ionisants plus ou moins élevés suivant la charge q . Afin de décrire la dynamique des collisions qui nous concernent, nous avons donc développé les états de la cible et du projectile sur des bases de GTOs optimisées selon les différents critères physiques et techniques mentionnés auparavant. Pour tous les systèmes étudiés, les orbitales utilisées sont de type s , p et d mais le nombre de ces GTOs varie d'un projectile à l'autre, le choix du nombre et des exposants de ces orbitales est fait vis-à-vis du peuplement relatif des niveaux, le temps de calcul devant être pris aussi en considération. Une caractéristique commune de tous les systèmes de

collision étudiés est la cible, l'atome d'hélium. Dans ce qui suit, nous présentons la mise en œuvre des GTOs et des états pour cet atome et nous décrivons succinctement les bases pour les ions considérés uniquement quand l'étude des collisions les impliquant sera abordée.

II.1.4.2 Bases des états de He et de He^+

La construction des bases d'états de l'hélium a été réalisée par étapes successives, en comparant les valeurs des énergies obtenues par diagonalisation aux résultats de la littérature, mais aussi en analysant la contribution relative et la convergence des sections efficaces obtenues. L'ensemble \mathcal{G}_1 des GTOs optimisées pour He^+ et He et utilisées pour l'ensemble des systèmes de collision considérés est constitué de 49 fonctions : 10 de symétrie s , 8×3 de symétrie p et 3×5 de symétrie d . Afin d'effectuer une optimisation adéquate et bien décrire les états importants de l'hélium et son ion, nous avons choisi d'optimiser les états ns , np et nd , avec $n \leq 4$ de He^+ : les exposants des GTOs de \mathcal{G}_1 sont donnés dans le Tableau A.1 de l'annexe A. Cette optimisation nous a permis de construire une base \mathcal{B}_1 composée de 49 états de He^+ et de 1225 états de He . De façon générale, notons que cette procédure crée un très grand nombre d'états⁶ dont certains ne sont pas adaptés à nos calculs (voir plus loin) : dans la suite, nous utiliserons un cut-off⁷ pour les éliminer de nos calculs dynamiques. Les énergies des premiers états de ces deux systèmes sont présentées dans le tableau II.1 (voir aussi A.4 de l'annexe A) et sont comparées aux énergies exactes (pour les états mono-électroniques) et aux énergies trouvées dans la littérature (pour les états bi-électroniques) : on observe un très bon accord avec nos résultats et les valeurs répertoriées, avec des différences inférieures à 1 ‰. Pour tester la stabilité de nos calculs et pour l'obtention des sec-

6. En fait, pour un nombre N_g de GTOs, N_g et $N_g(N_g+1)/2$ états mono- et biélectroniques sont créés.

7. Valeur d'énergie maximale au-delà de laquelle les états obtenus par diagonalisation ne sont pas retenus dans la base.

tions efficaces pour le système $He^{2+} - He$, nous avons utilisé un autre ensemble (\mathcal{G}'_1) de GTOs, listées dans le Tableau A.2 : les énergies sont présentées pour comparaison avec \mathcal{G}_1 dans le Tableau II.1.

He^+				He			
état	$E_{\mathcal{B}_1}$	$E_{\mathcal{B}'_1}$	E_{exacte}	état	$E_{\mathcal{B}_1}$	$E_{\mathcal{B}'_1}$	E_{exp}
1s	-1.999458	-1.999476	-2.000000	$1s^2 \ ^1S$	-2.8993	-2.8996	-2.9035
2p	-0.499972	-0.499972	-0.500000	$1s2s \ ^1S$	-2.1452	-2.1452	-2.1459
2s	-0.499894	-0.499824	-0.500000	$1s2p \ ^1P$	-2.1228	-2.1228	-2.1239
3p	-0.222212	-0.222214	-0.222222	$1s3s \ ^1S$	-2.0602	-2.0585	-2.0612
3s	-0.222185	-0.221981	-0.222222	$1s3d \ ^1D$	-2.0540	-2.0540	-2.0556
3d	-0.221096	-0.221091	-0.222222	$1s3p \ ^1P$	-2.0519	-2.0519	-2.0551
4s	-0.124965	-0.124966	-0.125000	$1s4s \ ^1S$	-2.003	-1.922	-2.033

Table II.1 – Bases \mathcal{B}_1 et \mathcal{B}'_1 : énergies (en u.a.) des premiers états de l'ion He^+ et de He obtenus par diagonalisation sur respectivement \mathcal{G}_1 et \mathcal{G}'_1 , comparées aux énergies exactes E_{exacte} pour l'ion He^+ et les valeurs E_{exp} pour He tirées de la référence [27].

Pour tester notre base \mathcal{B}_1 quant (i) à la qualité des énergies des états excités mais aussi (ii) à la convergence des sections efficaces, nous avons considéré une seconde base \mathcal{B}_2 plus large et bâtie à partir d'un ensemble \mathcal{G}_2 de GTOs. Pour les collisions $He^{2+} - He$, la comparaison des calculs réalisés à l'aide de \mathcal{B}_1 et \mathcal{B}_2 nous a permis d'analyser l'influence du nombre d'états, du nombre de GTOs mais aussi des valeurs des exposants de ces dernières sur les valeurs des sections efficaces des processus électroniques les plus probables, et donc d'estimer la convergence de nos calculs, voir la discussion en section suivante.

L'ensemble \mathcal{G}_2 est constitué de 62 GTOs dont 12 de symétrie s , 10×3 de symétrie p , et 4×5 de symétrie d (présentée dans le Tableau A.3). L'optimisation des exposants a été réalisée pour les états $n = 1 - 5$ et $\ell = 0 - 2$ de He^+ et a permis de créer par

diagonalisation des hamiltoniens mono- et bi-électroniques la base \mathcal{B}_2 (composée de 62 états de He^+ et 1953 états de He). Les énergies des premiers états de ces deux systèmes sont présentées dans le tableau II.2 ci-dessous (voir aussi A.4 de l'annexe A). On peut remarquer une extension de la base vers les états plus excités et un accord avec la littérature excellent mais pas significativement supérieur à celui obtenu avec la base \mathcal{B}_1 . Les calculs dynamiques montreront dans la suite de la thèse la convergence des sections efficaces obtenues avec les deux bases.

He^+			He		
état	$E_{\mathcal{B}_2}$	E_{exacte}	état	$E_{\mathcal{B}_2}$	E_{exp}
1s	-1.9995039	-2.0000000	$1s^2 \ ^1S$	-2.8996	-2.9035
2s	-0.4999312	-0.5000000	$1s2s \ ^1S$	-2.1453	-2.1459
2p	-0.4999313	-0.5000000	$1s2p \ ^1P$	-2.1229	-2.1239
3s	-0.2221964	-0.2222222	$1s3s \ ^1S$	-2.0607	-2.0612
3p	-0.2221969	-0.2222222	$1s3d \ ^1D$	-2.0550	-2.0556
3d	-0.2213644	-0.2222222	$1s3p \ ^1P$	-2.0545	-2.0551
4s	-0.1249854	-0.1250000	$1s4s \ ^1S$	-2.033	-2.033
4p	-0.1249906	-0.1250000	$1s4p \ ^1P$	-2.030483	-2.031101
4d	-0.1242546	-0.1250000	$1s4d \ ^1D$	-2.027584	-2.031261
5s	-0.0799907	-0.0800000			
5p	-0.0799947	-0.0800000			
5d	-0.0793636	-0.0800000			

Table II.2 – Base \mathcal{B}_2 : énergies en u.a. des premiers états de l'ion He^+ et de He obtenus par diagonalisation sur \mathcal{G}_2 , comparées aux énergies exactes E_{exacte} pour l'ion He^+ et les valeurs E_{exp} pour He tirées de la référence [27].

La diagonalisation des hamiltoniens mono- et bi-électronique génère un grand nombre d'états dont certains, notamment ceux d'énergie élevée, ne représentent pas des états physiques des structures étudiés : ces pseudo-états sont caractérisés par un Viriel⁸ éloigné de l'unité. Les pseudo-états d'énergie supérieure au premier seuil d'ionisation peuvent représenter de manière très approximative les états du continuum, bien qu'ils ne sont pas délocalisés et ressemblent à des états liés. Ils sont caractérisés par un paramètre du Viriel différent de l'unité car ils sont états propres de He exprimé dans une "base" finie; ils ont été inclus dans nos calculs tant que leurs énergies se situaient sous la valeur du cut-off choisi. Par contre, mélangés à ces pseudo-états, la diagonalisation fait apparaître des états dont le Viriel est très proche de l'unité : ce sont des états auto-ionisants qui peuvent contribuer à l'excitation ou à la capture suivant les conditions expérimentales, ou alors à l'ionisation si leur détection ne peut être faite avant leur décroissance. Ils ont été identifiés par la valeur du Viriel que notre programme détermine et jouent un rôle important dans la suite de la thèse, notamment pour les ions ($Z \geq 3$) considérés. Nous présentons dans le tableau II.3 les états autoionisants de He obtenus par diagonalisation de l'hamiltonien bi-électronique sur le produits de GTOs des deux ensembles \mathcal{G}_1 et \mathcal{G}_2 . Notons que les états auto-ionisants sont difficiles à identifier et doivent l'être par la comparaison de leurs énergies avec les valeurs expérimentales ou par la valeur du Viriel (voir le Tableau A.4 de l'annexe A), lorsque des données expérimentales ne sont pas disponibles.

8. Pour les systèmes coulombiens, le théorème du Viriel conduit à la relation $2 \langle \Phi | \hat{T} | \Phi \rangle = - \langle \Phi | \hat{V} | \Phi \rangle$, avec Φ fonction propre du système. Pour caractériser les états $\tilde{\Phi}$ obtenus par diagonalisation de l'hamiltonien de la cible (ou du projectile), nous définissons le Viriel comme $V_T = -\frac{1}{2} \frac{\langle \tilde{\Phi} | \hat{V} | \tilde{\Phi} \rangle}{\langle \tilde{\Phi} | \hat{T} | \tilde{\Phi} \rangle}$ de telle sorte que $V_T \rightarrow 1$ pour des états $\tilde{\Phi}$ proches des fonctions propres du système, les autres étant considérés comme des pseudo-états.

<i>He</i>				
états	$E_{\mathcal{B}_1}$	$E_{\mathcal{B}_2}$	E_{exp}	$E_{Lindroth}$
$2s^2 \ ^1S$	-0.7765	-0.7729	-0.7779	-0.7764
$2p^2 \ ^1D$	-0.6996	-0.6997	-0.7019	-0.6742
$2s2p \ ^1P$	-0.6915	-0.6929	-0.6931	-0.6591
$2p^2 \ ^1S$	-0.6185	-0.6186	-0.5899	-0.5994

Table II.3 – Bases \mathcal{B}_1 et \mathcal{B}_2 : énergies (en u.a.) des premiers états doublement excités de l'atome d'hélium obtenus par diagonalisation de l'hamiltonien bi-électronique sur le produit des GTOs des bases \mathcal{G}_1 et \mathcal{G}_2 respectivement. Les énergies sont comparées aux données expérimentales [27] et obtenues par E. Lindroth [33].

Chapitre III

Collisions $A^{q+} - He(1s^2)$

III.1 Introduction

Les collisions des ions nus A^{q+} ($2 \leq q \leq 10$) avec l'atome cible d'hélium ont reçu un intérêt considérable depuis plusieurs décennies, non seulement au niveau fondamental en physique des collisions atomiques, mais aussi dans les domaines d'application aussi divers que la fusion thermonucléaire contrôlée, le développement des dispositifs laser dans le domaine du rayonnement X et l'astrophysique, pour lesquels les propriétés collisionnelles des ions hautement chargés jouent un rôle important. En effet, les expériences et les modélisations de collisions atomiques impliquant ces ions permettent de mieux appréhender l'étude des interactions d'impuretés ionisées avec les parois des machines de fusion par confinement magnétique ou avec les constituants mineurs des vents solaires, mais aussi des interactions des plasmas à haute température avec des gaz froids [68]. Conjointement avec les avancées remarquables qui ont été accomplies dans ces domaines depuis des décennies, plusieurs groupes expérimentaux [41, 46, 52] ont entrepris d'étudier systématiquement les collisions de projectiles nus avec des atomes d'hélium. La plupart des données disponibles (en particulier dans le cas des projectiles

hautement chargés) concernent la région des hautes énergies en raison des difficultés liées à l'obtention de faisceaux d'ions de faibles énergies [40, 44, 69]. Par ailleurs, d'importants efforts théoriques ont été consacrés à l'étude de ces systèmes de collision dont la structure est bien plus compliquée que celle des systèmes à trois corps impliquant un unique électron, et dont la dynamique dépend de la gamme d'énergie d'impact considérée et nécessite donc des traitements théoriques appropriés à ces conditions [70–72]. Dans le domaine complexe des énergies intermédiaires, le formalisme non perturbatif ("Close Coupling") se révèle incontournable et fiable de telle sorte que, dès les années soixante, il a été l'objet de développements et d'améliorations continus et a été largement utilisé pour étudier les processus électroniques ayant lieu au cours de collision atomique et moléculaire. Dans ce cadre, Pilskog et al. [30, 73] ont étudié les processus de simple et de double capture au cours de collisions d'ions A^{q+} ayant des charges modérées ($q = 2, 3, 5$) avec la molécule de dihydrogène H_2 . En analysant les sections efficaces de double capture vers des états auto-ionisants, il a été constaté que les valeurs de ces sections efficaces augmentent de manière considérable du projectile He^{2+} à Li^{3+} alors que les collisions impliquant le projectile B^{5+} donnent des sections efficaces très similaires au cas intermédiaire. A l'issue de cette étude et en adoptant la même approche théorique, notre objectif a été de traiter systématiquement les collisions entre des ions nus avec l'atome d'hélium, dans une très large gamme d'énergie (0.25 – 625 keV/u), le second objectif était d'extraire un comportement général reliant les sections efficaces, les processus électroniques les plus probables, la charge du projectile et la gamme de vitesses considérées. Notre choix pour la cible d'hélium a été motivé par le traitement plus simple - et donc beaucoup plus rapide pour les calculs numériques - de cibles atomiques, comparées aux cibles moléculaires. Cette "très relative" simplicité permettait également de pouvoir utiliser des bases plus grandes, pour la convergence des résultats, dans une gamme d'énergie plus large (trois ordres de grandeurs en énergies).

Dans la suite de cette section, une première partie concerne une présentation de la convergence et des tests que nous avons réalisés : nous nous sommes limités au cas des collisions $He^{2+} - He$ mais la même procédure a été utilisée pour l'ensemble des systèmes étudiés. Une seconde partie traite de façon générale et comparative l'ensemble des systèmes, dont deux seront étudiés plus spécifiquement dans la prochaine section.

III.2 Etude de la convergence

Pour étudier les processus électroniques ayant lieu au cours de collisions d'ions nus A^{q+} avec l'atome d'hélium, nous avons eu à calculer les sections efficaces qui leurs correspondent. Ces grandeurs permettent d'avoir pour ces processus des informations quantitatives, susceptibles d'être utilisées dans d'autres champs de recherche ; elles doivent donc être convergées ou tout au moins avoir fait l'objet d'un contrôle sérieux de convergence. Réaliser ces tests de convergence est donc une tâche primordiale, mais aussi longue et complexe. Les premiers tests ont été effectués pour le système de collision $He^{2+} - He$ qui a été le premier - le plus simple - système de collision que nous avons étudié. Pour cela, nous avons considéré deux bases de fonctions gaussiennes, différentes en nombre de fonctions utilisées mais aussi en exposants de ces fonctions. Leurs caractéristiques sont décrites dans le chapitre précédent et dans l'annexe A. Pour les résultats précédents ci-dessous, nous avons utilisé pour les deux partenaires de la collision :

- la (petite) base \mathcal{B}_1 (issues de l'ensemble de GTOs \mathcal{G}_1). Les calculs dynamiques ont été réalisés avec un cut-off de -0.2 u.a. et ont donc sur une base globale comportant au total 1201 états, dont 246 états¹ de He (cible et projectile) et

1. Pour des raisons techniques, nous avons légèrement asymétrisé les bases entre cible et projectile pour permettre l'identification des processus de capture vers des états excités et de transfert-excitation.

709 états bi-centriques He^+He^+ .

- la (grande) base \mathcal{B}_2 (issues de l'ensemble de GTOs \mathcal{G}_2). Nous avons utilisé un cut-off de -0.26 u.a., pour une base globale de 1522 états, dont 291 états de He (cible et projectile) et 940 états bi-centriques He^+He^+ .

Les sections efficaces obtenues en utilisant ces deux bases, sont présentées ci-dessous, dans le tableau III.1, pour cinq vitesses typiques. Nous y reportons les sections efficaces totales² pour six types des processus qui sont l'excitation (Ex), la simple capture (SC), He^+ étant dans son état fondamental, le transfert-excitation (TE), la double capture vers des états liés (DC), la double capture vers des états auto-ionisants (ADC) et l'ionisation (IO). La comparaison des sections efficaces des processus électroniques obtenues pour les deux bases à des vitesses données montre des caractéristiques générales, quasis-indépendantes de la vitesse d'impact. Les deux bases donnent pour les processus dominants des sections efficaces proches ($< 5 - 10\%$) : par exemple DC à basse vitesse, SC, TE et DC à $\nu = 1$ u.a. ou Ex, SC et IO à $\nu = 2$ u.a. Pour les voies de réactions moins probables, les différences peuvent être plus grandes, jusqu'à 50%). Par ailleurs, notre approche, ainsi que la base utilisée, étant peu adaptée pour la description de l'ionisation, les résultats pour ce processus sont peu convergés et devraient être contrôlés plus avant. Néanmoins, pour les processus de simple et double capture qui nous concerne, les résultats obtenus avec la petite base \mathcal{B}_1 paraissent suffisamment fiables pour que cette base soit utilisée systématiquement, notamment aussi car elle permet des temps de calcul raisonnables des sections efficaces, par rapport à la base étendue.

Par ailleurs, nous avons aussi testé la sensibilité³ des résultats aux valeurs des exposants des GTOs. Nous avons donc fait des calculs avec des bases similaires en taille

2. Ces sections efficaces sont donc la somme des sections efficaces de tous les états correspondants au type de processus considéré.

3. Certains ensemble de GTOs mal conditionnées peuvent faire apparaître des problèmes numériques (précision), voire des divergences.

mais dont les GTOs sont différentes (bases \mathcal{B}_1 et \mathcal{B}'_1 en l'occurrence). Ces comparaisons ne sont pas présentées dans la thèse car les deux séries de résultats étaient extrêmement peu différents ($< 1 \%$).

		Sections efficaces des processus électroniques (10^{-16} cm^2)					
ν (u.a.)	Base	Ex	SC	TE	DC	ADC	IO
0.1	\mathcal{B}_1	$4.77 \cdot 10^{-2}$	$2.44 \cdot 10^{-1}$	$2.47 \cdot 10^{-1}$	$3.10 \cdot 10^0$	$1.18 \cdot 10^{-4}$	$1.18 \cdot 10^{-1}$
	\mathcal{B}_2	$3.65 \cdot 10^{-2}$	$2.29 \cdot 10^{-1}$	$2.46 \cdot 10^{-1}$	$3.05 \cdot 10^0$	$1.52 \cdot 10^{-4}$	$1.50 \cdot 10^{-1}$
0.5	\mathcal{B}_1	$7.66 \cdot 10^{-2}$	$4.32 \cdot 10^{-1}$	$2.49 \cdot 10^{-1}$	$1.58 \cdot 10^0$	$3.92 \cdot 10^{-3}$	$1.04 \cdot 10^{-1}$
	\mathcal{B}_2	$5.80 \cdot 10^{-2}$	$3.76 \cdot 10^{-1}$	$2.75 \cdot 10^{-1}$	$1.71 \cdot 10^0$	$3.61 \cdot 10^{-3}$	$9.88 \cdot 10^{-2}$
1.0	\mathcal{B}_1	$6.99 \cdot 10^{-2}$	$2.27 \cdot 10^0$	$2.82 \cdot 10^{-1}$	$9.97 \cdot 10^{-1}$	$1.25 \cdot 10^{-2}$	$3.03 \cdot 10^{-1}$
	\mathcal{B}_2	$6.06 \cdot 10^{-2}$	$2.26 \cdot 10^0$	$2.83 \cdot 10^{-1}$	$9.98 \cdot 10^{-1}$	$1.60 \cdot 10^{-2}$	$3.58 \cdot 10^{-1}$
1.5	\mathcal{B}_1	$2.63 \cdot 10^{-1}$	$2.33 \cdot 10^0$	$1.14 \cdot 10^{-1}$	$5.20 \cdot 10^{-1}$	$1.05 \cdot 10^{-2}$	$1.05 \cdot 10^0$
	\mathcal{B}_2	$2.03 \cdot 10^{-1}$	$2.24 \cdot 10^0$	$1.24 \cdot 10^{-1}$	$4.94 \cdot 10^{-1}$	$9.81 \cdot 10^{-3}$	$1.14 \cdot 10^0$
2.0	\mathcal{B}_1	$3.90 \cdot 10^{-1}$	$1.19 \cdot 10^0$	$1.38 \cdot 10^{-1}$	$1.01 \cdot 10^{-1}$	$2.21 \cdot 10^{-3}$	$1.63 \cdot 10^0$
	\mathcal{B}_2	$3.87 \cdot 10^{-1}$	$1.12 \cdot 10^0$	$1.29 \cdot 10^{-1}$	$1.26 \cdot 10^{-1}$	$3.25 \cdot 10^{-3}$	$1.82 \cdot 10^0$

Table III.1 – Sections efficaces (10^{-16} cm^2) de processus électroniques induits au cours de collisions $He^{2+} - He(1s^2)$, pour cinq vitesses d'impact. Ex \equiv excitation; SC \equiv la simple capture, He^+ étant dans son état fondamental; TE \equiv transfert-excitation; DC \equiv double capture vers des états liés; ADC \equiv double capture vers des états auto-ionisants; IO \equiv ionisation.

III.3 Processus électroniques

Lorsqu'un ion nu A^{q+} entre en collision avec un atome d'hélium, de nombreuses voies de réaction sont ouvertes, dans une large gamme de probabilités qui varient avec l'énergie d'impact. Outre les processus élastiques, les collisions $A^{q+} - He(1s^2)$ peuvent

induire les trois processus électroniques fondamentaux que sont l'excitation, la capture et l'ionisation auxquels s'ajoutent, en raison de la présence d'un second électron, les processus doubles tels que le transfert-excitation, le transfert-ionisation ou la double capture. De très nombreuses études expérimentales ont été réalisées pour la mesure des sections efficaces des processus électroniques lors de ce type de collisions. Notons par exemple les études réalisées par spectroscopie de gain d'énergie [74–78], en coïncidence [79] ou par détection des distributions en charge du faisceau diffusé [41]. Plus récemment, des techniques élaborées telles que la spectroscopie de moment de l'ion de recul [80,81] or la spectroscopie d'électrons (Auger) [82] ont permis de déterminer avec précision l'état électronique final des ions projectiles après le transfert ou l'ionisation. Ces expériences sont donc des outils très puissants pour l'étude de ce type de collisions et ont motivé des travaux et développements théoriques pour leur interprétation.

Au cours de notre travail de recherche, nous avons étudié de façon générale l'ensemble des processus électroniques les plus probables ayant lieu au cours de collisions $A^{q+} - He$ (avec $2 \leq q \leq 10$). Un intérêt particulier a été porté sur l'étude des processus de simple et de double capture du fait de leur importance dans la gamme des vitesses considérées. Nous présentons dans les deux tableaux suivants III.2 et III.3, les sections efficaces des différents processus étudiés pour deux vitesses typiques, $v = 0.1 \text{ u.a.}$ et $v = 1 \text{ u.a.}$, et pour les huit systèmes de collision que nous avons traité.

$v = 0.1 \text{ u.a.}$	Sections efficaces des processus électroniques (10^{-16} cm^2)						
$P_{\text{projectile}}$	Ex	SC	TE	TI	DC	ADC	IO
He^{2+}	$3.65 \cdot 10^{-2}$	$0.23 \cdot 10^0$	$0.25 \cdot 10^0$	-	$3.05 \cdot 10^0$	$1.53 \cdot 10^{-4}$	$0.32 \cdot 10^0$
Li^{3+}	$1.15 \cdot 10^{-3}$	$1.82 \cdot 10^0$	$0.48 \cdot 10^0$	$0.11 \cdot 10^0$	$0.54 \cdot 10^0$	$3.45 \cdot 10^{-3}$	$0.21 \cdot 10^0$
B^{5+}	$2.04 \cdot 10^{-2}$	$12.2 \cdot 10^0$	$0.36 \cdot 10^0$	$0.19 \cdot 10^0$	$1.42 \cdot 10^{-3}$	$3.00 \cdot 10^0$	$3.50 \cdot 10^0$
C^{6+}	$3.18 \cdot 10^{-2}$	$3.147 \cdot 10^0$	$1.22 \cdot 10^0$	$0.29 \cdot 10^0$	$1.46 \cdot 10^{-5}$	$1.08 \cdot 10^0$	$1.74 \cdot 10^0$
N^{7+}	$3.78 \cdot 10^{-2}$	$5.04 \cdot 10^0$	$0.86 \cdot 10^0$	$1.07 \cdot 10^0$	$9.03 \cdot 10^{-6}$	$2.51 \cdot 10^0$	$4.12 \cdot 10^0$
O^{8+}	$7.88 \cdot 10^{-2}$	$17.2 \cdot 10^0$	$1.42 \cdot 10^0$	$0.21 \cdot 10^0$	$1.28 \cdot 10^{-7}$	$5.64 \cdot 10^0$	$8.78 \cdot 10^0$
F^{9+}	$6.03 \cdot 10^{-2}$	$4.56 \cdot 10^0$	$2.95 \cdot 10^0$	$0.27 \cdot 10^0$	$1.06 \cdot 10^{-7}$	$0.50 \cdot 10^0$	$5.67 \cdot 10^0$
Ne^{10+}	$3.22 \cdot 10^{-1}$	$26.00 \cdot 10^0$	$3.11 \cdot 10^0$	$0.95 \cdot 10^0$	$1.35 \cdot 10^{-5}$	$0.37 \cdot 10^0$	$3.57 \cdot 10^0$

Table III.2 – Sections efficaces (10^{-16} cm^2) des processus électroniques les plus probables pour les collisions $A^{q+} - He$ à la vitesse $v = 0.1 \text{ u.a.}$ Ex \equiv excitation ; SC \equiv la simple capture, He^+ étant dans son état fondamental ; TE \equiv transfert-excitation ; TI \equiv transfert-ionisation ; DC \equiv double capture vers des états liés ; ADC \equiv double capture vers des états auto-ionisants ; IO \equiv ionisation.

$v = 1 \text{ u.a.}$	Sections efficaces des processus électroniques (10^{-16} cm^2)						
$P_{\text{projectile}}$	Ex	SC	TE	TI	DC	ADC	IO
He^{2+}	$6.06 \cdot 10^{-2}$	$2.26 \cdot 10^0$	$0.28 \cdot 10^0$	-	$9.98 \cdot 10^{-1}$	$1.52 \cdot 10^{-4}$	$0.15 \cdot 10^0$
Li^{3+}	$7.87 \cdot 10^{-2}$	$7.39 \cdot 10^0$	$0.22 \cdot 10^0$	$4.00 \cdot 10^{-2}$	$1.16 \cdot 10^{-1}$	$1.39 \cdot 10^{-1}$	$0.36 \cdot 10^0$
B^{5+}	$1.50 \cdot 10^{-1}$	$8.86 \cdot 10^0$	$0.58 \cdot 10^0$	$4.72 \cdot 10^{-2}$	$2.082 \cdot 10^{-4}$	$2.95 \cdot 10^0$	$3.25 \cdot 10^0$
C^{6+}	$7.35 \cdot 10^{-1}$	$10.93 \cdot 10^0$	$0.82 \cdot 10^0$	$4.23 \cdot 10^{-2}$	$8.53 \cdot 10^{-5}$	$2.09 \cdot 10^0$	$2.45 \cdot 10^0$
N^{7+}	$5.29 \cdot 10^{-1}$	$10.81 \cdot 10^0$	$0.88 \cdot 10^0$	$6.25 \cdot 10^{-2}$	$3.27 \cdot 10^{-6}$	$2.38 \cdot 10^0$	$4.12 \cdot 10^0$
O^{8+}	$1.46 \cdot 10^0$	$10.37 \cdot 10^0$	$1.03 \cdot 10^0$	$6.37 \cdot 10^{-2}$	$1.2 \cdot 10^{-6}$	$3.53 \cdot 10^0$	$4.69 \cdot 10^0$
F^{9+}	$3.62 \cdot 10^0$	$12.44 \cdot 10^0$	$1.29 \cdot 10^0$	$7.50 \cdot 10^{-2}$	$3.99 \cdot 10^{-7}$	$2.40 \cdot 10^0$	$4.93 \cdot 10^0$
Ne^{10+}	$6.87 \cdot 10^0$	$11.56 \cdot 10^0$	$1.24 \cdot 10^0$	$1.16 \cdot 10^{-1}$	$7.52 \cdot 10^{-7}$	$2.01 \cdot 10^0$	$4.88 \cdot 10^0$

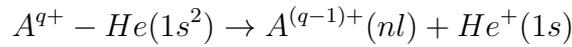
Table III.3 – Comme Tableau III.2 pour $v = 1 \text{ u.a.}$

Au cours de son interaction avec l'atome cible d'hélium, l'ion projectile nu A^{q+} est susceptible de capturer l'un des deux électrons, ce qui donne naissance à l'ion hydrogénoïde $A^{(q-1)+}(nl)$, tandis que le second électron reste localisé autour de la cible He^+ ; cette dernière peut être laissée excitée, c'est le processus de transfert-excitation (TE), ou ionisée, ce qui donne lieu au processus de transfert-ionisation (TI) qui ne peut être discerné des autres processus par la simple détermination de la charge du projectile après collision. Le processus de simple capture (SC) pure, quant à lui, correspond au cas où l'ion résiduel He^+ se retrouve dans son état fondamental. Ce dernier processus est mono-électronique contrairement aux précédents mais le mécanisme lui donnant naissance peut faire intervenir une corrélation entre les deux électrons, notamment lorsqu'il est en compétition avec d'autres processus, tels que le transfert-excitation et la double capture. Dans les deux tableaux III.2, III.3, on peut observer que la simple capture domine de façon générale les autres processus, pour les deux vitesses typiques considérées, et pour tous les projectiles étudiés, à l'exception de He^{2+} pour lequel la double capture (DC) domine. Dans ce contexte, remarquons que nous avons choisi de différencier la double capture vers des états liés (le fondamental ou des états mono-excités) et la double capture vers des états auto-ionisants (ADC), ce dernier processus dominant la DC pour $q > 3$. Finalement on peut remarquer dans les deux tableaux l'importance du processus d'ionisation pour les fortes charges du projectile. Bien que présentées, pour information, dans ce manuscrit, ces sections efficaces doivent être considérées avec précaution, en raison (i) des bases utilisées dans nos calculs qui sont optimisées pour décrire au mieux les états liés et auto-ionisants et (ii) des valeurs de cut-off choisies pour réduire notablement les temps de calcul. Nous ne nous discuterons plus de ce processus dans la suite.

Dans les deux prochaines sections, nous traiterons donc de façon successive le cas de la simple capture et de la double capture, DC et ADC.

III.3.1 Simple capture

Comme précédemment indiqué, la simple capture au sens le plus large correspond au transfert net d'un électron de la cible au projectile : le second électron peut être alors excité (TE), ionisé (TI) ou se relaxer vers l'état fondamental de He^+ (SC) :



C'est ce dernier processus qui nous a intéressé pendant la thèse car les valeurs des sections efficaces qui lui correspondent sont largement supérieures à celles des deux autres processus (TE et TI, voir les tableaux ci-dessus). Ces différents processus ont été étudiés récemment pour les collisions $F^{9+} - He$ par Ünal et al. [83] qui ont déterminé les rapports de sections efficaces du transfert-ionisation et de la simple capture. Ceux-ci ont été trouvés décroissants en fonction de l'énergie, conclusion corroborée par nos résultats.

Dans le but d'extraire un comportement général (loi d'échelle) reliant les sections efficaces totales de simple capture à la charge du projectile et à l'énergie de collision, nous présentons sur la figure (III.1) ces grandeurs en fonction de la vitesse d'impact, pour les huit systèmes de collision que nous avons traité au cours de la thèse, Nous pouvons observer de fortes différences dans l'évolution des sections efficaces en fonction de la vitesse pour les différents projectiles considérés. Si une augmentation des valeurs de sections efficaces est observée généralement pour des charges du projectile croissantes, ce comportement n'est pas systématique, notamment pour N^{7+} et F^{9+} . La plupart des systèmes présentent une augmentation avec la vitesse, jusqu'à $\nu \approx 1$ u.a. ($E \approx 25$ keV/u) au delà de laquelle les sections efficaces décroissent rapidement, vers leur comportement asymptotique. Trois systèmes (Ne^{10+} , O^{8+} et B^{5+}) présentent un plateau dans le domaine de vitesse $0.1 - 1.0$ u.a., voire une croissance vers les basses

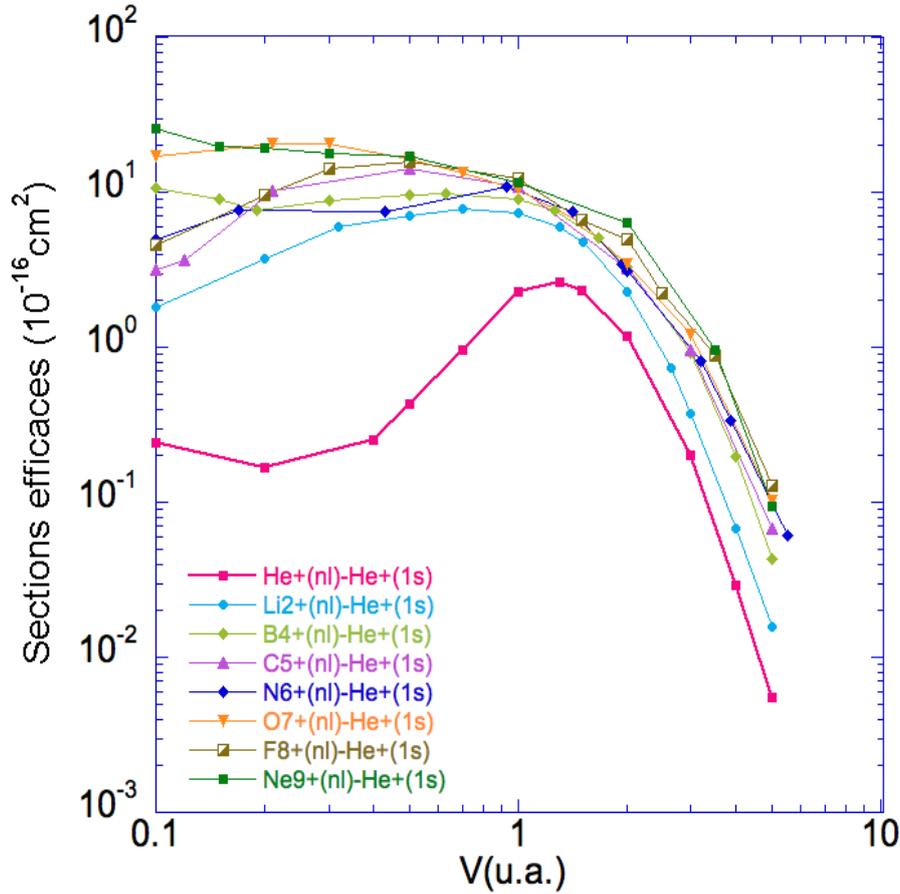


Figure III.1 – Sections efficaces totales (10^{-16} cm^2) de simple capture pour les systèmes de collision $A^{q+} - He(1s^2)$ en fonction de la vitesse d'impact (u.a.).

vitesses. Le système le moins chargé, $He^{2+} - He$ est, quant à lui, très spécifique : à basse énergie, la simple capture est peu probable de près d'un ordre de grandeur par rapport aux autres systèmes, alors que les sections efficaces de ces derniers sont voisines, dans un intervalle de l'ordre de 2 à 10 lorsque la vitesse passe de 0.5 à 0.1 u.a. Ce comportement très différent est lié à la symétrie du système qui empêche une (quasi) résonance entre l'état fondamental de He (état initial) et un niveau de He^+ alors que ceci est possible dans le cas des projectiles chargés, en raison de la structure électronique des systèmes hydrogénoïdes, donnée par la formule $E_n = -Z^2/2n^2$ (en u.a.).

De plus, pour ce système homonucléaire, la simple capture est en compétition avec le processus résonant qui est la double capture vers l'état fondamental du projectile, voir prochaine section.

Par ailleurs, les sections efficaces totales de simple capture, pour chaque système de collision que nous avons traité, sont obtenues par la sommation de toutes les sections efficaces partielles qui correspondent aux différents niveaux disponibles dans les bases bâties pour ces systèmes. Nous allons analyser dans les deux prochains chapitres les sections efficaces partielles de simple capture pour deux systèmes de collision. En particulier, nous allons étudier l'influence de l'énergie et de la charge du projectile sur la population relative d'un niveau ou d'un état donné, ce qui permettra une meilleure compréhension des caractéristiques principales du mécanisme de simple capture. Cette analyse a été faite en nous appuyant sur les différents travaux expérimentaux et théoriques reportés dans la littérature. En effet, les études effectuées par plusieurs équipes expérimentales ont montré que le processus de simple capture est caractérisé par la population sélective de quelques états finaux du projectile. A titre d'exemple, Bliman et al. [84] ont montré que la simple capture à partir de gaz rares se déroule d'une manière très sélective, l'électron capturé peuplant majoritairement un ou deux niveaux : pour le système de collision $C^{6+} - He$ le niveau majoritairement peuplé correspond à $n = 3$ [75]. En ce qui concerne le système de collision $O^{8+} - He$, la simple capture est dominante sur le niveau $n = 4$ [75, 79]. Pour le système plus chargé $Ne^{10+} - He$, Mann et al. [74] ont montré dans leur travail basé sur la spectroscopie en gain d'énergie, qu'un seul nombre quantique est principalement peuplé pour la simple capture, la couche majoritairement peuplée étant la couche O ($n = 5$). Du côté théorique, Harel et al. [85–87] ont étudié aussi ce caractère sélectif du processus, qui implique donc de façon déterminante la structure électronique du projectile, vis-à-vis de celle de la cible. C'est cette propriété qui explique en partie les différences spécifiques observées dans la figure III.1 et l'impossibilité de valider un comportement similaire aux huit projectiles

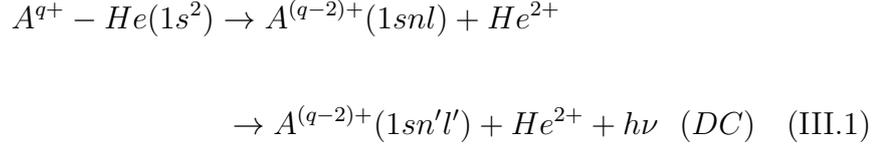
considérés.

III.3.2 Double capture

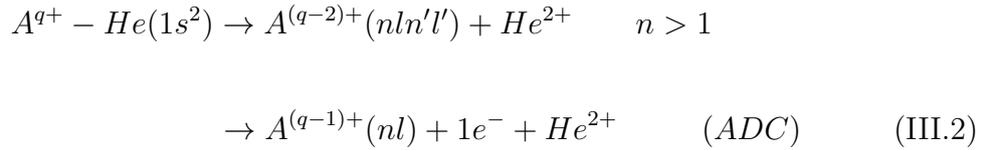
La double capture électronique est un processus d'une importance fondamentale dans la physique des collisions atomiques. Ce processus constitue une sorte de laboratoire à l'échelle atomique dans lequel les corrélations électroniques peuvent être sondées de façon dynamique, au cours de la collision, et statique, dans l'analyse des états, possiblement simplement ou doublement excités, après la collision. En parallèle de ces études à caractère fondamental, la connaissance des sections efficaces de double (et de simple) capture déterminées expérimentalement ou théoriquement est essentielle pour la modélisation et la compréhension du transport d'énergie et des distributions de charge dans des systèmes complexes tels que les plasmas hors d'équilibre à haute température. Les premières mesures des sections efficaces de double capture datent des années 1970, voir par exemple les travaux de Bayfield and Khayrallah [90] ou de Crandall et al. [89] qui ont été les premiers auteurs à montrer l'importance de ce processus à basse énergie. D'un point de vue théorique, et en raison de l'importance des effets de la répulsion électron-électron sur le processus, de nombreux travaux ont été menés pour l'étude de la double capture et la compréhension des mécanismes qui l'induisent [67, 76, 91–93].

Dans le cadre de notre étude et en raison de notre approche qui prend en compte toutes les interactions et couplages, la double capture que nous avons considérée prend en compte, sans distinction, la double capture appelée corrélée qui se fait en une seule étape, avec le transfert simultané des deux électrons, et la double capture non corrélée, en deux étapes avec deux transferts successifs d'un seul électron via une interaction noyau-électron, voir par exemple les travaux de Stolterfoht et al [94] et de

Chesnel et al [82]. Après la collision, les deux électrons sur le projectile $A^{(q-2)+}$ peuvent occuper des états liés correspondant à des configurations mono-excités ($1s^1nl^1$) qui se désexcitent par émission radiative



mais aussi des niveaux doublement excités ($nl^1n'l^1$) ($n > 1$) qui se désexcitent généralement par auto-ionisation avec l'émission d'un électron Auger



Ces états doublement excités peuvent avoir une contribution importante à la production des ions hydrogénoïdes $A^{(q-1)+}$ voir par exemple [76, 79, 91]. Ceci affecte les états dont le peuplement est aussi fourni par le processus de simple capture. A titre d'exemple, Nikulin et al. [70] ont montré que, pour les collisions $N^{7+} - He$, l'ion N^{6+} est observé principalement dans les états $n = 4$, peuplés par l'intermédiaire de la double capture.

Nous présentons sur la figure (III.2) les sections efficaces de double capture vers les états liés (DC) pour les collisions entre des projectiles A^{q+} ($2 \leq q \leq 10$) et l'atome d'hélium. A la vue de cette figure, de la grandeur relative des différentes sections efficaces et de leur évolution en fonction de la vitesse, il est possible de diviser les huit systèmes considérés en trois groupes. Les sections efficaces de double capture pour les deux systèmes de plus faibles charges, i.e. $He^{2+} - He$ et $Li^{3+} - He$, présentent un plateau pour des vitesses allant de 0.1 à 1.0 u.a. De plus, elles sont entre un à

deux ordres de grandeur supérieures aux sections efficaces pour les autres systèmes. Pour le système $He^{2+} - He$, elles présentent de façon évidente le comportement d'un système résonnant : le transfert des deux électrons vers l'état fondamental du projectile, $He(1s^2)$ est la voie de réaction totalement dominante. Ce n'est pas le cas pour le système $Li^{3+} - He$ malgré le comportement similaire des sections efficaces à basse vitesse qui est gouverné, dans ce cas, par un mécanisme moléculaire (voir prochain chapitre). Trois autres systèmes ($Z = 5 - 7$) ont des valeurs de sections efficaces intermédiaires présentant un maximum dans l'intervalle considéré juste au dessus. Finalement, pour $Z > 7$, les sections décroissent avec les vitesses dès $\nu = 3$ u.a. ($E = 75$ keV/u). Remarquons que pour les six systèmes les plus chargés, les sections efficaces sont très faibles ($10^{-19} - 10^{-23}$ cm⁻²) de telle sorte que nos résultats puissent être entachés d'erreurs numériques habituelles aux méthodes de *close-coupling* pour les voies de réactions très peu probables.

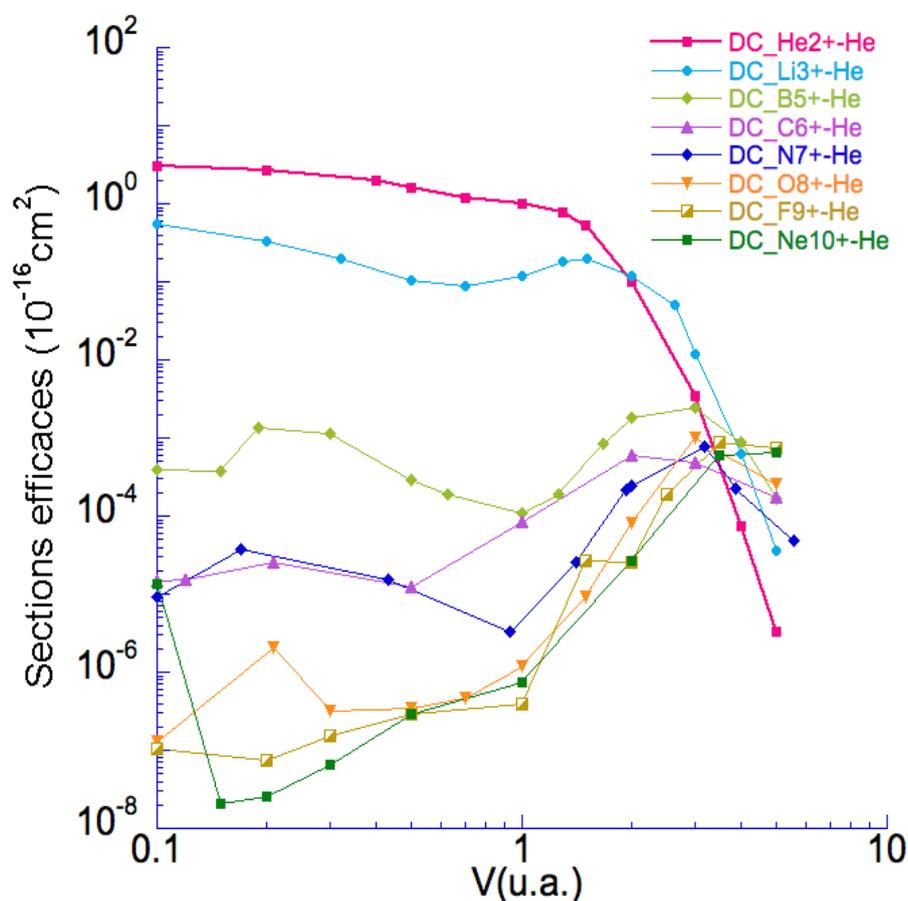


Figure III.2 – Sections efficaces (10^{-16} cm^2) de double capture vers les états liés ($1snl$) pour les systèmes de collision $A^{q+} - He(1s^2)$ en fonction de la vitesse d'impact ν ($u.a.$).

La figure (III.3) présente les sections efficaces de double capture vers des états auto-ionisants (ADC) en fonction de la vitesse d'impact. Pour ce processus, la situation est inversée avec deux systèmes se comportant de façon similaire, avec de faibles sections efficaces et un maximum pour environ $\nu = 1.5 \text{ u.a.}$ et des décroissances monotones de part et d'autre. Les six autres systèmes se comportent aussi de façon analogue, avec des sections efficaces significatives ($> 10^{-17} \text{ cm}^2$) et un (quasi) plateau dans le domaine des basses vitesses. En effet, le spectre des états auto-ionisants est extrêmement riche et dense pour ces systèmes chargés et il existe systématiquement quelques états auto-

ionisants permettant la double capture, par un croisement évité avec l'état initial, voir par exemple les courbes d'énergie moléculaire schématique présentées en [62] pour le système $C^{6+} - He$.

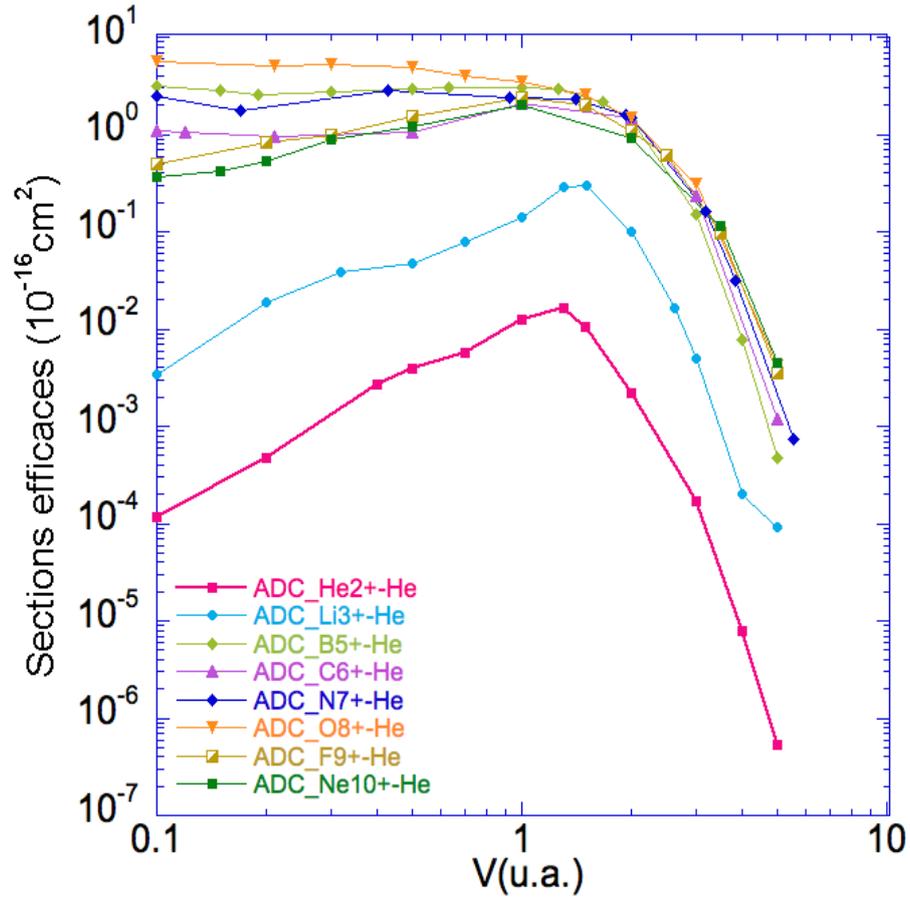


Figure III.3 – Sections efficaces (10^{-16} cm^2) de double capture vers les états auto-ionisants ($nl n' l'$) pour les systèmes de collision $A^{q+} - He(1s^2)$ en fonction de la vitesse d'impact ν ($u.a.$).

La contribution relative de la double capture vers les états liés et vers les états auto-ionisants au processus de la double capture totale ($TDC = DC + ADC$), sera traitée dans la suite pour deux systèmes de collision typiques, $Li^{3+} - He$ et $O^{8+} - He$. Nous analyserons l'influence de la charge du projectile sur le peuplement des états des deux partenaires de la collision et, par conséquent, sur la contribution favorable d'un processus par rapport à l'autre.

De façon générale, dans le cas des ions ayant des charges supérieures à 5, en plus de peuplement favorable des états auto-ionisants, la double capture est caractérisée par sa forte sélectivité aux états peuplés et spécificité vis-à-vis de la charge portée par le projectile. En effet, les expériences de spectroscopie d'électrons effectuées sur le système de collision $N^{7+} - He$ par Bordenave-Montesquieu et al. [66], ont montré que la double capture est probable pour des configurations auto-ionisantes hautement excitées ($nl'n'l'$) avec $n = 2, 3, 4$, donc au-dessus du premier, second et troisième seuils d'ionisation, avec une population prépondérante pour les niveaux ($3ln'l'$). Pour le système de collision $O^{8+} - He$, Bliman et al [85] ont montré que les niveaux majoritairement peuplés de l'ion $O^{6+}(nl'n'l')$ correspondent à $n = 3, n' = 3$ et à $n = 3, n' = 4$. De même, Harel et al. [93] ont étudié la population des états auto-ionisants dans les collisions $C^{6+} - He$ et ont prouvé que les niveaux majoritairement peuplés sont ceux des configurations ($2ln'l'$) avec $n = 3, 4$ et 5, voir aussi l'étude expérimentale par Stolterfoht et al. [94].

Notre étude systématique des simple et double captures pour huit systèmes de collision permet de dégager des propriétés générales sur ces processus quant à leur sélectivité et leur dépendance en charge et en vitesse d'impact. Nous allons donc consacrer les deux prochains chapitres à l'étude précise de deux systèmes de collision, $Li^{3+} - He(1s^2)$ et $O^{8+} - He(1s^2)$, qui présentent deux comportements différents

et caractéristiques des systèmes de collisions impliquant des projectiles faiblement ou fortement chargés. Ceci nous permettra de comprendre premièrement comment la charge du projectile peut influencer le peuplement des états des deux partenaires et deuxièmement comment un tel peuplement peut contribuer aux processus étudiés.

Chapitre IV

Collisions $Li^{3+} - He(1s^2)$

IV.1 Introduction

Modéliser les processus électroniques au cours de la collision $Li^{3+} - He$ est une tâche primordiale dans la compréhension des phénomènes ayant lieu au cours des interactions dans les plasmas de fusion thermonucléaire. En effet, dans ce contexte, le lithium est utilisé comme un outil de pronostic pour sonder la densité ou les taux d'impuretés dans ces plasmas [95–98]. Le lithium dans ses différents états de charge existe donc dans ces systèmes. Dans ce chapitre, nous allons traiter les collisions $Li^{3+} - He$, en particulier les processus de simple et de double capture qui sont importants dans la gamme d'énergie considérée dans notre étude. La structure de ce chapitre sera comme suit : dans une première section, nous présentons la mise en œuvre pour l'ion projectile Li^{3+} . La deuxième section sera consacrée aux résultats obtenus pour le processus de simple capture dont l'étude détaillée est effectuée, la section suivante ayant comme but d'exposer les résultats de la double capture. Une courte conclusion clôt le chapitre.

IV.2 Mise en œuvre

La modélisation de l'ensemble des processus électroniques (voir le tableau IV.1) ayant lieu au cours de la collision de l'ion Li^{3+} avec l'atome d'hélium considéré dans son état fondamental exige une bonne description des états des particules susceptibles d'être créées au cours de cette collision. Pour cela nous avons utilisé des combinaisons linéaires de GTOs pour décrire les états mono-électroniques de la cible (He^+) et du projectile (Li^{2+}), et des produits des mêmes GTOs pour décrire les états bi-électroniques (He et Li^+). Les états des particules ainsi produites sont obtenus par diagonalisation des hamiltoniens mono- et bi-électroniques sur la base composée de ces fonctions centrées sur He^{2+} ou Li^{3+} . Les exposants (voir l'annexe A) définissant les GTOs sont optimisés de telle sorte à reproduire le mieux possible le spectre d'énergie exact pour les états mono-électroniques mais aussi celui pour les états bi-électroniques.

La base \mathcal{B}_1 utilisée pour décrire les états de l'atome d'hélium et ceux de l'ion correspondant, He^+ , a déjà été présentée dans le deuxième chapitre. Pour le présent système de collision, nous avons utilisé une valeur de cut-off à $-0.4 u.a.$, de telle sorte que la base de calcul comporte 122 états bi-électroniques de He .

Etats bi-électroniques	Processus	Produits associés	Énergie d'états (u.a.)
Etats-TT ^a	Excitation de la cible	$Li^{3+} + He^*(1snl)$ ($n > 1$)	$E(He(1snl)) < -2$
	Ionisation de la cible	$Li^{3+} + He^+(nl) + 1e^-$	$E(He^+) \geq 2$
Etats-TPPT ^b	Simple capture	$Li^{2+}(nl) + He^+(1s)$ ($n \geq 1$)	$E(Li^{2+}(nl)) \geq -4.5$ et $E(He^+(1s)) = -2$
	Transfert excitation	$Li^{2+}(nl) + He^+(n'l')$ ($n \geq 1$) et ($n' > 1$)	$E(Li^{2+}(nl)) \geq -4.5$ et $E(He^+(n'l')) > -2$
	Transfert ionisation	$Li^{2+}(nl) + He^+(n'l') + 1e^-$ ($n \geq 1$)	$E(Li^{2+}(nl)) \geq -4.5$ et $E(He^+(n'l')) \geq -1.125$
Etats-PP ^c	Double capture	$Li^+(1ln'l') + He^{2+}$	$E(Li^+(1ln'l')) < -4.5$
	Double capture vers les états auto-ionisants	$Li^+(nl n'l') + He^{2+}$ ($n > 1$)	$E(Li^+)(nl n'l') \geq -4.5$
	Double ionisation	$Li^{3+} + 2e^- + He^{2+}$	

Table IV.1 – Ensemble de processus probables au cours de la collision $Li^{3+} - He$.

- ^a. Les états bi-électroniques de la cible ; les deux électrons sont centrés sur la cible notée T.
^b. Les états couplés de la cible et du projectile. Dans ce cas l'un des deux électrons est centré sur la cible tandis que l'autre est centré sur le projectile.
^c. Les états bi-électroniques sur le projectile ; les deux électrons sont centrés sur le projectile noté P.

IV.2.1 États du projectile

En ce qui concerne l'ion projectile Li^{3+} , nous avons bâti une base pour décrire les transitions électroniques probables au cours de son interaction avec l'atome de l'hélium. Nous avons inclus dans cette base les états de l'ion hydrogénoïde $Li^{2+}(nl)$ pour modéliser les processus mono-électroniques, et les états bi-électroniques de l'ion $Li^+(nln'l')$ pour modéliser les processus doubles. La base que nous avons construit est composée de 49 GTOs : 10 orbitales de symétrie s , 3×8 orbitales de symétrie p , et 5×3 orbitales de symétrie d . Nous avons optimisé les exposants de ces orbitales de telle sorte à reproduire le mieux possible les six premiers états s , les cinq premiers états p et les deux premiers états d de Li^{2+} . La diagonalisation de l'hamiltonien mono-électronique à partir de cette base optimisée, permet d'obtenir 49 états mono-électroniques, alors que dans le cas bi-électronique la diagonalisation de l'hamiltonien sur le produit des mêmes GTOs, avec la prise en compte du cut-off à $-0.4 u.a.$, le nombre d'états bi-électroniques se réduit à 487 états de Li^+ .

Notons que nous avons veillé à ce que les états majoritairement peuplés par les processus importants soient inclus. En effet, en se basant sur des travaux antérieurs [99, 100] et aussi sur notre étude préliminaire des sections efficaces, le processus de simple capture induit lors de la collision $Li^{3+} - He$ est majoritaire sur le niveau $n = 2$, avec en particulier une grande contribution vers la sous-couche 2p qui est observée. Pour la double capture, tous les niveaux liés ($1snl$) jusqu'à $n = 5$ et $l = 2$ contribuent d'une façon similaire pour les différentes vitesses considérées dans notre étude (pour plus de détail voir la section qui concerne "Résultats et discussion"). Nous avons donc apporté un intérêt considérable à la description des états mono- et bi-électroniques, en veillant notamment à ce que ces états soient les mieux décrits : c'était le critère utilisé pour optimiser les exposants des GTOs.

En combinant les états de He^+ et de Li^{2+} avec la même valeur de cut-off ($-0.4 u.a.$),

notre base comprend un ensemble de 754 produits d'états mono-électroniques centrés sur la cible et le projectile. La base de calcul comprend donc 1363 états bi-électroniques qui décrivent tous les types de processus mono- et bi-électroniques.

Nous présentons dans le tableau IV.2 les énergies de l'état fondamental et des premiers états excités mono-électroniques de l'ion $Li^{2+}(nl)$ obtenus par diagonalisation de l'hamiltonien mono-électronique sur la base choisie. Ces valeurs sont comparées aux valeurs d'énergie exacte données par la formule $E_{exacte} = -4.5/n^2$. Nous présentons dans le même tableau les valeurs d'énergie pour les états bi-électroniques obtenus par diagonalisation de l'hamiltonien bi-électronique ; elles sont comparées à des données expérimentales [27].

$Li^{2+}(nl)$			$Li^+(1snl)$		
Orbitale	E_{sim}	E_{exacte}	Orbitale	E_{sim}	E_{exp}
1s	-4.4966554	-4.500	1S $1s^2$	-7.2656770	-7.2797
2s	-1.1243844	-1.125	1S $1s2s$	-5.0356512	-5.0408
2p	-1.1232733	-1.125	1P $1s2p$	-4.9872612	-4.9933
3s	-0.4998011	-0.500	1S $1s3s$	-4.7294838	-4.7338
3p	-0.4992033	-0.500	1P $1s3p$	-4.7156891	-4.7201
3d	-0.4806579	-0.500	1D $1s3d$	-4.7131895	-4.7223

Table IV.2 – Énergies en u.a. des états fondamentaux et premiers excités des ions Li^{2+} et Li^+ inclus dans nos simulations E_{sim} . Les énergies exactes pour l'ion hydrogénoïde Li^{2+} sont reportées et les valeurs E_{exp} sont tirées de la référence [27].

Un excellent accord ($< 1\%$) est observé entre nos valeurs obtenues en optimisant de façon adéquate l'ensemble des 49 GTOs et les valeurs exactes pour les états mono-électroniques et les valeurs expérimentales pour les états bi-électroniques mono-excités.

Généralement, le choix d'une base pour modéliser une dynamique collisionnelle

est basé sur différents critères simples, impliquant les états de plus faibles énergies de l'espèce étudié (voir chapitre II). Néanmoins, quand il s'agit de processus multiélectroniques et en particulier, les processus doubles, il faut assurer aussi que des états auto-ionisants, plus excités, soient bien décrits. Ceci est dû au fait que les effets de la corrélation électron-électron dominant dans les configurations doublement excitées. Pour le système de collision $Li^{3+} - He$, peu chargé, il nous a été possible de prédire simplement que seuls les premiers états auto-ionisants du type $2ln'l'$ (entre les premier et deuxième seuils d'ionisation) peuvent être significativement peuplés et doivent retenir une attention particulière dans la construction des bases de calcul. Nous présentons dans le tableau IV.3 les valeurs d'énergie correspondantes à ces premiers états auto-ionisants qui sont comparées aux données trouvées dans la littérature [102–104].

$2ln'l' \ (^{2S+1})L$	E_{sim}	Expérience		
		Diehl	Lipsky	Chung-Lin
$2s^2 \ ^1S$	-1.9022158	-1.90993157	-1.90221428	-1.90563194
$2p^2 \ ^1D$	-1.7554240	-1.76955027	-1.76073050	-1.77021175
$2s2p \ ^1P$	-1.7422282	-1.75595312	-1.74786834	-1.75720259
$2p^2 \ ^1S$	-1.6081909	-1.62880147	-1.61373436	-1.62990394
$2s3p \ ^1P$	-1.4280559	-1.42851923	-1.41161468	-1.43035669
$2s3s \ ^1S$	-1.4136065	-1.41455446	-1.40426487	-1.41528958

Table IV.3 – Énergies en u.a. des premiers états autoionisants $Li^+(2ln'l')$. E_{sim} sont les valeurs obtenues dans nos simulations et sont comparées aux valeurs mesurées par Diehl [102] et calculées par Lipsky [103] et Chung et Lin [104].

Un accord encore excellent entre nos résultats et les données tirées de la littérature est observé. Notons que les énergies des états doublement excités correspondants à des niveaux supérieurs sont présentées dans l'annexe A. La qualité des états et la taille¹ de

1. Cela ne signifie pas seulement le nombre d'états inclus dans la base mais aussi la large plage

la base construite confirme le bon choix de l'ensemble de GTOs optimisées en nombre et en exposant pour décrire les processus électroniques dominants au cours de collisions $Li^{3+} - He$.

IV.3 Résultats et discussion

IV.3.1 Simple capture

Le développement de sources ioniques efficaces a rendu possible la réalisation d'expériences de collision entre des ions Li^{3+} et des atomes d'hélium à des énergies de l'ordre du keV. Parmi les expériences effectuées, Wirkner-Bott et al. [105] ont utilisé une technique expérimentale basée sur la génération d'ions multichargés du lithium par une source EBIS (Electron Beam Ion Source), les ions ayant les charges désirées passant ensuite à travers une cible gazeuse d'hélium. Les ions produits dans la zone de collision sont ensuite détectés et analysés en charge pour l'extraction des sections efficaces du processus de simple capture. Ce travail était motivé par l'utilisation envisagée à l'époque du lithium dans les réacteurs de fusion qui aurait engendrée la contamination des plasmas par les différents ions de cet élément. Les sections efficaces de simple capture ont été aussi d'une grande utilité pour la détermination de l'efficacité de détecteurs d'ions de recul pour des mesures de coïncidence [106]. Le processus de simple capture dans ce système a donc été l'objectif de nombreuses études expérimentales [51, 105, 107–109].

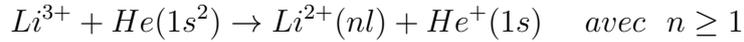
du spectre énergétique décrite pour chacune des espèces et qui domine la dynamique collisionnelle. Remarquons que l'utilisation d'une base de 1363 états est tout à fait exceptionnelle dans les méthodes dépendantes du temps non perturbatives et nécessite des temps de calcul extrêmement longs, environ une demi-journée (sur stations 32 cœurs récentes) pour obtenir les sections efficaces pour une unique vitesse.

Des études théoriques ont aussi été réalisées dont le but de prédire les sections efficaces de simple capture pour le système $Li^{3+} - He$. Ces travaux sont classés en trois catégories selon l'approche utilisée et nous présentons succinctement dans la suite quelques exemples typiques de traitement. Dans le cas où des orbitales moléculaires du système global ($LiHe^{3+}$) sont utilisées, Falcon et al. [110] se sont basés sur une méthode non perturbative à un électron actif, avec l'introduction de potentiel modèle pour déterminer les courbes d'énergie moléculaire du système de collision : ils ont calculé les sections efficaces de simple capture dans la gamme des basses énergies ($1.5 \cdot 10^{-4} - 43$ keV). Pour des énergies d'impact inférieures à 110 keV/u, Sattin et al [111] ont calculé les sections efficaces de simple capture en se basant sur un traitement totalement classique, la méthode de Monte Carlo des trajectoires classiques (CTMC). Le même traitement a été adopté par Olson et al. [112] mais pour des énergies comprises entre 20 et 200 keV/u, avec un intérêt porté spécialement sur l'étude du processus de simple capture dont les sections efficaces étaient obtenues par la sommation de celles de simple capture, de transfert ionisation et de double capture vers des configurations au-dessus du 1^{er} seuil d'ionisation. Finalement, une troisième catégorie concerne les méthodes de perturbation appropriées dans la gamme des vitesses intermédiaires et hautes. Dans le cadre de l'approximation de l'onde distordue, Watanabe et al [113] ont calculé les sections efficaces de simple capture dans la gamme d'énergie de 1-1000 keV/u, en utilisant un modèle mono-électronique dans lequel l'électron actif ressent un champ de potentiel coulombien écranté. Gravielle et Miraglia [114] ont utilisé une approche similaire dans l'approximation EI (*eikonal impulse*) pour déterminer les sections efficaces de simple capture totale pour des énergies de 100 à 1000 keV/u.

Dans la suite, nous présentons les sections efficaces de simple capture pour la collision $Li^{3+} - He$ obtenues par notre modèle semiclassique non perturbatif (voir chapitre I) dans la gamme d'énergie 0.25-625 keV/u. Nous rappelons que dans ce

cadre la corrélation électronique est prise en compte exactement, tous les couplages étant pris en compte, la seule approximation importante étant la taille de la base dont découle la convergence des résultats. Ce modèle élaboré permet de prendre en compte le couplage entre les processus de simple capture et de double capture, bien au-delà que les traitements à un électron et l'utilisation de l'approximation des électrons indépendants.

Le processus de simple capture traduit le fait que l'un des deux électrons liés à la cible d'hélium soit capturé par le projectile vers des niveaux liés de Li^{2+} ,



le second électron restant lié à la cible qui se retrouve dans son état fondamental après la collision. Les canaux de transfert-excitation et de transfert-ionisation qui sont accompagnés respectivement par l'excitation et l'ionisation de la cible ne sont pas inclus dans le processus de simple capture considéré dans notre étude, et ils sont étudiés séparément. Les sections efficaces de simple capture sont ainsi obtenues par la sommation des sections efficaces partielles de simple capture vers tous les états liés disponibles dans notre base (jusqu'à $n = 7$).

Nous présentons sur la figure IV.1 les sections efficaces de simple capture, obtenues par notre modèle, en fonction de la vitesse d'impact. Sur la même figure, nous présentons des résultats provenant d'études expérimentales et d'autres travaux théoriques.

Nous observons une forme très simple des sections efficaces présentant un maximum pour une vitesse de l'ordre de 0.7 u.a. (énergie de 5 keV/u) et une valeur de la section efficace de 8.10^{-16} cm^2 . Ce comportement très habituel est en accord qualitatif avec le critère "d'accord de vitesse" (*velocity matching*, voir par exemple [101]) qui explique le maximum de capture par des valeurs similaires de la vitesse relative de la collision et de la vitesse classique de l'électron dans l'état initial de la cible. La capture

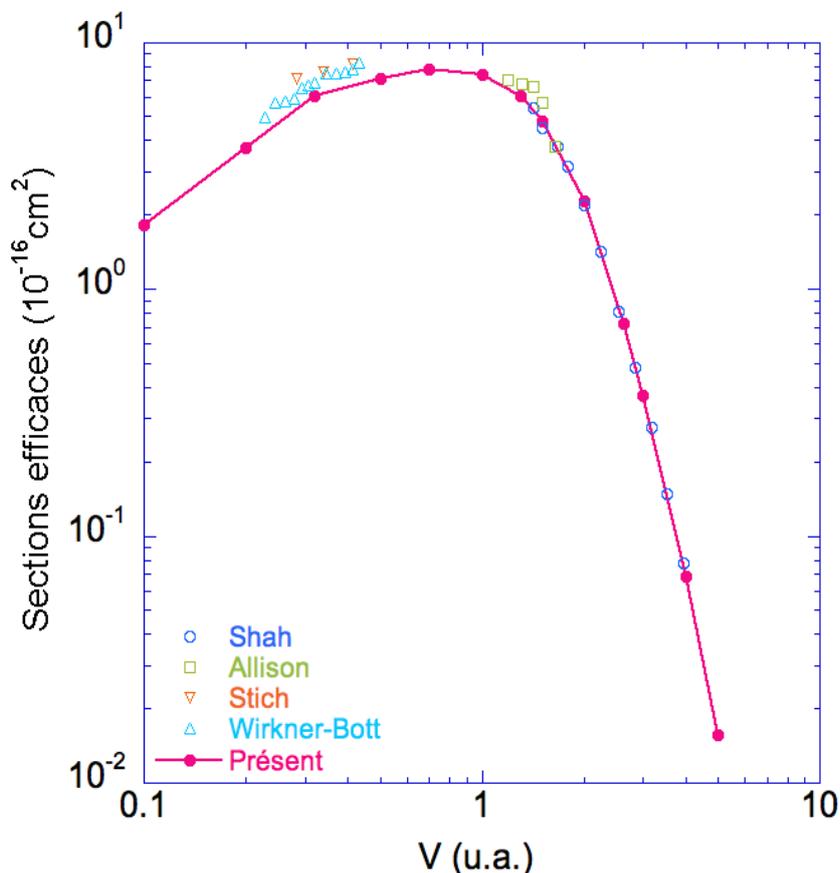


Figure IV.1 – Sections efficaces de simple capture pour le système de collision $Li^{3+} - He$. Nous indiquons les mesures expérimentales effectuées par Shah et al. [51], Allison et al. [107], et Wirkner-Bott et al. [105], et aussi le calcul théorique de Stich et al. [115].

est alors favorisée, mais pas maximale, aux petites vitesses, le temps d'interaction² entre les deux partenaires étant suffisamment long pour que l'électron soit capturé efficacement. Par contre, pour les vitesses plus grandes que celle du *velocity matching*, ce temps devient court et la capture devient de moins en moins probable, l'électron devant aussi subir une forte accélération pour pouvoir être transféré et resté vers le projectile se déplaçant. Nos résultats sont en bon accord avec les mesures expérimentales

². Le temps d'interaction pouvant être défini classiquement comme le rapport de a sur la vitesse ν d'impact, a représentant la taille de la zone de collision efficace pour le transfert d'électron autour de la cible, et qui est de l'ordre de quelques Å.

de Shah [51] et de Allisson [107] aux grandes vitesses. Pour des vitesses plus faibles (0.2-0.5 u.a.), nos résultats sont légèrement inférieurs aux mesures expérimentales de Wirkner-Bott [105], en accord avec les prédictions théoriques de Stich [115] que nous présenterons plus bas dans l'analyse du processus de double capture.

Pour illustrer la sélectivité du processus de simple capture pour une vitesse typique ($v = 1$ u.a. proche du maximum, voir Figure IV.1), nous présentons en figure IV.2) les sections efficaces en fonction de l'énergie des états bi-électroniques, c'est-à-dire de $He(nl^1n'l'^1 \ ^1L)$ (en rouge), $He^+(nl^1) - Li^{2+}(n'l'^1)$ (en bleu) et $Li^+(nl^1n'l'^1 \ ^1L)$ (en vert). Ceci permet aussi d'avoir une vue générale sur l'importance relative de tous les processus décrits dans notre base de calcul. Nous observons le très fort caractère sélectif de la simple capture, avec un ou deux états dont les sections efficaces sont d'au moins un ordre de grandeur supérieures à toutes les autres : ils correspondent à une énergie de -3.125 u.a, c'est à dire à $He^+(1s)$ (-2 u.a.) et $Li^{2+}(2\ell)$ (-1.125 u.a.). On peut aussi remarquer que pour des énergies totales similaires, la double capture est environ cent fois plus faible et correspond à un peuplement d'états auto-ionisants de Li^+ puisque placés entre le 1^{er} et le 2^{ème} seuil d'ionisation.

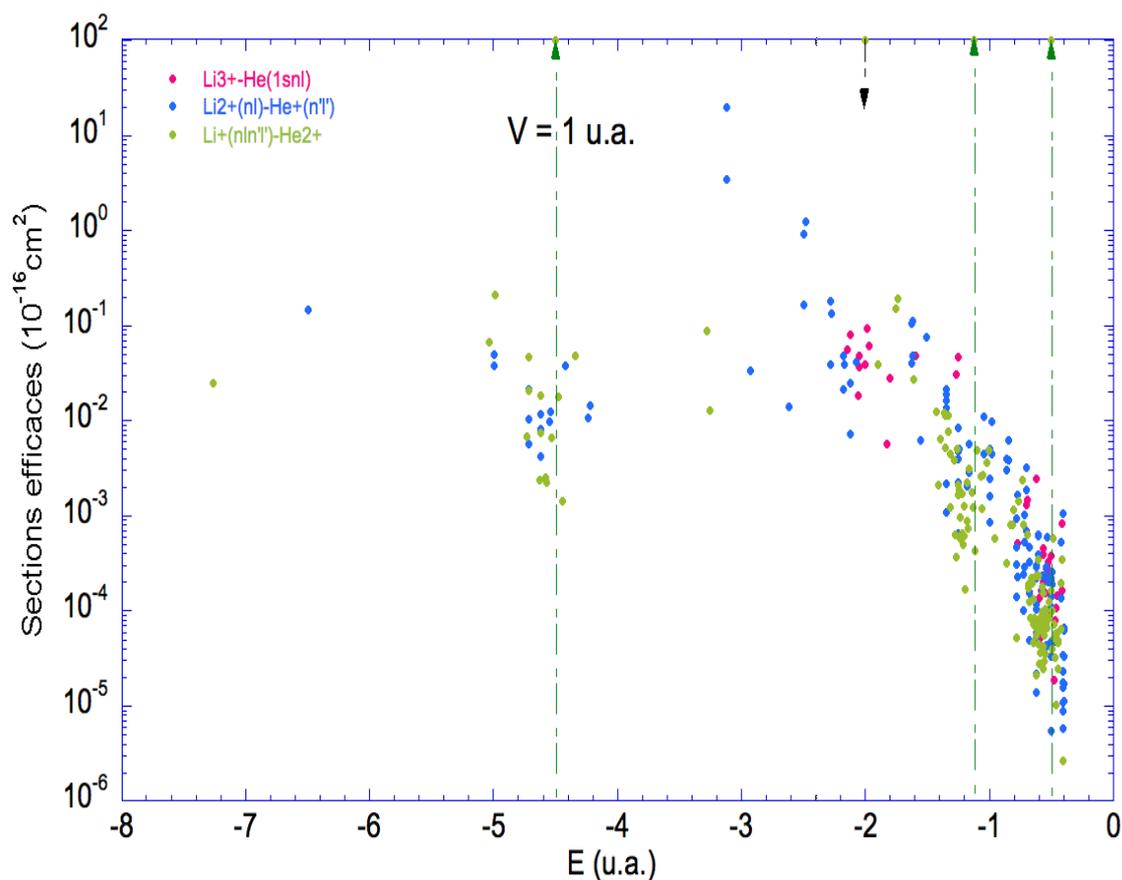


Figure IV.2 – Sections efficaces des processus électroniques au cours de la collision $Li^{3+} - He$ à $v = 1$ u.a., en fonction de l'énergie des états bi-électroniques. Les points rouges, bleus et verts correspondent respectivement à des transitions vers des états où les deux électrons sont centrés sur He^{2+} , un sur He^{2+} et un sur Li^{3+} et finalement deux sur Li^{3+} . Les flèches vertes montrent les seuils d'ionisation successifs de Li^+ , la flèche noire descendante le 1^{er} seuil d'ionisation de He .

Nous avons effectué une analyse détaillée du processus de simple capture, permettant de comprendre son comportement sélectif, et la raison pour laquelle certains niveaux sont peuplés plutôt que d'autres. Pour cela, nous présentons sur la figure IV.3 les sections efficaces totales (points rouges pleins) et partielles de simple capture en fonction de la vitesse d'impact du projectile : les sections efficaces partielles correspondent aux niveaux $n = 1$, $n = 2$ et à la somme des niveaux $n = 3, \dots, 7$ de Li^{2+} .

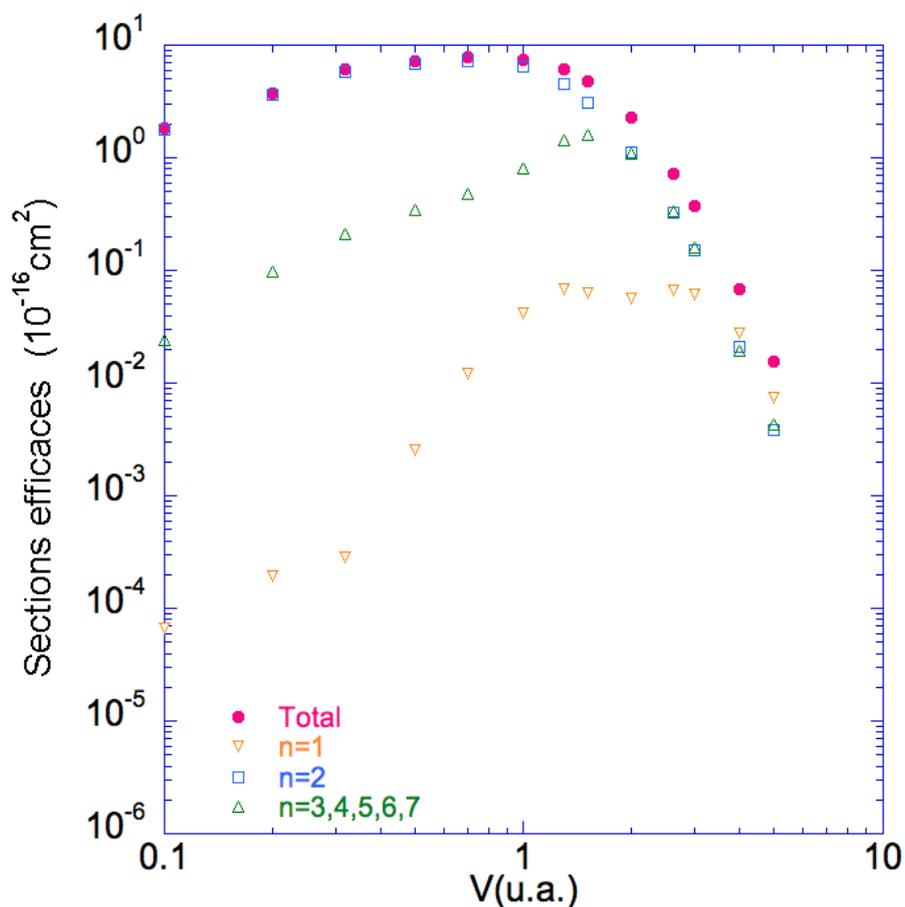


Figure IV.3 – Sections efficaces de simple capture pour le système de collision $Li^{3+} - He$, et les sections efficaces partielles vers les niveaux disponibles dans la base.

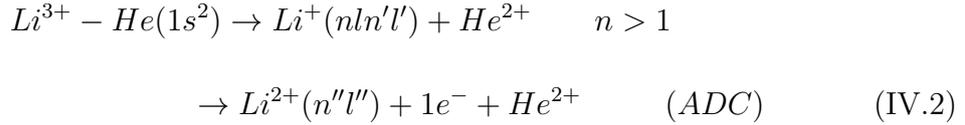
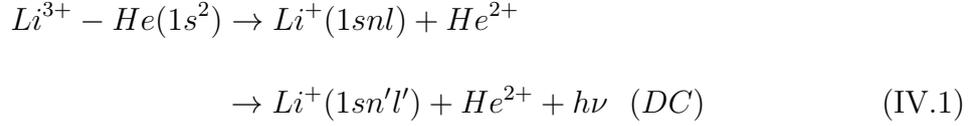
A partir de cette figure, nous pouvons voir de façon plus spécifique la dominance de

la capture vers $Li^{2+}(n = 2)$ (la cible ionisée étant dans son état fondamental $He^+(1s)$) dans un large domaine de vitesses couvrant jusqu'à $\nu = 2$ u.a. (100 keV/u). De plus, l'analyse de nos résultats jusqu'au niveau du moment cinétique ℓ , a permis de vérifier que le peuplement de la sous-couche $2p$ est majoritaire. Pour des vitesses supérieures, c'est la capture vers $Li^{2+}(n = 3)$ qui domine, puis vers l'état fondamental $Li^{2+}(1s)$ au-delà de $\nu = 4$ u.a. (400 keV/u). Ce dernier processus est favorisé à grande vitesse car dans ce régime seules des trajectoires quasi-frontales (faibles valeurs du paramètre d'impact) permettent le processus de transfert d'avoir lieu, favorisé quantiquement par un recouvrement maximum des orbitales concernées, c'est-à-dire celle ($1s$) de moindre extension sur le projectile.

IV.3.2 Double capture

Outre la simple capture, le processus de double capture est d'une importance primordiale dans la détermination des concentrations des impuretés dans les plasmas à haute température. En raison du manque d'informations sur ce processus, quelques travaux expérimentaux [51, 108], et théoriques [115] ont été réalisés dans le but de mieux le quantifier et de comprendre sa sélectivité importante pour identifier ces espèces, par la spectroscopie, dans les plasmas tokamak.

Dans le cadre de notre approche théorique, nous avons calculé les sections efficaces de double capture pour le système de collision $Li^{3+} - He$. Nous avons effectué ce calcul de telle sorte d'inclure à la fois les états liés (fondamental et mono-excités) et auto-ionisants qui correspondent à ce processus : nous allons présenter les sections efficaces de double capture totale (TDC) obtenues en sommant celles de la double capture vers des états liés (DC) et celles vers des états auto-ionisants (ADC) :



Nous présentons sur la figure IV.4, les sections efficaces de TDC en fonction de la vitesse d'impact. On observe en premier lieu que la double capture est moins probable (\approx un ordre de grandeur) que la simple capture pour ce système. L'évolution des sections efficaces en fonction de la vitesse d'impact est très différente de celle de la simple capture, avec un maximum (5.10^{-17} cm^2) à une vitesse similaire mais une augmentation des valeurs des sections efficaces pour les vitesses décroissantes, à partir de $\nu = 0.5$ u.a. Ce comportement est la signature d'un mécanisme moléculaire qui devient prépondérant à ces vitesses, en compétition avec le processus de simple capture. Ceci sera commenté plus loin dans le texte.

Dans la figure IV.4 nos données sont comparées aux résultats expérimentaux de Shah et Gilbody [51] et de Nikolaev [108] et aux résultats théoriques de Stich et al. [115]. Dans la gamme des vitesses où des données expérimentales sont disponibles ($\nu > 1$ u.a.), un accord très satisfaisant est observé avec nos résultats. Nos sections efficaces sont néanmoins environ 30% supérieures aux seuls résultats de Shah et Gilbody [51] aux vitesses les plus basses qu'ils ont considérées mais en accord qualitatif avec eux, en confirmant le maximum qui tend à se dessiner dans leurs données pour les basses vitesses. En ce qui concerne les plus basses vitesses et en absence de données expérimentales, nous avons comparé nos résultats aux seules prédictions théoriques présentées par Stich et al. [115]. Les valeurs de sections efficaces que nous avons déterminées sont très nettement différentes, inférieures de près d'un ordre de grandeur, à

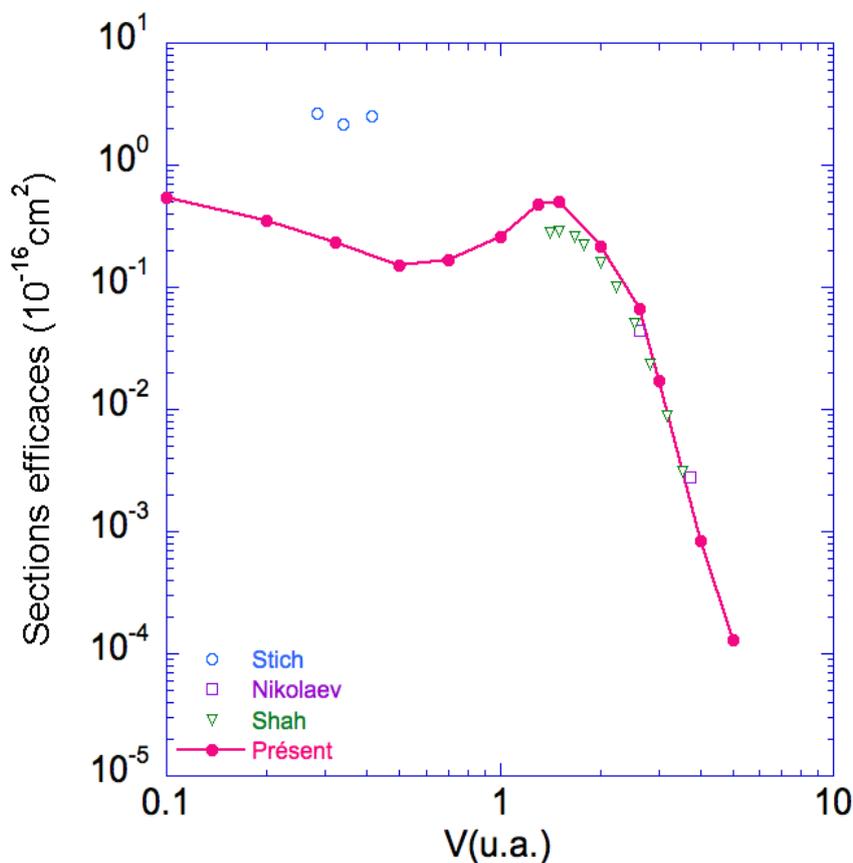


Figure IV.4 – Sections efficaces de double capture totale pour le système de collision $Li^{3+} - He$ en fonction de la vitesse d'impact. Nos présents résultats sont comparés à ceux expérimentaux de Shah et al. [51], et de Nikolaev et al. [108], et aussi au calcul théorique de Stich et al. [115].

celles calculées par ce groupe pour trois vitesses, très voisines autour de $\nu = 0.35$ u.a. Ce désaccord est certainement dû à de très fortes différences entre nos deux approches. En effet, la théorie adoptée par ce groupe est basée sur un traitement Hartree-Fock dépendant du temps, la fonction d'onde totale étant exprimée sous la forme d'un unique déterminant de Slater dont les orbitales sont développées sur un ensemble d'orbitales moléculaires (de $LiHe^{3+}$), sans inclusion de facteurs de translation électronique. C'est donc une approche dans laquelle la corrélation électronique n'est prise en compte que

de façon minimale et qui, de plus, ne peut satisfaire l'invariance galiléenne. Ce n'est pas le cas de notre approche qui correspond à un traitement en interaction de configurations et qui prend donc en compte de façon beaucoup plus élaborée la corrélation, à la condition que la base de développement soit suffisamment large évidemment. D'un point de vue théorique et numérique³, il est raisonnable de penser que nos résultats sont de meilleure qualité que ceux obtenus par Stich et al [115]. De nouvelles expériences pourraient permettre de trancher de façon définitive sur ce désaccord.

Comme nous l'avons déjà mentionné sur la figure IV.2, les processus de transfert de charge sont caractérisés par une forte sélectivité. Dans cette section, nous allons présenter et discuter la contribution relative de la double capture vers les états liés et vers les états auto-ionisants au processus de la double capture pour le système de collision peu chargé $Li^{3+} - He$. A la vue de la figure (IV.2), il est possible d'extraire une information essentielle sur les états de double capture les plus peuplés : ils se trouvent au dessous du premier seuil d'ionisation de Li^+ ($E < -4.5$ u.a.) et sont donc des états mono-excités liés. Ils représentent la contribution dominante à la TDC, avec l'ADC⁴ vers les états d'énergie proche de -2 u.a. Une analyse plus fine permet d'identifier les états les plus peuplés qui sont successivement $Li^+(1s2p^1P)$ et $Li^+(1s3p^1P)$, d'énergie -4.987 u.a. et -4.715 u.a. respectivement, voir figure IV.5. Nous pouvons confirmer et expliquer cette sélectivité par l'analyse des courbes (schématiques) d'énergie moléculaire du système de collision $LiHe^{3+}$ (voir la figure IV.6). Ces courbes sont construites approximativement⁵ à partir des énergies asymptotiques des partenaires de la collision

3. Nous avons utilisé une très grande base dans notre travail en raison de la puissance des ordinateurs par rapport à ceux des années 80.

4. Il est à noter que certains états situés entre les deux premiers seuils d'ionisation paraissent peuplés de façon similaire : en fait, ces états ne sont pas des états auto-ionisants, de Viriel proche de l'unité, mais des pseudo-états modélisant l'ionisation, c'est-à-dire $Li^{2+}(1s) + e^-$ ($E_e > 0$).

5. La diagonalisation de l'hamiltonien total du système pourrait être réalisée quasi exactement à l'aide de notre base et donnerait naissance à un ensemble de courbes adiabatiques complexes à analyser. L'utilisation donnée par le modèle très simple présenté ci-dessus suffit à illustrer le point essentiel qui nous concerne.

infiniment séparés et l'énergie potentielle d'interaction coulombienne entre les deux partenaires (de charge donnée) séparés par la distance internucléaire R . Par exemple, pour la voie de réaction initiale $Li^{3+} - He$, cette interaction est nulle et la courbe d'énergie correspondante est une droite d'équation $E_0(R) = E[He(1s^2)] \approx -2.9$ u.a. Pour la voie de double capture $Li^+(1s2p \ ^1P) - He^{2+}$, la répulsion coulombienne est $2/R$ et la courbe suit l'équation $E_1(R) = E[Li^+(1s2p \ ^1P)] + 2/R \approx -4.987 + 2/R$.

La figure IV.6 présente pour une raison de clarté quelques unes de ces courbes, corrélées asymptotiquement aux voies de simple (en rouge) et de double (en bleu) capture pour lesquelles les sections efficaces sont importantes : nous avons considéré les trois états de double capture $1s2p$, $1s3p$, et $1s4p$ du Li^+ caractérisés par des sections efficaces les plus grandes (voir plus haut), ainsi que quelques états de simple capture, dont $Li^{2+}(2p)$ majoritairement peuplé. On peut confirmer de cette figure que la simple capture doit être dominante, en lien avec la proximité des énergies de $He(1s^2)$ et $Li^{2+}(2p) - He^+(1s)$, et un croisement évité à $R \approx 10$ a.u. : c'est un processus probable pour des collisions distantes (grands paramètres d'impact) et donc de fortes valeurs de sections efficaces. Par contre, la double capture, dont les états ne se situent pas dans la même gamme d'énergie, est faible. Néanmoins, à basse vitesse, les croisements évités à $R \approx 1.5$ a.u. entre les courbes corrélées à l'état initial et aux états de double capture mentionnés plus haut (notamment $1s2p$) peuvent donner lieu à un mécanisme moléculaire non négligeable favorisant ce processus et l'augmentation des sections efficace dans ce régime. Au contraire, les premiers états auto-ionisants, de plus hautes énergies, croisent la courbe corrélée à l'état initial à des distances internucléaires plus grandes, caractéristiques de croisements à caractère diabatique peu propices à donner lieu à un mécanisme moléculaire probable. L'ADC est faible et ne contribue que de façon négligeable à la double capture totale.

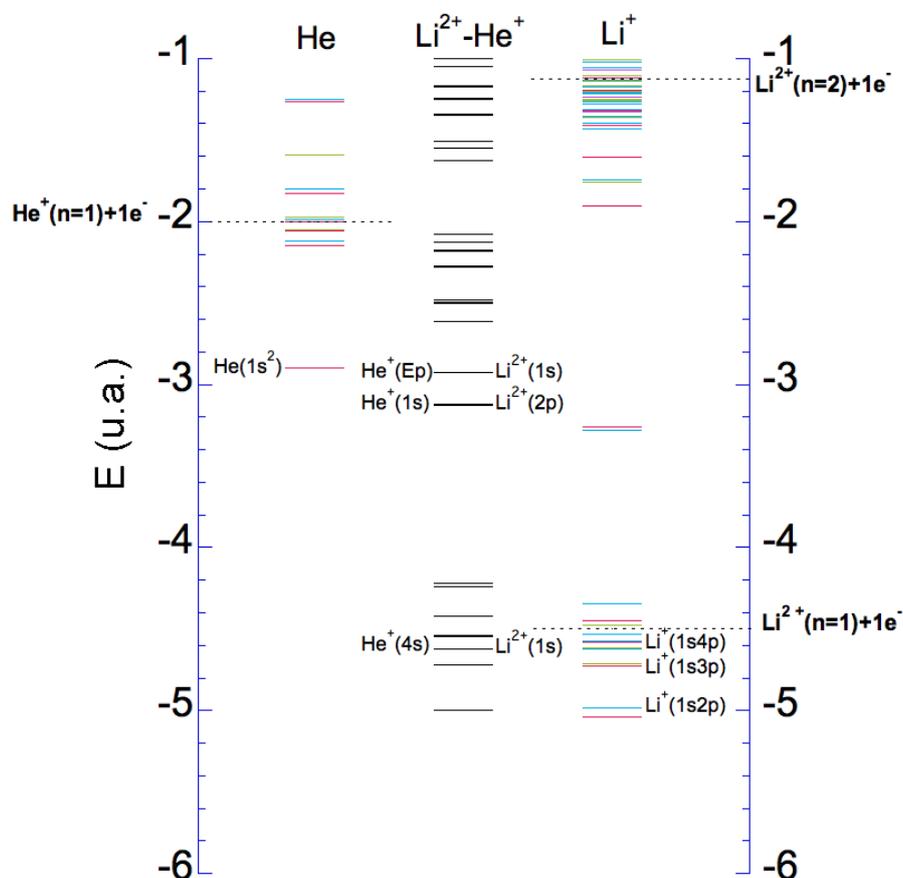


Figure IV.5 – Spectre partiel des états contribuant majoritairement aux collisions $Li^{3+} - He$. Les couleurs rouge, bleue, verte, violette et orange, correspondent respectivement à des états S, P, D, F et G. La symétrie des états $Li^{2+} - He^+$ n'est pas représentée (traits noirs). Les traits en pointillés dans les colonnes du He et Li^+ représentent leurs premiers seuils d'ionisation, les niveaux indiqués entre ces seuils étant soit des états auto-ionisants soit des pseudo-états. $He^+(Ep)$ indique un pseudo-état d'énergie positive de He^+ .

IV.4 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons traité la collision des ions Li^{3+} avec l'atome d'hélium. Nous avons montré que pour ce système peut chargé ($q = 3$), le processus de simple capture est très dominant et très sélectif, avec la sous couche $n = 2$ de Li^{2+}

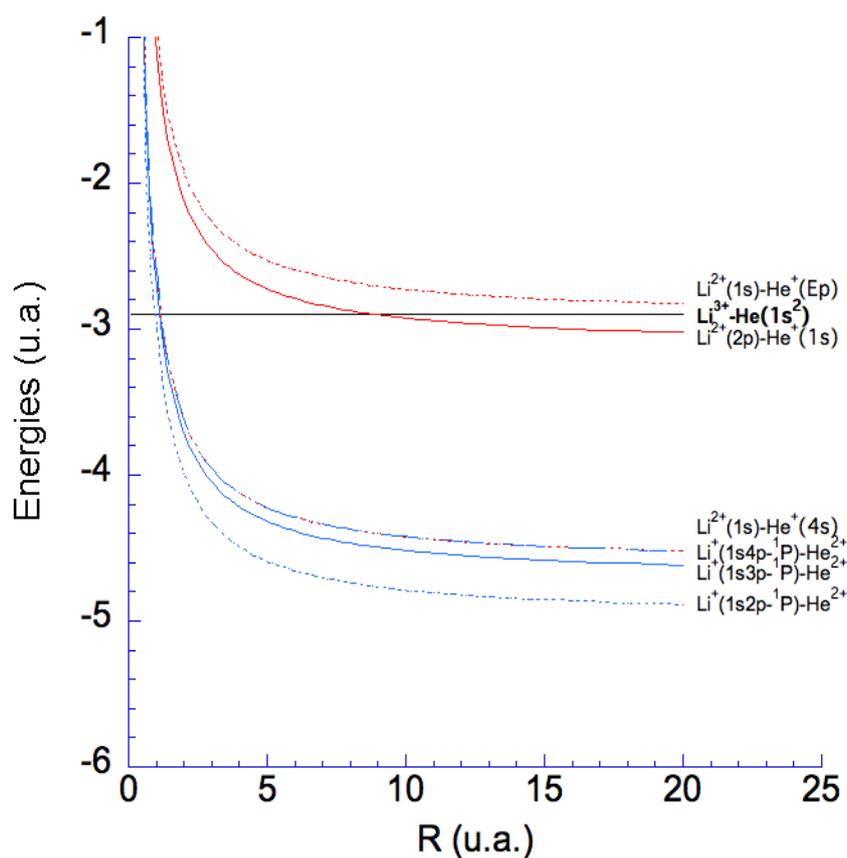


Figure IV.6 – Sélection de courbes d'énergie moléculaire représentatives des processus qui concernent le système de collision $Li^{3+} - He$.

correspondant au niveau majoritairement peuplé. En ce qui concerne la double capture, ce processus a été montré bien moins probable, avec une forte contribution des états liés $Li^+(1snl\ ^1L)$ avec $n = 1-3$. Nous avons montré que ces différentes caractéristiques peuvent être expliquées qualitativement par les spectres des états bi-électroniques du système dans ces différents types de voie de sortie et par des mécanismes moléculaires mettant en jeu des croisements évités entre courbes d'énergie moléculaire du système de collision.

Chapitre V

Collisions $O^{8+} - He$

V.1 Introduction

Dans les plasmas tokamak, l'atome d'hélium, dans ses isotopes 3 et 4, est un produit de la réaction de fusion entre deutérium et tritium. Il représente donc un constituant important de ces milieux. Par ailleurs, l'oxygène constitue une impureté inévitable des réacteurs de fusion de telle sorte que les ions de l'oxygène se trouvent présents de façon non négligeable dans ces plasmas. Les collisions de l'hélium avec les ions de l'oxygène peuvent donc contribuer considérablement à la dynamique du plasma, mais aussi à la perte de l'énergie confinée. En effet, avec des ions nus O^{8+} , le transfert d'un ou de deux électrons de l'hélium vers des états très excités de cet ion paraît intuitivement très probable en raison de la charge portée et de l'asymétrie entre les deux partenaires. Ces processus peuvent donner lieu à une émission radiative et à une perte nette d'énergie dans le plasma. Il s'avère donc que l'étude de la collision $O^{8+} - He$ est importante, avec notamment la connaissance précise des sections efficaces des processus collisionnels induits au cours de cette collision.

Ce système a donc fait l'objet de nombreuses études expérimentales et théoriques. Les transitions électroniques mono- et bi-électroniques ont été étudiées expérimentalement, notamment par des techniques de mesures d'états de charge des ions produits (projectile et/ou cible), et, de façon plus élaborée pour la détection des états peuplés, par des spectroscopies d'électrons [40, 41, 69, 116]. Du point de vue théorique, des calculs de sections efficaces de simple et de double capture ont été effectués par plusieurs groupes [35, 113, 117].

Au cours de ce chapitre, nous allons étudier la collision $O^{8+} - He$ en se basant nos calculs sur l'approche théorique semi-classique non perturbative présentée dans le premier chapitre et adéquate à la gamme des vitesses intermédiaires considérée, de 0.1 à 5 u.a. (0.250-650 keV/u). Ce chapitre est structuré comme suit : dans un premier temps, la mise en œuvre de l'ion O^{8+} est présentée, avec la description de la base utilisée dans les calculs pour décrire les états mono- et bi-électroniques de O^{7+} et O^{6+} respectivement. Dans la deuxième section, nous allons présenter les résultats des sections efficaces de simple et de double capture, en les discutant de façon générale et en les comparant aux données disponibles dans la littérature. Une dernière section est consacrée à la conclusion dans laquelle nous récapitulons l'ensemble des informations présentées pour ce système.

V.2 Mise en œuvre

Modéliser l'ensemble des processus collisionnels ayant lieu au cours de la collision $O^{8+} - He$ nécessite la description adéquate de l'ensemble des espèces, neutres et chargées, produites au cours de la collision ; dans notre cas la description de la structure électronique de O^{7+} et O^{6+} concerne ce chapitre, la mise en œuvre de l'atome d'hélium et de son ion hydrogénoïde ayant été déjà présentée dans le deuxième chapitre.

Lorsque l'ion projectile O^{8+} interagit avec la cible d'hélium, il peut capturer un électron donnant ainsi lieu à l'ion mono-électronique $O^{7+}(nl)$, ou deux électrons, avec la production de l'ion bi-électronique $O^{6+}(nl'n'l')$. Les états électroniques de ces deux ions sont obtenus par diagonalisation de l'hamiltonien mono- et bi-électronique sur une base de GTOs ou de produits de GTOs optimisées. Pour décrire les états hydrognoïdes de O^{7+} , nous avons sélectionné une base de 58 GTOs constituée de 11 orbitales de symétrie s , 9×3 orbitales de symétrie p , et 4×5 orbitales de symétrie d . Parmi les différentes stratégies d'optimisation des GTOs testées pour construire notre base, nous avons choisi l'optimisation des cinq premiers états s , les quatre premiers p et les trois premiers d de O^{7+} qui nous a permis d'obtenir également les meilleures valeurs des énergies des états de O^{6+} . Les exposants des GTOs utilisées dans nos calculs sont donnés en annexe A. Dans le cas des ions les plus chargés, il a été nécessaire d'utiliser un ensemble de GTOs de plus grande dimension pour obtenir une précision similaire à celle obtenue pour les espèces les moins chargées, les états peuplés préférentiellement au cours de la collision devant se situer à plus haute énergie par rapport à l'état fondamental dans ces systèmes asymétriques.

Avec cet ensemble de GTOs centrées sur l'oxygène et l'ensemble \mathcal{G}_1 (voir chapitre II) centré sur l'hélium, nous avons pu obtenir par diagonalisation des hamiltoniens mono-électroniques et bi-électroniques de la cible et du projectile, 381 états de He (tirés de \mathcal{B}_1 avec un cut-off de -0.06 u.a.), 571 états (singulet) de O^{6+} (cut-off de -3 u.a.) et 546 produits d'états de O^{7+} et He^+ (cut-off de -3 u.a.), pour un total de 1498 états utilisés dans nos calculs collisionnels. Le choix de ces valeurs pour les cut-off utilisés a été fait après tests en tenant compte des états majoritairement peuplés. Nous reportons dans le tableau V.1 les valeurs des énergies de l'état fondamental et des premiers états excités de l'ion $O^{7+}(nl)$, ces valeurs sont comparées aux valeurs des énergies exactes données par la formule analytique $E_{exacte} = -32/n^2$ u.a. L'accord observé est excellent, avec des différences bien inférieures à 0.1 % dans la plupart des

cas.

$O^{7+}(nl)$			
Etat	E_{sim}	E_{exacte}	V_{iriel}
1s	-31.97397	-32.0000	1.00111
2p	-7.99935	-8.00000	1.00004
2s	-7.99642	-8.00000	1.00041
3p	-3.55518	-3.55555	1.00002
3s	-3.55447	-3.55555	1.00019
3d	-3.53645	-3.55555	1.00264

Table V.1 – Énergies en u.a. de l'état fondamental et des premiers états excités de l'ion O^{7+} . Nous reportons les énergies exactes et les valeurs du Viriel.

En ce qui concerne les états de O^{6+} , une simple prédiction, confirmée par des travaux [88, 118], montre que les états de double capture majoritairement peuplés lors de la collision doivent se situer entre le deuxième ($E_2 = -8 u.a.$) et le troisième ($E_3 = -3.555 u.a.$) seuil d'ionisation. Nous avons donc adapté la stratégie de notre programme d'optimisation, principalement utilisé pour l'obtention des énergies des états les plus profonds, pour décrire au mieux les états auto-ionisants qui se trouvent dans cette partie du spectre. Nous présentons dans le tableau V.2 les énergies de quelques états bi-électroniques liés (état fondamental et premiers états excités) et celles des quatre principaux états auto-ionisants¹ au dessus du deuxième seuil. On peut observer une légèrement moindre qualité de nos résultats pour O^{6+} par rapport aux autres systèmes décrits spécifiquement dans la thèse; il n'en reste pas moins vrai que nos résultats sont en accord à environ 5% près avec les quelques données disponibles pour ce système. Ce résultat est satisfaisant pour assurer la convergence des résultats issus de nos simulations dynamiques.

1. Les énergies d'autres états auto-ionisants de O^{6+} sont données dans l'annexe A.

Pour conclure, en figure V.1, nous présentons de façon synthétique le spectre partiel des états des différentes espèces actives lors de la collision $O^{8+} - He$. Cette figure sera utilisée dans la prochaine section lors de la présentation des résultats de simple et double capture.

$1sn'l' \ ^1L$	E_{sim}	Expérience	Théorie		
		E_{exp}	Bachau	Ho (1979)	Ho (1997)
$1s^2 \ ^1S$	-59.146797	-59.1695450			
$1s2s \ ^1S$	-38.227825	-38.2635126			
$1s2p \ ^1P$	-38.042468	-38.0775199			
$1s3s \ ^1S$	-34.734454	-34.7640925			
$1s3p \ ^1P$	-34.680496	-34.7088245			
$1s3d \ ^1D$	-34.679326	-34.7228579			
<hr/>					
$3ln'l' \ ^1L$					
$3s3s \ ^1S$	-6.7229315		-6.728	-6.72505454	
$3p3p \ ^1D$	-6.6631378		-6.675		
$3p4p \ ^1P$	-6.6142954		-6.628	-6.62511043	
$3d3d \ ^1D$	-6.5841894		-6.607		-6.6053888

Table V.2 – Énergies en u.a. des premiers états liés $O^{6+}(1sn'l')$ et des premiers états auto-ionisants compris entre le deuxième et le troisième seuil d'ionisation de O^{6+} . E_{sim} sont les énergies obtenues par notre simulation, comparées avec des données expérimentales E_{exp} [27] et théoriques de Bachau [119], et de Ho [120, 121].

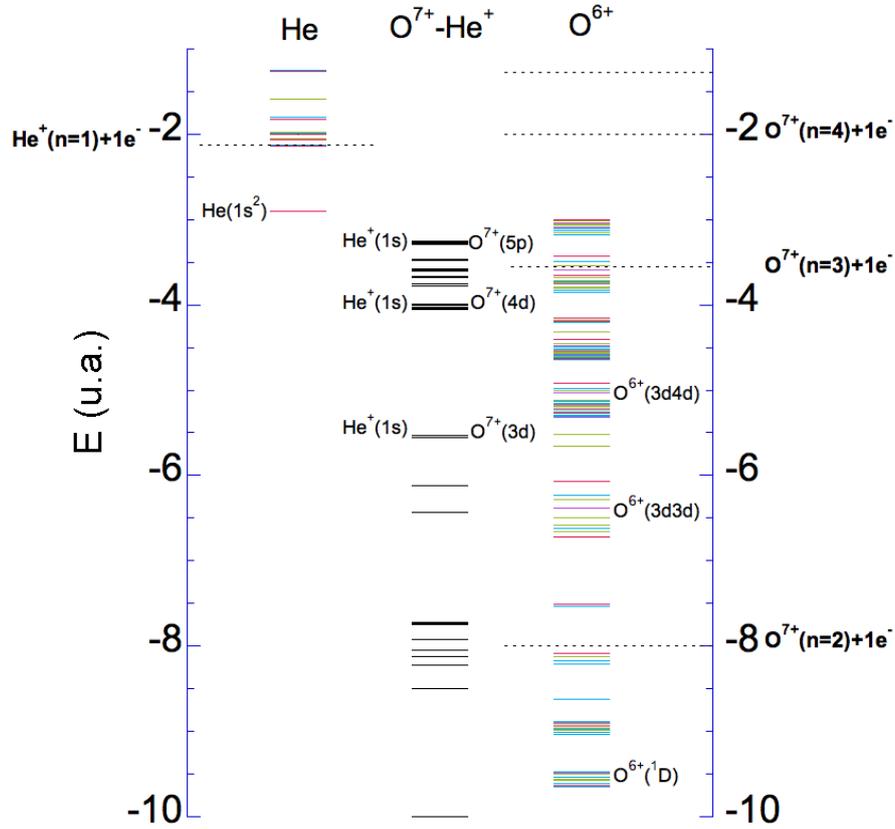


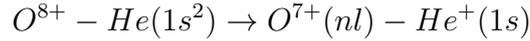
Figure V.1 – Spectre partiel des états importants pour le système de collision $O^{8+} - He$. Les couleurs rouge bleue, verte, violette et orange, correspondent respectivement à des états S, P, D, F et G. La symétrie des états $O^{7+} - He^+$ n'est pas représentée (traits noirs). Les traits en pointillés dans les colonnes du He et O^{6+} représentent leurs premiers seuils d'ionisation, les niveaux indiqués entre ces seuils étant soit des états auto-ionisants soit des pseudo-états.

V.3 Résultats et discussion

Dans cette section, nous allons présenter successivement les sections efficaces pour les processus de simple et de double capture.

V.3.1 Simple capture

Le processus de simple capture induit au cours de collisions entre des ions O^{8+} et l'hélium



doit impliquer le transfert d'un électron de la cible vers des états très excités ($n \gg 1$) de O^{7+} en raison de la grande asymétrie de charge nucléaire qui existe entre les deux partenaires de la collision. Cette spécificité complique beaucoup les calculs qu'induisent les méthodes non perturbatives telles que la nôtre en augmentant considérablement le nombre d'états potentiellement peuplés mais aussi, de façon corrélée, la nécessité de prendre en compte des états de moment cinétique orbital élevé. A l'heure actuelle, il est très complexe de faire ceci dans des traitements prenant en compte plus d'un électron et nous sommes conscients des restrictions imposées à nos simulations, limitées aux états hydrogénoïdes de symétrie d (et états bi-électroniques 1F de façon mécanique) pour des raisons de temps de calcul prohibitifs au-delà.

Nous présentons en figure V.2, les sections efficaces de simple capture en fonction de la vitesse d'impact. Nos résultats montrent un comportement différent de ceux obtenus pour le projectile Li^{3+} : les sections efficaces présentent un maximum ($2 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^2$) peu marqué pour une vitesse $v \approx 0.2$ u.a. (1 keV/u) et une décroissance plus marquée au-delà de $v = 1$ u.a. Cette décroissance peut être expliquée par les caractéristiques intrinsèques du processus de capture² et par la compétition avec d'autres processus électroniques devenant importants à plus grande vitesse, notamment l'excitation et l'ionisation de la cible. Nous pouvons remarquer que le critère de *velocity matching* évoqué pour des systèmes peu asymétriques n'est plus adapté dans ce cas (vitesse au maximum des sections efficaces inférieure à celle trouvée pour les projectiles He^{2+}

2. Le temps d'interaction entre la cible et le projectile doit être suffisamment long pour que le transfert de l'électron soit efficace, ce qui n'est pas vérifié aux hautes vitesses considérées.

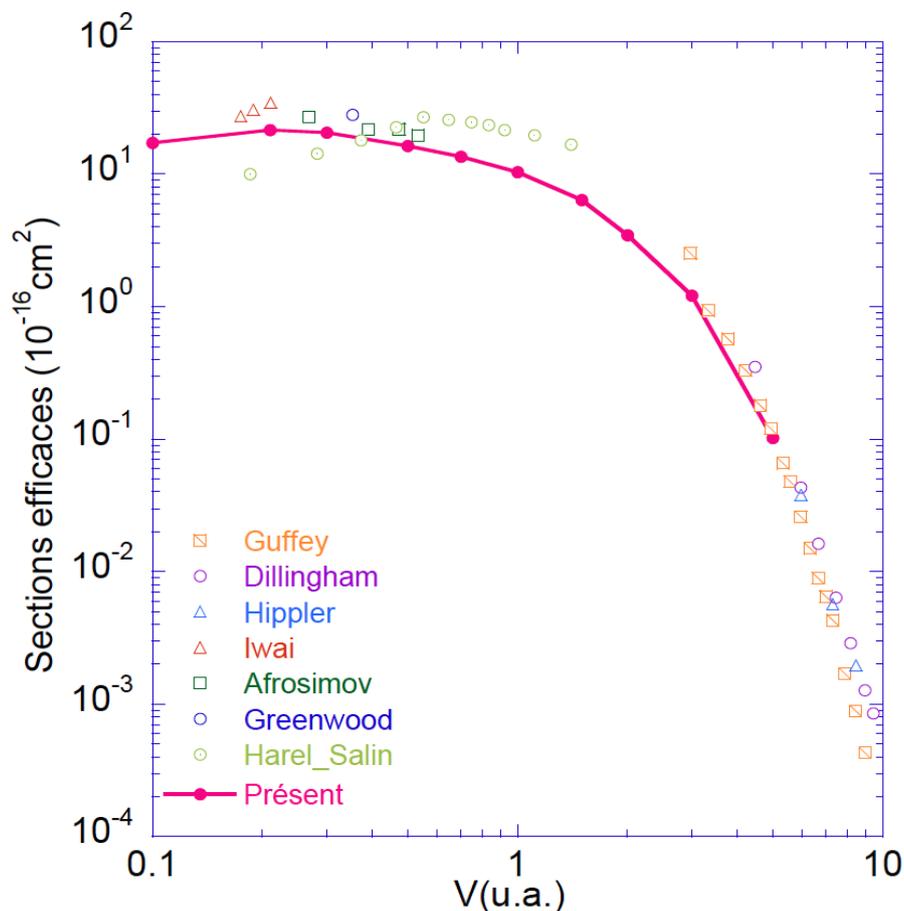


Figure V.2 – Sections efficaces de simple capture pour le système de collision $O^{8+} - He$ en fonction de la vitesse d'impact. Les données expérimentales correspondent à Guffey et al. [40], Hippler et al. [44], Iwai et al. [41], Greenwood et al. [116] Afrosimov et al. [123]. Les données théoriques correspondent à Harel et al. [85, 125].

et Li^{3+}), la différence entre la vitesse d'impact et celle de l'électron actif dans l'état fondamental étant compensée dans le cas présent par la forte différence d'interaction entre les partenaires de la collision dans la voie d'entrée ($O^{8+} - He$) et la voie de sortie ($O^{7+} - He^+$), voir plus bas la présentation des sections efficaces de double capture.

Dans la figure V.2, nos résultats sont également comparés aux sections efficaces mesurées par plusieurs équipes [40, 41, 44, 123] et aux prédictions théoriques de Harel et Salin dans Bliman et al. [85]. Nos sections efficaces sont légèrement inférieures

mais en bon accord avec les données expérimentales obtenues à basse vitesse (0.2 – 0.5 u.a.) par Iwai et al. [41], Afrosimov et al. [123] et Greenwood et al [116]. Pour des vitesses supérieures, les sections efficaces que nous avons calculées suivent la même allure que celles trouvées expérimentalement par Hippler et al. [44], Dillingham et al. [69], et par Guffey et al. [40]. Par contre, un accord assez limité est trouvé avec les résultats théoriques reportés dans Bliman et al. [85] : bien que dans la même gamme de valeurs ($1 - 3 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^2$), ces résultats présentent un maximum à une vitesse supérieure ($\approx 0.6 \text{ a.u.}$) à celle trouvée dans nos résultats, en désaccord avec les résultats expérimentaux. Ce désaccord peut s'expliquer par les restrictions que ces auteurs ont été obligés d'inclure dans leur traitement semiclassique non perturbatif basé sur un développement en produits d'orbitales moléculaires : (i) la répulsion inter-électronique n'est prise en compte que dynamiquement mais pas dans la description des espèces He et O^{6+} isolées et (ii) un nombre restreint d'états moléculaires (et donc de voies de réaction) est inclus dans leurs calculs. Ces limitations très drastiques peuvent expliquer l'évolution différente de leurs données par rapport aux autres travaux, la prise en compte des seules voies importantes dans leur calcul ayant néanmoins permis *a minima* la prédiction raisonnable des valeurs de sections efficaces.

Comme pour le cas du projectile Li^{3+} , il est intéressant d'observer la distribution des états les plus peuplés au cours de la collision $O^{8+} - He$. Pour cela, nous présentons sur la figure V.3, les sections efficaces³ de simple capture (bleu), de double capture (vert) et d'excitation (rouge), à une vitesse typique $v = 1 \text{ a.u.}$ Cette figure est d'une grande utilité puisqu'elle permet de voir de manière synthétique le caractère sélectif des processus de simple et de double capture mais aussi d'identifier les niveaux pour lesquels le peuplement est dominant. A la vitesse considérée, on peut observer que

3. Certains points concernent les sections efficaces correspondant à des pseudo-états et ne peuvent donc pas être considérés comme représentatifs des processus réels de capture ou d'excitation dans lesquels ils sont classés.

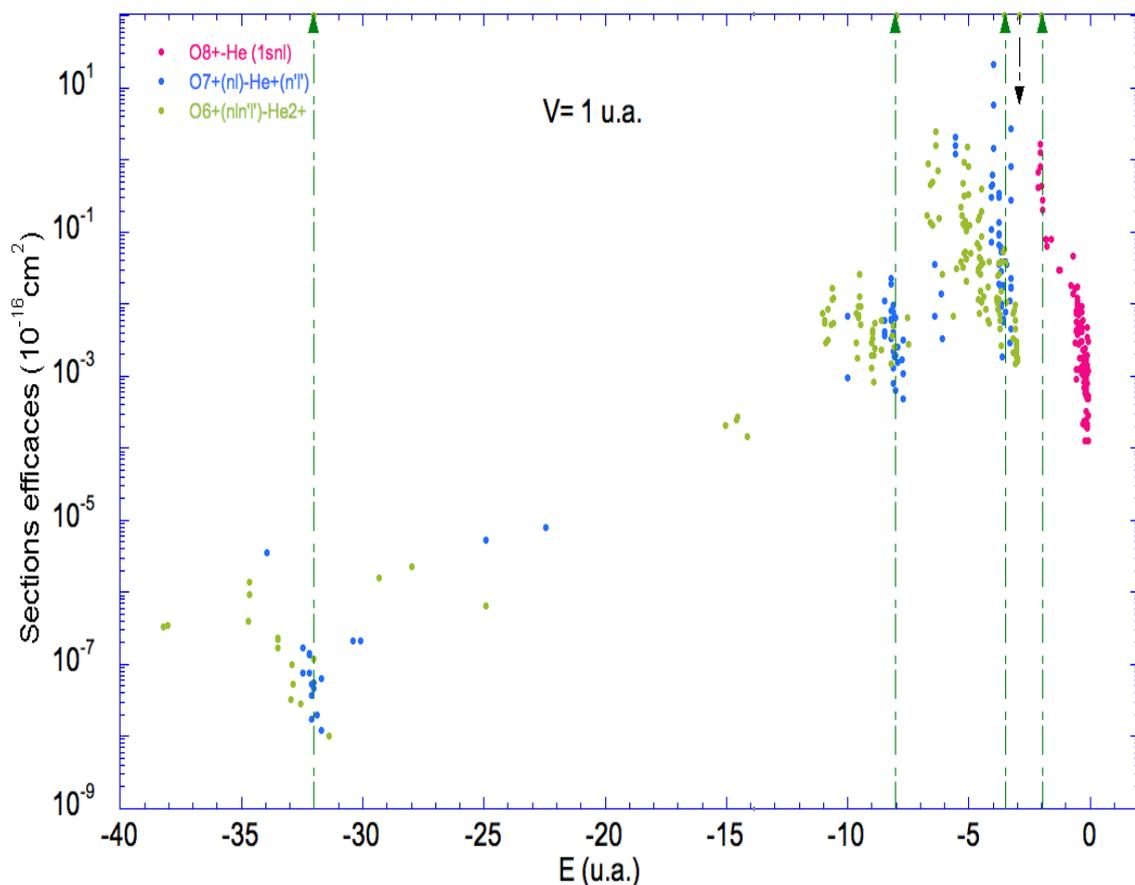


Figure V.3 – Sections efficaces des différents processus électroniques présentées en fonction de l'énergie des états finaux concernés par le processus, pour une vitesse d'impact $v = 1$ u.a. Les points rouges, bleus et verts correspondent respectivement à des transitions vers des états où les deux électrons sont centrés sur He^{2+} , un sur He^{2+} et un sur O^{8+} et finalement deux sur O^{8+} . Les flèches verticales en trait mixte représentent les différents seuils d'ionisation de O^{6+} , la flèche noire descendante représente le 1^{er} seuil d'ionisation de l'He.

la simple (mais aussi la double) capture dominante concerne des états plus excités du projectile O^{7+} (et O^{6+}). Les sections efficaces les plus importantes se trouvent à des énergies de -4 u.a. (et, dans une moindre mesure, de -5.5 u.a.) correspondant à $O^{7+}(n=4)$ ($O^{7+}(n=3)$), la cible une fois ionisée se trouvant dans son état fondamental. Pour mieux visualiser la sélectivité du processus de simple capture en fonction de

la vitesse d'impact et identifier les voies de capture les plus probables, nous présentons les sections efficaces de simple capture résolues en couche en fonction de la vitesse d'impact dans la figure V.4. Le comportement sélectif du processus de simple capture

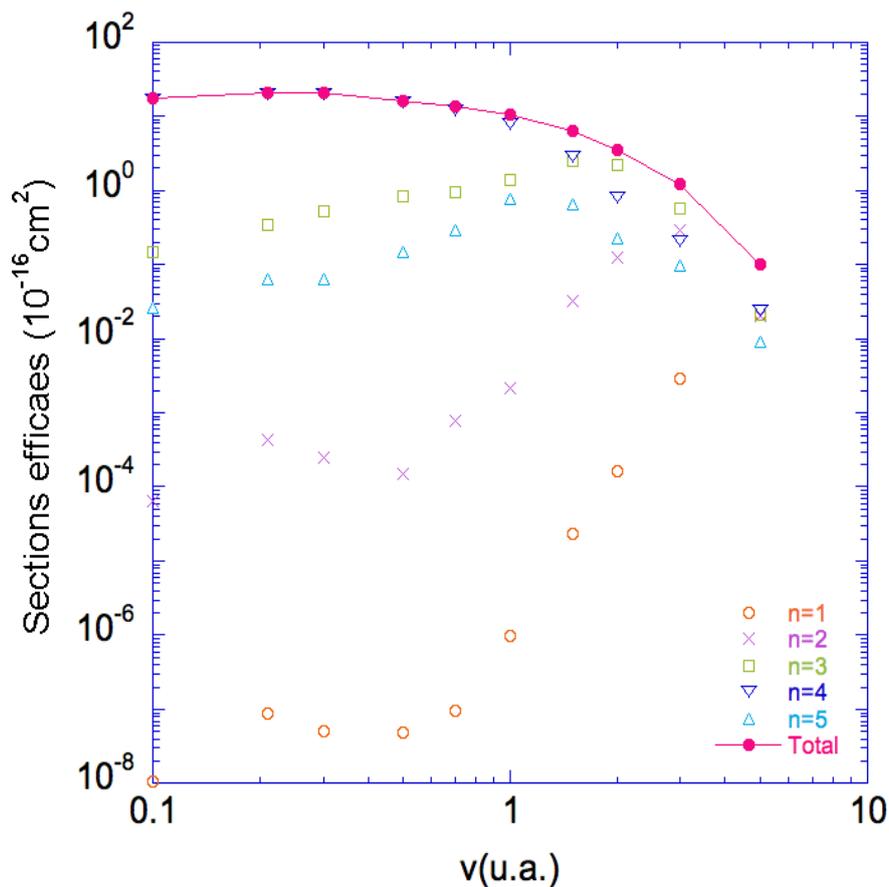


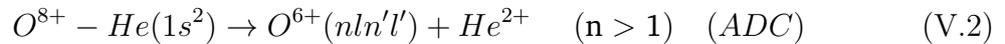
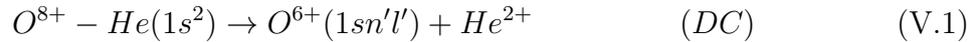
Figure V.4 – Sections efficaces totales et partielles de simple capture pour le système de collision $O^{8+} - He$ en fonction de la vitesse d'impact.

est confirmé à la vue de cette figure : le niveau $n = 4$ est quasi-exclusivement peuplé dans la collision $O^{8+} - He$ pour les vitesses inférieures à 1 u.a. Ceci est en accord avec les résultats présentés dans Bliman et al. [85]. Avec l'augmentation de la vitesse, d'autres voies de simple capture deviennent non négligeables, notamment le niveau $n = 3$ qui contribue de façon prépondérante dans l'intervalle de vitesse allant de $v = 2$

à $v = 3$ u.a. Ce résultats ne corrobore pas les données de Bliman [85] qui montrent encore une dominance de la capture vers $n = 4$ pour une vitesse de 1.5 a.u. Dans les deux régimes, c'est l'état de plus grand moment cinétique qui domine le processus, c'est-à-dire dans notre cas, les états d . Dans ce contexte, l'absence d'états f dans notre base pourrait expliquer la légère sous-estimation de nos sections de simple capture.

V.3.2 Double capture

Au cours de son interaction avec l'atome d'hélium dans son état fondamental, l'ion O^{8+} est susceptible de capturer les deux électrons de la cible dans des états liés ou auto-ionisants, respectivement



De nouveau, comme pour la simple capture mais de façon encore plus critique, ce processus est particulièrement complexe à étudier en raison de l'asymétrie de charge des partenaires de la collision et de la nécessité de couvrir un très large nombre d'états très excités. Ceci explique qu'il n'existe que très peu de données théoriques pour ce système. Nous présentons en figure V.5 les sections efficaces de double capture totale obtenues, pour le système de collision $O^{8+} - He$, par la sommation des sections efficaces de DC et celles d'ADC. Dans la gamme des basses vitesses, inférieures à 2 u.a, les sections efficaces forment un plateau, avec des valeurs importantes, comprises entre 10^{-16} et 10^{-15} cm^2 , inférieures d'un facteur 4 aux sections efficaces de simple capture. Pour les vitesses élevées, les sections efficaces décroissent rapidement, beaucoup plus brusquement que celles de simple capture. Ce comportement peut se comprendre qualitativement en s'aidant de l'approximation des électrons indépendants

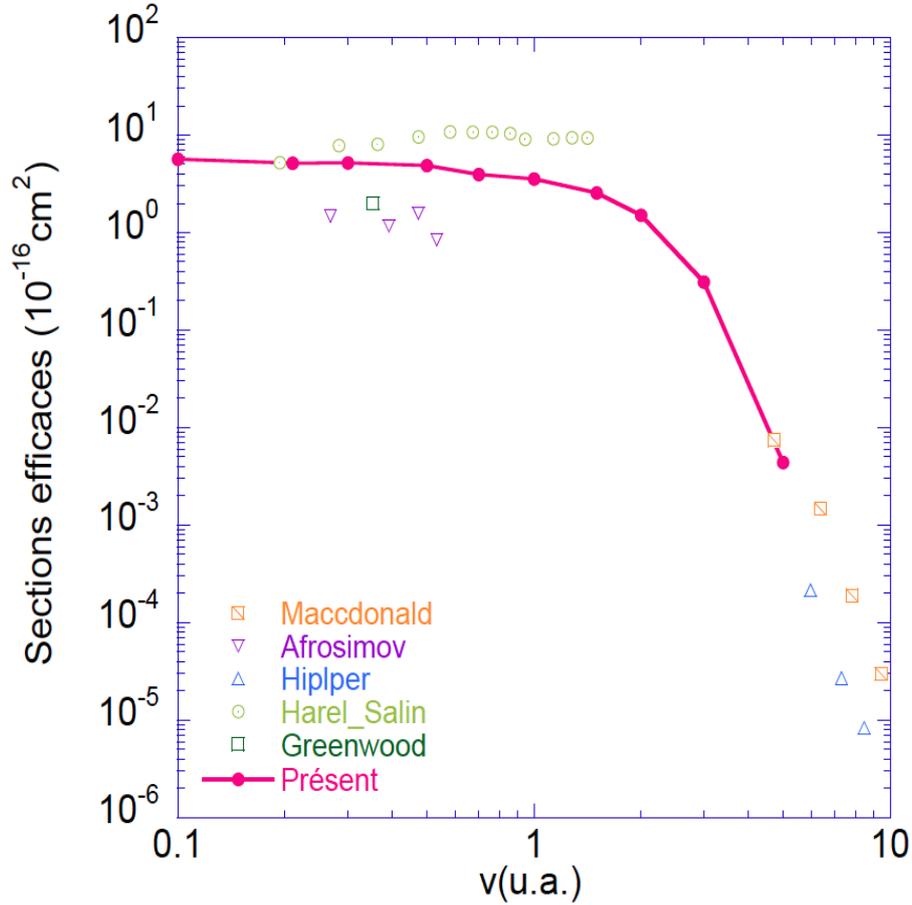


Figure V.5 – Sections efficaces de double capture totale pour le système de collision $O^{8+} - He$ en fonction de la vitesse d’impact (u.a.) : nos résultats sont présentés en ligne droite. Nous reportons aussi les différentes données expérimentales : Macdonald et al. [124], Afrosimov et al. [125], Hippler et al. [44], et Greenwood et al. [116]. Les résultats théoriques de Harel et al. sont extraits de [85, 125].

dans laquelle la probabilité de DC est $P_{DC} = P_{SC}^2$, où P_{SC} est la probabilité de simple capture. En effet, à grande vitesse et pour des projectiles de charge élevée, la répulsion inter-électronique peut être négligée, le processus étant induit principalement par l’interaction noyau-électron, indépendamment de la présence de l’autre électron.

Contrairement aux processus de simple capture qui ont été largement étudiés, beaucoup moins de résultats sont disponibles pour le processus de double capture. Les don-

nées expérimentales de Afrosimov et al indiquées dans [125] et celles de Greenwood et al [116] sont reportées sur la figure V.5 : les valeurs de ces sections efficaces sont inférieures, environ d'un facteur 5, à celles obtenues dans nos calculs. A des vitesses supérieures ($v > 4$ u.a.), les seules mesures expérimentales qui ont été effectuées sont celles de Hippler et al. [44] et de Macdonald et Martin [124] : nous ne pouvons pas tirer une conclusion définitive de cette comparaison car les deux séries de mesures présentent de fortes différences et ne recouvrent que faiblement le domaine énergétique considéré dans nos travaux. La seule donnée expérimentale qui recouvre nos données est celle de l'équipe danoise et est en parfait accord avec nos résultats. Au niveau théorique, les résultats obtenus par Harel et Salin dans Bliman al. [84] pour la double capture diffèrent des nôtres sauf à la plus faible vitesse que ces auteurs ont considérées : les valeurs de leurs sections efficaces sont quasi-constantes, très légèrement décroissantes avec la vitesse, sur un domaine allant de 0.3 à 1.5 u.a. et surestiment nos résultats et donc les données expérimentales (d'un ordre de grandeur). Les limitations de leur modèle théorique exposées dans la section précédente restent d'actualité et peuvent expliquer le désaccord qualitatif avec nos résultats. L'identification des voies d'ADC majoritaires trouvées par ces auteurs est en accord qualitatif avec nos prédictions, présentées ci-dessous.

La figure V.3 qui montre les sections efficaces de tous les processus électroniques décrits dans notre base à une vitesse de 1 u.a., permet d'observer le fort caractère sélectif de la double capture. Ce processus peuple de façon quasi exclusive des états d'énergies centrées autour de -6.6 u.a.,⁴ c'est-à-dire des états auto-ionisants localisés entre les 2ème et 3ème seuils d'ionisation de O^{6+} (en accord avec [84]) : ce sont des états correspondants aux configurations électroniques principalement $3\ell 3\ell'$ mais aussi, dans une moindre mesure, $3\ell 4\ell'$ (prévus majoritaires par Bliman et al [84] pour des

4. Des états d'énergie ≈ -5 u.a. sont également peuplés par double capture mais ne correspondent pas à des états auto-ionisants mais plutôt à des pseudo-états modélisant l'ionisation.

vitesse 0.3 – 1.0 u.a.), voir le tableau V.2. On observe aussi des sections efficaces de valeurs totalement négligeables pour les états mono-excités de O^{6+} , situés sous le 1er seuil d’ionisation ($E_{i1} = -32$ u.a.). La double capture est donc totalement dominée par la double capture vers des états auto-ionisants, pour une vitesse $v = 1$ u.a. mais aussi, de façon générale, dans la gamme entière de vitesse considérée dans notre travail. Ce résultat est opposé aux conclusions concernant le système $Li^{3+} - He$.

Pour expliquer cette sélectivité pour des états auto-ionisants très excités, il est intéressant d’analyser les courbes d’énergie moléculaire du système de collision. Les croisements évités observés dans ces diagrammes sont en effet les sources d’interprétation (et de prédiction) fiables pour des systèmes multi-chargés. Nous présentons donc sur la figure V.6 un diagramme de quelques courbes importantes d’énergie moléculaire approximative où seuls les énergies asymptotiques (voir figure V.1) et les termes de répulsion coulombienne entre partenaires de la collision⁵ sont pris en compte. L’analyse de ces courbes schématiques nous permet de comprendre la dominance de la double capture vers l’état $3d3d\ ^1G$, la courbe correspondante croisant celle corrélée à la voie de réaction initiale à une distance internucléaire $R \approx 3.5$ u.a. propice à induire des valeurs raisonnables de section efficace, contrairement aux autres courbes montrées sur la figure : croisements à des valeurs de R très faibles (zone de paramètre d’impact très réduite) ou trop élevées (caractère diabatique du croisement). C’est le même cas pour la voie de simple capture la plus favorable, $O^{7+}(n=4) - He^+(1s)$ ⁶, caractérisée par un croisement à ≈ 6 u.a, pour une différence de pentes au croisement bien inférieure à celles observées pour les courbes corrélées à la double capture.

5. 0 pour voie initiale, $7/R$ pour la simple capture et $12/R$ pour la double, R étant la distance internucléaire.

6. Notons que ce modèle simplifié ne permet pas d’expliquer la dominance du $4d$ par rapport aux autres sous-couches 4ℓ dégénérées.

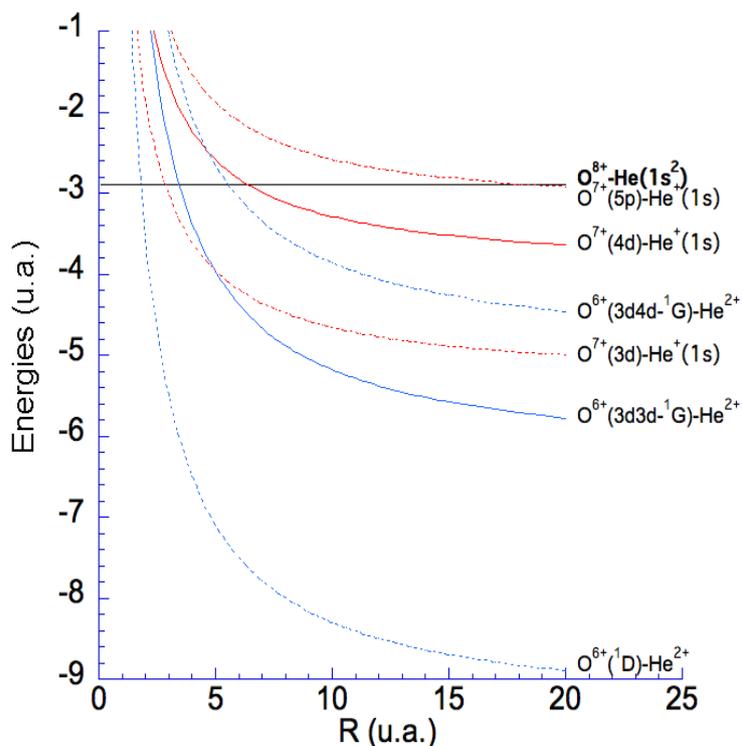


Figure V.6 – Courbes d'énergie moléculaires pour le système de collision $O^{8+} - He$. Nous présentons en couleur rouge (bleue) les courbes d'énergie moléculaires corrélées asymptotiquement à des états de simple (double) capture. Pour chacune des deux couleurs, le trait plein indique l'état le plus peuplé, les deux traits pointillés aux deux états qui l'encadrent. Le trait noir à -2.9 u.a. correspond à la voie de réaction initiale.

V.4 Conclusion

Nous avons étudié dans ce chapitre les collisions d'ions O^{8+} avec l'atome d'hélium. Nous nous sommes intéressés à l'étude de la simple et de la double capture qui sont les processus dominants dans la gamme de vitesses considérées. Nous avons observé le caractère très sélectif de ces deux processus dans ce type de collision, avec une forte dominance d'états spécifiques : la couche $n = 4$ (état $4d$ principalement) de O^{7+} pour la simple capture et les configurations $3\ell 3\ell'$ ($3d 3d \ ^1G$) de O^{6+} pour la double capture. A l'opposé de ce qui a été trouvé pour le système $Li^{3+} - He$, la double capture dans

des états mono-excités est tout à fait négligeable dans la gamme d'énergie considérée. Finalement, il est important de souligner que ce type de systèmes est très complexe à modéliser, ce qui explique le très faible nombre de travaux antérieurs les concernant, même si les premières études ont été réalisées il y a plus de trente ans.

Conclusion

Au cours de la thèse, nous avons étudié les processus électroniques ayant lieu au cours de collisions entre des ions nus et l'atome d'hélium, $A^{q+} - He$, pour des projectiles de charge q comprise entre 2 et 10, dans un très large domaine d'énergie d'impact, $0.25 \leq E \leq 625$ keV/u. Pour décrire ces systèmes de collision, nous avons utilisé une approche semi-classique non perturbative dans laquelle les deux électrons ont été pris en compte exactement, c'est-à-dire sans approximation quant aux différents éléments de couplage résultant de la corrélation inter-électronique. Les sections efficaces ont été calculées à partir d'un code développé dans l'équipe permettant la prise en compte d'un grand nombre d'états mono- et bi-électroniques, couvrant un large spectre de la structure électronique des deux partenaires de la collision. L'intérêt de notre étude a été porté principalement sur les deux processus importants dans la gamme d'énergie considérée que sont la simple capture et la double capture. Pour cette dernière, des analyses très complètes de nos bases de calcul nous ont permis de séparer la contribution des états mono-excités à celle des états auto-ionisants.

Le traitement de ces systèmes ayant des comportements et des caractéristiques différents, nous a permis un classement en deux catégories. La première concerne les systèmes peu chargés composés des projectiles He^{2+} et Li^{3+} pour lesquels leur charge entraîne un peuplement majoritaire de l'état fondamental et des premiers états excités, pour la simple et la double capture. Nous avons observé que la double capture est plus

probable que la simple capture uniquement pour le système symétrique, $He^{2+} - He$, dans le domaine des basses vitesses ($v < 0.7$ u.a.) pour lesquelles la double capture résonante domine. La deuxième catégorie concerne les systèmes de collision ayant une charge plus élevée ($5 \leq q \leq 10$). En raison de la forte asymétrie des charges du projectile et de la cible entre la voie d'entrée et les voies de sortie pour les simple et double captures, le peuplement des états plus excités devient de plus en plus abondant alors que la charge du projectile croît. La double capture vers des états auto-ionisants domine totalement le processus de double capture totale pour ces systèmes. En plus de ce caractère sélectif, nous avons pu extraire des propriétés générales sur l'influence de la charge et de la vitesse d'impact sur la contribution relative de la simple et de la double capture.

Nous avons également comparé nos sections efficaces avec des résultats théoriques et expérimentaux de la littérature. Les différences notables trouvées dans ces comparaisons prouvent la complexité de ces systèmes, qui n'ont fait l'objet que de rares études en ce qui concerne la double capture, pour les projectiles les plus chargés. Notre objectif était de combler ce manque de données, en contribuant avec un code unique et un niveau de convergence similaire des calculs, pour un grand nombre de systèmes et sur un intervalle d'énergie s'étendant sur plus de trois ordres de grandeur.

L'étude que nous avons menée dans ce travail de recherche fournit une meilleure modélisation du processus de simple capture, mais surtout une connaissance bien plus approfondie de la double capture. Dans ce cas, nos résultats peuvent servir de benchmark pour de futurs travaux théoriques mais aussi encourager des travaux expérimentaux dans la gamme des vitesses intermédiaires et pour des projectiles de charge élevée, en l'occurrence F^{9+} et Ne^{10+} . Il est important de souligner de façon générale que plusieurs champs de recherche tels que la physique des plasmas et la physique médicale, ont de forts besoins en données sur les processus élémentaires et qu'un fort besoin de

Conclusion

benchmarking (théorique et expérimental) est nécessaire pour valider ou produire des données d'intérêt pour ces domaines d'application. Par ailleurs, suite aux nouveaux développements analytiques que nous avons effectué au cours de la thèse pour calculer les intégrales de couplage et de recouvrement, l'écriture d'un nouveau code numérique optimisé est en cours de réalisation au sein de notre équipe. Ce nouveau programme sera d'une grande utilité dans le futur pour traiter avec plus de précision des systèmes de collision atomiques et moléculaires, notamment ceux dans lesquels le peuplement d'états de haut moment cinétique est probable, voire majoritaire. Les collisions impliquant des ions multi-chargés sont un exemple de ce type de complexité et notre nouveau code de simulation pourrait permettre le meilleur contrôle de la convergence des calculs de sections efficaces dans ce cas.

Annexe A

Base d'orbitales gaussiennes

Décrire un système de collision bi-électronique nécessite une bonne représentation des états mono- et bi-électroniques des deux partenaires de la collision. Ils sont obtenus par diagonalisation de l'hamiltonien électronique correspondant sur une base de fonctions (ou produits de fonctions) gaussiennes (GTOs) définies par

$$G_{\alpha_i,l,m} = Y_{l,m}(\theta, \varphi) r^l e^{-\alpha_i r^2}, \quad (\text{A.1})$$

Le nombre de ces fonctions doit être limité en raison de temps de calcul qui est fortement lié à la taille de la base utilisée. Nous optimisons donc les exposants α_i de telle sorte que les énergies des états mono-électroniques soient en bon accord avec les énergies exactes des ions hydrogénoïdes ($E_{\text{exacte}} = -Z^2/2n^2$), et que les énergies des états bi-électroniques soient en accord satisfaisant avec les valeurs obtenues dans la littérature et vérifient le théorème du Viriel.

Nous présentons dans cette annexe le jeu de GTOs optimisées et utilisées dans nos calculs de dynamique pour les différents systèmes étudiés. Les valeurs d'énergie

des principaux états des différents systèmes atomiques, neutres et ionisés, considérés sont aussi tabulées.

A.1 Ensembles de GTOs pour He^+ et de He

Trois ensembles de GTOs optimisés et utilisés pour décrire l'hélium et son ion sont donnés ci-dessous, suivis par un tableau d'énergies de quelques états de He pour lesquels la valeur du Viriel est donnée.

i	ℓ	α_i	i	ℓ	α_i
1	0	0.1842007682972139 E+03	11	1	0.3020419037999350 E+01
2	0	0.2705583606570384 E+02	12	1	0.4789781103424442 E-01
3	0	0.8038389793499719 E-02	13	1	0.1229942958946820 E-01
4	0	0.1620272713613796 E+01	14	1	0.8526517862508525 E+00
5	0	0.5848795533486367 E+00	15	1	0.1250557570878849 E+00
6	0	0.1043459332544947 E+00	16	1	0.1269953216698083 E+02
7	0	0.1504605200100282 E+00	17	1	0.2969744268902335 E+00
8	0	0.2795563451327475 E-01	18	1	0.2410757071407106 E-01
9	0	0.5804839980712277 E+01	19	2	0.5486008579987979 E-01
10	0	0.2348078331059174 E-01	20	2	0.1478384343164194 E-01
			21	2	0.1818924919122083 E+00

Table A.1 – \mathcal{G}_1 : exposants et nombres quantiques ℓ caractérisant les GTOs optimisées pour He^+ et He .

i	ℓ	α_i	i	ℓ	α_i
1	0	0.990138756241400 E-02	11	1	0.3020419037999350 E+01
2	0	0.281723991006147 E-01	12	1	0.4789781103424442 E-01
3	0	0.801588732974325 E-01	13	1	0.1229942958946820 E-01
4	0	0.228075888935338 E+00	14	1	0.8526517862508525 E+00
5	0	0.648943890723461 E+00	15	1	0.1250557570878849 E+00
6	0	0.184643881154267 E+01	16	1	0.1269953216698083 E+02
7	0	0.184643881154267 E+01	17	1	0.2969744268902335 E+00
8	0	0.149482538495671 E+02	18	1	0.2410757071407106 E-01
9	0	0.425322380982157 E+02	19	2	0.5486008579987979 E-01
10	0	0.121016895742355 E+03	20	2	0.1478384343164194 E-01
			21	2	0.1818924919122083 E+00

Table A.2 – \mathcal{G}'_1 : exposants et nombres quantiques ℓ caractérisant les GTOs optimisées pour He^+ et He .

i	ℓ	α_i	i	ℓ	α_i
1	0	0.2242053886282660 E+01	14	1	0.3906148396576061 E-01
2	0	0.2203833920445998 E+00	15	1	0.2125447244334079 E+01
3	0	0.9143609893814128 E+01	16	1	0.1140439683264593 E-01
4	0	0.4759881934767546 E-02	17	1	0.1055612994044387 E+02
5	0	0.3644564084158685 E+03	18	1	0.6177389208284644 E+00
6	0	0.3878174191451494 E-01	19	1	0.7200618545859919 E-01
7	0	0.6896831243227636 E+00	20	1	0.2089260469448788 E+00
8	0	0.2259551806421175 E-01	21	1	0.2693350675994479 E-02
9	0	0.1043738011489966 E-01	22	1	0.4764286513166310 E-02
10	0	0.3439148640648448 E-02	23	2	0.2071894447818376 E+00
11	0	0.4948742717151608 E+02	24	2	0.6094298926559347 E-01
12	0	0.1032695667477972 E+00	25	2	0.1766238088484130 E-01
13	1	0.1278740988982043 E-01	26	2	0.6225865106575760 E-02

Table A.3 – \mathcal{G}_2 : exposants et nombres quantiques ℓ caractérisant les GTOs optimisées pour He^+ et He .

<i>He</i>				
états	$E_{\mathcal{B}_1}$	Viriel	$E_{\mathcal{B}_2}$	Viriel
$1s^2 \ ^1S$	-2.8993	1.00017	-2.8996	1.00042
$1s2s \ ^1S$	-2.1452	1.00024	-2.1453	1.00035
$1s2p \ ^1P$	-2.1228	1.00044	-2.1229	1.00051
$1s3s \ ^1S$	-2.0602	0.99858	-2.0607	1.00035
$1s3d \ ^1D$	-2.0540	0.99803	-2.0550	1.00041
$1s3p \ ^1P$	-2.0519	0.99516	-2.0545	1.00041
$1s4s \ ^1S$	-2.003	1.00025	-2.033	0.99972
...
$2s^2 \ ^1S$	-0.7765	0.98978	-0.7729	0.95772
$2p^2 \ ^1D$	-0.6996	1.00204	-0.6997	1.00033
$2s2p \ ^1P$	-0.6915	0.99940	-0.6929	0.98924
$2p^2 \ ^1S$	-0.6185	1.00368	-0.6186	1.00147

Table A.4 – Bases \mathcal{B}_1 et \mathcal{B}_2 : énergies (en u.a.) des quelques états de l'atome d'hélium obtenus par diagonalisation de l'hamiltonien bi-électronique sur le produit des GTOs des bases \mathcal{G}_1 et \mathcal{G}_2 respectivement. Les valeurs du Viriel sont données dans les deux cas.

A.2 Collisions $Li^{3+} - He(1s^2)$

Dans le but de mesurer les sections efficaces des processus probables au cours de la collision de l'ion projectile Li^{3+} avec l'atome cible de l'hélium, deux bases permettant de décrire les états des partenaires de la collision sont mises en place : la base \mathcal{B}_1 qui décrit les états de l'atome cible de l'He est déjà présentée dans la section précédente (A.1). Pour l'ion projectile Li^{3+} nous avons bâti une base composée de 49 GTOs dont la constitution est résumée dans le tableau A.5 ci-dessous

Nombre de GTO sur le projectile	Type de GTO	Nombre de niveaux optimisés de Li^{2+}
	10 GTO de type s	6
49 GTO	3×8 GTO de type $p_{0,\pm 1}$	5
	5×3 GTO de type $d_{0,\pm 1,\pm 2}$	2

Table A.5 – Constitution de la base bâtie sur l'ion projectile Li^{3+} .

A.2.1 Exposants des GTOs centrées sur le projectile Li^{3+}

Nous avons optimisé les exposants des fonctions gaussiennes constituant la base qui permet de décrire les états des ions $Li^{2+}(nl)$ et $Li^+(nl n'l')$, de telle sorte de reproduire au mieux les niveaux pour lesquels dominent les processus électroniques importants : nous avons veillé à reproduire le mieux possible les niveaux $2s$ et $2p$ du fait que le processus de simple capture qui est important est majoritaire sur le niveau $n = 2$. Nous présentons dans le tableau A.6 le jeu d'exposants utilisés.

i	l	α_i	i	l	α_i
1	0	0.4418243062239361 E-01	11	1	0.6122325316385474 E-02
2	0	0.1746405513899979 E+01	12	1	0.2800752822026278 E-01
3	0	0.2936099865649515 E+02	13	1	0.2151489458097904 E-01
4	0	0.6464001586349614 E+01	14	1	0.3012256711561842 E+01
5	0	0.3958768281988533 E+00	15	1	0.7350480719972963 E+00
6	0	0.2109289767297924 E+00	16	1	0.9705917039820293 E-02
7	0	0.3036371580858595 E-01	17	1	0.2597958872596212 E+00
8	0	0.7328905656022339 E-02	18	1	0.9443514810801282 E-01
9	0	0.2014665472421780 E+03	19	2	0.1388575560754629 E-01
10	0	0.6628485502224895 E-02	20	2	0.1807101991469842 E+00
			21	2	0.3728753587281680 E-01

Table A.6 – Exposants et nombres quantiques ℓ caractérisant les GTOs optimisées pour Li^{2+} et Li^+ .

A.2.2 États de $Li^{2+}(1e^-)$ et de $Li^+(2e^-)$

Au cours de la collision $Li^{3+} - He$, l'ion Li^{3+} peut capturer un électron donnant lieu à l'ion mono-électronique $Li^{2+}(nl)$, ou il peut capturer les deux électrons donnant ainsi lieu à l'ion bi-électronique $Li^+(nl'n'l')$. Dans notre simulation les états des deux ions sont obtenus par diagonalisation de l'hamiltonien mono- et bi-électronique respectivement sur les combinaisons de GTOs et leurs produits. Les énergies des états de l'ion Li^{2+} obtenues (voir le tableau A.7), sont comparées aux valeurs d'énergie exactes données par la formule analytique $E_{exacte} = -4.5/n^2$, tandis que les valeurs d'énergie pour les états-bi-électroniques de l'ion Li^+ (voir le tableau A.8) sont comparées aux valeurs d'énergie disponibles dans la littérature.

$Li^{2+}(nl)$			
Orbitale	E_{sim}	E_{exacte}	V_{iriel}
1s	-4.4966554	-4.500	1.00059
2s	-1.1243844	-1.125	0.99953
2p	-1.1232733	-1.125	1.00348
3s	-0.4998011	-0.500	1.00266
3p	-0.4992033	-0.500	1.00047
3d	-0.4806579	-0.500	1.01863

Table A.7 – Énergies en u.a. de l'état fondamental et des premiers états excités de l'ion Li^{2+} obtenues par diagonalisation de l'hamiltonien mono-électronique sur les combinaisons linéaires de GTOs. Nous reportons les énergies exactes et les valeurs du viriel correspondant.

$Li^+(1sn'l')$					
Orbitale	E_{sim}	V_{iriel}	NIST	Diehl	Bachau
$1s^2\ ^1S$	-7.2656770	1.00093	-7.2797		
$1s2s\ ^1S$	-5.0356512	1.00057	-5.0408		
$1s2p\ ^1P$	-4.9872612	1.00079	-4.9933		
$1s3s\ ^1S$	-4.7294838	1.00069	-4.7338		
⋮	⋮	⋮	⋮		
$Li^+(2ln'l')$					
$2s^2\ ^1S$	-1.9022158	0.99529		-1,90993157	
$2p^2\ ^1D$	-1.7554240	1.01277		-1.76955027	
$2s2p\ ^1P$	-1.7422282	1.01306		-1.75595312	
$2p^2\ ^1S$	-1.6081909	1.01733		-1.62880147	
⋮	⋮	⋮		⋮	
$Li^+(3ln'l')$					
$\ ^1S$	-0.8585268	0.99137			-0.8614
$\ ^1D$	-0.8319484	0.98596			-0.8447
$\ ^1P$	-0.8175870	0.98021			-0.8297
$\ ^1D$	-0.8008434	1.00829			-0.8201
⋮	⋮	⋮			⋮

Table A.8 – Énergies en u.a. des premiers états liés $Li^+(1sn'l')$ et des états autoionisants $Li^+(2ln'l')$ et $Li^+(3ln'l')$. E_{sim} sont les énergies obtenues par notre simulation, nous reportons aussi les énergies tabulées [27], celles mesurées expérimentalement par Diehl [102] et celles obtenues par des calculs théoriques de Bachau et al. [119].

A.3 Système de collision $B^{5+} - He$

La base utilisée pour décrire les états de l'ion projectile B^{5+} est composée de 71 GTOs dont 13 orbitales de symétrie s, 11×3 orbitales de symétrie p et 5×5 orbitales de symétrie d. Le choix de l'optimisation pour cette base est effectué de telle sorte d'optimiser les six premiers niveaux de l'orbitale s, les cinq premiers niveaux de l'orbitale p, et les quatre premiers niveaux de l'orbitale d. Nous résumons dans le tableau A.9 la constitution de cette base

Nombre de GTO sur le projectile	Type de GTO	Nombre de niveaux optimisés de B^{4+}
	13 GTO de type s	6
71 GTO	3×11 GTO de type $p_{0,\pm 1}$	5
	5×5 GTO de type $d_{0,\pm 1,\pm 2}$	4

Table A.9 – Constitution de la base bâtie sur le projectile B^{5+} .

A.3.1 Exposants des GTOs centrées sur le projectile $^{10}B^{5+}$

i	l	α_i	i	l	α_i
1	0	0.8452973345622766 E+01	14	1	0.2894060296574779 E+00
2	0	0.1499452989440976 E-01	15	1	0.1567165259813841 E-01
3	0	0.2690721137619830 E+03	16	1	0.8504079552909995 E-01
4	0	0.2681994398590431 E-01	17	1	0.1842643245960300 E+00
5	0	0.1045077470801986 E+00	18	1	0.9213400672336902 E+00
6	0	0.1316492007182736 E+01	19	1	0.8281352268456131 E+00
7	0	0.1468102551560098 E+00	20	1	0.3493369978084664 E+02
8	0	0.3467187686603257 E+01	21	1	0.8084688829938882 E+01
9	0	0.5875257794834893 E+00	22	1	0.4495819548336311 E-01
10	0	0.5683461614713814 E-01	23	1	0.2579681039248458 E+01
11	0	0.2403875249676345 E+02	24	1	0.3120519405213734 E-01
12	0	0.9986186406242734 E+03	25	2	0.4785477105205066 E-01
13	0	0.7978766243894751 E+02	26	2	0.1578162493733760 E+01
			27	2	0.1135079650571193 E+00
			28	2	0.4276678219625537 E+00
			29	2	0.1930577086258523 E-01

Table A.10 – Exposants et nombres quantiques ℓ caractérisant les GTOs optimisées pour B^{4+} et B^{3+} .

A.3.2 États de $B^{4+}(1e^-)$ et de $B^{3+}(2e^-)$

$B^{4+}(nl)$			
Orbitale	E_{sim}	E_{exacte}	V_{iriel}
1s	-12.4978715	-12.50	1.00059
2p	-3.1246364	-3.125	1.00024
2s	-3.1246011	-3.125	0.99981
3p	-1.3887947	-1.388	1.00006
3s	-1.3887823	-1.388	0.99953
3d	-1.3823168	-1.388	0.99491

Table A.11 – Énergies en u.a. de l'état fondamental et des premiers états excités de l'ion B^{4+} obtenues par diagonalisation de l'hamiltonien mono-électronique sur les combinaisons linéaires des GTOs. Nous reportons les énergies exactes et les valeurs du viriel correspondant.

Les états bi-électroniques obtenus par diagonalisation de l'hamiltonien bi-électronique sur le produit des GTOs sont présentés dans le tableau A.12 ci-dessous :

$B^{3+}(nl n'l')$				
Orbitale	E_{sim}	V_{viriel}	E_{exp}	Kramida
$1s^2 \ ^1S$	-22.02203	1.00027	-22,03165	
$1s2s \ ^1S$	-14.57504	1.00013	-14,57887	
$1s2p \ ^1P$	-14.47227	1.00035	-14,47744	
$1s3s \ ^1S$	-13.40885	1.00008	-13,41217	
$1s3d \ ^1D$	-13.37973	1.00000	-13,38913	
$1s3p \ ^1P$	-13.37966	1.00027	-13,38280	
⋮	⋮	⋮	⋮	
$2s^2 \ ^1S$	-5.6596208	0.99788	-5,650403	-5,711406
$2p^2 \ ^1D$	-5.3959105	0.99970	-5,399333	-5,424764
$2s2p \ ^1P$	-5.3593505	0.91654	-5,371845	-5,391689
$2p^2 \ ^1S$	-5.1341670	1.00029	-5,136284	-5,163845
$2p3s \ ^1P$	-4.1798735	0.99961	-4,159862	-4,226745
⋮	⋮	⋮	⋮	⋮

Table A.12 – Énergies en u.a. des premiers états liés $B^{3+}(1sn'l')$ et des premiers états autoionisants $B^{3+}(2ln'l')$. E_{sim} sont les énergies obtenues par notre simulation, nous reportons aussi les énergies tabulées E_{exp} [27], et celles mesurées expérimentalement par Kramida et al. [126].

A.4 Système de collision $^{13}\text{C}^{6+} - \text{He}$

Les GTOs centrées sur l'ion projectile C^{6+} constituent une base, cette dernière est bâtie dans le but de bien décrire les états mono-électroniques de l'ion $\text{C}^{5+}(nl)$ et aussi pour bien décrire les états de l'ion bi-électronique $\text{C}^{4+}(nl n'l')$. En effet, cette base est constituée de 62 GTOs : 12 orbitales de symétrie s, 10×3 orbitales de symétrie p et 4×5 orbitales de symétrie d. Nous avons effectué une optimisation de telle sorte de reproduire le mieux possible les cinq premiers niveaux de l'orbitale s, les quatre premiers niveaux de l'orbitale p et les trois premiers niveaux de l'orbitale d (un résumé de la composition de cette base est présenté dans le tableau A.13).

Nombre de GTO sur le projectile	Type de GTO	Nombre de niveaux optimisés de C^{5+}
	12 GTO de type s	5
62 GTO	3×10 GTO de type $p_{0,\pm 1}$	4
	5×4 GTO de type $d_{0,\pm 1,\pm 2}$	3

Table A.13 – Constitution de la base bâtie sur le projectile C^{6+} .

A.4.1 Exposants des GTOs centrées sur le projectile C^{6+}

i	l	α_i	i	l	α_i
1	0	0.5732849974015478 E-01	13	1	0.1072966473937761 E+02
2	0	0.2127172066095359 E+04	14	1	0.4005087880316668 E-01
3	0	0.8149676405519103 E+00	15	1	0.1755452430696257 E+00
4	0	0.1426064264890784 E+02	16	1	0.5078765109518957 E+01
5	0	0.9785556815971290 E+02	17	1	0.2441579241116525 E+01
6	0	0.3077834414459274 E-01	18	1	0.3828030428891158 E+00
7	0	0.3482897004965513 E+02	19	1	0.3675911821852362 E+02
8	0	0.1086827778161540 E+00	20	1	0.1211685887455765 E+00
9	0	0.1305894351503943 E+01	21	1	0.8627957374678452 E-01
10	0	0.5478450397519127 E+01	22	1	0.1180083129632054 E+01
11	0	0.1979808644116285 E+00	23	2	0.5959892366015709 E+00
12	0	0.3425111941627977 E+03	24	2	0.1552899750486731 E+00
			25	2	0.2366615606488911 E+01
			26	2	0.5738527359108432 E-01

Table A.14 – Exposants et nombres quantiques ℓ caractérisant les GTOs optimisées pour C^{5+} et C^{4+} .

A.4.2 États de $C^{5+}(1e^-)$ et de $C^{4+}(2e^-)$

Cette optimisation nous a permis d'obtenir l'ensemble des états mono- et bi-électroniques dont on présente respectivement dans les tableaux A.15 et A.16 la valeur des énergies de l'état fondamental et des premiers états excités pour l'ion $C^{5+}(1e^-)$ qui sont comparées aux valeurs des énergies exactes données par la formule analytique $E_{exacte} = -18/n^2 \text{ u.a.}$, et les valeurs des énergies des premiers états liés et auto-ionisants pour l'ion $C^{4+}(2e^-)$ comparées aux données disponibles :

$C^{5+}(nl)$			
Orbitale	E_{sim}	E_{exacte}	V_{iriel}
1s	-17.9976941	-18.00	0.99997
2s	-4.4992414	-4.500	1.00002
2p	-4.4992358	-4.500	0.99992
3s	-1.9998939	-2.000	0.99970
3p	-1.9998307	-2.000	0.99997
3d	-1.9880068	-2.000	0.99539

Table A.15 – Énergies en u.a. de l'état fondamental et des premiers états excités de l'ion $C^{5+}(nl)$ obtenues par diagonalisation de l'hamiltonien mono-électronique sur les combinaisons linéaires des GTOs. Nous reportons les énergies exactes et les valeurs du viriel correspondant.

$C^{4+}(nl n' l')$				
Orbitale	E_{sim}	V_{iriel}	E_{exp}	Hansen
$1s^2 \ ^1S$	-32.3955572	0.99986	-32,4089469	
$1s2s \ ^1S$	-21.2178917	0.99987	-21,2231159	
$1s2p \ ^1P$	-21.0871847	1.00005	-21,0939574	
⋮	⋮	⋮		
$2s^2 \ ^1S$	-8.2874094	0.99849		-8,2882
$2p^2 \ ^1D$	-7.9594814	0.99951		-7,968271
$2s2p \ ^1P$	-7.9337074	0.99778		-7,939429
⋮	⋮	⋮		⋮
$2p5p \ ^1P$	-5.0224450	0.99446		-5,025998
$2s5d \ ^1D$	-5.0045133	0.98957		-4,997278
$2p5p \ ^1S$	-4.9746779	0.98989		-4,982708
⋮	⋮	⋮		⋮

Table A.16 – Énergies en u.a. des premiers états liés $C^{4+}(1sn'l')$ et des premiers états autoionisants $C^{4+}(2ln'l')$ nous avons reporté aussi les énergies des états pour lesquels la double capture est dominante. E_{sim} sont les énergies obtenues par notre simulation, nous reportons aussi les énergies tabulées E_{exp} [27], et celles mesurées expérimentalement par Hansen et al. [127].

A.5 Système de collision $^{15}\text{N}^{7+} - \text{He}$

Nous avons bâti une base de 62 GTOs pour décrire les états de l'ion projectile N^{7+} , cette base est composée de 12 orbitales de symétrie s, 10×3 de symétrie p, et 4×5 de symétrie d, pour les trois types d'orbitales nous avons effectué une optimisation de telle sorte de reproduire le mieux possible les cinq premiers niveaux de l'orbitale s, les quatre premiers niveaux de l'orbitale p et les trois premiers niveaux de l'orbitale d. nous donnons dans le tableau A.17 un résumé sur la composition de la base utilisée

Nombre de GTO sur le projectile	Type de GTO	Nombre de niveaux optimisés de N^{6+}
	12 GTO de type s	5
62 GTO	3×10 GTO de type $p_{0,\pm 1}$	4
	5×4 GTO de type $d_{0,\pm 1,\pm 2}$	3

Table A.17 – Constitution de la base bâtie sur le projectile N^{7+} .

A.5.1 Exposants des GTOs centrées sur le projectile N^{7+}

i	l	α_i	i	l	α_i
1	0	0.3258481005150528 E+00	13	1	0.1728389160247162 E+00
2	0	0.9575824737065246 E+00	14	1	0.8839258120428411 E+01
3	0	0.1374622146659864 E+00	15	1	0.1349038005640300 E+00
4	0	0.8559774350583867 E+01	16	1	0.4382105621749142 E+00
5	0	0.1849959510392886 E+01	17	1	0.1652129663816117 E+01
6	0	0.9487926224421336 E+03	18	1	0.5558596661877375 E-01
7	0	0.4627910552943618 E-01	19	1	0.2890620613442604 E+02
8	0	0.8572402414203071 E+03	20	1	0.6237551022491662 E+00
9	0	0.2956736264719844 E+02	21	1	0.1298309064400560 E+03
10	0	0.1019951851802207 E+00	22	1	0.3536398407735152 E+01
11	0	0.1098761306467798 E+03	23	2	0.7385616155509281 E-01
12	0	0.7739943109407438 E+03	24	2	0.2039780122738909 E+01
			25	2	0.6547073274772072 E+00
			26	2	0.2229207622815746 E+00

Table A.18 – Exposants et nombres quantiques ℓ caractérisant les GTOs optimisées pour N^{6+} et N^{5+} .

A.5.2 États de $\text{N}^{6+}(1e^-)$ et de $\text{N}^{5+}(2e^-)$

$\text{N}^{6+}(nl)$			
Orbitale	E_{sim}	E_{exacte}	V_{viriel}
1s	-24.490685	-24.500	1.00020
2p	-6.1247780	-6.1250	1.00000
2s	-6.1235269	-6.1250	0.99977
3p	-2.7220836	-2.7222	1.00013
3s	-2.7216836	-2.7222	0.99961
3d	-2.7111419	-2.7222	1.00959

Table A.19 – Énergies en u.a. de l'état fondamental et des premiers états excités de l'ion $\text{N}^{6+}(nl)$ obtenues par diagonalisation de l'hamiltonien mono-électronique sur les combinaisons linéaires des GTOs. Nous reportons les énergies exactes et les valeurs du viriel correspondant.

$N^{5+}(1sn'l')$					
Orbitale	E_{sim}	V_{iriel}	NIST	Ho [128]	Bachau
$1s^2\ ^1S$	-44.7578016	0.99984	-44,7879401		
$1s2s\ ^1S$	-29.1031350	0.99995	-29,1175811		
$1s2p\ ^1P$	-28.9450946	1.00025	-28,9603173		
$1s3s\ ^1S$	-26.5241464	1.00006	-26,5354323		
⋮	⋮	⋮	⋮		
$N^{5+}(2ln'l')$					
$2s^2\ ^1S$	-11.4128231	0.99907			
$2p^2\ ^1D$	-11.0247776	1.00066			
$2s2p\ ^1P$	-10.9907500	1.00009			
$2p^2\ ^1S$	-10.6417022	1.00145			
⋮	⋮	⋮			
$N^{5+}(3ln'l')$					
1S	-5.1106979	0.99160		-5,10764968	-5.110
1D	-5.0654157	0.97577		-5,06070242	-5.065
1P	-5.0298929	0.94797		-5,0192852	-5.024
1D	-4.9921523	1.00318		-5,00370577	-5.005
1S	-4.9474881	0.91905		-4,92771024	-4.931
1D	-4.9343160	0.94994		-4,9383596	-4,938
⋮	⋮	⋮		⋮	⋮

Table A.20 – Énergies en u.a. des premiers états liés $N^{5+}(1sn'l')$ et des états autoionisants $N^{5+}(2ln'l')$ et $N^{5+}(3ln'l')$. E_{sim} sont les énergies obtenues par notre simulation, nous reportons aussi les énergies tabulées [27], celles mesurées expérimentalement par Ho et al. [128] et celles obtenues par des calculs théoriques de Bachau et al. [119].

A.6 Système de collision $^{18}\text{O}^{8+} - \text{He}$

La mesure des sections efficaces pour les processus électroniques ayant lieu au cours de la collision $\text{O}^{8+} - \text{He}(1s^2)$ exigent la bonne description des états des particules produites après cette réaction. Pour cela nous avons mis en place une base de GTOs pour décrire les états de ces particules, Pour l'ion projectile O^{8+} nous avons bâti une base dont la constitution est résumée dans le tableau A.21 ci-dessous

Nombre de GTO sur le projectile	Type de GTO	Nombre de niveaux optimisés de O^{7+}
	11 GTO de type s	5
58 GTO	3×9 GTO de type $p_{0,\pm 1}$	4
	5×4 GTO de type $d_{0,\pm 1,\pm 2}$	3

Table A.21 – Constitution de la base bâtie sur le projectile O^{8+} .

A.6.1 Exposants des GTOs centrées sur le projectile O^{8+}

i	l	α_i	i	l	α_i
1	0	0.2957458382328193 E+01	12	1	0.3933000183705937 E+01
2	0	0.3597416186559913 E+02	13	1	0.7206804448295805 E-01
3	0	0.1260634622346276 E+00	14	1	0.1468108878026052 E+01
4	0	0.3995896260546740 E+00	15	1	0.6513085817757361 E+00
5	0	0.3615319217013805 E+00	16	1	0.2128705222933221 E+00
6	0	0.9522966378517385 E+03	17	1	0.3791762556385257 E+02
7	0	0.1493942112664555 E+03	18	1	0.2477562482235061 E+00
8	0	0.1107579859362138 E+02	19	1	0.1679459969959805 E+03
9	0	0.1510867971009513 E+01	20	1	0.1133052746679724 E+02
10	0	0.1136212575823152 E+00	21	2	0.1014931576620454 E+00
11	0	0.5283731309159700 E-01	22	2	0.9273552796208041 E+00
			23	2	0.2685824473798179 E+01
			24	2	0.2712653701953484 E+00

Table A.22 – Exposants et nombres quantiques ℓ caractérisant les GTOs optimisées pour O^{7+} et O^{6+}

A.6.2 États de $O^{7+}(1e^-)$ et de $O^{6+}(2e^-)$

$O^{7+}(nl)$			
Orbitale	E_{sim}	E_{exacte}	V_{iriel}
Orbitale	E_{sim}	E_{exacte}	V_{iriel}
1s	-31.97297	-32.00	1.00111
2p	-7.999356	-8.000	1.00004
2s	-7.996421	-8.000	1.00041
3p	-3.555183	-3.555	1.00002
3s	-3.554475	-3.555	1.00019
3d	-3.536456	-3.555	1.00264

Table A.23 – Énergies en u.a. de l'état fondamental et des premiers états excités de l'ion $O^{7+}(nl)$ obtenues par diagonalisation de l'hamiltonien mono-électronique sur les combinaisons linéaires des GTOs. Nous reportons les énergies exactes et les valeurs du viriel correspondant.

$O^{6+}(nln'l')$						
Orbitale	E_{sim}	V_{iriel}	E_{exp}	Bachau	Ho [120]	Ho [121]
$1s^2 \ ^1S$	-59.146797	1.00010	-59,169545			
$1s2s \ ^1S$	-38.227825	1.00095	-38,263513			
$1s2p \ ^1P$	-38.042468	1.00102	-38,077520			
$1s3s \ ^1S$	-34,764092	1.00101	-34.734454			
$1s3p \ ^1P$	-34.680496	1.00103	-34,708824			
$1s3d \ ^1D$	-34.679326	1.00075	-34,722858			
⋮	⋮	⋮	⋮			
$2s^2 \ ^1S$	-15.035487	0.99964				
$2p^2 \ ^1D$	-14.589023	1.00059	-14,570847			
$2s2p \ ^1P$	-14.551216	0.99831	-14,541414			
⋮	⋮	⋮	⋮			
$3s3s \ ^1S$	-6.7229315	0.99815		-6,728	-6,72505454	
$p3p \ ^1D$	-6.6631378	0.99706		-6,675		
$3p4p \ ^1P$	-6.6142954	0.99232		-6,628	-6,62511043	
$3d3d \ ^1D$	-6.5841894	1.00014		-6,607		-6,6053888
$3d3d \ ^1D$	-6.4995673			-6.530		
$3d3d \ ^1S$	-6.4921119			-6.520	-6,51641682	
⋮	⋮			⋮	⋮	⋮

Table A.24 – Énergies en u.a. des premiers états liés $O^{6+}(1sn'l')$ et des premiers états autoionisants $O^{6+}(nln'l')$ avec $n = 2, 3$. E_{sim} sont les énergies obtenues par notre simulation, nous reportons aussi les énergies tabulées E_{exp} [27], et celles obtenues par Bachau [119] et Ho [120, 121].

A.7 Système de collision $^{19}F^{9+} - He$

La base bâtie pour décrire les états de l'ion projectile F^{9+} et les ions $F^{8+}(nl)$ et $F^{7+}(nl'n'l')$ produits au cours de la collision $F^{9+} - He(1s^2)$, est composée de 58 GTOs dont 11 orbitales de symétrie s, 3×9 orbitales de symétrie p, et 5×4 orbitales de symétrie d. L'optimisation des exposants de ces GTOs est effectuée tout en garantissant la meilleure description des quatre premiers niveaux de l'orbitale s, les trois premiers niveaux de l'orbitale p, et les trois premiers niveaux de l'orbitale d (un résumé de la composition de cette base est donné dans le tableau A.25). Les valeurs des énergies obtenues pour ces états mono-électroniques sont comparées aux valeurs des énergies exactes données par la formule analytique $E_{exacte} = -40.5/n^2$ u.a.. En ce qui concerne les valeurs des énergies des états de l'ion bi-électronique $F^{7+}(nl'n'l')$, elles sont obtenues par diagonalisation de l'hamiltonien bi-électronique sur la base centrée sur l'ion projectile F^{9+} et elles sont comparées aux données disponibles dans la littérature.

Nombre de GTO sur le projectile	Type de GTO	Nombre de niveaux optimisés de F^{8+}
	11 GTO de type s	4
58 GTO	3×9 GTO de type $p_{0,\pm 1}$	3
	5×4 GTO de type $d_{0,\pm 1,\pm 2}$	3

Table A.25 – Constitution de la base bâtie sur l'ion projectile F^{9+} .

A.7.1 Exposants des GTOs centrées sur le projectile F^{9+}

i	l	α_i	i	l	α_i
1	0	0.6991347717328746 E+02	12	1	0.3215888369864037 E+00
2	0	0.9830460312936998 E+03	13	1	0.1767869950854087 E+00
3	0	0.2718361741253656 E+03	14	1	0.1824518079064389 E+01
4	0	0.2731476264404298 E+02	15	1	0.1675850231117462 E+02
5	0	0.2474089985108298 E+01	16	1	0.5985059150114191 E+01
6	0	0.1398364804158784 E+01	17	1	0.2639148271991341 E+01
7	0	0.8893639552910095 E+03	18	1	0.2769777242301728 E+03
8	0	0.1519535698157067 E+00	19	1	0.7037390180590667 E+00
9	0	0.4759675057892673 E+00	20	1	0.5857627261173145 E+02
10	0	0.3711556660787722 E+00	21	2	0.3631400908381669 E+00
11	0	0.1209419678233748 E+02	22	2	0.1196024781450676 E+01
			23	2	0.1232117541611176 E+00
			24	2	0.3684045498723158 E+01

Table A.26 – Exposants et nombres quantiques ℓ caractérisant les GTOs optimisées pour F^{8+} et F^{7+}

A.7.2 États de $F^{8+}(1e^-)$ et de $F^{7+}(2e^-)$

$F^{8+}(nl)$			
Orbitale	E_{sim}	E_{exacte}	V_{iriel}
1s	-40.469511	-40.500	1.00053
2p	-10.124608	-10.125	1.00000
2s	-10.121486	-10.125	1.00034
3p	-4.4998290	-4.5000	1.00000
3s	-4.4988201	-4.5000	1.00004
3d	-4.4813242	-4.5000	1.00245

Table A.27 – Énergies en u.a. de l'état fondamental et des premiers états excités de l'ion F^{8+} obtenues par diagonalisation de l'hamiltonien mono-électronique sur les combinaisons linéaires des GTOs. Nous reportons les énergies exactes et les valeurs du viriel correspondant.

$F^{7+}(nl n'l')$						
Orbitale	E_{sim}	V_{iriel}	E_{exp}	Bachau	Ho [120]	Ho [121]
$1s^2 \ ^1S$	-48.6165077	1.00028	-48, 6585539			
$1s2p \ ^1P$	-48.4045043	1.00050	-48, 4453027			
$1s2s \ ^1S$	-44.0697697	1.00042	-44, 10146641			
$1s3d \ ^1D$	-44.0094923	1.00031	-44, 0439188			
⋮	⋮	⋮	⋮			
$2p^2 \ ^1D$	-18.6545791	1.00030	-18, 6383123			
$2s2p \ ^1P$	-18.6063841	1.00005	-18, 6092916			
$2p^2 \ ^1S$	-18.6545791	1.00030	-18, 3806538			
⋮	⋮	⋮	⋮			
$\ ^1S$	-8.5695642	0.98164		-8.567	-8, 56469638	
$\ ^1D$	-8.5013722	0.99202		-8, 508		
$\ ^1P$	-8.4509077	0.98849		-8, 455	-8, 45090307	
$\ ^1D$	-8.4088316	1.00038		-8, 431		-8, 42925833
⋮	⋮	⋮		⋮	⋮	⋮

Table A.28 – Énergies en u.a. des premiers états liés $F^{7+}(1sn'l')$ et des premiers états autoionisants $F^{7+}(nl n'l')$ avec $n = 2, 3$. E_{sim} sont les énergies obtenues par notre simulation, nous reportons aussi les énergies tabulées E_{exp} [27], et celles obtenues par Bachau [119] et Ho ([120, 121]).

A.8 Système de collision $^{20}\text{Ne}^{10+} - \text{He}$

Modéliser les processus collisionnels probables au cours de la collision des ions de Ne^{10+} avec l'atome cible d'hélium nécessite une bonne description des états des particules produites au cours de la collision. Pour l'ion projectile et les ions qui lui correspondent (i.e. $\text{Ne}^{9+}(nl)$ et $\text{Ne}^{8+}(nl'n'l')$) nous avons construit une base de GTOs composée de 58 orbitales gaussiennes dont 11 orbitales de symétrie s, 3×9 orbitales de symétrie p, et 5×4 orbitales de symétrie d. Toutes ces orbitales sont optimisées pour mieux reproduire les quatre premiers niveaux de l'orbitale s, les trois premiers niveaux de l'orbitale p, et les trois premiers niveaux de l'orbitale d. Nous résumons dans le tableau A.29 la constitution de cette base.

Nombre de GTO sur le projectile	Type de GTO	Nombre de niveaux optimisés de Ne^{9+}
	11 GTO de type s	4
58 GTO	3×9 GTO de type $p_{0,\pm 1}$	3
	5×4 GTO de type $d_{0,\pm 1,\pm 2}$	3

Table A.29 – Constitution de la base bâtie sur l'ion projectile Ne^{10+} .

A.8.1 Exposants des GTOs centrées sur le projectile Ne^{10+}

i	l	α_i	i	l	α_i
1	0	0.9927329433434388 E+03	12	1	0.4782657592306641 E+01
2	0	0.8954217373454215 E+03	13	1	0.1788359560590380 E+01
3	0	0.7546234603833337 E+00	14	1	0.1333029607726225 E+01
4	0	0.8079818251345097 E+03	15	1	0.3305809598056795 E+00
5	0	0.1455867217156822 E+03	16	1	0.3683312408743802 E+02
6	0	0.1565107263533707 E+02	17	1	0.2067039165946078 E+00
7	0	0.4560525198618649 E+01	18	1	0.1218016432040700 E+02
8	0	0.4592766673989627 E+02	19	1	0.7049556552820527 E+00
9	0	0.2264013595956441 E+01	20	1	0.1556926923775728 E+03
10	0	0.1973683572790534 E+00	21	2	0.4387057483423076 E+00
11	0	0.6126657757054559 E+00	22	2	0.1575796569006786 E+01
			23	2	0.5987528457069168 E+01
			24	2	0.1572543679425075 E+00

Table A.30 – Exposants et nombres quantiques ℓ caractérisant les GTOs optimisées pour Ne^{9+} et Ne^{8+}

A.8.2 États de $\text{Ne}^{9+}(1e^-)$ et de $\text{Ne}^{8+}(2e^-)$

La diagonalisation de l'hamiltonien mono-électronique sur la base des GTOs optimisée pour décrire les états de l'ion projectile Ne^{10+} , nous a permis d'obtenir les états de l'ion mono-électronique Ne^{9+} produit au cours de la collision $\text{Ne}^{10+} - \text{He}$ ces états sont reportés à 58 états, et que nous avons pu comparer aux valeurs des énergies exactes données par la formule $E_{\text{exacte}} = -50/n^2 \text{ u.a.}$. Nous présentons dans le tableau A.31 les valeurs des énergies de l'état fondamental et des premiers états excités obtenues par notre simulation de l'ion mono-électronique Ne^{9+} , nous reportons aussi les valeurs correspondantes du viriel.

$Ne^{9+}(nl)$			
Orbitale	E_{sim}	E_{exacte}	V_{iriel}
1s	-49.969775	-50.00	1.00084
2p	-12.499299	-12.50	1.00007
2s	-12.496055	-12.50	1.00036
3p	-5.5553068	-5.555	1.00001
3s	-5.5539467	-5.555	1.00003
3d	-5.5296147	-5.555	0.99998

Table A.31 – Énergies en u.a. de l'état fondamental et des premiers états excités de l'ion Ne^{9+} obtenues par diagonalisation de l'hamiltonien mono-électronique sur les combinaisons linéaires des GTO. Nous reportons les énergies exactes et les valeurs du viriel correspondant.

Au cours de la collision de l'ion projectile Ne^{10+} avec l'atome cible d' $He(1s^2)$, l'ion projectile nu peut capturer dans un premier temps les deux électrons de la cible donnant ainsi lieu à l'ion bi-électronique $Ne^{8+}(nl'n'l')$, dans un deuxième temps l'un des deux électrons peut être ionisé (i.e. il se désintègre par auto-ionisation ($n > 1$)). La détermination des valeurs des énergies des états de l'ion produit $Ne^{8+}(nl'n'l')$ se fait par la diagonalisation de l'hamiltonien bi-électronique sur la base optimisée que nous avons bâti pour décrire les états de l'ion projectile Ne^{10+} . Les énergies obtenues dans notre simulation sont présentées dans le tableau A.32 et sont comparées aux mesures expérimentales [27] et aux calculs théoriques effectués par [119–121]. Les données pour les orbitales 1F au dessous de troisième seuil d'ionisation entre $N = 2$ et $N = 3$ sont mentionnées dans la référence [122] notre base inclue aussi ces orbitales mais l'analyse que nous avons fait indiquent qu'elles ne sont pas incluses dans des états auto-ionisants. La description des ces orbitales peut être améliorée en considérant une base plus grande or ça demande un temps de calcul énorme dans notre simulation c'est pour ça le nouveau développement avec la méthode de

réccurance peut jouer un rôle primordial dans la description des états auto-ionisants supérieurs.

$Ne^{8+}(1sn'l')$							
Orbitale	E_{sim}	V_{iriel}	NIST	[120]	[121]	[122]	Bachau
$1s^2\ ^1S$	-93.8443	1.00081	-93,94478				
$1s2s\ ^1S$	-60.2609	1.00074	-60,30705				
$1s2p\ ^1P$	-60.0205	1.00076	-60,06158				
⋮	⋮	⋮	⋮				
$Ne^{8+}(2ln'l')$							
$2p^2\ ^1D$	-23.2194	1.00002	-23,18317				
$2s2p\ ^1P$	-23.1570	0.99470	-23,14307				
$2p^2\ ^1S$	-22.6598	1.00031	-22,2876				
⋮	⋮	⋮	⋮				
$Ne^{8+}(3ln'l')$							
1S	-10.6229	0.99836		-10,6264			-10,63
1D	-10.5442	0.99712					-10,56
1P	-10.4833	0.99541		-10,4988			-10,50
⋮	⋮	⋮		⋮		⋮	
1D	-5.8987	0.99323				-5,9364	
1G	-5.7697	0.99352					
1D	-5.6539	0.99390				-5,8226	

Table A.32 – Les énergies en u.a. des premiers états liés $Ne^{8+}(1sn'l')$ et des états autoionisants $Ne^{8+}(2ln'l')$ et $Ne^{8+}(3ln'l')$. E_{sim} sont les énergies obtenues par notre simulation, nous reportons aussi les énergies tabulées [27], et celles obtenues par des calculs théoriques de Bachau et al. [119] et par Ho et al. [120–122].

Bibliographie

- [1] I.V. Hertel, and C.P. Schulz. *Atoms, Molecules and Optical Physics 2*.
Atoms, Molecules and Optical Physics 2 (Springer, 2015).
- [2] B.H. Bransden, and C.J. Joachain. *Physics of Atoms and Molecules*.
Physics of Atoms and Molecules (Pearson, 2003).
- [3] voir par exemple Atomic and plasma-material interaction data for fusion. *Physics of Atoms and Molecules*.
Volume 13 (International Atomic Energy Agency, Vienna, 2007).
- [4] D. S. F. Crothers and M. McCartney. *ION : a program to evaluate cross sections for ionisation in ion-atom collisions*.
Computer Physics Communications 72 : 288, 1992.
- [5] C. Harel and A. Salin. *Charge exchange in collisions of highly ionised ions and atoms*.
Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 10 : 3511, 1977.
- [6] J. B. Delos. *Theory of electronic transitions in slow atomic collisions*.
Reviews of Modern Physics 53 : 287, 1981.
- [7] D. R. Bates and R. McCarroll. *Electron capture in slow collisions*. Proceeding of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences 245 : 1241, 1958.

- [8] R. E. Olson. *Electron-capture and impact-ionization cross sections for multiply charged ions colliding with helium*.
Physical Review A 18 : 2464, 1978.
- [9] L. Meng, C. O. Reinhold, and R. E. Olson. *Subshell electron capture in collisions of fully stripped ions with He and H₂ at intermediate energies*.
Physical Review A 42 : 5286, 1990.
- [10] « Gesellschaft für Schwerionenforschung » : centre de recherche sur les ions lourds.
<https://www.gsi.de/en/researchaccelerators/fair.htm>.
- [11] Grand Accélérateur d'Ions Lourds <http://www.ganil-spiral2.eu/spiral2>.
- [12] B. H. Bransden and M. R. C McDowell. *Charge exchange and the theory of ion-atom collisions*, Clarendon Press-Oxford, 1992.
- [13] R. Y. Cusson, R. K. Smith, and J. A. Maruhn. *Time-dependent Hartree-Fock calculation of the reaction $^{16}\text{O} + ^{16}\text{O}$ in three dimensions*. Physical Review Letters 36 : 1166, 1976.
- [14] K. T. R. Davies, V. Marhun-Rezwani, S. E. Koonin, and J. W. Negele. *Test of the time-dependent mean-field theory in Kr-induced strongly damped collisions*. Physical Review Letters 41 : 632, 1978.
- [15] S. E. Koonin, K. T.R. Davies, V. Maruhn-Rezwani, H. Feldmeier, S. J. Krieger, and J. W. Negele. *Time-dependent Hartree-Fock calculations for $^{16}\text{O} + ^{16}\text{O}$ and $^{40}\text{Ca} + ^{40}\text{Ca}$ reactions*. Physical Review C 15 : 1359, 1977.
- [16] C. Bottcher. *Accurate quantal studies of ion-atom collisions using finite-element techniques*. Physical Review Letters 48 : 85, 1982.
- [17] V. Marhun-Rezwani, N. Grün, and W. Scheid. *Numerical solution of the time-dependent Schrödinger equation and application to $H^+ - H$* . Physical Review Letters 43 : 512, 1979.

BIBLIOGRAPHIE

- [18] M. S. Pindzola and D. R. Schultz. *Time-dependent lattice methods for ion-atom collisions in cartesian and cylindrical coordinate systems*. Physical Review A 77 : 014701, 2008.
- [19] N. Sisourat. *Etude théorique de phénomènes d'interférences au cours de collisions atomiques et moléculaires*. Thèse de doctorat, Université Paris-Sorbonne-Paris 6, 2006.
- [20] H. Agueny. *Etude théorique des processus électroniques ayant lieu au cours de collisions atomiques et moléculaires : approches non perturbatives*. Thèse de doctorat, Université Paris-Sorbonne-Paris 6, 2014.
- [21] G. Caillat. *Etude théorique des processus électroniques au cours de collisions ion-atomes et ion-molécules*. Thèse de doctorat, Université Paris-Sorbonne-Paris 6, 2003.
- [22] G. Labaigt. *Etude théorique de processus multi-électroniques au cours de collisions atomiques et moléculaires*. Thèse de doctorat, Université Paris-Sorbonne-Paris 6, 2014.
- [23] McCarroll R. *Charge exchange and ionisation in ion-atom collisions*. In F.A Gianturco, editeur, Atomic and molecular collision theory, Gontingen, Pays-Bas, 1980.
- [24] M. van der Poel, C. V. Nielsen, M. A. Gearba, and N. Andersen. *Fraunhofer Diffraction of atomic matter waves : Electron transfer studies with a laser cooled target*. Physical Review Letters, 87 : 123201, 2001.
- [25] S. E. Nielsen, J. P. Hansen, and A. Dubois. *Propensity rules for orientation in singly-charged ion-atom collisions*. Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics 23 : 2595, 1990.
- [26] J. Holland. *Adaptation in Natural and Artificial systems*. Ann Arbor, 1975.
- [27] National Institute of Standard and Technology-Atomic Spectra Database, [http : // physics.nist.gov / cgi-bin / AtData / mainasd](http://physics.nist.gov/cgi-bin/AtData/mainasd).

- [28] J. Wang, J. P. Hansen, and A. Dubois. *Neutralization and charge transfer in $H^+ - H^-$ and $H - H$ collisions*. Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics, 33 : 241, 2000.
- [29] J. Caillat, A. Dubois, I. Sundvor, and J. P. Hansen. *Classical and semiclassical calculations of electron transfer cross sections in keV-energy ion-molecule collisions*. Physical Review A 70 : 032715, 2004.
- [30] N. Sisourat, I. Piskog, and A. Dubois. *Nonperturbative treatment of multielectron processes in ion-molecule scattering : Application to $He^{2+} - H_2$ collisions*. Physical Review A 84 : 052722, 2011.
- [31] A. Ibaaz, R. Esteban Hernandez, A. Dubois, and N. Sisourat. *Excitation into high-lying states in $Li^{3+} - H$ collisions*. Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics, 49 : 085202, 2016.
- [32] L. F. Shampine and M. K. Gordon. *Computer solution of ordinary differential equations : the Initial value problem*. Freeman, San Fransisco, 1975.
- [33] E. Lindroth. *Calculation of doubly excited states of helium with a finite discrete spectrum*. Physical Review A 49 : 4473, 1994.
- [34] C. Harel and A. Salin. *Application of OEDM orbitals to many-elctron systems : $He^{2+} - He$ collisions*. Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics 13 : 785, 1980.
- [35] R. Shingal and C. D. Lin. *Calculations of 2-electron transition cross-sections between fully stripped ions and helium-atoms*. Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics 24 : 251, 1991.
- [36] H. F. Busnengo, A. E. Martinez, and R. D. Rivarola. *Single electron capture from He targets*. Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics 29 : 4193, 1996.

BIBLIOGRAPHIE

- [37] Y. D. Wang, N. Toshima, and C. D. Lin. *One- and two-electron processes in collisions of He with 10 – 500 keV/amu Be^{q+} (q = 2 – 5) ions*. Physica Scripta T62 : 63, 1996.
- [38] H. F. Busnengo, S. E. Corchs, A. E. Martinez, and R. D. Rivarola. *Single electron capture by impact of multicharged ions*. Physica Scripta, T73 : 242, 1997.
- [39] A. L. Godunov, J. H. McGuire, V. S. Schipakov, H. R. J. Walters, and Colm T. Whelan. *Total cross sections for transfer ionization in fast ion-helium collisions*. Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics 39 : 987, 2006.
- [40] J. A. Guffey, L. D. Ellsworth, and J. R. Macdonald. *X-ray cross sections in helium for electron capture to excited states by bare nuclei with $5 \leq Z_1 \leq 9$* . Physical Review A 15 : 1863, 1977.
- [41] T. Iwai, Y. Kaneko, N. Kobayashi, S. Ohtani, K. Okuno, S. Takagi, H. Tawara and S. Tsurubuchi. *Cross sections for one-electron capture by highly stripped ions of B, C, N, O, F, Ne, and S from He below 1 keV/amu*. Physical Review A 26 : 105, 1982.
- [42] R. D. DuBois. *Ionization and charge-transfer in He²⁺-rare-gas collisions*. Physical Review A 33 : 1595, 1986.
- [43] R. D. DuBois. *Ionization and charge transfer in He²⁺-rare-gas collisions .2*. Physical Review A 36 : 2585, 1987.
- [44] R. Hippler, S. Datz, P. D. Miller, P. L. Pepmiller, and P. F. Dittner. *Double- and single-electron capture and loss in collisions of 1 – 2 Mev/u boron, oxygen, and silicon projectiles with helium atoms*. Physical Review A 35 : 585, 1987.
- [45] J. L. Shinpaugh, J. M. Sanders, J. M. Hall, D. H. Lee, Schmidt-Böcking, T. N. Tipping, T. J. M. Zouros, and P. Richard. *Electron capture and target ionization in collisions of bare projectile ions incident on helium*. Physical Review A 45 : 1922, 1992.

-
- [46] M. B. Shah and H. B. Gilbody. *Formation of $He^+(2S)$ metastable ions in passage of $10 - 60 \text{ keV } ^3He^{2+}$ ions through gases.* Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics 7 : 256, 1974.
- [47] W. Fritsch. *Theoretical study of electron processes in slow $He^{2+} - He$ collisions.* Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics 27 : 3461, 1994.
- [48] M. S. Gravielle and J. E. Miraglia. *state-selective scaling in electron capture by multicharged ions on light atoms.* Physical Review A 51 : 2131, 1995.
- [49] D. Rabli, M. Gargaud, and R. McCarroll. *Electron capture and excitation in low-energy collisions of He^{2+} with metastable 2^1S and 2^3S He.* Physical Review A 64 : 022707, 2001.
- [50] I. Mančev, N. Milojević, and D. Belkić. *State-selective and total single-capture cross sections for fast collisions of multiply charged ions with helium atoms.* Few-Body Systems 54 : 1889, 2013.
- [51] M.B. Shah, H.B. Gilbody. *Single and double ionisation of helium by H^+ , He^{2+} and Li^{3+} ions.* Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics 18 : 899, 1985.
- [52] S. Bliman, M. Bonnefoy, J. J. Bonnet, S. Dousson, A. Fleury, D. Hitz, and B. Jacquot. *Charge exchange collision experiments with highly charged ions -Status Report-.* Physica Scripta T3 : 63, 1983.
- [53] S. Bliman, J. J. Bonnet, D. Hitz, T. Ludac, M. Druetta, and M. Mayo. *One and two electron transfer at low collision energy : spectroscopic case studies.* Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B27 : 579, 1987.
- [54] X. Flechard, S. Duponchel, L. Adoui, A. Cassimi, P. Roncin, and D. Hennecart. *States-selective double-electron capture in low-velocity $Ne^{10+} + He$ collisions studied by recoil-ion momentum spectroscopy.* Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics 30 : 3697, 1997.

BIBLIOGRAPHIE

- [55] M. Purkait. *Double electron capture cross sections of the ground state in the collisions of He^{2+} and Li^{3+} with He*. The European Physical Journal 30 : 11, 2004.
- [56] J.H. McGuire and L. Weaver. *Independent electron approximation for atomic scattering by heavy particles*. Physical Review A 16 : 41, 1977.
- [57] M. Ghosh, C.R. Mandal, and S.C. Mukherjee. *Single and double electron capture from lithium by fast α particles*. Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics 18 : 3797, 1985.
- [58] R. Gayet, J. Hanssen, L. Jacqui, A. Martinez, and R. Rivarola. *Double electron capture by fast bare ions in helium atoms : Production of singly and doubly excited states*. Physica Scripta 33 : 549, 1996.
- [59] M.S. Gravielle, J.E. Miraglia. *Double-electron capture as a two-step process*. Physical Review A 45 : 2965, 1992.
- [60] Dz. Belkic. *Intermediate ionization continua for double charge exchange at high impact energies*. Physical Review A 47 : 3824, 1993.
- [61] Dz. Belkic. *Two-electron capture from helium-like atomic systems by completely stripped projectiles*. Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics 26 : 497, 1993.
- [62] J. Y. Chesnel, H. Merabet, X. Husson, F. Frémont, D. Lecler, H. Jouin, C. Harel, and N. Stolterfoht. *Energy dependence of cross sections for double-electron capture in $48 - 132$ keV $C^{6+} + He$ collisions*. Physical Review A 53 : 2337, 1996.
- [63] J. Y. Chesnel, B. Sulik, H. Merabet, F. Frémont, X. Husson, M. Grether, A. Spieler, and N. Stolterfoht. *Enhancement of dielectronic processes in $Ne^{10+} + He$ collisions at low keV energies*. Physical Review A 57 : 3546, 1998.
- [64] N.V. de Castro Faria, F.L. Freire, Jr., and A.G. Pinho. *Electron loss and capture by fast helium ions in noble gases*. Physical Review A 37 : 280, 1988.

- [65] A. Bordenave-Montesquieu, A. Gleizes, P. Benoit-Cattin. *Excitation of the helium autoionizing states in $He^+ + He$ collisions, between 3 and 140 keV*. Physical Review A 25 : 245, 1982.
- [66] A. Bordenave-Montesquieu, P. Benoit-Cattin, A. Gleizes, A. I. Marrakchi, S. Dousson, and D. Hitz. *Autoionization of $N^{5+}(nl'n'l')$ with $n = 2, 3, 4$ and $n' \geq n$ measured by electron spectrometry in collisions of N^{7+} with He and H_2 , at $4.9 \text{ keV } amu^{-1}$* . Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 17 : L127, 1984.
- [67] A. Bordenave-Montesquieu, P. Benoit-Cattin, A. Gleizes, A. I. Marrakchi, S. Dousson, and D. Hitz. *Two-electron capture into autoionizing configurations $N^{4+}(1snln'l')$ with $n = 2, 3, 4$ and $n' \geq n$, observed by electron spectrometry in collisions of $N^{6+}(1s)$ with He and H_2 , at $4.2 \text{ keV } amu^{-1}$* . Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 17 : L223, 1984.
- [68] R. Bartiromo. *Diagnostics for Fusion Reactor Condition*, Proceedings of the International School of Plasma Physics, edited by P. E. Stott, D. K. Akulina, G. G. Leota, E. Sindoni, and C. Wharton (Pergamon, New York, 1982).
- [69] T. R. Dillingham, J. R. Macdonald, and Patrick Richard. *Ionization of one-electron ions and capture by bare and one-electron ions of C, N, O, and F on He*. Physical Review A 24 : 3, 1981.
- [70] V. K. Nikulin and A. V. Samoylov. *On the role of correlated double-electron capture in slow multiply charged N^{7+} collisions with He*. Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 22 : 201, 1989.
- [71] M. Kimura and R. E. Olson. *Electron capture to (nl) states in collisions of C^{4+} and C^{6+} with He*. Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 17 : 713, 1984.
- [72] W. Fritsch and C. D. Lin. *Atomic-orbital expansion study for the (quasi-)two-electron collision systems $O^{6+} + He$ and $C^{6+} + He$* . Journal of Physics B : Atomic

- and Molecular Physics 19 : 2683, 1986.
- [73] I. Pilskog, N. Sisourat, J. Caillat, and A. Dubois. *Double capture into auto-ionizing states in low-energy He^{2+} -, Li^{3+} -, and B^{5+} - H_2 collisions*. Physical Review A 85 : 042712, 2012.
- [74] R. Mann, and C. L. Cocke. *Selective final state population in electron capture by lower-energy highly charged projectiles studied by energy-gain spectroscopy*. Physical Review Letters 49 : 18, 1982.
- [75] S. Ohtani, Y. Kaneko, M. Kimura, M. N. Kobayashi, T. Iwai, A. Matsumoto, K. Okuno, S. Takagi, H. Tawara, and S. Tsurubuchi. *Observation of electron-capture into selective state by fully stripped ions from He atom*. Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 15 : L533, 1982.
- [76] P. Roncin, M. Barat, H. Laurent, J. Pommier, S. Dousson, and D. Hitz. *Transfer ionization and 2-electron capture processes in N^{6+} - He collisions at 3 - 34 keV energies*. Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 17 : L521, 1984.
- [77] E. H. Nielsen, L. H. Andersen, A. Barany, H. Cederquist, J. Heinemeir, P. Hvelplund, H. Knudsen, K.B. Maladan, and J. Sorensen. *Energy gain-spectroscopy of state-selective electron-capture for multiply charged Ar recoil ions*. Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 18 : 1789, 1985.
- [78] J. P. Giese, C. L. Cocke, W. Waggoner, L. N. Tunnell, and S. L. Varghese. *Energy gain-spectroscopy of electron-capture collisions between low-energy Ar and Ne projectiles and atomic and molecular deuterium targets*. Physical Review A 34 : 3770, 1986.
- [79] M. Barat, M. N. Gaboriaud, L. Guillemot, P. Roncin, H. Laurent, and S. Andriamonje. *Coincident energy gain spectroscopy of electron capture in multiply charged ions colliding with He, H_2 and heavy rare-gas targets*. Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 20 : 5771, 1987.

- [80] R. Moshhammer, J. Ullrich, H. Kollmus, W. Schmitt, M. Unverzagt, H. Schmidt-Böcking, C. J. Wood, and R. E. Olson. *Complete momentum balance for single ionization of helium by fast ion impact : Experiment*. Physical Review A 56 : 1351, 1997.
- [81] M. A. Abdallah, W. Wolff, H. E. Wolf, E. Sidky, E. Y. Kamber, M. Stöckli, C. D. Lin, and C. L. Cocke. *Cold-target recoil-ion-momentum spectroscopy study of single electron capture from He by slow Ar⁸⁺ ions*. Physical Review A 57 : 4373, 1998.
- [82] J.-Y. Chesnel, H. Merabet, B. Sulik, F. Frémont, C. Bedouet, X. Husson, M. Grether, and N. Stolterfoht. *Radiative stabilization following double-electron capture in slow Ne¹⁰⁺+He collisions*. Physical Review A 58 : 2935, 1998.
- [83] R. Ünal, P. Richard, I. Ben-Itzhak, C. L. Cocke, M. J. Singh, H. Tawara, and N. Woody. *Systematic study of charge-state and energy dependences of transfer-ionization to single-electron-capture ratios for F⁹⁺ ions incident on He*. Physical Review A 76 : 012710, 2007.
- [84] S. Bliman, M. Bonnefoy, J. J. Bonnet, S. Dousson, A. Fleury, D. Hitz and B. Jacquot. *Charge exchange collision experiments with highly charged ions*. Physica Scripta. T3 : 63, 1983.
- [85] S. Bliman, D. Hitz, B. Jacquot, C. Harel, and A. Salin. *Charge exchange in the O⁸⁺ – He collision at keVamu⁻¹ energies*. Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 16 : 2849, 1983.
- [86] C. Harel and H. Jouin. *Electron capture by slow multicharged ions : core effect on final l distributions*. Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 21 : 859, 1988.
- [87] C. Harel and H. Jouin. *Autoionizing double capture in N⁷⁺ on helium collisions at low energies*.

- Europhysics Letters 11 : 121, 1990
- [88] M. F. Politist, H. Jouin, M. Bonnefoy, J. J. Bonnet, M. Chassevent, A. Fleuryt, S. Bliman, and C. Harel. *Relative (n,l) populations following electron capture by low energy N^{7+} , O^{8+} and Ne^{8+} ions from two-electron targets (H_2, He)*. Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 20 : 2267, 1987.
- [89] D. H. Crandall, R. E. Olson, E.J. Shipsey, and J. C. Browne. *Single and double charge transfer in $C^{4+} - He$ collisions*. Physical Review Letters. 36 : 858, 1976.
- [90] J. E. Bayfield, and G. A. Khayrallah. *Electron transfer in keV-energy $^4He^{++}$ atomic collisions. I. Single and double electron transfer with He, Ar, H_2 and N_2* . Physical Review A 11 : 920, 1976.
- [91] S. Tsurubuchi, T.Iwai, Y. Kaneko, M. Kimura, N. Kobayashi, A. Matsumoto, S. Ohtani, K.Okuno, S. Takagi, and H. Tawara. *Two-electron capture into autoionizing states of $N^{5+}(3l3l')$ and $O^{5+}(1s3l3l')$ in collisions of N^{7+} and O^{5+} with He*. Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 15 : L733, 1982.
- [92] H. Cederquist, L. H. Anderson, A. Barany, P. Hvelplund, H. Knudsen, E. H. Nielsen, J. O. K. Pedersen, and J. Sorensen. *State-selective single- and double-electron capture processes in slow $C^{4+} + He, Ne, Ar$ and Xe collisions*. Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 18 : 3951, 1985.
- [93] C. Harel, H. Jouin, and B. Pons. *Double capture in $C^{6+} - He$ collisions at low impact energies*. Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 24 : L2425, 1991.
- [94] N. Stolterfoht, K. Sommer, J. K. Swenson, C. C. Havener, and F. W. Meyer. *Electron-correlation effects in double-electron-capture collisions of 60 - KeV C^{6+} with He*. Physical Review A 42 : 5396, 1990.
- [95] J. Schweinzer, E. Wolfrum, F. Aumayr, M. Pockl, H. Winter, R. P. Schorn, E. Hintz, and A. Unterreiter. *Reconstruction of plasma edge density profiles from*

- Li(2s - 2p) emission profiles*. Plasma Physics and Controlled Fusion 34 : 1173, 1992.
- [96] R. P. Schorn, E. Wolfrum, F. Aumayr, E. Hintz, D. Rusbuldt, and H. Winter. *Radial temperature distributions of C⁶⁺ ions in the TEXTOR edge plasma measured with lithium beam activated charge exchange spectroscopy*. Nuclear Fusion 32 : 351, 1992.
- [97] K. Nakamura, H. Iguchi, M. Ueda, Z. Narihiro, A. Shimizu, T. Morisaki, M. Isobe, C. Takahashi, S. Nishimura, C. Suzuki, Y. Yoshimura, K. Nagaoka, T. Minami, M. Yoshinuma, K. Ida, S. Okamura, and K. Matsuoka. *Two-dimensional diagnostic of edge plasma structure using a lithium beam probe in a compact helical system*. Review of Scientific Instruments 76 : 013504, 2005.
- [98] R. Fischer, E. Wolfrum, J. Schweinzer, and the ASDEX Upgrade Team. *Probabilistic lithium beam data analysis*. Plasma Physics and Controlled Fusion 50 : 085009, 2008.
- [99] F. Martin, A. Riera, and M. Yanez. *Molecular (Feshbach) treatment of charge exchange Li³⁺ + He collisions. I. Energies and couplings*. Journal of Chemical Physics 84 : 5412, 1986.
- [100] L. F. Errea, F. Martin, L. Mendez, A. Riera, and M. Yanez. *Molecular (Feshbach) treatment of charge exchange Li³⁺ + He collisions. II. Cross sections*. Journal of Chemical Physics 84 : 5422, 1986.
- [101] E.Y. Sidky, and H-J. T. Simonsen. *Velocity-matching model for electron capture in keV atomic collisions*. Physical Review A 54 : 1417, 1996.
- [102] S. Diehl, D. Cubaynes, J. M. Bizau, F. J. Wuilleumier, E. T. Kennedy, J. P. Mosnier, and T. J. Morgan. *New high-resolution measurements of doubly excited states of Li⁺*. Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 32 : 4193, 1999.

- [103] L. Lipsky, R. Anania, and M. J. Conneely. *Energy levels and classifications of doubly-excited states in two-electron systems with nuclear charge, $Z = 1, 2, 3, 4, 5$, Below the $N = 2$ and $N = 3$ Thresholds*. Atomic data and nuclear data tables 20 : 127, 1977.
- [104] K. T. Chung and C. D. Lin. *Doubly excited states of Li^+ Below the $N = 2$ and $N = 3$ Thresholds of Li^{2+}* . Atomic data and nuclear data tables 69 : 101, 1998.
- [105] I. Wirkner-Bott, W. Seim, A. Müller, P. Kester, and E. Salzborn. *Electron capture by Li^{3+} and Li^{2+} ions in H_2 and He* . Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 14 : 3987, 1981.
- [106] O. Voitke, P. A. Zavodszky, S. M. Ferguson, J. H. Houck, and J. A. Tanis. *Target ionization and projectile charge changing in $0.5 - 8 MeV/q Li^{q+} + He$ ($q = 1, 2, 3$) collisions*. Physical Review A 57 : 1692, 1998.
- [107] S. K. Allison, J. Cuevas. and M. Garcia-Munoz. *Experiments on charge-changing collisions of lithium ionic and atomic beams*. Physical Review A 120 : 1266, 1960.
- [108] V. S. Nikolaev, I. S. Dmitriev, L. N. Fateeva, and Ya. A. Teplova. *Experimental investigation of electron capture by multiply charged ions*. Russ. Orig. 40 : 989, 1961.
- [109] L. I. Pivovar, Y. Z. Levchenko, and G. A. Krivonosov. *Ionizing collisions and charge exchange for Li^+ , Li^{2+} and Li^{3+} ions in gases ($0.2 - 2 MeV$)*. Soviet Physics JETP 32 : 11, 1971.
- [110] L. Opradolce, C. Falcon, and J. I. Casaubon. *Single electron capture by Li^{3+} from He in low-energy collisions*. Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 19 : 2319, 1986.
- [111] L. Salasnich and F. Sattin. *Charge-exchange processes between excited helium and fully stripped ion*. Physical Review A 51 : 4281, 1995.

- [112] L. Meng, C. O. Reinhold, and R. E. Olson. *Subshell electron capture in collisions of fully stripped ions with He and H₂ at intermediate energies*. Physical Review A 42 : 9, 1990.
- [113] H. Suzuki, Y. Kajikawa, N. Toshima, H. Ryufuku, and T. Watanabe. *Electron-capture cross sections from He in collision with bare nuclear ions*. Physical Review A 29 : 525, 1984.
- [114] M. S. Gravielle and J. E. Miraglia. *State-selective scaling in electron capture by multicharged ions on light atoms*. Physical Review A 51 : 2131, 1995.
- [115] W. Stich, H. J. Lüdde, and R. M. Dreizler. *TDHF calculations for two-electron systems*. Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 18 : 1195, 1985.
- [116] J. B. Greenwood, I. D. Williams, S. J. Smith, and A. Chutjian. *Experimental investigation of the processes determining x-ray emission intensities from charge-exchange collisions*. Physical Review A 63 : 062707, 2001.
- [117] M. Ghosh, C. R. Mandal, and S. C. Mukherjee. *Double-electron capture from helium by ions of helium, lithium, carbon, and oxygen*. Physical Review A 35 : 5259, 1987.
- [118] Z. Chen, R. Shingal and C. D. Lin. *State-selective double capture in collisions of bare ions with helium atoms at low energies : I. Total cross sections*. Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 24 : 4215, 1991.
- [119] H. Bachau, F. Martin, A. Riera, and M. Yanez. *Resonance parameters and properties of helium-like doubly excited states $2 \leq Z \leq 10$* . Atomic Data and Nuclear Data Tables 48 : 167, 1991.
- [120] Y. K. Ho. *Autoionization states of helium isoelectronic sequence below the $n = 3$ hydrogenic thresholds*. Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 12 : 387 , 1979.

BIBLIOGRAPHIE

- [121] Y. K. Ho and K. Bhatia. *Doubly-excited states $^{1,3}D^0$ in helium-like systems*. Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 30 : 3597, 1997.
- [122] A. K. Bhatia and Y. K. Ho. *Calculations of doubly excited $^{1,3}F^0$ states in helium-like systems using Hylleraas functions*. Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 31 : 3307, 1998.
- [123] V. V. Afrosimov, A. A. Basalaev, E. D. Donets, K. O. Lozhkin, and M. N. Panov. *Processes involving the capture of an electron by the nuclei of atoms near helium atoms and hydrogen molecules at low energies*. Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters 43 : 171, 1981.
- [124] J. R. Macdonald and F. W. Martin. *Experimental electron-transfer cross sections for collisions of oxygen ions in Argon, Nitrogen, and Helium at energies of 7 – 40 MeV*. Physical Review A 4 : 1965, 1971.
- [125] W. K. WU, B. A. Huber, and K. Wiesemann. *Cross sections for electron capture by neutral and charged particles in collisions with He*. Atomic Data and Nuclear Data Tables 40 : 200, 1988.
- [126] A. E. Kramida, A. N. Ryabtsev, J. O. Ekberg, I. Kink, S. Mannervik, and I. Martinson. *Additions to the spectrum and energy levels and a critical compilation of helium-like and hydrogen-like boron, B IV and B V*. Physica Scripta 78 : 025302, 2008.
- [127] H. W. van der Hart and J. E. Hansen. *Competition between radiative and non-radiative decay for doubly excited $2lnl'$ and $3lnl'$ states in C^{4+}* . Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics 26 : 641, 1993.
- [128] Y. K. Ho. *Resonance positions and widths of doubly excited N^{5+} ions associated with $N = 3, 4$, and $5 N^{6+}$ thresholds*. Physical Review A 35 : 2035, 1987.