

**REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE**  
**MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR**  
**ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE**  
**UNIVERSITE DES SCIENCES ET DE LA TECHNOLOGIE**  
**HOUARI BOUMEDIENNE**  
**FACULTE DE PHYSIQUE**



THESE de Doctorat en Science  
Présentée pour l'obtention du grade de Docteur  
En : PHYSIQUE  
Spécialité: Sciences Nucléaires  
Par : Said DJAROUM  
Sujet:

**Etude du ralentissement des protons et des particules alphas dans quelques matériaux composés : effets de structure de valence et validité de la règle de Bragg-Kleeman.**

Soutenue publiquement, le 27/11/2016, devant la commission d'examen:

M. Mohamed DJEBARA	Pr USTHB/FPH	Président
M. Smail DAMACHE	D.R CRNA/Alger	Directeur de thèse
M. Saad OUICHAOUI	Pr USTHB/FPH	Co-directeur de thèse
M. Ali MEFTAH	Pr U. Skikda	Examineur
M. Serge DELLA NEGRA	D.R CNRS.Orsay.Fr	Examineur
M. Saoud HASSANI	D.R CRNA/Alger	Examineur

## ***Remerciements***

Ce travail est le fruit d'une collaboration scientifique très soutenue entre les laboratoires des Sciences Nucléaires et Interaction Rayonnement Matière (SNIRM) de la faculté de physique de l'USTHB et la Division de Physique du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA) où toutes les expériences ont été réalisées. Je remercie sa direction pour tous les moyens et les facilités dont j'ai bénéficiés pour l'accomplissement avec succès de cette thèse.

Je veux remercier tout particulièrement Messieurs Smail. DAMACHE, Directeur de recherche au CRNA, et Saad OUICHAOUI, Professeur à l'USTHB d'avoir bien voulu me proposer et diriger ce passionnant travail. Leurs riches et longues expériences scientifiques, leurs constantes disponibilités et leurs conseils permanents ont été d'un apport inestimable à la réalisation de cette thèse. Qu'ils trouvent ici le témoignage de ma profonde reconnaissance. Monsieur DJEBARA Mohamed, Professeur à l'USTHB, un enseignant modèle et exemplaire dont on est fier de citer, a bien voulu m'honorer en ayant l'obligeance de s'intéresser à ce travail et d'accepter la présidence de la commission d'examen. Je tiens à lui exprimer tous mes sincères remerciements.

Je tiens à remercier Messieurs S. DELLA NEGRA et HASSANI Saoud, Directeurs de Recherche respectivement au CNRS/Orsay et au CRNA/COMENA pour tout l'intérêt qu'ils ont manifesté à ce travail et d'avoir répondu favorablement pour le juger. Je leur exprime ma profonde gratitude pour toutes les remarques constructives qui ont contribué à l'amélioration de ce manuscrit.

Je désire témoigner ma reconnaissance à Monsieur MEFTAH Ali, Professeur à l'Université de Skikda de bien vouloir s'intéresser à ce modeste travail et d'avoir accepté de faire partie de mon jury.

J'exprime un grand merci au staff de l'accélérateur V. d. G3. 75MV du CRNA ainsi qu'aux membres des laboratoires cibles du CRNA pour leurs concours inestimables qui ont permis l'aboutissement de ce travail.

Mes remerciements vont aussi aux collègues et amis de l'USTHB et du CRNA pour leurs encouragements constants.

Je tiens à remercier la direction du CRNB et particulièrement le Directeur Général, Mr. A. KERRIS et le Secrétaire Général, Mr. A. BENZAZZA sur leurs soutiens permanents dans l'accomplissement de cette thèse.

Ce travail a pu voir le jour grâce au soutien et sacrifice permanents de ma petite famille. Merci à mon épouse Karima qui a sans cesse et infailliblement partagé tous mes moments difficiles. Ta patience indéfectible et tes encouragements incessants m'ont énormément soutenu. Qu'elle trouve ici l'expression de toute mon affection. Je ne sais omettre mes enfants ; Sarah, Meriem, Nadia, Celia et Amine qui ont donné un sens et un nouveau souffle à ma vie.

*Dédicace*

*Je dédie ce mémoire  
à mon regretté cher frère Madjid,  
à mon regretté cher frère Ali,  
à mes regrettés parents,  
à ma femme,  
à mes enfants,  
à mes frères et  
à mes sœurs  
en témoignage de ma reconnaissance*

### **Résumé**

*Nous avons mesuré les pouvoirs d'arrêt et le stragglings des protons dans deuxcibles polymères : le formvar et le kapton. Pour le formvar, il s'agit seulement d'une ré-exploitation des données brutes de pertes d'énergie en vue de déterminer le stragglings collisionnel correspondant. Ces mesures ont été effectuées auprès de l'accélérateur V.d.G-3.75 MV du CRNA où la région d'énergie  $\sim (0.5 - 3.4)$  MeV a été explorée. Le but de ces mesures est de contribuer à élargir la base de données expérimentale aussi bien par de nouvelles données que par l'amélioration de la précision de celles déjà existantes en vue d'une meilleure confrontation avec la théorie. L'incertitude relative de mesures du pouvoir d'arrêt est de 2% pour le kapton. Celle de mesures du stragglings est au maximum de 4.5% pour les deux polymères. Les résultats obtenus ont été confrontés à ceux de la littérature et aux prédictions de la théorie binaire, développée récemment par Sigmund et Schinner, où un bon accord avec ces dernières a été observé. Par ailleurs, il ressort de cette étude que la relation de Bragg reste valide pour les polymères considérés.*

---

<b>Table des matières</b>	<b>N° de</b>
<b>Introduction générale</b>	1
<b>Chapitre 1 :Théorie du pouvoir d'arrêt et du stragglng collisionnel</b>	4
1.1. Introduction	4
1.2.Pouvoir d'arrêt	7
1.2.1. Définitions et notions de base	7
1.2.2. Théorie classique de Bohr	8
1.2.3. Théorie quantique de Bethe	10
1.2.4. Théorie de Bethe-BlochModifiée	12
1.1.6. Théorie binaire de Sigmund-Schinner	16
1.3. Le stragglng collisionnel	21
1.3.1. Définitions et notions de base	21
1.3.2. Le stragglng dans le modèle de Bohr	22
1.3.3. Le stragglng de Bethe et Livingston	24
1.3.4. Le stragglng deYang	25
1.3.5. Le stragglng dans le cadre de la théorie binaire	26
1.4. Formules du stragglng pour les composés (règle de Bragg-Kleeman)	28
<b>Chapitre 2 :Dispositif expérimental, préparations et caractérisation des cibles</b>	30
2.1. Introduction	30
2.2. Dispositif expérimental	31
2.2.1. Chambre à réaction	33
2.2.2. Détecteurs et système d'acquisition de données	35
2.3. Caractérisation des cibles de formvar et de kapton	37

2.3.1. Les cibles de formvar et de kapton	37
2.3.2. Caractérisations des cibles de formvar et de kapton	37
2.3.2.1. Mesures de l'épaisseur des cibles de kapton	38
2.3.2.2. Uniformité des cibles de Formvar et Kapton	42
2.3.2.3. Vérification de la stœchiométrie des cibles de Formvar	45
<b>Chapitre 3: Résultats, analyse et discussion</b>	<b>48</b>
3.1. Introduction	48
3.2. Traitements des spectres de la perte d'énergie	49
3.3. Détermination des pouvoirs d'arrêts	51
3.4. Détermination du Stragglng	53
3.5. Discussions et confrontations des données expérimentales	56
<b>Conclusion</b>	<b>64</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>66</b>
<b>Annexes: Publications</b>	<b>71</b>

## **Introduction générale**

Les faisceaux de particules chargées constituent un outil expérimental le plus indiqué pour sonder la structure de la matière. En effet, la première utilisation de ces faisceaux remonte à 1911, dans la célèbre expérience de Geiger-Marsden [1], qui utilise les particules alpha incidentes sur des feuilles d'Or, qui a aidé Rutherford [2] à établir le model planétaire de l'atome et de l'améliorer par la suite par Bohr en 1913 [3].

Aujourd'hui, après un siècle de ces découvertes importantes dans la description de la structure de la matière, les physiciens à travers le monde utilisent ces faisceaux dans l'exploration de l'univers, dans la recherche fondamentale, dans les applications médicales [4-6], dans l'industrie électronique par l'implantation ionique [7, 8] et dans les sciences des matériaux [9-11]. Dans l'industrie électronique, à titre d'exemple, la recherche a permis le développement d'une technologie très avancée des faisceaux d'ions qui a contribué en grande partie dans le développement de l'informatique moderne. Dans le domaine de la recherche fondamentale, et depuis le début XX siècle, les chercheurs à travers le monde continuent toujours à étudier le ralentissement des particules chargées dans la matière, des investigations aussi bien théoriques qu'expérimentales ont été menées conjointement afin de comprendre de mieux en mieux ces processus de ralentissement. La connaissance et la maîtrise de ces processus est nécessaire aussi bien pour la recherche fondamentale que pour les applications et sont définies à travers la quantification du dépôt d'énergie de ces particules chargées dans la matière.

En dépit de la grande avancée technologique et scientifique réalisée dans ce domaine, des questions pertinentes, nécessitant des investigations encore très pointues tant sur le plan théorique qu'expérimental, ne cessent d'être posées. Durant ces dernières années, plusieurs approches théoriques ont été développées pour prédire les pouvoirs d'arrêt et le straggling des ions lourds dans la matière. Ces théories ont, souvent, été adaptées aux ions légers, tels les protons et les particules alpha, en vue d'une approche théorique simple et unifiée. Par conséquent, les mesures et les compilations des pouvoirs d'arrêt et du straggling de ces ions légers dans des matériaux divers connaissent un regain d'intérêt croissant, en particulier les matériaux composés (tels que les polymères organiques) afin de mesurer les effets de structure de valence et de la validité de la règle additive de Bragg-Kleeman. Par ailleurs, la validation de toute approche théorique nécessite, d'une part, un enrichissement de la base de données expérimentale et, d'autre part, l'amélioration de la précision de celles-ci. C'est au regard de l'enrichissement de la base de données expérimentale qu'un projet de recherche a été initié en 2003 et reconduit en 2014, par une collaboration entre le Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA) et le laboratoire des Sciences Nucléaires (LSN) de l'USTHB [12, 13]. Ce projet a pour objectif principal la contribution à l'étude expérimentale du ralentissement des ions dans la matière, en exploitant des installations de recherche disponibles au CRNA, notamment l'accélérateur Van de Graaff de 3.75MV (V.d.G).

Dans ce présent travail, nous reportons les principales conclusions issues des mesures du pouvoir d'arrêt et du stragglng pour des protons d'énergie allant de 0.5 à 3.4 MeV traversant des cibles minces de deux polymères : Formvar et Kapton.

Le premier chapitre de la thèse est consacré aux différentes approches théoriques utilisées pour décrire le processus de ralentissement des ions dans la matière. Dans une première section, nous rappelons les différentes théories du pouvoir d'arrêt. Dans la seconde section, nous donnons quelques approches théoriques du stragglng.

Le deuxième chapitre de la thèse est consacré à la description des procédures expérimentales et à la caractérisation des cibles. La première section porte sur la description du dispositif expérimental et la seconde section sur la caractérisation des cibles.

Le troisième et le dernier chapitre est dédié au traitement des données et à la présentation des résultats expérimentaux. Les pouvoirs d'arrêts et le stragglng mesurés seront discutés et confrontés à ceux rapportés dans la littérature et / ou aux prédictions de modèles théoriques. Enfin, nous terminons par une conclusion où nous avons mis l'accent sur quelques perspectives à venir.

## Chapitre 1

# Théories du pouvoir d'arrêt électronique et du straggling collisionnel

### 1.1. Introduction

Le passage d'un faisceau de particules chargées et mono-énergétique dans la matière se traduit par une perte d'énergie  $\Delta E$  due principalement à des collisions inélastiques avec les électrons du milieu ralentisseur. Due à la nature statistique de ces collisions, on assiste inévitablement à une dispersion de la valeur de l'énergie transférée qui se traduit expérimentalement par une variation du profil de la distribution de la perte d'énergie (élargissement et éventuellement modification de la forme du spectre) avec l'épaisseur  $\Delta x$  de la matière cible traversée. Ainsi, pour quantifier le processus très complexe de dépôt d'énergie, deux observables fondamentales sont utilisées : i) le pouvoir d'arrêt,  $S(E) = -\frac{\langle \Delta E \rangle}{\Delta x \rightarrow 0} = -\frac{dE}{dx}$ , défini par la perte d'énergie moyenne rapportée à l'unité de parcours de l'ion projectile dans le matériau cible et ii) le straggling collisionnel ou variance,  $\Omega^2(E)$ , qui traduit la fluctuation statistique de perte d'énergie subie par le faisceau d'ions.

Les premières approches théoriques du pouvoir d'arrêt remontent au début du 20<sup>ème</sup> siècle. C'est à Bohr [14], Bethe [15], Bloch [16] et Lindhard [17] que l'on doit l'essentiel de ces travaux. Dans son approche, Bohr a traité l'interaction entre l'ion projectile et l'atome-cible

---

dans le cadre de la mécanique classique alors que Bethe a établi l'approche quantique en utilisant la théorie des perturbations de Born. En dépit que ces deux modèles pionniers soient à l'origine des formulations habituellement utilisées pour la prédiction des valeurs  $S(E)$ , des insuffisances dans la description correcte et globale de la perte d'énergie ne cessent d'être soulevées. Ainsi, d'autres approches théoriques, incorporant un certain nombre de processus physiques, ont alors été proposées [19-23]. Parmi elles, la théorie de Bethe-Bloch modifiée [19, 22, 24] et la théorie des collisions binaires de Sigmund-Schinner [20, 25] qui prennent comme support de départ la théorie de Bethe et la théorie de Bohr, respectivement. Si les données expérimentales fiables du stragglng sont rares et très fragmentaires [14, 18, 26, 27, 28], un grand effort théorique a, en revanche, été entrepris depuis les travaux de Bohr [14] où une valeur limite du stragglng  $\Omega_B^2$  est obtenue pour la région de hautes énergies. D'autres approches théoriques ont, par la suite, été développées en vue d'étendre le modèle de Bohr vers les énergies intermédiaires [18] et d'une meilleure description l'élément cible [26]. Le comportement oscillatoire du stragglng avec le numéro atomique  $Z_2$  de la cible a été clarifié par Rousseau et ses collaborateurs [29] en utilisant le modèle atomique de Hartree-Fock-Slater. La plupart des résultats de ces modèles tendent vers le stragglng de Bohr pour des énergies élevées du projectile alors qu'aux énergies intermédiaires, objet d'une large dispersion des données expérimentales, sont très dispersifs. En se basant sur l'approximation de Born, Livingston et Bethe [30] obtiennent une formule du stragglng collisionnel  $\Omega^2(E)$  qui tient compte des liaisons électroniques de l'atome cible. Cette formule donne, pour de faibles vitesses du projectile, des valeurs plus larges que la valeur classique de Bohr  $\Omega_B^2$  et approche celle-ci pour des vitesses élevées.

En se basant sur les considérations théoriques de Chu [27], Yang et O'Connor [31] ont proposé une formule empirique en ajustant par la méthode des moindres carrés 600 données expérimentales prises de la littérature (cf. Références citées dans [31]). Plus récemment, l'approche des collisions binaires de Sigmund-Schinner utilisée pour la prédiction du pouvoir d'arrêt a été adaptée au calcul du stragglings [20, 25].

Enfin, des descriptions détaillées et récentes des différentes approches théoriques du pouvoir et du stragglings sont données dans les deux dernières monographies publiées par Sigmund [4].

## 1.2. Pouvoir d'arrêt

### 1.2.1. Définitions et notions de base

Considérons un faisceau d'ions mono-énergétique d'énergie  $E$  traversant un milieu ralentisseur homogène d'épaisseur  $x$ . Il s'ensuit alors un transfert d'une partie de l'énergie de l'ion vers les atomes ou les molécules du milieu absorbeur. Si on suppose que ce transfert se fait de façon discrète et que la quantité d'énergie transférée lors d'une collision de type  $i$  est  $T_i$  (avec  $T_i \ll E$  pour l'ensemble des collisions  $i = 1, 2, \dots$ ), la perte d'énergie moyenne,  $\langle \Delta E \rangle$ , subie par le faisceau, après la traversée d'une épaisseur  $\Delta x$  (supposée petite devant l'épaisseur  $x$ ) dans le matériau cible, peut alors s'écrire par :

$$\langle \Delta E \rangle = N \Delta x \sum_i \sigma_i T_i \quad (1.1)$$

où  $N$  et  $\sigma_i$  sont respectivement la densité électronique du milieu ralentisseur et la section efficace de transfert du quantum d'énergie  $T_i$  (collions du type  $i$ ).

Le terme  $\sum_i \sigma_i T_i$  représente la section efficace d'arrêt du milieu ralentisseur. C'est une quantité microscopique qui ne dépend pas de la densité du milieu ralentisseur.

De l'expression (1.1), on peut déduire le pouvoir d'arrêt  $S(E)$  qui est alors donné par :

$$S(E) = -\frac{dE}{dx} \approx \frac{\langle \Delta E \rangle}{\Delta x} = N \sum_i \sigma_i T_i \quad (1.2)$$

Pour le cas où les transferts d'énergie sont continus, l'expression (1.2) peut être remplacée par son équivalente :

$$S(E) = -\frac{dE}{dx} = N \int_{T_{min}}^{T_{max}} T d\sigma \quad (1.3)$$

où  $d\sigma = \frac{d\sigma(T)}{dT} dT$  est la section efficace différentielle de transfert d'une énergie comprise entre  $T$  et  $T + dT$ .  $T_{min}$  et  $T_{max}$  sont respectivement les énergies minimale et maximale transférées.

### 1.2.2. Théorie classique de Bohr

Dans l'approche de Bohr, la vitesse  $v$  du projectile est supposée nettement supérieure (tout en restant dans le domaine non relativiste) à la vitesse moyenne  $\langle v_e \rangle$  des électrons du projectile neutre. L'ion projectile est alors totalement épluché et sa charge peut être considérée comme étant ponctuelle [3]. Dans sa dérivation originale, Bohr [14] a introduit le paramètre  $\kappa = 2Z_1 \frac{v_B}{v}$  (avec  $v_B$  la vitesse de Bohr), appelé communément "paramètre de Bohr", pour délimiter la région des vitesses du projectile ( $\kappa \gg 1$ ) où l'interaction peut être traitée dans le cadre de la mécanique classique. Ainsi, il suggère que la perte d'énergie de l'ion projectile résulte, à grandes vitesses, du transfert d'énergie de celui-ci aux électrons du milieu ralentisseur. Dans ce modèle, basé sur le concept du paramètre d'impact  $p$ , Bohr a d'abord considéré l'électron cible comme étant libre et traite alors l'interaction ion-électron par la théorie de diffusion de Rutherford. Par la suite et dans le but d'un traitement plus correct, Il a considéré les effets des liaisons électroniques. Il traite alors séparément les collisions lointaines (électrons liés) et les proches collisions (électrons libres) en introduisant un paramètre d'impact intermédiaire  $p_0$  limitant ces deux régimes.

Pour les collisions lointaines, l'électron cible est décrit par un oscillateur harmonique classique de fréquence orbitale  $\omega_0$ . Le passage de l'ion projectile au voisinage de cet électron induit un transfert d'une quantité de mouvement  $\overline{\Delta P}$  donnée par l'expression suivante :

$$\overline{\Delta P} = \int_{-\infty}^{+\infty} \vec{F}(t) e^{i\omega_0 t} dt \quad (1.4)$$

où  $\vec{F}(t) = \frac{Z_1 e^2}{r^2} \vec{r}(t)$  est la force coulombienne exprimée dans le système d'unité CGS.

L'énergie  $T_{cl}$  transférée est alors donnée par :

$$T_{cl}(p, v) = \frac{(\overline{\Delta P})^2}{2m} = \frac{\left( \int_{-\infty}^{\infty} \vec{F}(t) e^{i\omega_0 t} dt \right)^2}{2m} = \frac{2Z_1^2 e^4}{mv^2 p^2} \left\{ \left[ \frac{\omega_0 p}{v} K_0 \left( \frac{\omega_0 p}{v} \right) \right]^2 + \left[ \frac{\omega_0 p}{v} K_1 \left( \frac{\omega_0 p}{v} \right) \right]^2 \right\} \quad (1.5)$$

Pour les collisions proches, les chocs sont forts et les transferts d'énergie sont supérieurs aux énergies de liaison des électrons-cibles. Bohr suppose que les électrons-cibles sont libres et traite alors l'interaction élémentaire ion-électron par la diffusion de Rutherford (hypothèse de diffusions coulombiennes libres). En supposant que la masse du projectile est très grande devant celle de l'électron ( $M_1 \gg m$ ), Bohr obtient une expression de l'énergie transférée  $T_{cp}$  qui peut s'écrire par :

$$T_{cp}(p, v) = \frac{(\overline{\Delta P})^2}{2m} = \frac{\left( \int_{-\infty}^{\infty} \vec{F}(t) dt \right)^2}{2m} = \frac{2Z_1^2 e^4}{mv^2 p^2} \frac{1}{1 + (b/2p)^2} \quad (1.6)$$

où  $b$  est le diamètre de collision (distance minimale d'approche).

Le pouvoir d'arrêt  $S$  de Bohr est alors donné par :

$$S(v) = N \int T d\sigma = \int (T_{cl} + T_{cp}) 2\pi p dp = 2\pi N \left[ \int_{p_{min}}^{p_0} T_{cp} p dp + \int_{p_0}^{p_{max}} T_{cl} p dp \right] \quad (1.7)$$

Dans l'expression (1.7), les valeurs des bornes d'intégration  $p_{min}$  et  $p_{max}$  sont données par :

$$\begin{cases} p_{min} = Z_1 e^2 / m v^2 \\ p_{max} = v / \omega_0 \end{cases} \quad (1.8)$$

Il est à noter que  $p_{min}$  coïncide avec la valeur de la distance minimale d'approche (diamètre de collision) alors que  $p_{max}$  est pris égale au rayon adiabatique de Bohr  $a_{ad} = \frac{v}{\omega_0}$ .

En remplaçant  $T_{cp}$  et  $T_{cl}$  par leurs expressions (1.5) et (1.6) dans l'expression (1.7) et après intégration, Bohr obtient l'expression du pouvoir d'arrêt suivante :

$$S(v) = \frac{4\pi Z_1^2 e^4}{m v^2} n Z_2 \ln \left( \frac{C m v^3}{Z_1 e^2 \omega_0} \right) \quad (1.9)$$

où  $\ln \left( \frac{C m v^3}{Z_1 e^2 \omega_0} \right)$  est le nombre d'arrêt de Bohr par électron,  $n (= \frac{N}{Z_2})$  est la densité atomique du milieu ralentisseur et  $C = 2e^{-\gamma} = 1.1229$ .

Dans l'expression (1.9), tous les électrons de l'atome-cible sont caractérisés par une seule et même fréquence. Cette dernière peut être considérée comme étant la valeur moyenne de toutes les fréquences de résonance électronique de l'atome-cible. En tenant compte, explicitement, du spectre d'excitation de toutes ces résonances électroniques, la formule de Bohr peut se réécrire dans une notation plus moderne :

$$S(v) = \frac{4\pi Z_1^2 e^4}{m v^2} n Z_2 \sum_i f_i \ln \left( \frac{C m_e v^3}{Z_1 e^2 \omega_i} \right) \quad (1.10)$$

où  $\omega_i$  et  $f_i$  sont, respectivement, la fréquence de résonance et la force d'oscillation dipolaire de l'électron  $i$  de l'atome cible.

### 1.2.3. Théorie quantique de Bethe

Dans le cas où le paramètre de Bohr est petit devant l'unité ( $\kappa \ll 1$ ), la théorie quantique de Bethe [15] est plus indiquée pour décrire le processus de la perte d'énergie des ions énergétiques dans la matière. Dans cette approche, Bethe utilise la notion d'impulsion transférée pour caractériser l'interaction de l'ion projectile avec l'atome-cible qu'il considère équivalente à une faible perturbation de l'atome cible par le potentiel d'interaction  $V(R)$  alors mis en jeu. Sous l'action de cette perturbation  $V$ , le système projectile-atome cible évolue alors d'un état initial (avant interaction) formé par une impulsion  $\vec{q}$  du projectile et un état quantique  $|0\rangle$  de l'atome cible vers un état final (après interaction) représenté par les quantités homologues  $\vec{q}'$  et  $|l\rangle$ . Dans le cas non relativiste, le potentiel d'interaction  $V$  peut s'écrire :

$$V(R) = -\sum_j^{Z_2} \frac{Z_1 e^2}{|\vec{R} - \vec{r}_j|} + \frac{Z_1 Z_2 e^2}{R} \quad (1.11)$$

où  $\vec{R}$  et  $\vec{r}_j$  sont les vecteurs positions respectifs du projectile et du  $j^{\text{ième}}$  électron cible dans le référentiel lié au noyau de l'atome.  $Z_1 e$  et  $Z_2$  sont la charge du projectile et le nombre de charge de l'atome cible, respectivement.

Bethe calcula alors la probabilité de transition de l'état initial  $(\vec{q}, |0\rangle)$  vers l'état final  $(\vec{q}', |l\rangle)$  dans le cadre de la théorie quantique des perturbations (approximation de Born au premier ordre). Par la suite, il déduit l'expression de la section efficace d'excitation ( $|0\rangle \rightarrow |l\rangle$ ) qui est donnée par l'expression :

$$d\sigma_n = \frac{2\pi Z_1^2 e^4}{mv^2} \frac{dT}{T^2} \left| \left\langle l \left| \sum_{j=1}^{Z_2} \exp\left(i \frac{(\vec{q}-\vec{q}')}{\hbar} \cdot \vec{r}_j\right) \right| 0 \right\rangle \right|^2 \quad (1.12)$$

où  $T = \frac{(\vec{q}-\vec{q}')}{2m}$  représente l'énergie transférée à l'électron cible.

En injectant l'expression (1.12) dans la relation (1.3) et en sommant sur tous les états propres de l'atome cible, Bethe obtient l'expression du pouvoir d'arrêt donnée par :

$$S(v) = N \sum_n \int_{T_{min}}^{T_{max}} T d\sigma_n = \frac{4\pi Z_1^2 e^4}{mv^2} nZ_2 \times \text{Ln} \left( \frac{2mv^2}{I} \right) \quad (1.13)$$

où  $I$  est le potentiel d'excitation et d'ionisation moyen de l'atome cible donnée par l'expression suivante :

$$\text{Ln}(I) = \sum_l f_l \text{Ln}(\epsilon_l - \epsilon_0) \quad (1.14)$$

Dans la relation (1.14),  $f_l$  et  $\epsilon_l$  ( $i=0, l$ ) désignent la force d'oscillation dipolaire et l'énergie propre de l'état  $|i\rangle$ , respectivement.

Il est à noter que  $I$  est l'un des paramètres clés de l'expression de la formule de Bethe. Dans la pratique, l'équation (1.14), ne peut être évaluée, avec une bonne précision, que pour quelques matériaux simples (gaz de faibles numéros atomiques). Une vaste discussion sur la détermination de ce paramètre est donnée dans les rapports ICRU-49 [24] et ICRU-37 [32] dont lesquels des valeurs recommandées ont été données pour tous les éléments. Ces valeurs de  $I$  sont en partie obtenues à partir des données expérimentales précises du pouvoir d'arrêt.

### 1.2.4. Théorie de Bethe-Bloch modifiée

Il est bien établi que l'approche de Bethe décrite précédemment est mieux adaptée pour les énergies élevées des projectiles d'ions légers. Son domaine de validité tend alors à se réduire au fur à mesure que l'ion projectile devient lourd et/ou moins énergétique. Cette approche nécessite alors des corrections appropriées pour pouvoir étendre son domaine de validité aux régions de basses énergies et particulièrement celle du maximum du pouvoir d'arrêt. Ainsi, l'incorporation de ces termes correctifs à la formule originale de Bethe donne l'expression du pouvoir d'arrêt, communément appelée "formule de Bethe-Bloch modifiée" [19], donnée en keV.cm<sup>2</sup>/mg par :

$$S(\beta) = \frac{0.3071Z_1^2 Z_2}{\beta^2 A_2} L(\beta) \quad (1.15)$$

où  $\beta = v/c$  (avec  $c$  la célérité de la lumière) et  $L(\beta)$  est le nombre d'arrêt par électron-cible donné par :

$$L(\beta) = L_0(\beta) + Z_1 L_1(\beta) + Z_1^2 L_2(\beta) \quad (1.16)$$

Les termes  $L_0$ ,  $Z_1 L_1$  et  $Z_1^2 L_2$  représentent respectivement, le nombre d'arrêt principal, la correction de Barkas et la correction de Bloch. Le terme  $L_0$  contient les termes correctifs au nombre d'arrêt de Bethe et qui est donné par l'expression :

$$L_0(\beta) = \ln\left(\frac{2m_e v^2}{I}\right) - \beta^2 - \ln(1 - \beta^2) - \frac{c}{Z_2} - \frac{\delta}{2} \quad (1.17)$$

où  $\frac{C}{Z_2}$  et  $\frac{\delta}{2}$  représentent les termes des corrections de couches atomiques et de l'effet de densité, respectivement.

La correction  $\frac{\delta}{2}$  n'est significative que pour des énergies des particules incidentes excédent l'énergie au repos de ces mêmes particules et par conséquent, elle est négligeable pour les énergies considérées dans ce travail. Le terme  $\frac{C}{Z_2}$  qui peut contribuer jusqu'à 10% du pouvoir d'arrêt, est généralement évalué en tenant compte des détails de chacune des orbites électroniques de l'atome cible. Pour l'évaluation des corrections des couches  $K$  et  $L$ , nous avons utilisé les valeurs tabulées dans les références [33-35], basée sur l'approximation des fonctions d'ondes hydrogénoïdes [33-36]. Pour les couches les plus externes ( $M, N, \dots$ ), nous avons adopté la procédure d'échelle semi-empirique de Bichsel [37-39]. Ainsi, la correction totale  $C$  est donnée par :

$$C = C_K(\beta^2) + V_L C_L(H_L \beta^2) + V_M C_L(H_M \beta^2) + V_N C_L(H_N \beta^2) + \dots \quad (1.18)$$

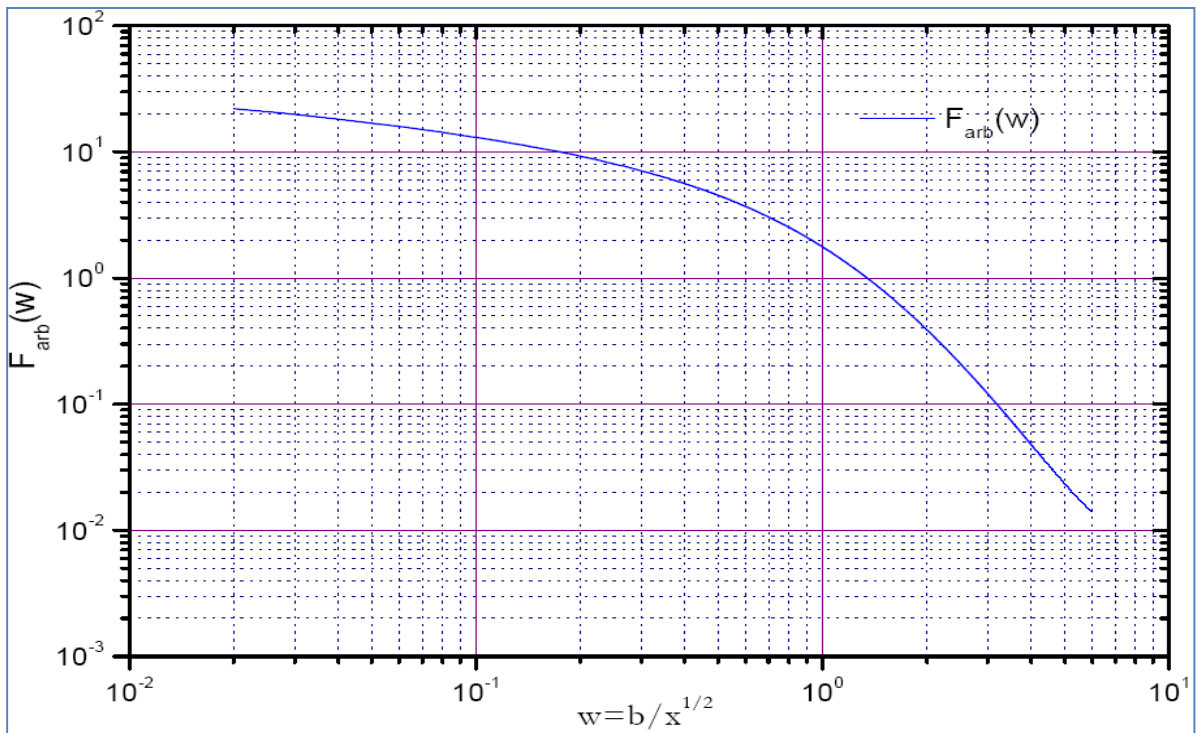
où  $V_i$  et  $H_i$  (avec  $i \equiv L, M, N \dots$ ) sont les facteurs d'échelles adoptés dans le rapport ICRU-37 [32].

Le terme correctif  $Z_1 L_1$ , connu sous le nom "d'effet de Barkas", a été mis en évidence par Barkas et ses collaborateurs [39]. Plusieurs approches théoriques [40-44] permettant l'évaluation de ce terme ont été proposées. Celle de d'Ashley et al. [40-42] a été utilisé dans ce travail. Son expression paramétrique peut s'écrire :

$$Z_1 L_1 = \frac{Z_1 F_{arb}\left(\frac{b}{x^{1/2}}\right)}{Z_2^{1/2} x^{3/2}} \quad (1.19)$$

où  $F_{arb}$  est une fonction tabulée dans [42] représentée graphiquement par la figure (1.1) [40],  $b$  est le paramètre de Barkas qui correspond à la limite inférieure du paramètre d'impact où l'électron peut être considéré harmoniquement lié au noyau atomique et  $\chi$  est l'énergie réduite donnée pour une énergie du projectile  $E_p$ , exprimée en MeV/u, par :

$$\chi = \frac{v^2}{v_B^2 Z_2} = \frac{40.2}{Z_2} E_p \quad (1.20)$$



**Fig. 1.1 :** La fonction  $F_{arb}(b/x^{1/2})$ [40]

Le terme correctif  $Z_1^2 L_2$  a été évalué par Bloch en 1933 [45]. Cette correction permet de passer continument de la description quantique de Bethe à la description classique de Bohr.

Elle s'écrit, lorsque la vitesse du projectile est supérieure à la vitesse des électrons-cibles, de la façon suivante [45, 46] :

$$Z_1^2 L_2(y) = \psi(1) - \Re e[\psi(1 + iy)] \quad (1.21)$$

où  $y = Z_1 \alpha/\beta$  (avec  $\alpha = 1/137$  est la constante de structure fine),  $\psi$  et  $\Re e$  sont respectivement la fonction digamma et sa partie réelle. Une paramétrisation plus pratique de la correction de Bloch a été proposée par Bichsel [47]. Elle est donnée en fonction du paramètre  $y$  par la relation suivante :

$$Z_1^2 L_2(y) = -y^2[1.202 - y^2(1.042 - 0.857y^2 + 0.343y^4)] \quad (1.22)$$

## 1.2.5. Théorie binaire de Sigmund-Schinner

### 1.2.5.1. Formalisme de base

La théorie binaire de Sigmund-Schinner [4, 20, 25] est une reformulation du modèle classique de Bohr où le potentiel coulombien décrivant l'interaction ion-électron est remplacé par un potentiel coulombien écranté. Dans cette théorie, les collisions proches et lointaines sont traitées sans distinction par une approche non perturbatrice. Ainsi, Sigmund et Schinner ont adopté un potentiel d'interaction de type Yukawa où, le rayon d'écran dynamique est pris égal à la distance adiabatique de Bohr. Son expression est donnée par [4, 20, 25, 48] :

$$V(r) = -\frac{Z_1 e^2}{r} e^{-r/a_{ad}}, \quad (1.23)$$

où  $r$  est la distance séparant le projectile de l'électron cible,  $a_{ad} = \frac{v}{\omega}$  est le rayon d'écran dynamique avec  $\omega$  la fréquence de résonance de l'oscillateur harmonique représentant l'électron lié dans le modèle classique de Bohr. L'interaction ion projectile-électron cible est alors réduite à une collision binaire gouvernée par le potentiel  $V(r)$  et elle peut donc être traitée par la théorie classique de diffusion. L'énergie totale  $T$  transférée à cet électron est la somme des contributions cinétique ( $2mv^2 \sin^2 \left(\frac{\theta}{2}\right)$  avec  $\theta$  [4, 20, 25] l'angle de diffusion dans le centre de masse du système ion-électron) et potentielle ( $W$ ). Elle est donnée par :

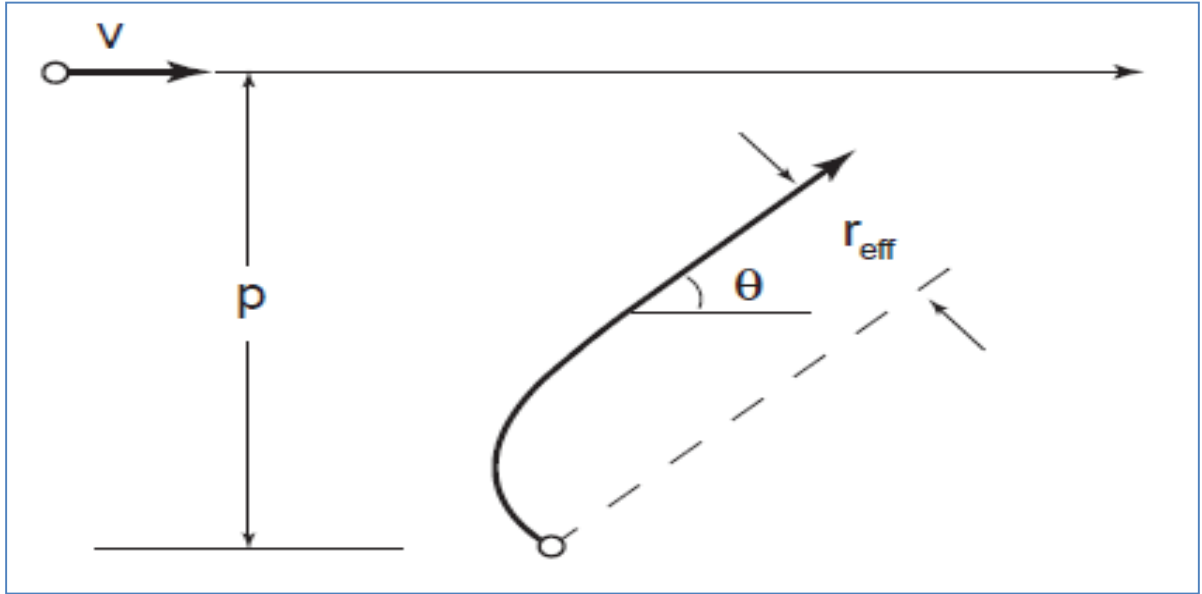
$$T(p, v) = 2mv^2 \sin^2 \left(\frac{\theta}{2}\right) + W(p, v) \quad (1.24)$$

L'énergie potentielle  $W$  est donnée par [20] :

$$\frac{1}{W(p, v)} = \frac{1}{W_0(p, v)} + \frac{1}{U} \quad (1.25)$$

où  $U$ , désigne l'énergie de liaison de l'électron cible et  $W_0(p, v)$  l'énergie potentielle qui lui est transférée. Il est à noter que l'énergie  $U$  est introduite pour limiter l'énergie potentielle  $W_0(p, v)$  transférée dans une collision individuelle. La quantité  $W_0(p, v)$  est donnée, en fonction de la distance  $r_{eff}$  (**cf. Fig. 1.2**) caractérisant l'orbite de l'électron-cible dans le modèle de diffusion binaire, par [4, 20, 25] :

$$W_0(p, v) = \frac{1}{2} m \omega^2 r_{eff}^2 \quad (1.26)$$



**Fig.1.2** L'orbite de l'électron cible dans le modèle des diffusions binaires [4, 20].

L'expression de  $r_{eff}$  est donnée en fonction de l'angle de diffusion  $\theta$ , par :

$$r_{eff}(p, v) = 2\tau(p, v)\cos\frac{\theta(p, v)}{2} - 2p\sin\frac{\theta(p, v)}{2} \quad (1.27)$$

où  $\tau(p, v)$  est l'équation intégrée en temps, donnée par :

$$\tau(p, v) = \sqrt{r_m^2 - p^2} - \int_{r_m}^{\infty} dr \times \left( \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{2V(r)}{mv^2} - \frac{p^2}{r^2}}} - \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{p^2}{r^2}}} \right) \quad (1.28)$$

où  $r_m$  est le point de détour de la trajectoire, défini par  $1 - \frac{2V(r)}{mv^2} - \frac{p^2}{r^2} = 0$ .

Contrairement à l'approche de Bohr où à chaque électron lié est assignée une fréquence de résonance propre, l'approche des diffusions binaires opère avec des groupements d'électrons répartis sur des couches électroniques. Ainsi, les électrons d'une même couche  $j$

sont considérés identiques et ils sont alors caractérisés par une fréquence de résonance  $\omega_j$ , une énergie  $U_j$  et une force d'oscillation  $f_j$  (avec la condition  $\sum_j f_j Z_2 = Z_2$ ). Le pouvoir d'arrêt de Sigmund-Schinner par atome cible  $S_0$  est donné par l'expression suivante :

$$S_0(v) = Z_2 \sum_j f_j S_{0j}(v) = 2\pi Z_2 \sum_j f_j \int_0^\infty T_j(p, v) 2\pi p dp \quad (1.29)$$

Dans l'expression (1.29), l'indice 0 indique que les mouvements intrinsèques des électrons cibles sont ignorés (sans corrections de couches atomiques). La prise en compte de ces mouvements (correction cinématique) nécessite une transformation appropriée entre le référentiel lié au laboratoire et celui lié à l'électron-cible. Une telle transformation est donnée par Sigmund [49] en utilisant la théorie cinétique. Le pouvoir d'arrêt  $S_j$  par électron cible se trouvant dans la  $j^{\text{ième}}$  couche est alors donné par [25, 50]:

$$S_j(v) = \int d\vec{v}_e g_j(\vec{v}_e) \frac{\vec{v}(\vec{v}-\vec{v}_e)}{v|\vec{v}-\vec{v}_e|} S_{0j}(|\vec{v}-\vec{v}_e|) \quad (1.30)$$

où  $\vec{v}_e$  et  $\vec{v}$  sont les vecteurs vitesses des électrons dans la couche  $j$  et du projectile, respectivement.  $g_j(\vec{v}_e)$  représente la fonction de distribution des vitesses des électrons-cibles dans la couche  $j$ .

Pour étendre le domaine de validité de la théorie binaire au régime quantique de Bethe ( $\kappa \ll 1$ ), Sigmund et Schinner ont ajouté une correction appelée "correction de Bloch inversée" [50, 51] en procédant à un réarrangement de la correction de Bloch [52, 53]. Si cette correction a été utilisée avec succès pour l'évaluation des pouvoirs d'arrêt dans la région de Bethe [25, 51, 54], elle présente, cependant, quelques insuffisances dans la

région des basses énergies du projectile. Sigmund et Schinner [30] ont pu contourner cette contrainte en développant une version modifiée de cette correction. Elle est donnée par :

$$\Delta L = \ln \left( \frac{1+2\xi/(B\sqrt{C^2+(\hbar v/Z_1 e^2)^2})}{1+2\xi/(BC)} \right) \quad (1.31)$$

où  $B = 0.880$  et  $\xi = \frac{mv^3}{Z_1 e^2 \omega_j}$  est le paramètre de Bohr.

Pour tenir compte des effets d'écrantage électronique de l'ion projectile (qui est devient important pour les ions lourds dans la région des faibles vitesses), Sigmund et Schinner ont enfin introduit un écrantage supplémentaire (écrantage statique) dans le potentiel d'interaction de l'ion projectile avec l'électron-cible qui devient alors :

$$V_{eff}(r) = -\frac{q_1 e^2}{r} e^{-r/a_{ad}} - \frac{(Z_1 - q_1) e^2}{r} e^{-r/a} \quad (1.32)$$

où  $1/a = 1/a_{ad} + 1/a_s$ ,  $q_1 e$  est la charge de l'ion incident et  $a_s = (1 - q_1/Z_1) a_{TF}$ , où  $a_{TF}$  est le rayon de Thomas-Fermi du projectile neutre.

### 1.2.5.2. Code PASS

La programmation numérique (code PASS) [55] de la théorie binaire du pouvoir d'arrêt a été développée par Schinner. La quantité fondamentale calculée par ce code est l'énergie transférée  $T(p, v)$  à un électron-cible. Ce calcul est basé, principalement, sur la résolution numérique des deux intégrales de diffusions  $\theta(p, v)$  et  $\tau(p, v)$ . Pour chaque combinaison de couple projectile-cible, l'exécution de ce code nécessite l'établissement d'une base de données d'entrée qui se résumant, essentiellement, en :

- le spectre d'excitation du matériau ralentisseur,
- les fonctions de distributions des vitesses orbitales des électrons cibles et
- les énergies de liaisons des couches atomiques.

Le spectre d'excitation est caractérisé, pour un atome cible donné, par les forces d'oscillations  $f_j$  et les fréquences de résonances  $\omega_j$  des électrons de chacune des couches atomiques  $j$ . Ces paires  $(f_j, \omega_j)$  représentent les plus importantes données numériques d'entrée. Elles ont été compilées, pour un grand nombre de matériaux-cible, dans le rapport ICRU-73 [56] à partir des données expérimentales et théoriques disponibles dans la littérature.

Les fonctions de distributions  $g_j$  qui interviennent dans le calcul de  $S_j$  en utilisant la relation (1.30), peuvent être obtenues en utilisant les transformées de Fourier des fonctions d'onde atomique [25]. Selon la procédure adoptée dans le rapport ICRU-73 [56], les fonctions d'onde hydrogénoïde et Hartree-Fock sont utilisées pour les matériaux-cible à numéro atomique  $Z_2 \leq 47$  et  $Z_2 \geq 50$ , respectivement. Pour les valeurs des énergies de liaisons  $U_j$  utilisées dans ICRU-73, elles sont en partie extraites des références [57, 58].

### 1.3. Le stragglng collisionnel

#### 1.3.1. Définitions et notions de base

Dans les notions de base de la perte d'énergie (cf. section 1.2.1), nous avons donné directement la perte d'énergie moyenne  $\langle \Delta E \rangle$  subit par un faisceau d'ions mono-énergétique d'énergie  $E$  après un parcours  $\Delta x$  dans le milieu cible. Si on prend maintenant les ions

projectiles individuellement, la perte d'énergie  $\Delta E$  subit par chaque ion projectile est donnée par :

$$\Delta E = \sum_i n_i T_i \quad (1.33)$$

avec  $n_i$  est le nombre de collisions du type  $i$  conduisant au transfert d'une même quantité d'énergie  $T_i$ .

Cette valeur de la perte d'énergie  $\Delta E$  subit des fluctuations statistiques lorsqu'on considère l'ensemble des ions du faisceau projectile. Par conséquent, la perte d'énergie moyenne donnée par l'expression (1.1) peut se réécrire par :

$$\langle \Delta E \rangle = \sum_i \langle n_i \rangle T_i \quad (1.34)$$

On définit alors la variance  $\Omega^2$  (ou straggling collisionnel) de la perte d'énergie  $\Delta E$  par l'expression :

$$\Omega^2 = \langle (\Delta E - \langle \Delta E \rangle)^2 \rangle = \sum_{i,j} \langle (n_i - \langle n_i \rangle)(n_j - \langle n_j \rangle) \rangle T_i T_j \quad (1.35)$$

Si on considère séparément les termes  $i = j$  et  $i \neq j$  dans l'expression ci-dessus (1.35) et en utilisant la relation (1.1), on a :

i) pour  $i = j$

$$\langle (n_i - \langle n_i \rangle)^2 \rangle = \langle n_i \rangle = N \Delta x \sigma_i \quad (1.36)$$

ii) pour  $i \neq j$  sachant que les différentes collisions sont statistiquement indépendants, les termes d'interférence " $i, j$ " sont nuls

On obtient alors l'expression du stragglng collisionnel suivante :

$$\Omega^2 = \sum_i \langle n_i \rangle T_i^2 = N \Delta x \sum_i T_i^2 \sigma_i \quad (1.37)$$

Pour les transferts continus d'énergie et de la même façon que dans la section (1.2.1), la relation (1.37) peut s'écrire :

$$\Omega^2 = N \Delta x \int T^2 d\sigma \quad (1.38)$$

### 1.3.2. Le stragglng dans le modèle Bohr

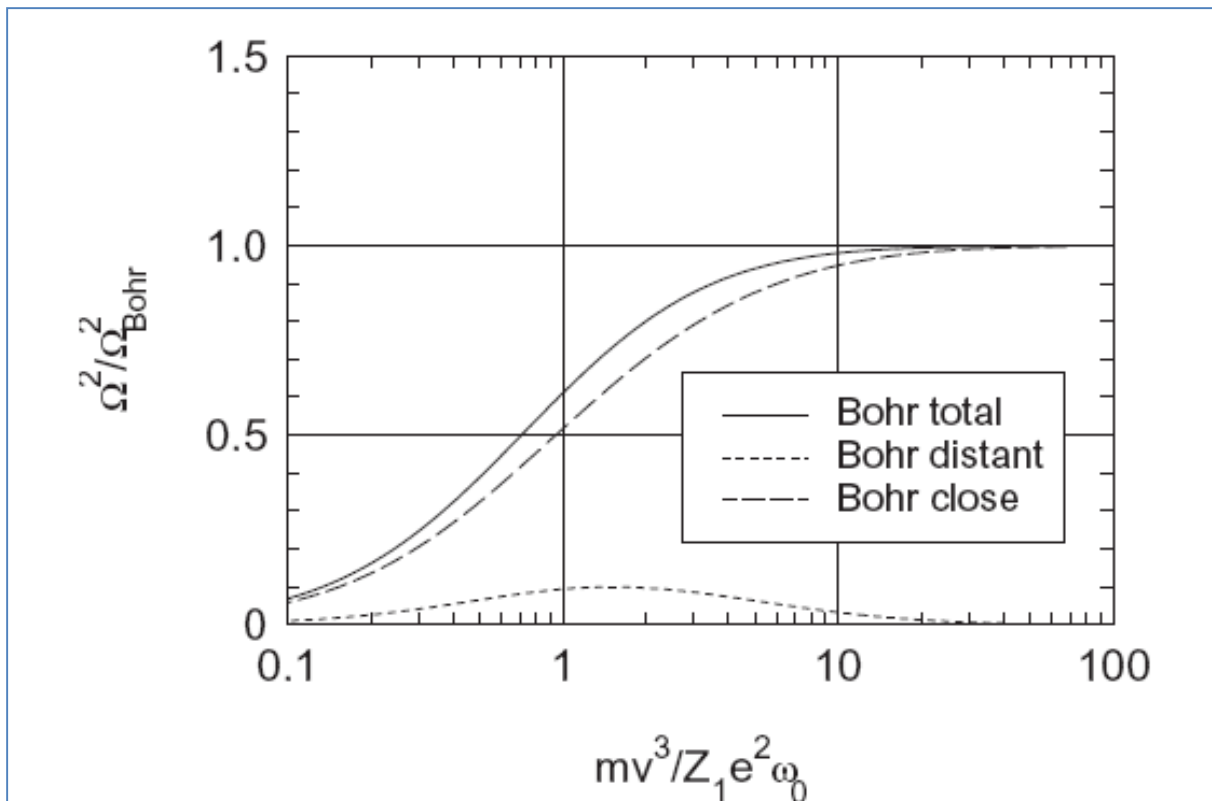
Sigmund [4], a évalué le stragglng collisionnel  $\Omega^2$  dans le cadre du modèle de Bohr en suivant la même procédure que celle utilisée dans la détermination du pouvoir d'arrêt de Bohr (cf. section.1.2.2). Il obtient ainsi les expressions des contributions des collisions lointaines  $\Omega_{cl}^2$  et des collisions proches  $\Omega_{cp}^2$  au stragglng collisionnel total. Ces expressions sont données par :

$$\left\{ \begin{array}{l} \Omega_{cl}^2 = \Omega_B^2 \frac{1}{\xi} \int_{\zeta_0}^{\infty} \frac{2d\zeta}{\zeta^3} \{ [\zeta K_0(\zeta)]^2 + [\zeta K_1(\zeta)]^2 \} \\ \Omega_{cp}^2 = \Omega_B^2 \frac{1}{1+(b/2p_0)^2} \end{array} \right. \quad (1.39)$$

où  $\Omega_B^2 = 4\pi Z_1^2 e^4 N \Delta x$  est le stragglng de Bohr [Bohr 1915] qui ne dépend pas de l'énergie du projectile et les variables  $\zeta$  et  $\xi$  sont définies par :

$$\left\{ \begin{array}{l} \zeta = \omega_0 p / v \\ \xi = m v^3 / Z_1 e^2 \omega_0 \end{array} \right. \quad (1.41)$$

La figure (1.3), tirée de la Réf. [4], montre une représentation universelle de ces deux contributions en fonction de la vitesse du projectile. Comme on peut le constater, la contribution des collisions lointaines au stragglings total  $\Omega^2$  est pratiquement insignifiante devant celle provenant des collisions proches.



**Fig.1.3** Variation du stragglings dans le modèle de Bohr en fonction du paramètre  $\xi$  [4].

Il est à noter que dans le travail original de Bohr [59] valide pour les ions rapides et totalement ionisés, seuls les collisions proches ont été considérées. Celles-ci ont été traitées dans le cadre de la théorie de diffusion de Rutherford. Ceci est parfaitement adéquat vu

que le straggling total tend vers le straggling de Bohr pour les valeurs de  $\xi \geq 10$ , qui correspondent au régime de grandes vitesses du projectile.

### 1.3.3. Le straggling de Bethe et Livingston

En considérant les liaisons électroniques des électrons des couches atomiques et avec un traitement basé sur l'approximation de Born, Livingston et Bethe [30] ont obtenu une formule du straggling qui donne, aux faibles vitesses du projectile, des valeurs supérieures à la valeur classique de Bohr ( $\Omega_B^2 = 4\pi Z_1^2 e^4 N \Delta x$ ) et approche cette limite aux vitesses élevées. Cette formule pour une cible donnée s'écrit comme :

$$\Omega_{BL}^2 = 4\pi Z_1^2 e^4 n \Delta x \left[ Z_2' + \sum_i \left( \kappa_i \frac{I_i Z_i}{m v^2} \text{Ln} \left( \frac{2m v^2}{I_i} \right) \right) \right] \quad (1.42)$$

où  $Z_2'$  est le nombre total effectif des électrons des atomes cible,  $Z_i$  est le nombre d'électrons de la couche atomique  $i$ ,  $I_i$  leurs énergie d'excitation moyenne et  $\kappa_i$  sont des constantes qui, selon Livingston et Bethe, sont prises égal à  $\sim 4/3$  pour toutes les couches atomiques. La sommation dans (1.42) est effectuée sur l'ensemble des électrons cible pour lesquels  $I_i < 2m v^2$ . Les énergies d'excitation moyennes  $I_i$  satisfont la relation générale de Bethe [60-62]  $\text{ln} I = \sum_i f_i \text{ln} I_i$ , où  $I$  est le potentiel d'ionisation moyen de l'atome cible et  $f_i$  est la force de l'oscillateur des électrons de la couche atomique  $i$ . Concernant le paramètre  $I$ , des valeurs recommandées, sont données dans les rapports ICRU-37 [32] et ICRU-49 [24] pour tous les éléments. Il est à noter que la formule (1.42) de Bethe-Livingston est similaire à celle de Bohr ( $\Omega_B^2 = 4\pi Z_1^2 e^4 N \Delta x$ ), sauf que le nombre de charge de l'atome

cible est réduit à  $Z'_2 = Z_2 - \sum_i f_i Z_i$  et un terme supplémentaire dépendant de la structure électronique de l'atome cible a été rajouté.

### 1.3.4. Le stragglings de Yang et al.

En se basant sur le modèle de Hartree-Fork-Slater de la densité électronique, Chu [27] a évalué le stragglings des ions Hélium dans divers éléments et qui a été par la suite extrapolé à celui des protons. Il est à noter que les valeurs théoriques du stragglings obtenus dans le cadre de ce modèle sont, qualitativement, en bon accord avec les résultats expérimentaux disponibles dans la littérature. En exploitant les résultats de Chu [63], Yang et al. [31] ont obtenu une formule empirique du stragglings réduit des ions hydrogène  $\left(\frac{\Omega_H^2}{\Omega_B^2}\right)$  dont l'expression est donnée par :

$$\frac{\Omega_H^2}{\Omega_B^2} = (1 + A_1 E^{A_2} + A_3 E^{A_4})^{-1} \quad (1.43)$$

où  $E$  est l'énergie de l'ion hydrogène en MeV/uet  $A_1, A_2, A_3$  et  $A_4$  les coefficients d'ajustement tabulés qui dépendent de  $Z_2$  [31]. Les fluctuations de la charge des ions projectiles induisent une contribution additionnelle très significative au stragglings total réduit  $\left(\frac{\Omega_Y^2}{\Omega_B^2}\right)$  et son expression générale peut s'écrire :

$$\left(\frac{\Omega_Y^2}{\Omega_B^2}\right) = \frac{\Omega_H^2}{\Omega_B^2} + \left(\frac{\Delta\Omega^2}{\Omega_B^2}\right) \quad (1.44)$$

où  $\Delta\Omega^2$  est le stragglings additionnel dû aux effets de corrélations, qui est donné par :

$$\left(\frac{\Delta\Omega^2}{\Omega_B^2}\right) = \frac{B_1 B_3 (1 - e^{-B_4 E})}{[(E - B_2)^2 + (B_3 (1 - e^{-B_4 E}))^2]} \quad (1.45)$$

avec  $B_i$  ( $i \equiv 1, 2, 3, 4$ ) sont des coefficients d'ajustement tabulés [31].

### 1.3.5. Le straggling dans le cadre de la théorie binaire

L'énergie transférée  $T(p, v)$  de l'ion projectile à l'électron cible est considérée comme une quantité fondamentale. Celle-ci est obtenue directement par le code PASS [55] à travers la résolution numérique des deux intégrales de diffusions  $\theta(p, v)$  et  $\tau(p, v)$ . Cette énergie transférée  $T(p, v)$  est utilisée, dans le cas où les mouvements orbitaux des électrons cibles sont ignorés (sans corrélations), pour évaluer le straggling  $\Omega_{j_0}^2$  par électron-cible. Ce dernier peut être obtenu par l'équation suivante :

$$\Omega_{j_0}^2 = 2\pi \int_0^\infty T_j^2(p, v) p dp \quad (1.46)$$

où les mêmes notations que celles utilisées dans la section (1.2.5.1) sont considérées ici.

Comme dans le cas du pouvoir d'arrêt (cf. Section.1.2.5), le straggling par atome peut être déterminé par l'expression suivante :

$$\Omega_0^2 = Z_2 \sum_j f_j \Omega_{j_0}^2 \quad (1.47)$$

Les effets d'écrantage et de Barkas sont pris en compte dans le calcul du straggling par atome  $\Omega_0^2$  par l'équation (1.47). Par ailleurs, en utilisant la théorie cinétique, les effets des mouvements orbitales des électrons-cible (correction cinématique) ont été introduits par

Sigmund et Schinner [20, 51] dans la détermination du stragglings corrigé  $\Omega_j^2$  par électron cible et ils obtiennent son expression comme :

$$\Omega_j^2 = \frac{1}{v|\vec{v}-\vec{v}_e|^3} \left[ \left( 3/2 (v^2 - \vec{v} \cdot \vec{v}_e)^2 - \frac{1}{2} (\vec{v} - \vec{v}_e)^2 v^2 \right) \Omega_{j0}^2 (|\vec{v} - \vec{v}_e|) \right. \\ \left. + m(\vec{v} - \vec{v}_e)^2 (v^2 v_e^2 - (\vec{v} \cdot \vec{v}_e)^2) S_{j0} (|\vec{v} - \vec{v}_e|) \right] \quad (1.48)$$

où la même notation que celle utilisée dans l'équation (1.30) est considérée ici. Le stragglings par atome corrigé  $\Omega^2$  est donnée ainsi, par :

$$\Omega^2 = Z_2 \sum_j f_j \Omega_j^2 \quad (1.49)$$

En fin, pour étendre la gamme de validité du modèle classique de Bohr au régime de Bethe, à la différence du pouvoir d'arrêt, l'ajout d'un terme correctif Bloch-inverse [51] s'avère inutile [4, 53] pour le stragglings.

#### 1.4. Formules du stragglings pour les composés (relation de Bragg)

Pour obtenir le stragglings de la matière composée, on utilise la règle d'additivité de Bragg et Kleeman [64]. Selon cette règle, le stragglings d'un matériau composé est obtenu par la combinaison linéaire du stragglings de ses constituants atomiques. Cette règle suppose que les effets liés aux liaisons chimiques de ces constituants élémentaires n'influent pas sur le processus du ralentissement. En utilisant cette règle, le stragglings de Bohr  $(\Omega_{Comp})_B^2$ , de

Livingston- Bethe  $(\Omega_{Comp})_{BL}^2$  et de Yang et al.  $(\Omega_{Comp})_Y^2$  pour un matériau composé peuvent être donnés respectivement, par :

$$(\Omega_{Comp})_B^2 = 157Z_1^2 \Delta x \frac{\sum_{j=1} x_j Z_j}{\sum_{j=1} x_j A_j} \quad (1.50)$$

$$(\Omega_{Comp})_{BL}^2 = \frac{157Z_1^2 \Delta x}{\sum_{j=1} x_j A_j} \sum_{j=1} x_j \left[ Z_j' + \sum_i \left( \frac{4}{3} \frac{I_i Z_i}{m v^2} \text{Ln} \left( \frac{2m v^2}{I_i} \right) \right)_j \right] \quad (1.51)$$

$$(\Omega_{Comp})_Y^2 = (\Omega_{Comp})_H^2 + (\Delta\Omega_{comp})_H^2 \quad (1.52)$$

avec :

$$(\Omega_{Comp})_H^2 = 157Z_1^2 \Delta x \frac{\sum_{j=1} x_j Z_j}{\sum_{j=1} x_j A_j} \left[ \sum_{j=1} \frac{x_j}{(1+A_1 j E^{A_2 j} + A_3 j E^{A_4 j})} \right] \quad (1.53)$$

$$(\Delta\Omega_{comp})_H^2 = 157Z_1^2 \Delta x \frac{\sum_{j=1}^n x_j Z_j}{\sum_{j=1}^n x_j A_j} \left[ \frac{B_1 B_3 (1-e^{-B_4 E})}{[(E-B_2)^2 + (B_3 (1-e^{-B_4 E}))^2]} \right] \quad (1.54)$$

où  $x_j$  désigne la stichométrie du  $j^{ième}$  atome constituant,  $(\Omega_{Comp})_B^2$  et  $(\Omega_{Comp})_{BL}^2$  sont exprimés en  $(keV^2)$  et  $\Delta x$  en  $(mg/cm^2)$ . La sommation  $(\sum_{j=1})$  s'effectue sur l'ensemble des atomes constituants. Il est à noter que dans cette section, pour le straggling de Yang et al.  $(\Omega_{Comp})_Y^2$ , nous nous sommes limités au cas des ions hydrogène.

## Chapitre 2

# Dispositif expérimental, préparation et caractérisation des cibles

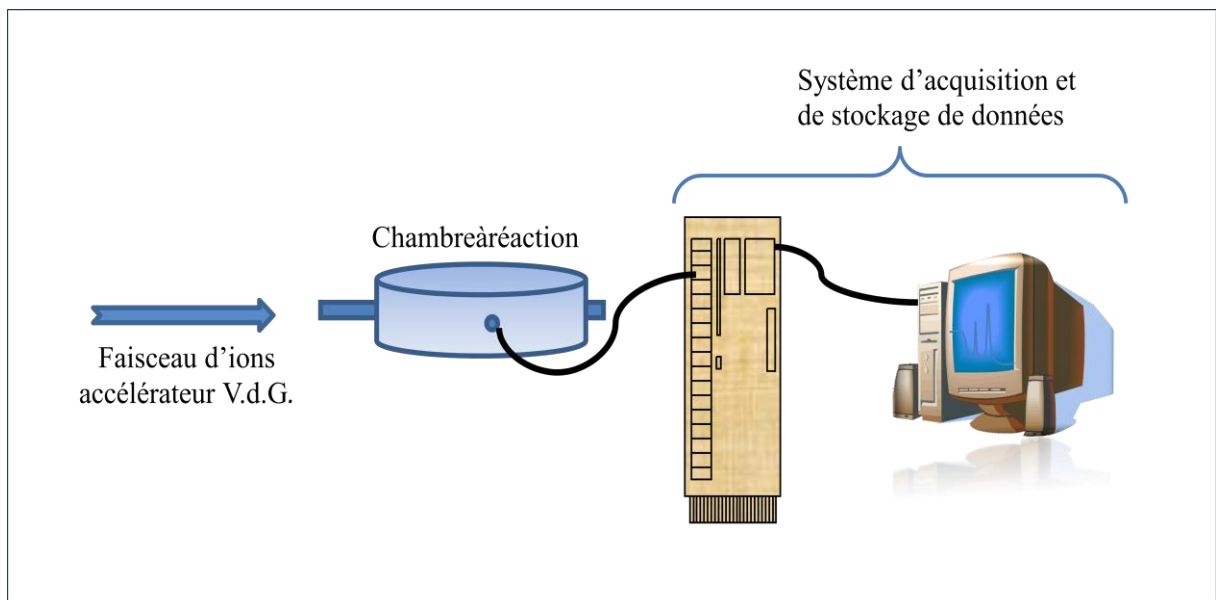
### 2.1. Introduction

Les expériences rapportées dans ce travail ont été réalisées auprès de l'accélérateur Van de Graaff (V.d.G) de 3.75 MV du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA). L'objectif principal de ces expériences est la détermination expérimentale précise du pouvoir d'arrêt et du stragglng collisionnel des protons dans deux cibles polymériques : formvar et kapton. Les mesures de pertes d'énergies ont été effectuées par la méthode de transmission, à travers l'échantillon cible, du faisceau d'ions rétrodiffusé sur une mince couche d'Or. Pour le formvar, il s'agit d'une ré-exploitation des données brutes d'une expérience antérieure [65] en vue de déterminer le stragglng collisionnel.

Ce chapitre est dédié à la description détaillée des méthodes expérimentales utilisées notamment le dispositif expérimental de mesures de perte d'énergie. Il sera aussi question de présentation des cibles et leurs caractérisations.

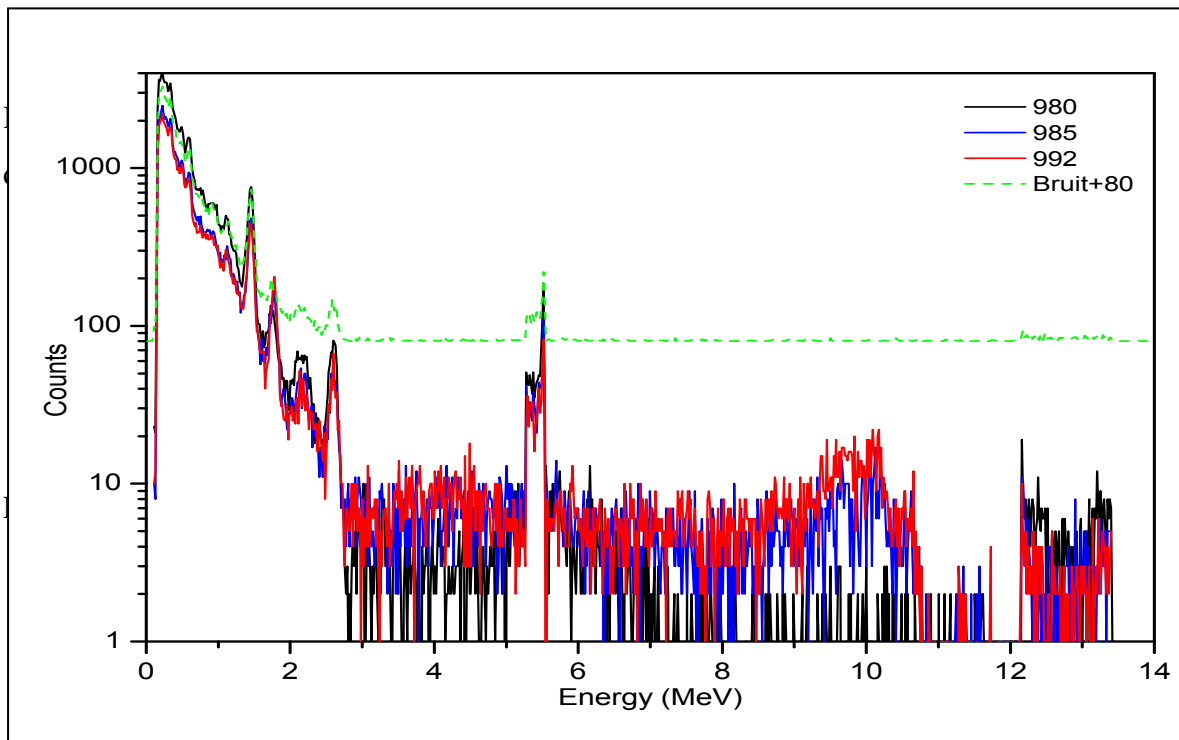
## 2.2. Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental utilisé pour effectuer les mesures de pertes d'énergies est schématisé sur la figure (2.1). Le faisceau d'ions énergétiques (protons et deutérons) est délivré par l'accélérateur V.d.G-3.75 MV avec des énergies variables de 0.9 à 3.75 MeV et des intensités de quelques unités à quelques dizaines de nA. Les ions accélérés sont sélectionnés en énergie au moyen d'un aimant d'analyse à 90° puis injectés dans la ligne centrale d'expérimentation où est montée la chambre à réaction qui sera décrite de façon détaillée dans la section (2.2.1). Le faisceau d'ions est focalisé grâce à une lentille quadripolaire et à un ensemble de diaphragmes placés avant la chambre. Les données brutes (spectres de pertes d'énergies), résultats de l'interaction du faisceau d'ions avec la cible, sont enregistrés grâce au système d'acquisition et de stockage des données du CRNA (cf. section 2.2.2).



**Fig. 2.1 :** Représentation schématique du dispositif expérimental utilisé pour les mesures de pertes d'énergie.

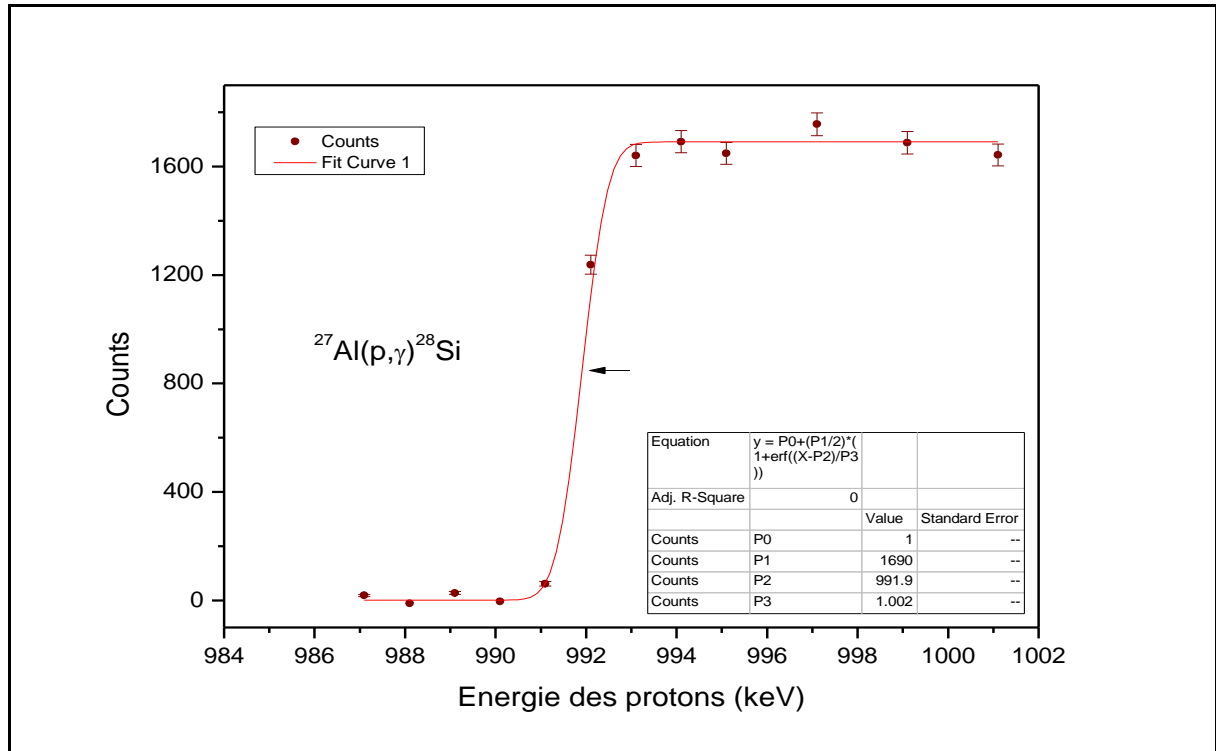
Comme nous l'avons signalé précédemment, la précision des mesures figure parmi les objectifs de ce travail. A ce titre, nous avons jugé nécessaire de procéder à la vérification de l'étalonnage de l'accélérateur lors de chaque série d'expériences en utilisant la résonance étroite ( $\Gamma = 0.10$  keV) bien connue (à  $E_R = 992$  keV) de la réaction nucléaire  $^{27}\text{Al}(p, \gamma)^{28}\text{Si}$  [66]. La figure (2.2) montre les spectres gammas enregistrés pour 03 énergies (980, 985 et 992 keV) des protons en incidence sur une cible de Al/Ta (Al pur déposé sur 0.5 mm de Ta).



**Fig. 2.2:** Exemple de spectres de raies gamma émis lors de la réaction  $^{27}\text{Al}(p, \gamma)^{28}\text{Si}$  pour 03 énergies des protons (980, 985 et 992 keV) et le bruit de fond (sans faisceau) décalé d'une valeur de 80 pour raison de commodité visuelle.

La figure (2.3) ci-dessous montre la fonction d'excitation de la réaction  $^{27}\text{Al}(p, \gamma)^{28}\text{Si}$  mesurée autour de la résonance 991.9 keV. Il est à noter que pour cette réaction, nous avons considéré tous les gammas d'énergie  $E_\gamma > 1.7$  MeV et que la charge collectée est

fixée à  $Q = 50 \mu\text{C}$ . L'ajustement (courbe en trait plein de la Fig. 2.3) des données obtenues par la fonction erf conduit à la détermination de l'énergie de résonance  $E_R = 992 \text{ keV}$ . Par ailleurs, la résolution du faisceau à cette énergie a aussi été déduite. Elle est de  $\sim 0.1\%$  [67].



**Fig. 2.3:** Fonction d'excitation et son ajustement par la fonction erf permettant la détermination de l'énergie de résonance  $E_R = 992 \text{ keV}$ . Les barres d'erreurs sont d'origine statistique.

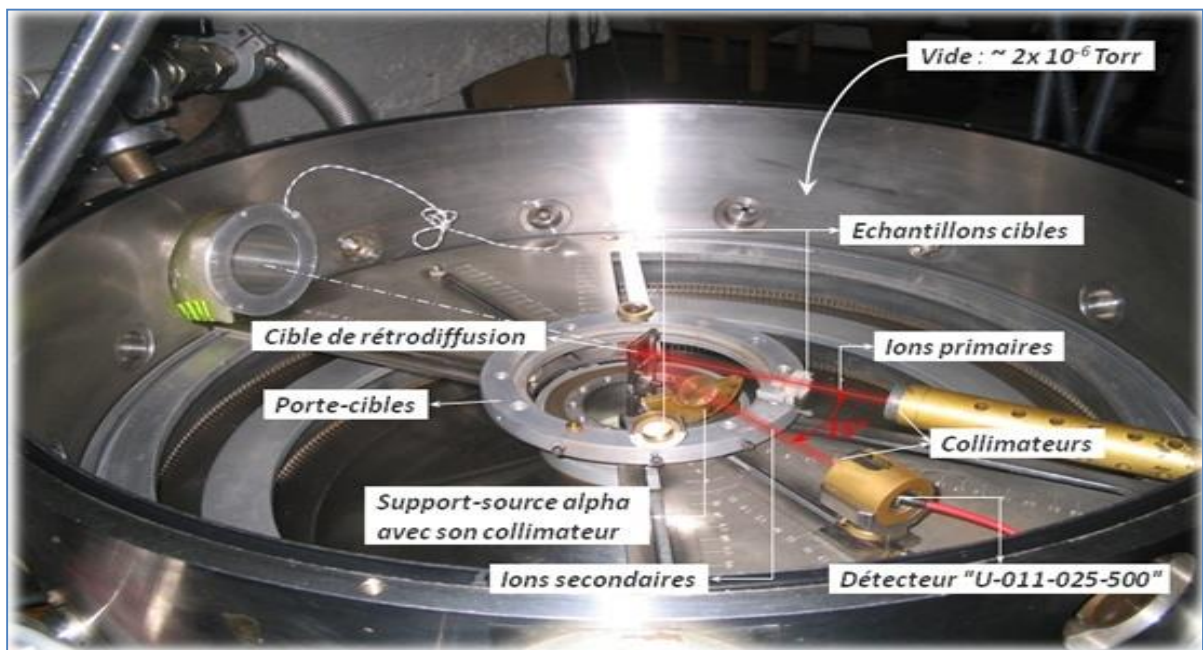
Il est à noter que lors de ces expériences, des ions moléculaires d'hydrogène ( $\text{H}_2^+$ ,  $\text{H}_3^+$ ) ont été aussi utilisés en vue d'explorer, principalement, les régions de basse énergies ( $0.3 < E_p < 0.9$ ) MeV.

### 2.2.1. Chambre à réaction

La chambre à réaction utilisée, montée sur la ligne centrale de l'accélérateur, est de forme cylindrique de 63 cm de diamètre. Son détail intérieur est montré sur la

photographie ci-dessous (**Fig. 2.4**). Elle est dotée de deux goniomètres permettant le positionnement à des angles choisis aussi bien du détecteur que du porte-cibles. Ainsi, le déplacement de ces éléments peut être effectué de l'extérieur de la chambre sans y rompre le vide, maintenu à une pression de  $\sim 10^{-6}$  Torr durant toute la durée des expériences. Ce bon vide est assuré grâce à deux groupements de pompes (pompes primaires à palette Alcatel 2033 et pompes secondaires du type Alcatel Crystal 162) placés en aval et en amont de la chambre à réaction. La cible de rétrodiffusion Au/Si, préparée par évaporation thermique, est installée au centre de la chambre sur un porte-cibles doté de mouvements de translation verticale et de rotation autour de l'axe de la chambre. Pour éviter la dégradation importante (straggling en énergie) du faisceau d'ions rétrodiffusés, l'épaisseur du dépôt Au doit être aussi faible que possible. Dans ce travail, les épaisseurs des cibles Au/Si réalisées sont de l'ordre de 20 à 35  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  correspondant à quelques 70 couches atomiques. La technique de transmission après rétrodiffusion utilisée pour effectuer les mesures de pertes d'énergie est montrée sur la photographie (**cf. Fig. 2.4**). Le faisceau d'ions primaires passe d'abord à travers un système de deux collimateurs identiques de 1.5 mm de diamètre séparés par une distance d'environ 2.5 mm. Ce système est installé à l'entrée qui est positionnée à  $\sim 150$  mm de la cible de rétrodiffusion. Cette configuration permet de réduire considérablement l'intensité du faisceau d'ions primaires et éviter ainsi toutes détériorations induites par irradiation, aussi bien du détecteur que des cibles. En vue d'éviter toute exposition directe et inutile des cibles au faisceau d'ions primaires, la manipulation sous vide des cibles (rotation autour de l'axe de la chambre) se fait sous la coupure totale du faisceau grâce au quartz de visualisation. Par ailleurs, nous avons utilisé un piège à azote liquide (qui est monté sur le couvercle de la chambre) pour minimiser le dépôt de carbone, induit par le faisceau d'ions primaires, sur la cible de rétrodiffusion Au/Si. Ce piège à azote

en cuivre est porté à la masse afin d'éviter toute accumulation de charges d'espaces (électrons  $\delta$ ) résultant de l'impact des ions projectiles sur la cible de rétrodiffusion. Enfin, un support pour source radioactive (émettrices de particules alpha) et son collimateur est aussi montré sur cette photographie. Cet ensemble (support plus collimateur) est utilisé pour les mesures de pertes d'énergies aussi bien avec la source radioactive (accélérateur à l'arrêt) qu'avec l'accélérateur (source radioactive retirée) afin de s'assurer que la même région de l'échantillon cible est sondée par les faisceaux d'ions provenant de l'accélérateur ou de la source radioactive.



**Fig. 2.4** Photographie montrant le détail de l'intérieur de la chambre à diffusion mise en place sur l'extension centrale de l'accélérateur Van de Graaff de 3.75 MV du CRNA.

### 2.2.2. Détecteurs et système d'acquisition de données

Le détecteur utilisé dans ce travail est une jonction semi-conductrice à barrière de surface implantée au Bore (B) et à l'arsenic (As). Ce détecteur (de type Ortec : ULTRA BU-011-0.25-500) présente une très fine fenêtre d'entrée (couche morte de  $\sim 50$  nm équivalent Si) qui lui donne une meilleure résolution en énergie (11 keV pour les particules

alpha de 5.48 MeV) et un bruit de fond électronique faible. Il est placé à un angle défini par rapport à la direction du faisceau incident, de 165° ou de 150° pour les mesures de pertes d'énergie ou les analyses par faisceau d'ions (IBA), respectivement. Le courant de fuite du détecteur est réduit en installant à environ 2 cm de l'échantillon cible un collimateur de 3 mm de diamètre. De cette façon, la surface active (25 mm<sup>2</sup>) du détecteur a été réduite d'un facteur ~ 3.5 et la tension maximale de polarisation (50 Volt) peut être utilisée vu que l'accroissement du courant de fuite (due à l'augmentation du volume sensible du détecteur) est alors compensé.

Par ailleurs, ce type de détecteur présente un inconvénient, tel que pour une même énergie déposée, l'amplitude du signal délivré par le détecteur est légèrement différente selon que la particule détectée est légère ou lourde. Cet effet de défaut d'impulsion, appelé "*Pulse-Height Defect*" (PHD), est lié à la déviation de l'amplitude du signal par rapport à une valeur idéale correspondante au cas où toute l'énergie déposée par la particule détectée est convertie en porteurs de charge. Cet effet, non négligeable, doit être pris en considération dans les mesures de spectres [68]. Les deux contributions majeures de cet effet sont dues à la perte d'énergie dans la fenêtre d'entrée  $\Delta E_w$  et à celles  $\Delta E_{ni}$  induites par les processus non ionisants comme les collisions élastiques opérant à l'intérieur de la zone sensible du détecteur. L'énergie effectivement détectée  $E^*$ , liée à la production effective de paires électron-trou dans le détecteur, est donnée par :

$$E^* = E - \Delta E_w - \Delta E_{ni} \quad (2.1)$$

où  $E$  désigne l'énergie de la particule incidente supposée entièrement déposée. Pour les énergies considérées dans ce travail, l'effet PHD représente des pertes d'énergie

supplémentaires de l'ordre de 6 keV pour les protons. Les données expérimentales rapportées dans ce travail ont été corrigées par la prise en compte systématique de cet effet. Le signal électrique du détecteur est converti en impulsion, mis en forme et amplifié au moyen d'une chaîne électronique standard NIM. L'information utile issue de celle-ci est ensuite enregistrée sur un micro-ordinateur via une carte d'acquisition. L'exploitation de ces données et leur visualisation se fait par l'intermédiaire du programme MAESTRO-32 [69] qui permet, en outre, d'analyser ces spectres et de les enregistrer.

## 2.3. Caractérisations des cibles de formvar et de kapton

### 2.3.1. Les cibles de formvar et de kapton

Deux cibles de films polymères, kapton et formvar, ont été utilisées. Celles-ci, ont été respectivement, fournies par le commerce et fabriquées par le laboratoire de chimie de l'Institut d'Electronique du Solide et des Systèmes (InESS/CNRS) de Strasbourg (France) avec des épaisseurs respectives  $\sim 2.5\mu\text{m}$  et  $\sim 7.5\mu\text{m}$ . Les caractéristiques physiques et chimiques de ces cibles sont reportées dans le Tableau (2.1).

**Tab. 2.1** Caractéristiques physiques et chimiques des cibles Formvar et Kapton.

Cible	Formvar	Kapton
Formule chimique	$(C_5H_8O_2)_n$	$(C_{22}H_{10}N_2O_5)_n$
Densité ( $g/cm^3$ )	1.31	1.43
Composition(%)	C: 59.98, H: 8.05, O: 31.97	C: 69.12, H: 2.63, O: 20.92, N: 7.33
Epaisseur ( $\mu\text{m}$ )	2.5	7.5
Epaisseur ( $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ )	327.5	1072.5

### 2.3.2. Caractérisations des cibles de formvar et de kapton

L'épaisseur et l'état de surface des cibles constituent deux paramètres importants à considérer dans les expériences de mesures des pouvoirs d'arrêts et du straggling. De ce fait, une attention particulière a été focalisée sur les moyens adéquats permettant leurs évaluations. Il s'agit de déterminer l'épaisseur des cibles réellement traversée par le faisceau d'ions projectiles et le coefficient de rugosité caractérisant l'état de surface des cibles. Pour la mesure des épaisseurs, deux méthodes ont été utilisées : i) la méthode basée sur l'exploitation des mesures combinées des masses et des surfaces des cibles "*Weight per area method*" et ii) celle [65, 70, 71] basée sur les mesures des pertes d'énergie des particules alpha émises par des sources radioactives. Si la première méthode a l'avantage d'être précise, elle ne permet pas, en revanche, d'obtenir que des valeurs moyennées sur toutes les surfaces des cibles. Quant à la deuxième méthode, celle-ci offre la possibilité de scanner les surfaces des cibles et déterminer les profils de leurs épaisseurs "*degrés d'uniformités*". Pour la mesure du coefficient de rugosité de surface des cibles, Nous avons utilisé une méthode [72] basée sur les mesures simultanées de la perte d'énergie et du straggling.

#### 2.3.2.1. Mesures de l'épaisseur des cibles de kapton

##### (i) Méthode de la pesée par surface "*Weight per area*"

Une des contraintes rencontrées pour l'application directe de la méthode "*Weight per area*" est liée au caractère transparent à la lumière des films polymères. En effet, si la pesée de ce type de cibles est facile à réaliser, la détermination précise (par les méthodes optiques) de l'aire de sa surface est, en revanche, impossible à effectuer. Par conséquent, les aires de ces films ont été indirectement déterminées en mesurant l'aire équivalente d'une feuille de Ni

d'épaisseur  $\sim 2\mu\text{m}$ . Plusieurs échantillons de films de kapton ont été découpés à l'aide d'un découpeur étalon de forme circulaire (1.2 cm de diamètre intérieur) puis plongés dans une solution d'éthanol pour enlever les impuretés éventuelles de surface. Ils sont ensuite séchés dans une étuve de type "*Méreaus Instruments*", maintenue à une pression de  $\sim 10^{-1}\text{Torr}$  et à une température de  $\sim 50^\circ\text{C}$ , pendant 12 heures avant de procéder à leurs pesées. Dans notre travail, les pesées ont été effectuées par une microbalance électronique de type "*Sartorius*" dont la précision nominale est de  $\pm 1\mu\text{g}$  tandis que les aires des échantillons ont été mesurées indirectement par un microscope optique dont la précision de lecture est de l'ordre de  $\pm 2\mu\text{m}$ . Pour éviter les erreurs provenant des excès de masse dû aux impuretés (humidité et autres), qui augmentent avec la durée d'exposition de l'échantillon à l'atmosphère une fois retirées de l'étuve, seules les premières pesées ont été considérées. La valeur moyenne déduite de ces premières pesées pour les échantillons de Kapton est de  $1284.4\mu\text{g}$ . Elle est obtenue avec une incertitude relative de  $\sim 0.26\%$ . L'échantillon de Ni découpé a été observé au microscope optique et son diamètre a été estimé en différents points de sa surface. La valeur moyenne déduite pour ce diamètre est de  $12409\mu\text{m}$ . Elle est obtenue avec une déviation standard de  $\sim 66\mu\text{m}$ . Ainsi, l'aire de l'échantillon de Kapton est de  $(120.9 \pm 4)\text{mm}^2$ . En combinant ce résultat avec ceux des pesées, on obtient l'épaisseur des échantillons de Kapton  $\bar{x} = (1062 \pm 13)\mu\text{g}/\text{cm}^2$ .

## (ii) Méthode des sources radioactives

Egalement, les épaisseurs des cibles de Kapton ont été déterminées en effectuant des mesures de pertes d'énergies des particules alpha issues d'une source radioactive mixte ( $^{241}\text{Am}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{233}\text{U}$ ), très fine et bien colmatée. Les caractéristiques de cette source sont montrées dans le tableau (2.2) où les valeurs d'énergie des pics, correspondants à des taux

d'émission de plus de 70%, ont été utilisées. Le même dispositif expérimental a été considéré, aussi bien pour les ions délivrés par l'accélérateur que pour les particules alpha de la source radioactive. Seulement dans le cas de l'utilisation de la source, celle-ci est positionnée à l'endroit de la cible de rétrodiffusion Au/Si. Enfin, il faut s'assurer que la même épaisseur de cible sera traversée par les deux types de particules : les ions de l'accélérateur et les particules alpha de la source.

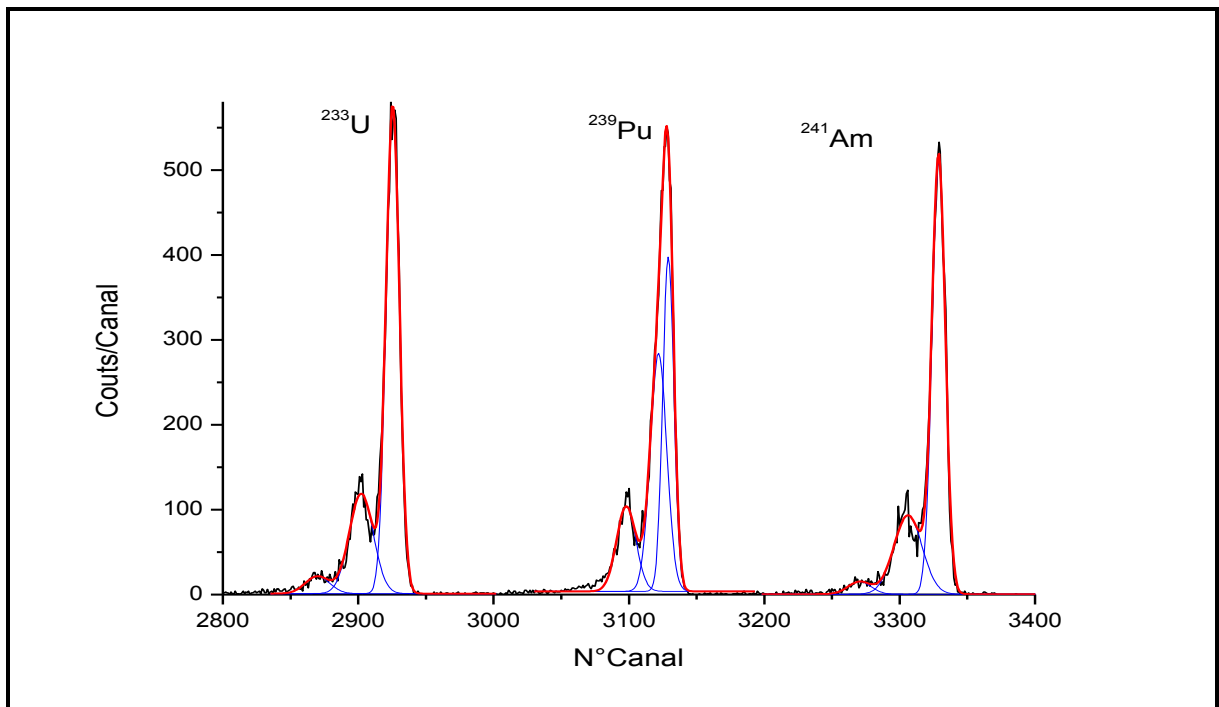
**Tab. 2.2** Les Caractéristiques de la source mixte ( $^{241}\text{Am}$ - $^{239}\text{Pu}$ - $^{233}\text{U}$ ) des particules alphas utilisée

$^{233}\text{U}$		$^{239}\text{Pu}$		$^{241}\text{Am}$	
$E$ (keV)	Taux d'émission(%)	$E$ (keV)	Taux d'émission (%)	$E$ (keV)	Taux d'émission (%)
4729	1.9	5105.8	11.5	5388	1.3
4783.5	14.9	5144.3	15.1	5442.8	12.8
4824.2	82.7	5156.59	73.3	5485.56	85.2

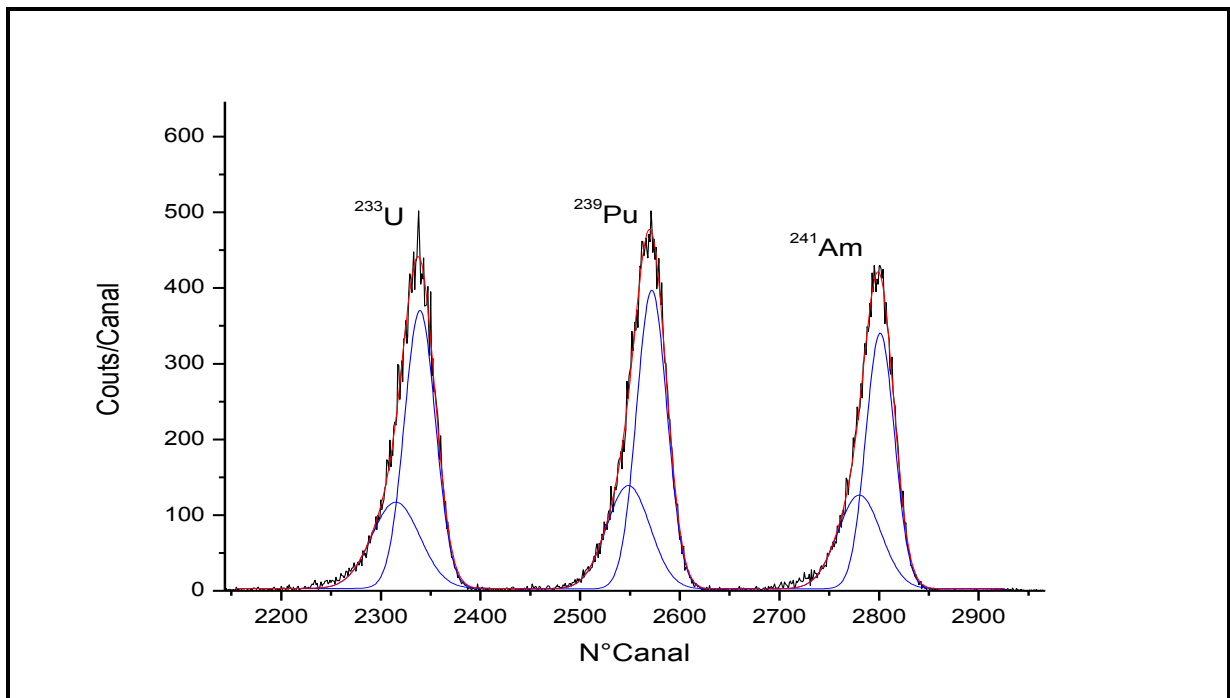
Une calibration "énergie-canal" est effectuée au préalable, en exploitant les spectres énergétiques obtenus sans les cibles de Kapton. Les figures (2.5) et (2.6) montrent respectivement, les spectres et leurs fit multi-gaussiens (courbes en trait rouge et bleu) enregistrés sans et avec les cibles de kapton. Ces derniers permettent la détermination précise des positions des différents pics énergétiques  $C_0$  (sans cible) et  $C_c$  (avec cible). Ces derniers ont été déduits avec une incertitude relative meilleure que 0.01%. La perte d'énergie moyenne  $\langle \Delta E \rangle$  de ces particules alpha dans la cible de kapton est déduite à partir des valeurs des positions des pics  $C_0$  et  $C_c$  par l'équation suivante :

$$\langle \Delta E \rangle = E_0 - E_c = a(C_0 - C_c) \quad (2.2)$$

où  $a$  est la pente de la droite de calibration canal-énergie.

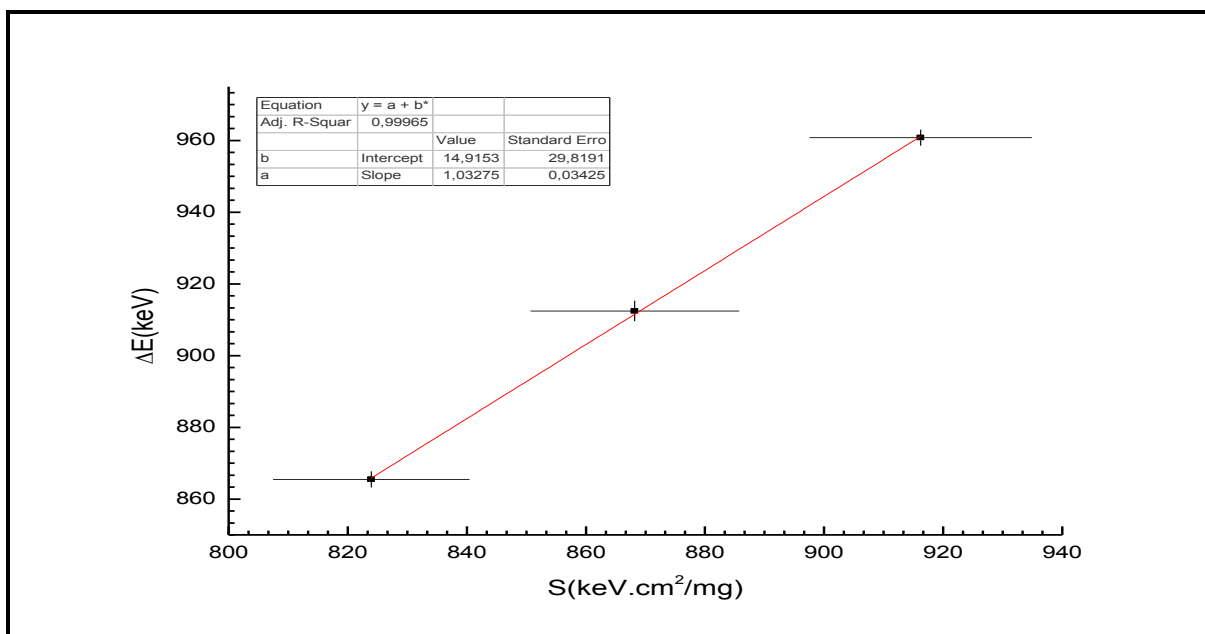


**Fig.2.5** Les spectres expérimentaux de la perte d'énergie des particules alpha de la source radioactive mixte ( $^{241}\text{Am}$ - $^{239}\text{Pu}$ - $^{233}\text{U}$ ) obtenus sans la cible de Kapton et leurs fit multi-gaussiens



**Fig. 2.6** Les spectres expérimentaux de la perte d'énergie des particules alpha de la source radioactive mixte ( $^{241}\text{Am}$ - $^{239}\text{Pu}$ - $^{233}\text{U}$ ) obtenus avec la cible de Kapton, et leurs fit multi-gaussiens

Les valeurs des pouvoirs d'arrêt, utilisées pour la détermination de l'épaisseur des cibles de kapton, sont obtenues par le code SRIM08 [73] à l'énergie moyenne  $E_m = E_0 - \frac{\Delta E}{2}$  ( $E_0$  l'énergie des particules alpha de la source). Les données de mesure de la perte d'énergie  $\langle \Delta E \rangle$  sont reportées en fonction des valeurs  $S(E_m)$  dans la figure (2.7). La précision de calcul du pouvoir d'arrêt par le code SRIM08, dans le cas de la matière composée tel que le Kapton, est comprise entre 2% et 4%.



**Fig. 2.7** Perte d'énergie moyenne  $\langle \Delta E \rangle$  des particules alpha traversant la cible de Kapton en fonction des valeurs  $S(E_m)$  du pouvoir d'arrêt calculé par SRIM08.

La perte d'énergie relative  $\langle \Delta E \rangle / E$  de ces trois points de mesures se situe entre 15% et 20%. Par conséquent, on peut utiliser l'expression  $S(E_m) = \langle \Delta E \rangle / \bar{x}$  pour déduire, avec une bonne précision, la valeur moyenne de l'épaisseur de la cible. L'épaisseur moyenne  $\bar{x}$  du film de Kapton est de  $1033 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ , obtenue par la pente de la droite  $\Delta E = f(S)$  (Fig. 2.7) avec une incertitude de  $\sim 2.32\%$ .

Enfin, il est à noter que les valeurs moyennes des épaisseurs déterminées par les deux méthodes sont en bon accord. Elles diffèrent pratiquement de  $\sim 3.4\%$ . La valeur déterminée par la première méthode, sera adoptée dans le présent travail.

### 2.3.2.2. Uniformité des cibles de Formvar et Kapton

A l'échelle macroscopique et par un balayage surfacique, l'uniformité des cibles de Formvar et de Kapton a été investiguée en effectuant des mesures de la perte d'énergie des particules alphas de 5.485MeV de l'isotope  $^{241}\text{Am}$  de la source radioactive mixte. En conséquence, la déviation standard des valeurs de la perte d'énergie obtenue  $\Delta E$  est meilleure que 1.5%.

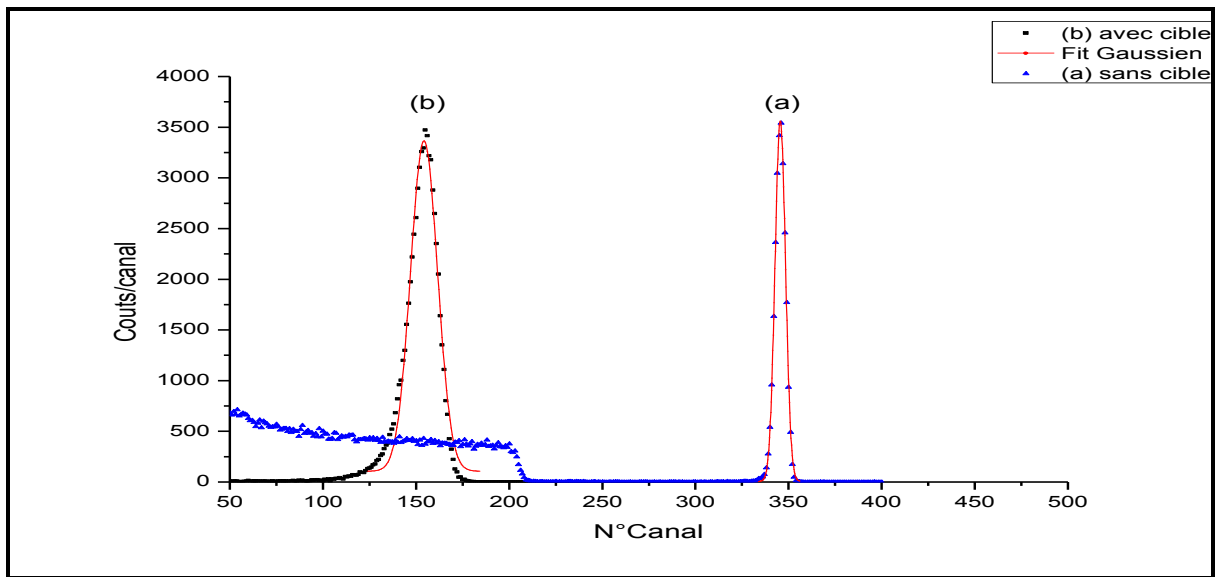
A l'échelle microscopique, l'investigation a été effectuée en utilisant la méthode [72] basée sur les mesures simultanées de la perte d'énergie et du straggling. Ainsi, des valeurs limites supérieures du coefficient de rugosité du Formvar et de Kapton,  $\rho = \sigma/\bar{x}$  (avec  $\sigma$  étant la déviation standard de l'épaisseur des cibles), ont été déterminées en utilisant les particules alpha de l'accélérateur d'énergie respective, 1.3MeV et 2.6MeV. Cependant, l'équation qui décrit l'élargissement additionnel, généré par la rugosité des cibles, du spectre de la perte d'énergie est donnée par :

$$\Omega^2 = \Omega_0^2 + \rho^2 \Delta E^2 \quad (2.3)$$

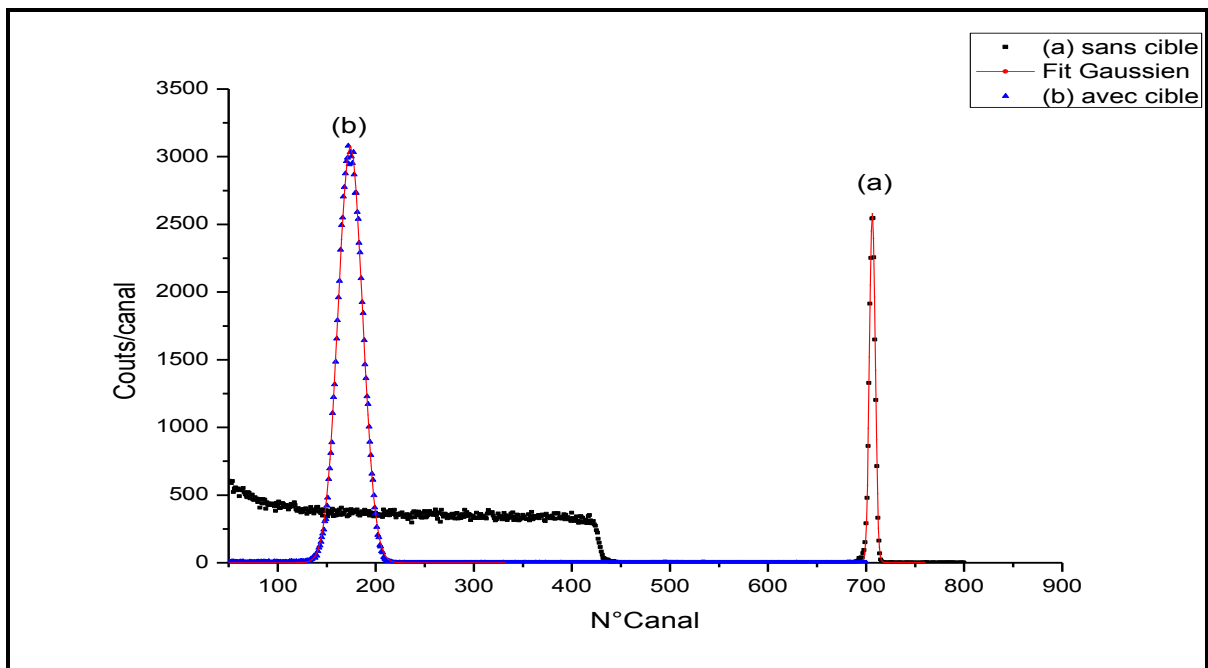
avec  $\Omega^2$  est le straggling expérimental et  $\Omega_0^2$  est le straggling intrinsèque. Le terme,  $\rho^2 \Delta E^2$  constitue la contribution au straggling due à la rugosité des cibles. Sachant que,  $\Omega_0^2$  est toujours positif, l'équation (2.3) donne une solution intermédiaire pour obtenir une limite supérieure de  $\rho$  à travers l'inégalité:  $\rho^2 < \Omega^2 / \Delta E^2$ .

Pour choisir les conditions adéquates qui permettent une évaluation précise et correcte de la valeur limite du coefficient de rugosité,  $\rho_{LS}^2 = \frac{\Omega^2}{\Delta E^2}$ , il faut regarder la différence  $\rho_{LS}^2 - \rho^2$ , qui est égal à  $\frac{\Omega_0^2}{\langle \Delta E \rangle^2}$ . Sachant qu'aux faibles énergies la perte d'énergie moyenne  $\Delta E$  augmente en  $\sim E^{1/2}$  et diminue en  $\sim 1/E$  aux énergies élevées au-delà du maximum du pouvoir d'arrêt. Le stragglings  $\Omega_0^2$  possède le même comportement aux faibles énergies, tandis qu'aux énergies élevées, il tend vers une constante. Pour cette raison, la différence  $\rho_{LS}^2 - \rho^2$  devient plus large aux énergies élevées. Ceci permet de dire que les mesures du coefficient de rugosité aux faibles énergies, au-dessous du maximum du pouvoir d'arrêt, sont plus indiquées que celles effectuées aux énergies élevées.

Les Figures (2.8) et (2.9) rapportent, respectivement, les spectres énergétiques et les fits gaussiens correspondants de la perte d'énergie des particules alpha de 1.3MeV et 2.6MeV (a) sans et (b) avec les cibles de Formvar et de Kapton. Les fit Gaussiens permettent d'avoir la perte d'énergie moyenne et le stragglings,  $\Delta E$  et  $\Omega^2$ , dans les cibles de Formvar et du Kapton. Par conséquent, les valeurs limites supérieures du coefficient de rugosité ( $\rho_{ls} = \frac{\Omega}{\langle \Delta E \rangle}$ ) des cibles de Formvar et de Kapton sont déduites et sont respectivement  $3.42 \times 10^{-2}$  et  $2.27 \times 10^{-2}$ .



**Fig. 2.8** Spectre d'énergie des particules alpha de 1.3MeV avant et après avoir traversé la cible de Formvar de  $277.5\mu\text{g}/\text{cm}^2$  d'épaisseur.

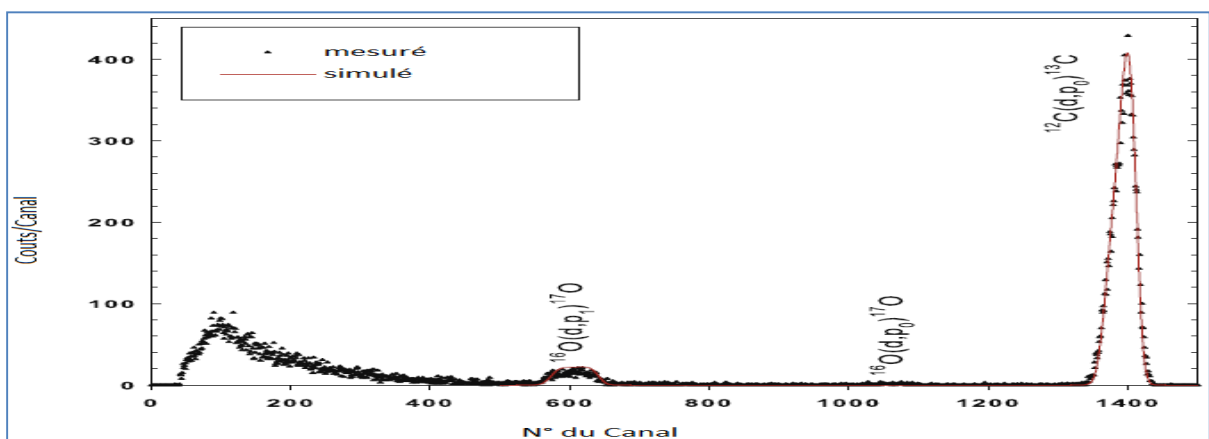


**Fig. 2.9** Spectre d'énergie des particules alpha de 2.6MeV avant et après avoir traversé la cible de Kapton de  $1062\mu\text{g}/\text{cm}^2$  d'épaisseur

### 2.3.2.3. Vérification de la stœchiométrie des cibles de Formvar

La stœchiométrie élémentaire des cibles Formvar a été vérifiée par la technique d'analyse (NRA) en utilisant un faisceau de deuteron incident de  $900 \text{ keV}$ . L'intensité du courant du faisceau est maintenue à une valeur moyenne de  $10 \text{ nA}$ . Le dispositif expérimental reste le même que celui utilisé pour les mesures de la perte d'énergie sauf que, la cible de rétrodiffusion Au-Si est remplacée par celle de Formvar et le détecteur est repositionné à  $150^\circ$ . Un échantillon de Mylar de  $12 \mu\text{m}$  d'épaisseur est placé devant le détecteur pour arrêter les deutons diffusés et réduire le temps mort. Afin d'empêcher l'accumulation du carbone (déposé par l'impact des deutons), la cible de Formvar est constamment échangée durant l'acquisition des données [65]. La figure (2.10) rapporte le spectre NRA (cercles pleins) obtenu pour un faisceau de  $\sim 15 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$  de fluence et de  $\sim 0.02\%$  de temps mort. La meilleure contrepartie simulée, effectuée au moyen du code SIMNRA [74], est également montrée dans cette figure. Les données de sections efficaces non-Rutherford des réactions  $^{12}\text{C} (d, p_0) ^{13}\text{C}$  et  $^{16}\text{O} (d, p_1) ^{17}\text{O}$ , reportées dans les références [75, 76], ont été utilisées. L'épaisseur des cibles de Formvar ( $\bar{x} = 277.5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ), obtenue dans des travaux antérieurs [65], a été utilisée. Les concentrations atomiques du carbone ( $C_C$ ) et de l'oxygène ( $C_O$ ) sont prises comme paramètres d'ajustements libres et celle de l'hydrogène ( $C_H$ ) est déduite de la relation  $\sum_i C_i = 1$ . Par ailleurs, on note que le pic qui apparaît autour du canal 1070, attribué à l'énergie des protons produits par la réaction  $^{16}\text{O} (d, p_0) ^{17}\text{O}$ , n'a pas été pris en considération (rapport signal/bruit de fond est très faible). En outre, pour des énergies de deutons autour de  $900 \text{ keV}$  et à un angle de détection de  $150^\circ$ , les rapports de section efficace  $[^{16}\text{O} (d, p_0) ^{17}\text{O}/^{16}\text{O} (d, p_1) ^{17}\text{O}]$  et  $[^{16}\text{O} (d, p_0) ^{17}\text{O}/^{12}\text{C} (d, p_0) ^{13}\text{C}]$  sont respectivement, inférieurs à 10 et à 60. Comme le montre la figure (2.10), les spectres mesurés et simulés sont en très bonne concordance dans la gamme des canaux considérée.

La stœchiométrie atomique moyenne élémentaire des cibles de Formvar obtenue à travers cette simulation est:  $C_C = 33.3\%$ ,  $C_O = 13.3\%$  and  $C_H = 53.4\%$ . Ces valeurs sont obtenues avec des incertitudes relatives de  $\sim 6\%$  pour les éléments (C, O), et de  $\sim 8.5\%$  pour H. Ces incertitudes sont estimées à partir de celle considérée dans les données des sections efficaces [75, 76], qui est de 4%. Les fractions respectives, obtenues des éléments C, O et H, correspondent exactement à la formule chimique donnée  $C_5H_8O_2$  du Formvar. On note que le bruit de fond élevé aux basses énergies, montré dans la figure (2.10), qui est typiquement observé dans les spectres expérimentaux RBS et NRA [67, 75, 76], est essentiellement généré par des diffusions multiples du groupe de protons ( $p_0, p_1$ ) aux larges angles à l'intérieur des polymères. En effet, ces protons perdent de plus en plus d'énergie par l'augmentation de leurs parcours à l'intérieur du polymère, qui induit une augmentation de leurs proportions et, ainsi, un important bruit de fond aux basses énergies des projectiles. Noter que, ce phénomène a été extensivement étudié antérieurement [77-81] mais il est implémenté uniquement pour des spectres RBS [82, 83] dans les codes SIMNRA [74] et NDF [84, 85] utilisant des procédures ad hoc.



**Fig. 2.10** Spectre NRA mesuré (symboles) enregistré à un angle de  $\theta=150^\circ$  dans le système repère du laboratoire pour un faisceau de deutons de  $900\text{ keV}$  en incidence normale sur une cible de Formvar de  $277.5\mu\text{g}/\text{cm}^2$  d'épaisseur. Le meilleur spectre simulé correspondant obtenu dans la gamme des canaux  $\sim (500-1500)$  en utilisant le code SIMNRA [74] est aussi montré.

## Chapitre 3

### Résultats, analyses et discussions

#### 3.1. Introduction

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats du pouvoir d'arrêt et du straggling collisionnel des protons pour les deux polymères considérés (formvar et kapton). Ces résultats seront discutés et confrontés aux données expérimentales et théoriques rapportées dans la littérature. Les différentes étapes d'analyse des données sont détaillées. Il est notamment question de la description de la procédure de traitement des spectres de pertes d'énergie mesurées en vue de la détermination précise des valeurs moyennes et des largeurs à mi-hauteur (FWHM) de ces spectres.

### 3.2. Traitement des spectres de pertes d'énergies

Un faisceau d'ions d'énergie cinétique moyenne  $E_0$  traversant une cible donnée perd en moyenne une énergie  $\Delta E$ . Elle est donnée, dans chacun des échantillons, par la différence entre les énergies moyennes  $E_0$  et  $E_c$  des ions rétrodiffusés obtenues respectivement sans et avec interposition de l'échantillon cible sur la trajectoire de ce dernier, soit :

$$\Delta E = E_0 - E_c = h(C_0 - C_c) \quad (3.1)$$

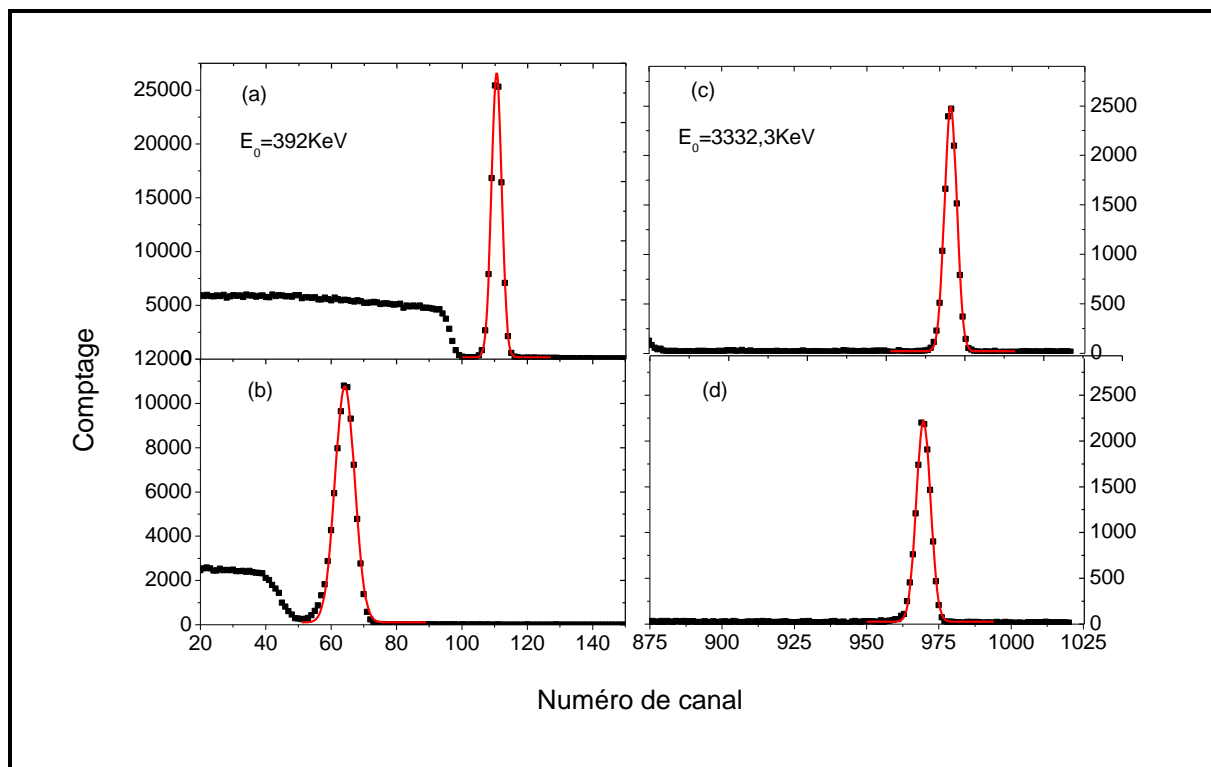
où  $C_0$  et  $C_c$  sont les équivalents, exprimés en numéro de canal, des énergies  $E_0$  et  $E_c$ .  $h$  est la pente de la droite de calibration ‘‘énergie-canal’’ obtenue par une régression linéaire. Ces pertes d'énergie moyennes  $\Delta E$  sont obtenues avec des incertitudes absolues  $\delta\Delta E$ , estimées par l'équation suivante :

$$\frac{\delta\Delta E}{\Delta E} = \left[ \frac{\Delta h}{h} + \frac{\Delta C_c}{(C_0 - C_c)} + \frac{\Delta C_0}{(C_c - C_0)} \right] \quad (3.2)$$

où  $\Delta C_0$ ,  $\Delta C_c$  et  $\Delta h$  sont les incertitudes absolues sur les valeurs respectives  $C_0$ ,  $C_c$  et  $h$ .

La précision sur  $\Delta E$  repose sur la détermination de  $C_0$  et  $C_c$ , obtenus par les fits gaussiens des distributions des pertes d'énergie mesurées. Cependant, ces valeurs sont accessibles expérimentalement que dans le cas où les spectres ont un caractère Gaussien. Dans le cas contraire, ce sont les positions les plus probables qui peuvent être mesurées de façon fiable et reproductible. La différence entre ces deux valeurs est d'autant plus faible que la forme de la distribution approche celle d'une gaussienne. La forme des spectres, mesurés et exploités dans ce travail, est pratiquement une gaussienne. En effet: (i) pour des valeurs de perte d'énergie relative ( $\Delta E/E$ ) comprise entre 5% et 20%, la forme des spectres est gaussienne [86]; (ii) pour des faibles pertes d'énergie relatives (< 5%) la forme gaussienne

est inspectée en calculant le rapport  $(\Omega_t^2/T_m^2)$  [87, 88] (où  $\Omega_t^2$  et  $T_m$  désignent respectivement le straggling total et l'énergie maximale transférée en une seule collision) où la plus faible valeur du paramètre  $\Omega_t^2/T_m^2$  obtenue dans ce travail est supérieure à l'unité, ainsi, l'approximation gaussienne de ces distributions est bien justifiée; (iii) pour les spectres à larges pertes d'énergie relatives ( $> 20\%$ ), les moments d'ordre supérieurs (skewness et kurtosis) doivent être évalués pour estimer le degré de la dissymétrie de ces spectres. Cependant, ces moments sont d'une importance minimale [89] du fait que les formes gaussiennes prévalent pour les épaisseurs de cibles où le critère de Bohr  $\Omega \gg T_m$  (ie. la déviation standard du profil de la distribution de la perte d'énergie est beaucoup plus grande que le maximum d'énergie transférée en une seule collision) est largement satisfait.



**Fig. 3.1** Exemples de spectres de pertes d'énergie et leurs ajustements gaussiens dans le cas de film de formvar de  $277.5\mu\text{g}/\text{cm}^2$  d'épaisseur pour des protons de 392 keV (a, b) et de 3332.3keV (c, d).

La figure (3.1) ci-dessus, montre les spectres et les fit gaussiens correspondants (trait rouge), obtenus sans ( $a, c$ ) et avec ( $b, d$ ) interposition de la cible de Formvar pour deux énergies des protons incidents,  $E_0 = 392 \text{ keV}$  et  $E_0 = 3332.3 \text{ keV}$ . Ces spectres correspondent aux valeurs (40.02% et 0.93%) de pertes d'énergie relatives ( $\Delta E/E_0$ ) enregistrées dans ce travail. Comme on peut le constater, ces deux cas de distributions de pertes d'énergie sont parfaitement reproduits par des fits gaussiens (avec un coefficient d'ajustement  $r^2$  meilleur que 0.9923). Il est à noter que ce caractère gaussien a été vérifié durant l'analyse de l'ensemble des spectres exploités. Ainsi, les valeurs  $C_0$  et  $C_c$  sont déduites des fit gaussiens de ces spectres sur des régions de  $\pm 3,5\sigma$  autour des valeurs moyennes. Ainsi, les pertes d'énergies sont obtenues directement par la relation (3.1) avec des incertitudes relatives estimées par la relation (3.2).

### 3.3. Détermination des pouvoirs d'arrêts

Dans cette section, nous présenterons les résultats expérimentaux des pouvoirs d'arrêt  $S(E)$  obtenus pour les protons dans les cibles de Kapton. Pour les pertes d'énergie relatives ( $\Delta E/E_0$ ) inférieure à 20%, celui-ci est défini à l'énergie moyenne  $E_m = E_0 - \frac{\Delta E}{2}$  pour une épaisseur  $\bar{x}$  de la cible de kapton par :

$$S(E) \approx \frac{\Delta E}{\bar{x}} = \frac{E_0 - E_c}{\bar{x}} = \frac{h(C_0 - C_c)}{\bar{x}} \quad (3.3)$$

Pour des mesures effectuées aux basses énergies qui ne satisfont pas la condition ( $\Delta E/E_0 < 20\%$ ) précédente, les valeurs  $S(E)$  déduites ont été corrigées par un terme de correction quadratique  $\delta S$  ( $S(E) = S_{mesuré}(E) + \delta S$ ). Ce dernier résulte du développement, au second

ordre en  $\Delta E/E_0$ , de la fonction  $S(E)$  [89]. La valeur maximale de  $\delta S/S$  obtenue pour cette correction pour les cibles de kapton est  $\approx 0.39\%$ .

Une autre hypothèse supplémentaire pour la validité de l'expression (3.3) est que la valeur  $\bar{x}$  de l'épaisseur de la cible doit être identique à celle de l'épaisseur réellement traversée par le projectile. Cette hypothèse ne peut être qu'approximative. En effet, suite aux diffusions multiples à l'intérieur du matériau cible, les particules incidentes subissent des déviations angulaires et par conséquent, la distance moyenne parcourue est légèrement supérieure à l'épaisseur  $\bar{x}$  de la cible. Les corrections dues à cet effet sont de faibles importances pour le cas des cibles minces et légères mais elles peuvent, en revanche, être significatives dans le cas des cibles épaisses et particulièrement celles à  $Z_2$  élevés. Pour des pertes d'énergies relatives très importantes ( $\Delta E/E_0 \gg 20\%$ ), ce phénomène de diffusion multiple a été pris en considération par l'évaluation de l'accroissement moyen  $\delta\bar{x}$  du parcours des ions projectiles dans le matériau cible. En se basant sur l'approximation de diffusion à petits angles, l'accroissement  $\delta\bar{x}$  peut être donné par [90] :

$$\delta\bar{x} \approx \int_0^{\bar{x}} \langle \theta^2 \rangle dt \quad (3.4)$$

où  $\langle \theta^2 \rangle$  est la valeur moyenne du carré de l'angle de diffusion donnée par la théorie des diffusions multiples de Bethe et Ashkin [91]. Les valeurs relatives maximales obtenues des accroissements ( $\delta\bar{x}/\bar{x}$ ) des parcours des protons dans les cibles de kapton est de  $\approx 0.08\%$ , qui peut être considérée négligeable.

Les résultats des pouvoirs d'arrêt  $S(E)$  obtenus sont présentés dans le tableau (3.4) et les incertitudes relatives  $\Delta S/S$  correspondantes ont été déduites à partir de la relation (3.3) et sont simplement données par:

$$\frac{\Delta S}{S} = \sqrt{\left(\frac{\Delta x}{x}\right)^2 + \left(\frac{\Delta h}{h}\right)^2 + \left(\frac{\Delta C_0}{C_0 - C_c}\right)^2 + \left(\frac{\Delta C_c}{C_0 - C_c}\right)^2} \quad (3.5)$$

**Tab. 3.4** Pouvoirs d'arrêt mesurés ( $S_{exp}(E)$ ) et les fractions ( $\Delta E/E_0$ ) des pertes d'énergie relatives correspondantes pour les protons dans la cible de Kapton.

$E_m(keV)$	$\Delta E/E_0(\%)$	$S_{ex}(keV \cdot cm^2/mg)$	$E_m(keV)$	$\Delta E/E_0(\%)$	$S_{ex}(keV \cdot cm^2/mg)$
409,8	71,35	426,38 ± 8,52	1575,6	10,86	170,44 ± 3,41
481,5	59,65	383,90 ± 7,67	1472,9	12,15	179,42 ± 3,59
547	51,19	352,92 ± 7,06	1677,8	09,79	162,63 ± 3,26
608,8	44,71	328,85 ± 6,58	1779,4	08,89	155,90 ± 3,12
668,4	39,53	308,93 ± 6,18	1880,7	08,11	149,63 ± 3,00
725,4	35,52	294,99 ± 5,91	2082,5	06,83	138,71 ± 2,78
785,6	31,25	273,96 ± 5,49	2282,8	05,90	130,63 ± 2,62
840,8	28,43	262,35 ± 5,25	2483,6	05,07	121,60 ± 2,44
948,9	23,96	243,19 ± 4,87	2683,8	04,40	113,82 ± 2,28
1055,9	20,45	226,43 ± 4,54	2881,9	03,97	109,80 ± 2,20
1161,4	17,70	212,32 ± 4,25	3081,4	03,50	103,22 ± 2,07
1265,4	15,55	200,91 ± 4,02	3279,6	03,16	099,11 ± 1,99
1370,3	13,58	187,96 ± 3,77			

### 3.4. Détermination du Straggling

Dans cette section, nous présenterons les résultats expérimentaux du straggling des protons dans le Kapton et le formvar. Expérimentalement, les valeurs de ce dernier sont déduites à partir des largeurs à mi-hauteur  $\delta E_{exp}$  des spectres mesurés de la perte d'énergie. Cependant, la relation qui lie ces deux quantités est plus complexe, sauf que

dans le cas où le spectre de la perte d'énergie a une forme Gaussienne, le straggling expérimental  $\Omega_{exp}^2$  est donné en fonction de  $\delta E_{exp}$  par l'expression suivante :

$$\Omega_{exp}^2 = \frac{\delta E_{exp}^2}{8 \ln 2} \quad (3.6)$$

La largeur à mi-hauteur des spectres mesurés est obtenue en utilisant la relation suivante :

$$\delta E_{exp} = (\delta E_c^2 - \delta E_0^2)^{1/2} \quad (3.7)$$

où  $\delta E_0$  et  $\delta E_c$  sont, respectivement, les largeurs à mi-hauteur des spectres mesurés sans et avec les cibles Formvar et Kapton. Les incertitudes absolues sur  $\Omega_{exp}^2$  et  $\delta E_{exp}$  sont évaluées en considérant la propagation d'erreur affectant les largeurs  $\delta E_0$  et  $\delta E_c$ . Elles sont données par les expressions suivantes :

$$\Delta \delta E_{exp} = \frac{\sqrt{(\delta E_c \Delta \delta E_c)^2 + (\delta E_0 \Delta \delta E_0)^2}}{\delta E_{exp}} \quad (3.8)$$

$$\text{et} \quad \Delta \Omega_{exp}^2 = \frac{1}{4 \ln 2} \sqrt{(\delta E_c \Delta \delta E_c)^2 + (\delta E_0 \Delta \delta E_0)^2} \quad (3.9)$$

Les incertitudes absolues  $\Delta \delta E_c$  et  $\Delta \delta E_0$  sont obtenues à partir des ajustements Gaussiens des spectres mesurés et de l'incertitude sur la pente  $h$  de la droite de calibration canal-énergie, elles sont estimées par :

$$\Delta \delta E_c = \delta E_c \left[ \frac{\Delta \Omega_c}{\Omega_c} + \frac{\Delta h}{h} \right] \text{ et } \Delta \delta E_0 = \delta E_0 \left[ \frac{\Delta \Omega_0}{\Omega_0} + \frac{\Delta h}{h} \right] \quad (3.10)$$

Les valeurs expérimentales de  $\Omega_{exp}^2$  ont été corrigées en tenant en compte de l'effet de rugosité des cibles. Ce dernier a été estimé en utilisant la méthode de Besenbacher et al.

[28], qui est basée sur l'hypothèse que l'épaisseur des cibles suit une variation Gaussienne avec une déviation standard  $\sigma$ . La valeur du stragglng corrigé est donnée ainsi par :

$$\Omega^2(E_m) = \Omega_{exp}^2(E_m) - \rho^2 \Delta E^2 \quad (3.11)$$

où  $\Delta E$  est la perte d'énergie mesurée des cibles considérées, et  $\rho$  le coefficient de rugosité. Les valeurs limites de ce dernier sont,  $2.27 \times 10^{-2}$  pour le kapton et  $3.42 \times 10^{-2}$  pour le formvar.

Les résultats du stragglng pour le kapton et le formvar sont reportés dans les tableaux (3.5) et (3.6). Notons que, nous n'avons pas exploité les données pour lesquelles  $\Delta E/E_0 \lesssim 2\%$  (cas de cibles très minces) pour déduire le stragglng. En effet, les collisions uniques et/ou Coulombiennes quasi-libres contribuent alors de façon considérable dans les fluctuations statistiques de la perte d'énergie et par conséquent, l'allure du spectre de la perte d'énergie sera fortement influencée par les sections efficaces différentielles de collisions uniques. Ces dernières ont la particularité de présenter des pics nettement prononcés pour de faibles transferts d'énergies avec de longues queues allant vers les maxima de pertes d'énergie permises par les lois de conservation.

**Tab. 3.5** Le stragglings mesuré  $\Omega^2(E)$  et les fractions  $\Delta E/E_0$  des pertes d'énergie relatives correspondants pour les protons dans le Kapton.

$E_m(\text{keV})$	$\Delta E/E_0(\%)$	$\Omega^2(\text{keV}^2)$	$E_m(\text{keV})$	$\Delta E/E_0(\%)$	$\Omega^2(\text{keV}^2)$
725.4	35.52	$104.60 \pm 2.65$	1677.8	9.79	$090.36 \pm 3.00$
785.6	31.25	$104.11 \pm 2.53$	1779.4	8.89	$086.73 \pm 3.29$
840.8	28.43	$109.69 \pm 3.03$	1880.7	8.11	$080.05 \pm 3.42$
948.9	23.96	$099.46 \pm 2.96$	2082.5	6.83	$082.98 \pm 4.22$
1055.9	20.45	$113.91 \pm 2.95$	2282.8	5.9	$082.76 \pm 3.42$
1161.4	17.7	$104.30 \pm 2.24$	2483.6	5.07	$082.27 \pm 4.20$
1265.4	15.55	$094.88 \pm 3.10$	2683.8	4.4	$091.11 \pm 4.06$
1370.3	13.58	$084.28 \pm 3.61$	2881.9	3.97	$089.02 \pm 4.47$
1472.9	12.15	$090.13 \pm 3.61$	3081.4	3.5	$088.78 \pm 4.30$
1575.6	10.86	$088.22 \pm 2.73$	3279.6	3.16	$082.93 \pm 3.94$

**Tab. 3.6** Le stragglings mesuré  $\Omega^2(E)$  et les fractions  $\Delta E/E_0$  des pertes d'énergie relatives correspondants pour les protons dans le formvar.

$E_m(\text{keV})$	$\Delta E/E_0(\%)$	$\Omega^2(\text{keV}^2)$	$E_m(\text{keV})$	$\Delta E/E_0(\%)$	$\Omega^2(\text{keV}^2)$
313,6	40.01	$43.75 \pm 3.50$	941.7	7.84	$31.16 \pm 3.15$
370.3	32.06	$39.35 \pm 3.23$	1042.3	6.63	$28.33 \pm 3.26$
425.0	26.53	$38.76 \pm 2.04$	1142.5	5.71	$28.61 \pm 2.66$
478.5	22.46	$32.66 \pm 3.63$	1242.6	4.94	$23.91 \pm 3.93$
531.6	19.18	$33.34 \pm 3.63$	1342.3	4.35	$23.85 \pm 3.60$
584.0	16.65	$30.52 \pm 3.83$	1441.7	3.87	$24.87 \pm 2.92$
687.6	12.92	$26.33 \pm 3.11$	1540.5	3.52	$24.23 \pm 2.97$
738.7	11.57	$29.56 \pm 4.22$	1640.3	3.1	$26.33 \pm 2.88$
789.6	10.43	$32.00 \pm 3.42$	1739.2	2.82	$24.17 \pm 3.04$
840.7	9.38	$30.09 \pm 2.62$	1838.3	2.56	$23.76 \pm 2.12$
891.1	8.6	$30.22 \pm 2.42$	1937.4	2.33	$22.58 \pm 3.24$

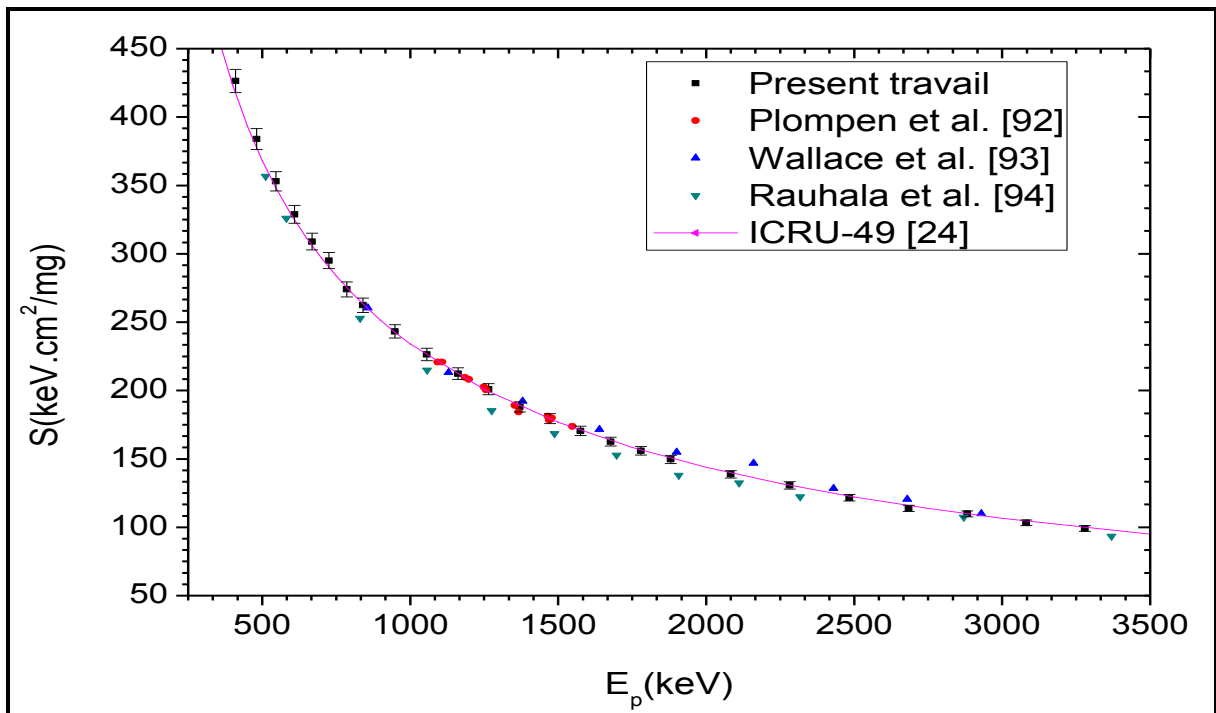
### 3.5. Discussions et confrontations des données expérimentales

#### (i) Pouvoir d'arrêt

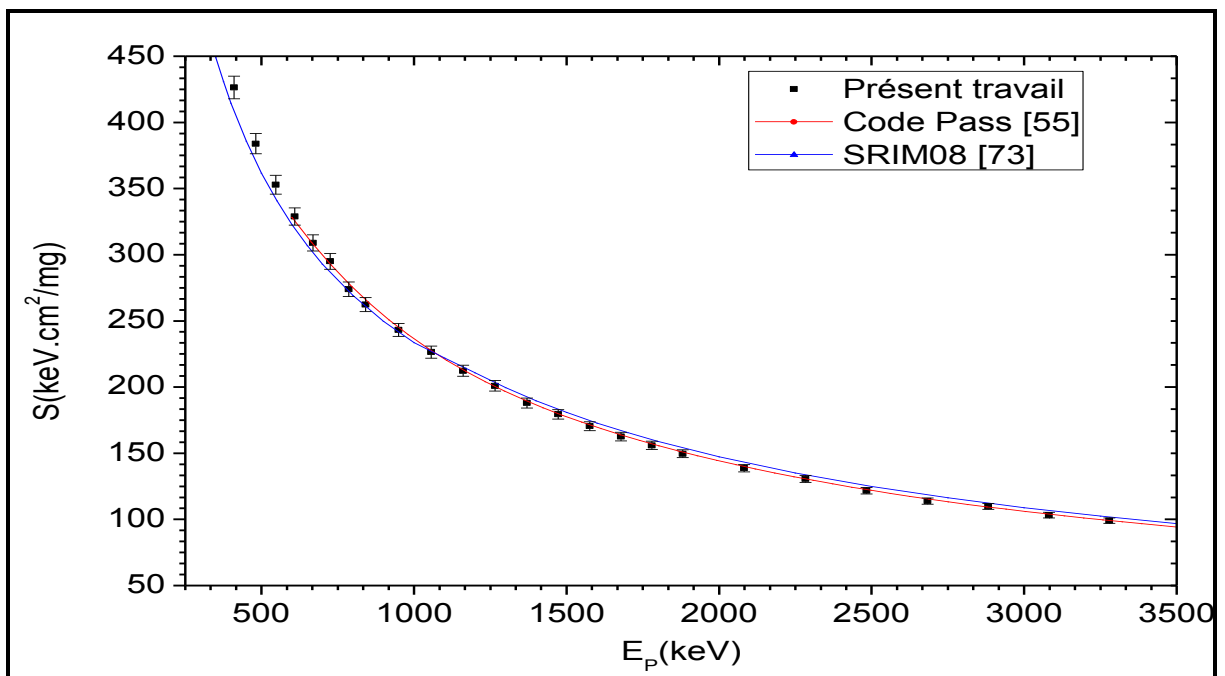
Les résultats des pouvoirs d'arrêt obtenus pour les protons dans le kapton sont comparés aux données expérimentales disponibles dans la littérature [92-94], aux valeurs calculées par le code SRIM08 [73], à celles compilées dans le rapport ICRU-49 [24] et aux valeurs prédites par la théorie des collisions binaires de Sigmund-Schinner [55]. Cette comparaison, en partie, est montrée dans la figure (3.2). Aux erreurs expérimentales près, nos données sont en bon accord avec celles mesurées par M. Plompen et al. [92] et avec celles compilées dans le rapport ICRU-49 [24]. Par ailleurs, pour les énergies  $E_p > 1100\text{keV}$ , elles sont sous-estimées d'un facteur de  $\approx 3\%$  à  $6\%$  par celles rapportées par E. Rauhala et al. [94] et légèrement inférieures à celles rapportées par W.E. Wallace et al. [93], tandis que pour les énergies  $E_p < 1100\text{keV}$ , un excellent accord peut être observé. De même, dans la figure (3.3) ci-dessous, est montrée une comparaison avec les valeurs générées par les codes SRIM08 [73] et PASS [55], ou nos données, moyennant les erreurs expérimentales, sont en bon accord avec celles calculées par ces codes. Il est à noter que les valeurs  $S(E)$  générées par les codes PASS et SRIM08, ont été déduites de celles de ses constituants atomiques (H, C, O et N) par l'application de la règle d'additivité de Bragg-Kleeman. Les principales données d'input du code PASS [55] des éléments (H, C, O et N) constituants les polymères étudiés sont données dans le tableau (3.7).

**Tab. 3.7** Principales valeurs numériques (input) utilisées dans le programme PASS pour le calcul des valeurs des pouvoirs d'arrêt des éléments (H, C, O et N) constituant les polymères étudiés.

Elément	Z2	Sous-couche i	Occupation $Z_2 f_i$ de la sous-couche i	Valeur de $I_j - \hbar\omega_j$ (eV) de la sous-couche	Energie de liaison $U_i$ (eV) de la sous-couche
<b>H</b>	1	K: $n = 1; l = 0$	1	19.2	
<b>C</b>	6	K: $n = 1; l = 0$	1.992	486.2	
		L <sub>I</sub> : $n = 2; l = 0$	1.841	60.95	
		L <sub>II</sub> : $n = 2; l = 1$	2.167	23.43	
<b>N</b>	7	K: $n = 1; l = 0$	1.741	732.61	
		L <sub>I</sub> : $n = 2; l = 0$	1.680	100.646	
		L <sub>II</sub> : $n = 2; l = 1$	3.579	23.55	
<b>O</b>	8	K: $n = 1; l = 0$	1.802	965.1	
		L <sub>I</sub> : $n = 2; l = 0$	1.849	129.85	
		L <sub>II</sub> : $n = 2; l = 1$	4.349	31.6	



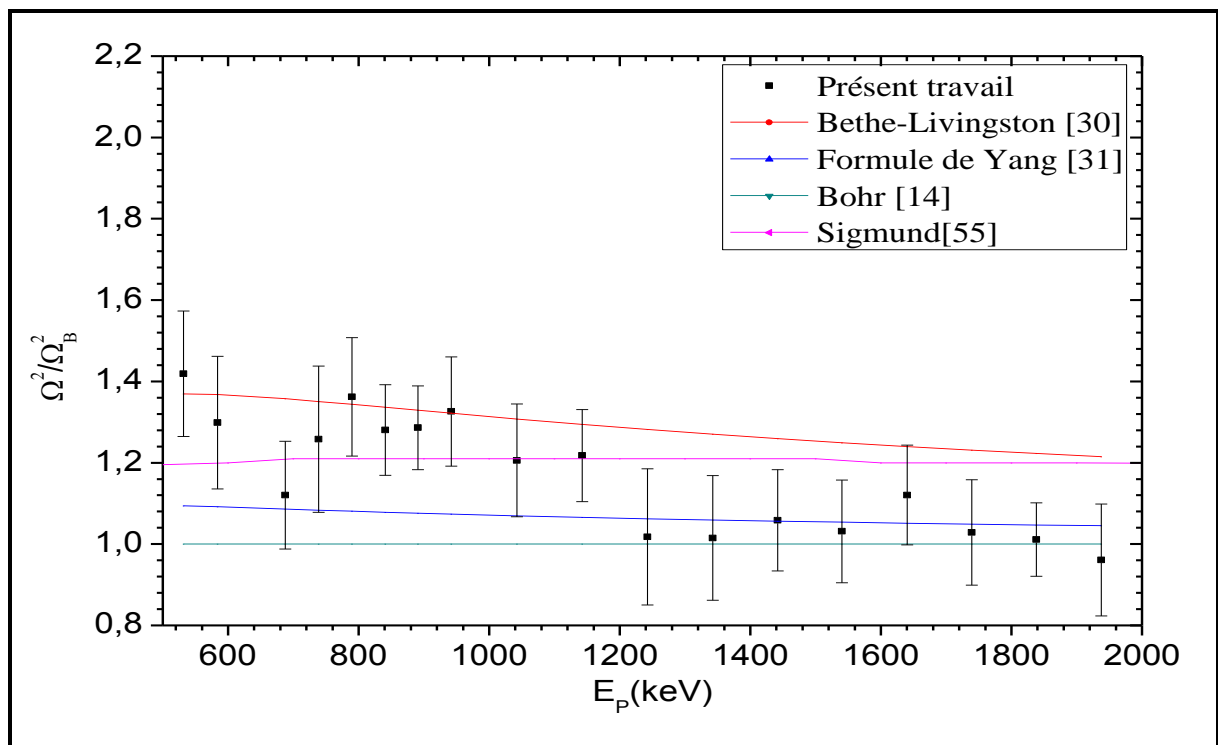
**Fig. 3.2** Pouvoir d'arrêt mesuré, en fonction de l'énergie  $E_p$  des protons pour le matériau kapton. Les données sont comparées à celles rapportées dans [92-94] et celles compilées dans le rapport ICRU-49 [24].



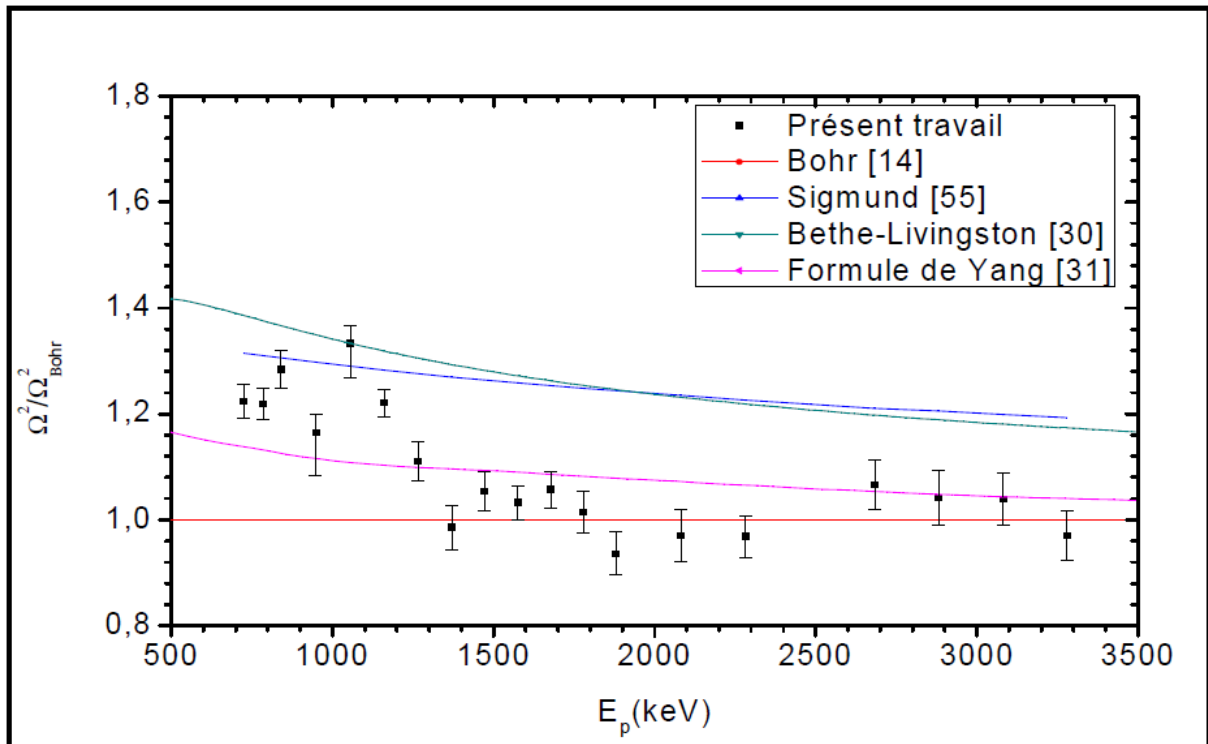
**Fig. 3.3** Pouvoir d'arrêt mesuré, en fonction de l'énergie  $E_p$  des protons pour le matériau kapton. Les données sont comparées à celles générées par les codes SRIM-2008 [73] et PASS [55].

**(ii) le straggling**

Afin de faciliter la comparaison de nos résultats, nous avons représenté dans les figures (3.4) et (3.5), le straggling relatif ( $\Omega^2/\Omega_B^2$ ) en fonction de l'énergie moyenne  $E_m$ . Les valeurs numériques de  $\Omega_B^2$  sont,  $85.40 \text{ keV}^2$  pour le Kapton et  $23.49 \text{ keV}^2$  pour le Formvar. Il est à noter que les calculs de ces quantités ont été effectués avec la considération de la règle additive de Bragg-Kleeman. Les données d'input, spécifiant les cibles élémentaires (H, C, N et O), utilisées pour l'évaluation du straggling de Bethe-Livingston ont été tirées du rapport ICRU-73 [56] et sont reportées dans le tableau (3.7).



**Fig. 3.4** Straggling réduit ( $\Omega^2/\Omega_B^2$ ) des protons dans la cible de Formvar de  $0.2775 \text{ mg/cm}^2$  mesuré relatif à la théorie de Bohr [14] en fonction de l'énergie moyenne des protons  $E_p$  comparé à celui calculé par les théories de Bethe-Livingston [30], Sigmund-Schinner (code PASS) [55] et par la formule empirique de Yang et al [31] en assumant la règle additive de Bragg-Kleeman pour les matériaux composés.



**Fig. 3.5** Stragglings réduit ( $\Omega^2/\Omega_B^2$ ) des protons dans la cible de Kapton de  $1.066\text{mg}/\text{cm}^2$  mesuré relatif à la théorie de Bohr [14] en fonction de l'énergie moyenne des protons  $E_p$  comparé à celui calculé par les théories de Bethe-Livingston [30], Sigmund-Schinner (code PASS) [55] et par la formule empirique de Yang et al [31] en assumant la règle additive de Bragg-Kleeman pour les matériaux composés

Dans le cas du Formvar et pour  $E_p < 1200\text{keV}$ , on peut noter une dépendance du stragglings de l'énergie (une tendance du stragglings à croître quand l'énergie du projectile décroît), tandis qu'au-dessus de cette valeur, une indépendance en énergie est montrée sur toute la gamme énergétique, ceci correspond parfaitement aux prédictions de la théorie de Bohr. Cette tendance du stragglings a été reportée antérieurement dans la Réf. [95] pour les protons d'énergie 0.5 à 2MeV dans les films du poly-stère ( $\text{C}_{10}\text{H}_8\text{O}_4$ ) de différentes épaisseurs. Comme prévu, nos valeurs du stragglings sont clairement au-dessus de celles prédites par la théorie de Bohr [14] pour  $E_p < 1200\text{keV}$  tandis qu'au dessus de cette limite,

où l'approximation d'électrons libres de Bohr devient plus en plus valable, elles sont en bonne concordance avec les prédictions théoriques. Pour les protons d'énergie  $E_p < 1200\text{keV}$ , la déviation de nos données par rapport à cette théorie atteint un maximum de  $\sim 42\%$  à la plus basse valeur d'énergie des protons explorée ( $E_p \approx 530\text{keV}$ ), elle est seulement de  $26\%$  dans l'intervalle d'énergie ( $600 < E_p < 1200$ ) keV. En outre, les valeurs relatives (à la théorie de Bohr) du straggling ont été calculées par les théories de Bethe-Livingston [30], de Sigmund-Schinner (BCAS [55]) et par la formule empirique de Yang et al. [31] et reportées dans la figure (3.4). Comme on peut le constater, les données du straggling sont en très bon accord avec la formule empirique de Yang et al. [31] sur la gamme d'énergie  $E_p > 1200\text{keV}$  où les corrections de rugosité des cibles sont relativement moins importantes ( $< 16\%$ ). Cependant, dans la région des faibles énergies nos données sont en général sous-estimées par cette formule, sauf pour l'énergie  $E_p = 687\text{keV}$  qui est pratiquement mélangée avec les valeurs correspondantes du straggling de Yang. La déviation observée par rapport à la formule de Yang et al. [31] varie entre  $\sim 9\%$  et  $\sim 25\%$ . Par rapport à la théorie de Bethe-Livingston, nos données sont globalement consistantes (avec les incertitudes expérimentales considérées) avec les valeurs prédites sur la gamme d'énergie  $E_p < 1000\text{keV}$  (à noter l'excellent accord pour ( $E_p = 530\text{keV}$ ), tandis qu'elles sont substantiellement surestimées par cette théorie sur le reste de la gamme d'énergie explorée avec des différences allant de  $\sim 10\%$  à  $\sim 24\%$ . Comme on peut l'observer dans la figure (3.4), moyennant les incertitudes, une bonne consistance est montrée entre nos données mesurées du straggling et celles prédites par la théorie BCAS sur la gamme d'énergie  $E_p < 1200\text{keV}$ , sauf pour  $E_p = 530\text{keV}$  où la valeur mesurée est supérieure à celle calculée de

~18%. Comme le montre la figure (3.4), on peut constater un bon accord quantitatif de nos données avec les résultats de cette théorie des collisions binaires du pouvoir d'arrêt. Cependant, dans le reste de la gamme d'énergie explorée, nos données montrent une surestimation des calculs BCAS (avec des différences allant de ~7% jusqu'à 19%) mais beaucoup moins que la théorie Bethe-Livingston. On note que la différence entre nos données expérimentales et celles prédites par la théorie BCAS est à moins que ~20% sur toute la gamme d'énergie explorée. Probablement et de manière significative, cette différence peut être réduite par la considération des effets de "bunching" des électrons et/ou de "packing des atomes qui n'ont pas été inclus dans le code PASS pour les protons traversant les cibles de Formvar.

Dans le cas du Kapton, on peut constater une indépendance en énergie sur toute la gamme énergétique (1200-3500keV), ceci correspond parfaitement aux prédictions de la théorie de Bohr [14]. En effet, hormis les deux valeurs du straggling réduit correspondantes aux énergies  $E_p = 2082.4$  keV et  $E_p = 2483.6$ keV, l'ensemble des valeurs mesurées du straggling réduit, comme le montre la figure (3.5), sont comprises entre 0.93 et 1.1. Moyennant les incertitudes, ces valeurs coïncident parfaitement avec les prédictions de la théorie de Bohr [14]. Comme dans le cas du formvar, les valeurs du straggling réduit ont été calculées par les théories de Bethe-Livingston [30], de Sigmund-Schinner (BCAS [55]) et par la formule empirique de Yang et al. [31], et reportées dans la figure (3.5). Nos données sont en bon accord avec la formule empirique de Yang et al. [31] sur toute la gamme d'énergie. Par rapport à la théorie classique de Bethe-Livingston [30] et à la théorie binaire de Sigmund [55], nos données de straggling sont globalement surestimées par ces théories.

## Conclusion

Les valeurs expérimentales du pouvoir d'arrêt du kapton pour des protons d'énergies  $\sim (0.5 - 3.4)$  MeV rapportées dans ce travail sont globalement en bon accord avec les données mesurées antérieurement [92–94] et celles compilées dans le rapport ICRU-49 [24]. Par rapport aux prédictions théoriques, elles présentent un comportement similaire : i) elles sont entièrement compatibles, sur toute la région des énergies explorées, avec les prédictions de la théorie du pouvoir d'arrêt électronique de Sigmund-Schinner et ii) elles sont en bon accord avec les valeurs calculées par le code SRIM-2008 [73] pour les énergies  $E_p = (785 - 1300)$  keV des protons.

Pour le straggling, nos données expérimentales peuvent être classées selon deux tendances principales et distinctes, à savoir :

(i) pour les énergies élevées considérées ( $E_p > 1000$  keV), nos valeurs du straggling sont, aux incertitudes expérimentales près, en bon accord avec les prédictions de la théorie classique de Bohr [14] et de la formule empirique de Yang et al. [31] et elles prévoient un régime stationnaire pour le straggling dans cette région d'énergies. Enfin et pour la même région des énergies des protons, nos données sont légèrement surestimées par les prédictions théoriques aussi bien de Bethe-Livingston que de Sigmund et Schinner (BCAS).

(ii) pour la région de faibles vitesses des protons ( $E_p < 1000$  keV), une dépendance en énergie du straggling est clairement mise en évidence. Les valeurs mesurées du straggling augmentent légèrement au fur et à mesure que l'énergie des protons diminue vers la valeur

du maximum du pouvoir d'arrêt. Cette observation est cohérente avec les variations prédites par la théorie de Bethe-Livingston et la formule empirique de Yang et al.

Enfin, la prise en compte des effets de corrélation (bunching, packing et échange de charge) dans le code de calcul PASS devrait vraisemblablement permettre de mieux clarifier la situation aux faibles énergies des protons.

## Bibliographies

- [1] H. Geiger and E. Marsden, Proc. Roy. Soc. A 82, (1909) 495.
- [2] E. Rutherford, Philos. Mag. 21, (1911) 669.
- [3] N. Bohr, Philos. Mag. 26, (1913) 1.
- [4] P. Sigmund, Particle Penetration and Radiation Effects, vol1 (2006) et vol2(2014).
- [5] J. Sisterson, Nucl. Instr. Meth. B 241 (2005) 713.
- [6] O. Geithner et al, Phys. Med. Biol. 51 (2006) 2279.
- [7] D. Schardt et al, Rev. Mod. Phys. 82 (2010) 383.
- [8] J.F. Ziegler (Ed.), Ion. Imp. Tech Co. Chester, MD, USA (2008).
- [9] Harry Bernas (Ed.), Materials Science with Ion Beams, Springer 116 (2010).
- [10] Xiangdong Liu et al, Mater. Sci. Eng. B 106 (2004) 105.
- [11] Y. Zhang et al, Nucl. Instr. Meth. B 250 (2006) 62.
- [12] S. Damache, Thèse de doctorat en Sciences Nucléaires, USTHB (2007).
- [13] D. Moussa, Thèse de doctorat en Sciences Nucléaires, USTHB (2014).
- [14] N. Bohr, K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 18 (1948) no 8.
- [15] H. Bethe, Handbuch der Physik 14 (1933) 491.
- [16] F. Bloch, Z. Phys. 81, 363 (1933).
- [17] J. Lindhard, M. Scharff and H. E. Schiott, Mat. Phys. Medd. 33 (1963) 54.
- [18] J. Lindhard, M. Scharff, K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 27 (1953) no. 15.
- [19] J.F. Ziegler, J. Appl. Phys. 85 (1999) 1249.
- [20] P.Sigmund and A. Schinner, Eur. Phys. J. D12, 425 (2000).

- [21] U. Fano, *Ann. Rev. Nucl. Sci.* 13, 67 (1963).
- [22] H. Bichsel, *Phys. Rev. A* 65, 52709 (2002).
- [23] N. R. Arista, *Nucl. Instr. and Meth. B* 195, 91 (2002).
- [24] ICRU Report 49, Bethesda, MD, USA, (1993).
- [25] P. Sigmund, A. Schinner, *Nucl. Instr. and Meth. B* 195, 64 (2002).
- [26] E. Bonderup and P. Hvelplund, *Phys. Rev. A* 4 (1971) 562.
- [27] W. K. Chu, *Phys. Rev. A* 13 (1976) 2057.
- [28] F. Besenbacher, J.U. Andersen, E. Bonderup, *Nucl. Instr. Meth. B* 168 (1980) 1.
- [29] C.C. Rousseau et al, *Phys. Rev. A* 4 (1971) 1066.
- [30] M.S. Livingston, H.A. Bethe, *Rev. Mod. Phys.* 9 (1937) 245.
- [31] Q. Yang, D.G. O'Connor, Z. Wang, *Nucl. Instr. Meth. B* 61 (1991) 149.
- [32] ICRU report 37, Stopping powers and ranges for electrons and positrons, (1984).
- [33] M.C. Walske, *Phys. Rev.* 88 (1952) 1283.
- [34] M.C. Walske *Phys. Rev.* 101 (1956) 940.
- [35] G.S. Khandelwal, *Nucl. Phys.* A116 (1968) 97.
- [36] H. Bichsel, University of California Report No. USC-136-120 (1967).
- [37] H. Bichsel, *Phys. Rev. A* 28, 1147 (1983).
- [38] H. Bichsel, *Phys. Rev. A* 46, 5761 (1992).
- [39] J.F. Jani, *At. Data Nucl. Data Tables* 27, 147 (1982).
- [40] J.C. Ashley et al, *Phys. Rev. B* 5, 2393 (1972).
- [41] J.C. Ashley et al, *Phys. Rev. A* 8, 2402 (1973).
- [42] J.C. Ashley et al, *Tables of Functions*, Doc 021195, New York (1974).

- [43] J.D. Jackson et al, Phys. Rev. B 6, 4131 (1972).
- [44] K.W. Hill et al, Phys. Rev. A 9, 156 (1974).
- [45] F. Bloch, Ann. Physik. (Leipzig) 14, 531 (1932).
- [46] S.P. Ahlen, Rev. Mod. Phys. 52, 121 (1980)
- [47] H. Bichsel, Phys. Rev. A 41, 5761 (1990).
- [48] J. Lindhard, Nucl. Inst. and Meth. 132, 1 (1976).
- [49] P. Sigmund, Phys. Rev. A 26, 2497 (1982).
- [50] P. Sigmund, Phys. Rev. A 54, 3113 (1996).
- [51] P. Sigmund and A. Schinner, Euro. Phys. J. D 15, 165 (2001).
- [52] F. Bloch, Ann. Physik. (Leipzig) 16, 285 (1933).
- [53] J. Lindhard, A.H. Sorensen, Phys. Rev. A 53, 2443 (1996).
- [54] P. Sigmund, A. Schinner, Nucl. Instr. and Meth. B 174, 535 (2001).
- [55] P. Sigmund, private communication (PASS program calculation).
- [56] ICRU report 73, Stopping of Ions Heavier than Helium, (2005).
- [57] G. Williams (1995), <http://xray.uu.se/hypertext/EBindEnergies.html>
- [58] K.D. Sevier, "Low Energy Electron Spectroscopy", Wiley, New York (1972).
- [59] N. Bohr, Philos. Mag. 30, 581 (1915).
- [60] H. Bethe, Ann. Physik 5, 325 (1930).
- [61] R. M. Sternheimer, Phys. Rev. 88, 851 (1952).
- [62] U. Fano, Ann. Rev. Nucl. Sci. 13, 1 (1963).
- [63] W.K. Chu, I. B. Handbook for Material Analysis, Acad. Press, New York, (1977).
- [64] W.H. Bragg and R. Kleeman, Philos. Mag. 10, 318 (1905).

- [65] S. Damache et al, Nucl. Instr. Meth. B 225 (2004) 449.
- [66] M. L. Roush, L. A. West and J. B. Marion, Nucl. Phys. A147 (1970) 235.
- [67] S. Damache, D. Moussa, S. Ouichaoui, Nucl. Instr. Meth. B 308 (2013) 46.
- [68] C. Pascual-Izarra, N.P. Barrada, Nucl. Instrum. and Meth. B 266 (2008) 1866.
- [69] MAESTRO-32 MCA Emulatorformicro Soft Windows 95,98 and NT, A65-B32 Soft Ware User's Manual (Ver. 5), Ortec Part N°777800.
- [70] S. Damache, D. Moussa, S. Ouichaoui, Nucl. Instr. Meth. B 268 (2010) 1759.
- [71] S. Ouichaoui et al, Nucl. Instr. Meth. B 95 (1995) 463.
- [72] J.C. Eckardt, G.H. Lantschner, Thin Solid Films 249 (1994) 11.
- [73] J.F. Ziegler, <http://www.srim.org>.
- [74] M. Mayer, SIMNRA program version 6.03
- [75] W. Jiang et al. Nucl. Instr. Meth. B 227 (2005) 450.
- [76] W. Jiang et al. Nucl. Instr. Meth. B 207 (2003) 453.
- [77] A. Weber, H. Mommsen, W. Sarter, A. Weller, Nucl. Instr. Meth. 198 (1982) 527.
- [78] A. Weber, Q. Fazly, H. Mommsen, Nucl. Instr. Meth. B 4 (1984) 79.
- [79] N.P. Barradas, C. Pascual-Izarra, Nucl. Instr. Meth. B 228 (2005) 378.
- [80] J.A. Moore, Nucl. Instr. Meth. 174 (1980) 577.
- [81] M. Mayer, Nucl. Instr. Meth. B 194 (2002) 177.
- [82] N.P. Barradas et al, Nucl. Instr. Meth. B 266 (2008) 1338.
- [83] N.P. Barradas et al, Nucl. Instr. Meth. B 262 (2007) 281.
- [84] N.P. Barradas, Nucl. Instr. Meth. B 225 (2004) 318.
- [85] N.P. Barradas et al, Nucl. Instr. Meth. B 241 (2005) 316.

- [86] N. Bohr, *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk.* 18, 8 (1948) 1.
- [87] N. Bohr, *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk.* 18, 8 (1948) 1.
- [88] P. Sigmund, K.B. Winterbon, *Nucl. Instr. and Meth. B* 12, (1985) 64.
- [89] H.H. Anderson et al., *Mat. Fys. Medd. Dan. Vidensk. Selsk.* 35 (1966) 4.
- [90] R. Ishiwari et al., *Nucl. Instr. and Meth. B* 47 (1990) 111.
- [91] H.A. Bethe and Ashkin, *Exp. Nucl. Phys, Vol. 1*, Wiley, New York (1953).
- [92] A.J.M. Plompen, F. Munnik, J. Räsänen, U. Wätjen, *J. Appl. Phys.* 80 (1996) 3147.
- [93] W.E. Wallace, J.B. Rothman, R.J. Composto, *J. Appl. Phys.* 75 (1994) 2312.
- [94] E. Rauhala and J. Räsänen, *Nucl. Instr. and Meth. B* 35 (1988) 130.
- [95] A. L'Hoir, D. Schmaus, *Nucl. Instr. Meth. B* 4 (1984) 1.

Annexes: Publications

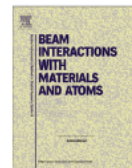
**Publication 1:** Energy loss straggling of ( $0.5 < E_p < 2.0$ ) MeV protons in formvar, NIM B 354(2015) 210–215.

**Publication 2:** Stopping powers and energy loss straggling for (0.9–3.4) MeV protons in a kapton polyimide thin film, NIM B 383 (2016) 164–170.



Contents lists available at ScienceDirect

Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/nimb](http://www.elsevier.com/locate/nimb)Energy loss straggling of ( $0.5 < E_p < 2.0$ ) MeV protons in formvarS. Djaroum<sup>a</sup>, S. Damache<sup>b</sup>, D. Moussa<sup>c</sup>, S. Ouichaoui<sup>c,\*</sup>, L. Amari<sup>c</sup><sup>a</sup> Division de Technologie Nucléaire, CRNB, B.P. 180 Ain-Oussara, Djelfa, Algeria<sup>b</sup> Division de Physique, CRNA, 02 Bd. Frantz Fanon, B.P. 399 Alger-gare, Algiers, Algeria<sup>c</sup> USTHB, Faculté de Physique, B.P. 32, 16111 Bab-Ezzouar, Algiers, Algeria

## ARTICLE INFO

## Article history:

Received 17 July 2014

Received in revised form 25 December 2014

Accepted 22 January 2015

Available online 6 February 2015

## Keywords:

Swift light ions

Energy loss distribution

Stopping power

Collisional energy loss straggling

## ABSTRACT

Energy loss distributions for ( $0.5 < E_p < 2.0$ ) MeV protons traversing polyvinyl formal have been measured in transmission. Then, they have been analyzed in order to determine energy loss straggling variance data. For avoiding non-stochastic broadenings and single collision events, only energy loss fractions within the range  $2\% \leq \frac{\Delta E}{E} \leq 20\%$  have been considered. The inferred energy loss straggling data are compared to values derived by several theories of the collisional energy straggling and by Yang et al. empirical formula with assuming the validity of the Bragg–Kleeman additivity rule for compounds in all the performed calculations. The obtained results are discussed with distinguishing two projectile velocity regimes delimited by the proton energy  $E_p \sim 1.2$  MeV. Over the high proton velocity regime, our data are in very consistent with the classical Bohr theory and the Yang et al. empirical formula predicting constant collisional energy loss straggling. It clearly appears that over the low proton velocity regime, our energy loss straggling data are in best overall quantitative agreement with values predicted by the Sigmund–Schinner binary collision stopping theory (the BCAS) involving both the shell and Barkas–Anderson corrections. Besides, the slight low energy-dependent behavior of experimental data shows to be consistent with the predictions of the Bethe–Livingston theory and the Yang et al. empirical formula.

© 2015 Elsevier B.V. All rights reserved.

## 1. Introduction

The slowing down of swift charged particles in matter is dominated by electronic collisions implying ionization and excitation processes of the stopping medium. The best understanding of these processes is required both in fundamental research and in many applications of charged particle beams, such as in medical and health physics [1–3], in ion beam modification of materials [4,5], in materials science and engineering [6–8]. Two main fundamental quantities used to quantify the energy deposition process are the stopping force and the energy loss-straggling characterizing, respectively, the ion mean energy loss per travelled path-length and the associated variance. While the former quantity has been extensively investigated [9–13] for a large variety of ion-target combinations, the latter received rather much less attention, so that energy loss straggling data are scarce or uncertain, in particular for compound and composite targets. Indeed, conversely to the mean energy loss by incident ions which can be reliably measured, energy loss straggling measurements are much more sensitive to

target non-uniformities and non-homogeneities that may introduce substantial additional broadening to the real energy loss straggling variance. Experimentally, these spurious contributions are difficult to evaluate and, then, special precautions must be taken for reducing their effect to a negligible level for performing reliable energy loss straggling measurements. In the present paper, we report on energy loss straggling measurements for  $\sim(0.5\text{--}2.0)$  MeV protons traversing a thin polyvinyl formal foil. The derived energy loss straggling data are compared to the predictions of Bohr [14] and Bethe–Livingston [15] classical theories, and to the empirical formula of Yang and O'Connor [16]. Besides, they are discussed in comparison to values generated by the code PASS [17] supporting the Binary Collision Approximation Scheme (BCAS) of Sigmund and Schinner [18,19]. All calculated energy loss straggling values have been performed with assuming the validity of the Bragg–Kleeman additivity rule [20] for compound materials.

## 2. Experimental set up and procedure

The experimental set up and procedure are as those used previously [21] for measuring the stopping power of polyvinyl formal for  $\sim(0.2\text{--}3.4)$  MeV/amu  $^1\text{H}^+$  and  $^4\text{He}^+$  ions. For avoiding non-stochastic broadening and deriving reliable energy loss straggling

\* Corresponding author.

E-mail addresses: [souichaoui@gmail.com](mailto:souichaoui@gmail.com), [sdamache@gmail.com](mailto:sdamache@gmail.com) (S. Ouichaoui).

data, only energy loss spectra corresponding to energy loss fractions,  $\Delta E/E$ , in the range  $\sim 2\%$  up to  $\sim 20\%$  have been considered here. Therefore, only a brief report on main experimental aspects is given below in this section. Further experimental details can also be found elsewhere [22–24].

### 2.1. Set up and measurements

Incident  $H^+$ ,  $H_2^+$  and  $H_3^+$  ion beams were produced by the Algiers 3.75-MV Van de Graaff accelerator with energy resolution of  $\sim 0.1\%$  (see reference [25]) and mean current intensity value of  $\sim 30$  nA. The primary ions were first backscattered off a very thin Au-Si target placed under high vacuum at the center of the scattering chamber, then they passed through the scanned formvar foil before being detected by a 500  $\mu\text{m}$ -thick ULTRA ion implanted Si detector set at a laboratory angle of  $165^\circ$  relative to the primary incident direction. The analyzed ion beams were collimated by two slits of 1.5 mm and 3.0 mm in diameters placed, respectively, at the entrance of the chamber and in front of the detector. In each experimental run, ion energy loss distributions obtained with (straggled ions) and without the polymer target sample in place were successively recorded under the same pressure of  $\sim 3 \times 10^{-6}$  mbar using a special target holder, as detailed in Ref. [22]. Typical such energy loss distributions taken at energy  $E = 1176$  keV of the secondary proton beam are shown in Fig. 1

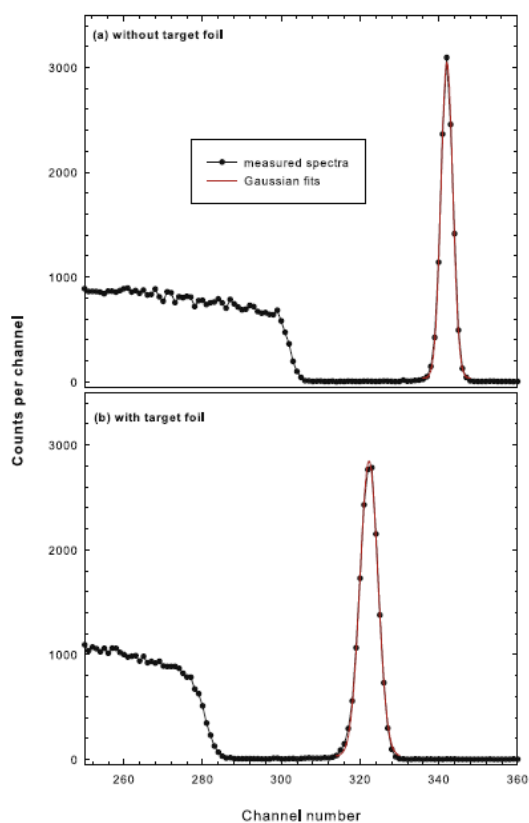


Fig. 1. Typical energy loss spectra (solid circles) and their corresponding Gaussian fits (red solid curves) recorded with and without the formvar sample in place for 1.2 MeV incident protons using a 2048-channel portion of an Ortec MCB Card. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

(a) for un-straggled protons and (b) with for straggled protons). Curves of Gaussian shapes were fitted to experimental energy spectra over energy intervals of  $\sim 3.5$  times the standard deviations around the particle peaks and are also reported in this figure.

### 2.2. Target thickness determination

The used formvar target foil was supplied by the Chemistry Laboratory of the InESS/CRNS of Strasbourg (France) with stated thickness of  $\sim 2.5$   $\mu\text{m}$ . It is a single-bonded polymer compound of chemical formula  $(C_5H_8O_2)_n$  and density value of  $1.31$   $\text{g}/\text{cm}^3$ . Its elemental composition, expressed in weight fraction, is as follows: C: 0.5998, H: 0.0805, O: 0.3197. The film thickness and non-uniformity of the target sample have been investigated in a previous contribution [21] through systematic energy loss measurements for alpha particles [22,24,26] delivered by a very thin mixed  $^{241}\text{Am}$ – $^{239}\text{Pu}$ – $^{233}\text{U}$  radioactive source. Since the foil thickness and non-uniformity are the main factors affecting the measurement of energy loss straggling widths, a special attention has been focused on their determination. These measurements were performed under the same experimental conditions as in proton energy loss measurements with the mixed radioactive source placed in front of the Au-scattering target and the accelerator beam switched off. This procedure ensured that the same formvar foil thickness was crossed by the ion beam both in alpha particle and proton energy loss measurements. Fig. 2 reports typical energy loss spectra for alpha particles from the mixed radioactive source that have been recorded over an advanced 4096-channel pulse height analyzer without (a) and with (b) the formvar target foil being exposed to the secondary proton beam. Multiple Gaussian shapes were fitted to the experimental energy spectra, thus allowing a precise determination of the alpha particle peak positions and are also shown in Fig. 2. The  $R$ -squared values for all multi-Gaussian fits (red curves in Fig. 2) were better than 99%. In the energy calibration of the detection system, all adjusted alpha particle peaks in Fig. 2(a) (solid and dashed blue curves) were considered while only the peaks of highest energies (solid blue curves in Fig. 2) produced with branching ratios higher than 80% from the  $^{241}\text{Am}$  ( $E_\alpha = 5485$  keV) and  $^{233}\text{U}$  ( $E_\alpha = 4824$  keV) radioisotopes were considered for the determination of the formvar target foil thickness. The positions of these two alpha particle peaks were then deduced from the Gaussian fits with a relative uncertainty better than 0.01%. The formvar foil thickness was determined from the measured  $\Delta E$  alpha particle energy loss data and corresponding  $S(\bar{E})$  stopping power values computed by the SRIM-2008 code assuming the validity of the Bragg–Kleeman additivity rule at mean energy,  $E = E - \frac{\Delta E}{2}$  (with  $E$  being the energy of incident alpha particles). As a result, a mean areal thickness value,  $\bar{x} = 277.5$   $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , was derived with a relative uncertainty of  $\sim 2.5\%$ . This latter uncertainty mainly results from that affecting the computed SRIM stopping power values assumed here to be of  $\sim 2\%$ . Indeed, for  $E > 1$  MeV/amu where the Bethe stopping theory is very reliable, the scatter of the measured data relative to the SRIM predictions for alpha particles in C, O and H elements is low [11], which supports the assumed SRIM accuracy. The non-uniformity of the formvar target foil was first investigated on a macroscopic scale through systematic energy loss measurements for 5.485 MeV alpha particles from the  $^{241}\text{Am}$  radio-isotope over the formvar sample area. Consequently, the obtained  $\Delta E$  energy loss data lie within a standard deviation better than 1.5%. In addition, the formvar sample was investigated at a microscopic level following the procedure [27] based on the use of a single ion specy to evaluate thickness inhomogeneity in thin films. Thus, in the same manner as in Ref. [27], an upper limit of the formvar foil roughness coefficient,  $\rho = \sigma/\bar{x}$  (with  $\sigma$  being the foil thickness

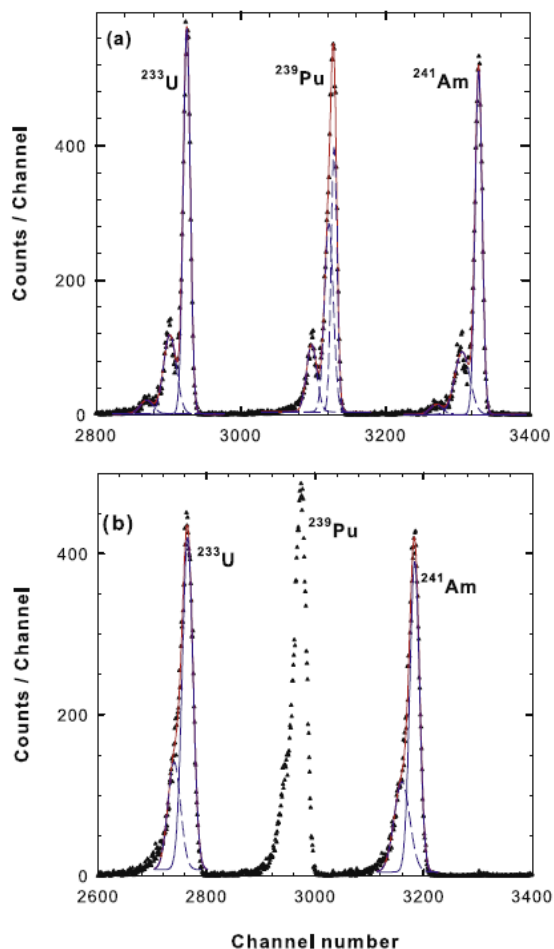


Fig. 2. Experimental energy loss distributions for alpha particles from a thin mixed ( $^{241}\text{Am}/^{239}\text{Pu}/^{233}\text{U}$ ) radioactive source obtained (a) without and (b) with the formvar sample in place, and their corresponding multi-Gaussian fits (blue and red curves). (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

standard deviation) was determined through energy loss and energy loss straggling measurements for a 1.3 MeV alpha particle beam. Fig. 3 reports the measured energy loss distributions for 1.3 MeV alpha particles recorded (a) without and (b) with the formvar target sample in place. Performed Gaussian fits to experimental data allowing the precise determination of the mean energy loss,  $\langle\Delta E\rangle$ , in the formvar foil and its variance,  $\Omega^2$ , are also shown in Fig. 3. Hence, the deduced upper limit value,  $\rho^2 < \frac{\Omega^2}{\langle\Delta E\rangle^2} = 11.7 \times 10^{-4}$ , of the formvar foil roughness.

### 2.3. Target stoichiometry checking

The elemental stoichiometry of the used formvar film was checked by nuclear reaction analysis (NRA) using a 900 keV incident deuteron beam whose intensity was maintained to an average value of 10 nA. In this analysis, we have used the same experimental arrangement as in energy loss measurements (see Section 2.1 above) but with replacing the Au–Si scattering target by the formvar foil and setting the Si detector at  $\theta = 150^\circ$ . In addition, a 12  $\mu\text{m}$ -thick mylar foil was placed in front of the detector for stopping scattered

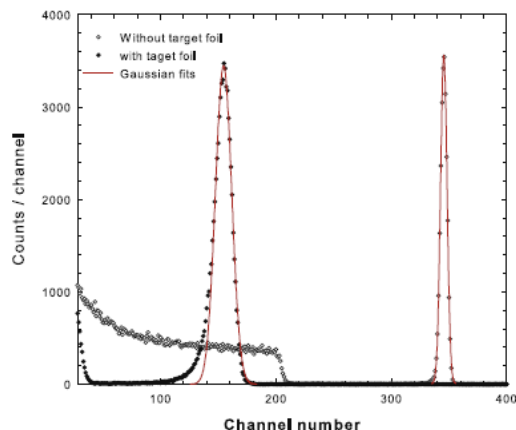


Fig. 3. Energy spectra of a 1.3 MeV alpha particle beam before and after crossing a  $277.5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  thick formvar sample.

deuterons and thus reducing the dead-time. In order to prevent the accumulation of carbon (that may be deposited by deuteron impacts), the formvar foil surface exposed to the ion beam was constantly changed during data acquisition by moving vertically the target holder from outside the scattering chamber (see reference [22]). Fig. 4 reports the NRA experimental energy spectrum (solid circles) recorded for a deuteron beam fluence value of  $\sim 15 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$  and  $\sim 0.02\%$  dead-time. Corresponding best-simulated counterpart, displayed over a channel range 500–1500, is also plotted in Fig. 4. The simulation was performed by means of the SIMNRA program [28] where non-Rutherford NRA cross section data for the  $^{12}\text{C}(\text{d},\text{p}_0)^{13}\text{C}$  and  $^{16}\text{O}(\text{d},\text{p}_1)^{17}\text{O}$  nuclear reactions, reported in Refs. [29,30], have been used and the thickness of the formvar sample was fixed to the value ( $\bar{x} = 277.5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) determined above. Thus, only the atomic concentrations, ( $C_C$ ,  $C_O$ ) for the carbon and oxygen constituents of the formvar sample were taken as free fit parameters while that for the H constituent was deduced from the relation  $\sum_i C_i = 1$ . Notice that the small peak appearing at around channel 1070, attributed to energetic protons produced in the  $^{16}\text{O}(\text{d},\text{p}_0)^{17}\text{O}$  nuclear reaction, has not been taken into account since the corresponding

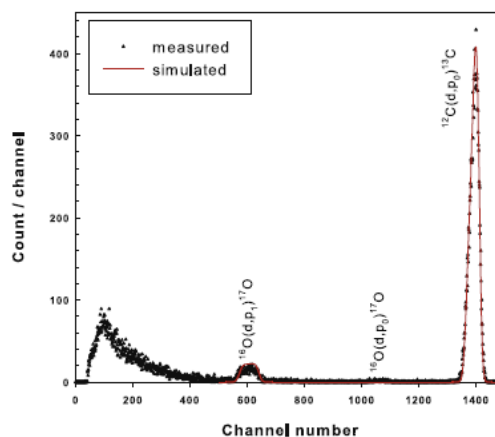


Fig. 4. Measured NRA spectrum (symbols) recorded at laboratory angle  $\theta = 150^\circ$  for 900 keV deuteron beam at normal incidence onto a  $277.5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  thick formvar sample. Corresponding best simulated spectrum obtained over the  $\sim(500\text{--}1500)$  channel range using the SIMNRA program [28] is also shown.

signal to noise ratio is too weak, which does not allow its well clear separation from the surrounding background. Furthermore, for deuteron energies around 900 keV and 150° detection angle, the  $^{16}\text{O}(\text{d},\text{p}_0)^{17}\text{O}$  nuclear reaction cross sections [31] are respectively smaller by factors of  $\sim 10$  and  $\sim 60$  than those of the  $^{16}\text{O}(\text{d},\text{p}_1)^{17}\text{O}$  [30] and  $^{12}\text{C}(\text{d},\text{p}_0)^{13}\text{C}$  [29] reactions. As can be seen, the measured and simulated particle energy spectra are in fairly good agreement over the whole considered channel region, thus indicating that the used nuclear reaction cross section input data are very reliable. The mean elemental atomic stoichiometry of the formvar target foil resulting from this simulation is as follows:  $C_c = 33.3\%$ ,  $C_o = 13.3\%$  and  $C_H = 53.4\%$ . These values were obtained with relative uncertainties of  $\sim 6\%$  for the (C, O) elements, and of  $\sim 8.5\%$  for H. These uncertainties were estimated from the extreme limits of the (C, O) atomic concentrations obtained by considering a 4% uncertainty in the used cross section data quoted in Refs. [29,30]. One can remark that they exactly correspond to those associated with the probed  $\text{C}_5\text{H}_8\text{O}_5$  formvar film. Notice that the prominent low energy background pointed out in Fig. 4, that is typically observed in experimental RBS and NRA spectra [25,30,32]), is essentially generated by the above  $(\text{p}_0, \text{p}_1)$  proton groups experiencing plural (large angle) scattering events inside polymer (formvar and/or mylar) films before being detected. Indeed, these protons undergo large energy losses due to their increased path lengths inside the polymer films, which leads to an increased yield and, therefore, to an important background at low projectile energies. Note that the dual scattering, that prominently contributes to such substantial low energy background, has been extensively studied previously [33–37] but it was implemented only for RBS spectra [38,39] in the SIMNRA [40] and NDF [41,42] codes using ad hoc procedures.

### 3. Data analysis and results

While in stopping theories the fluctuations in energy loss of charged particles are described in term of the straggling variance,  $\Omega^2$ , experimentally they are expressed via the Full Width at Half Maximum (FWHM),  $\delta E_{\text{exp}}$ , of measured energy loss spectra. However, the connection between these two quantities is rather complex, except for energy loss spectra of Gaussian shapes, in which case the measured energy loss straggling width is elementarily related to the experimental straggling variance,  $\Omega_{\text{exp}}^2$ , by the expression

$$\delta E_{\text{exp}}^2 = 8 \ln 2 \Omega_{\text{exp}}^2. \quad (1)$$

The Gaussian character of recorded energy loss spectra has been inspected in our previous work by calculating the associated overall dimensionless path-lengths [43,44] that were found to exceed unit [21].

The experimental straggling width,  $\delta E_{\text{exp}}$ , was deduced using the following relation:

$$\delta E_{\text{exp}} = (\delta E_{\text{st}}^2 - \delta E_0^2)^{1/2}, \quad (2)$$

where  $\delta E_0$  and  $\delta E_{\text{st}}$  are, respectively, the widths of the measured unstraggled and straggled energy loss distributions (see Fig. 1(a, b)). They were deduced from Gaussian fits to these distributions over energy intervals of  $\sim 3.5$  times the standard deviation around their means. The absolute uncertainty in  $\Omega_{\text{exp}}^2$  was evaluated by considering the propagated errors affecting the straggling widths,  $\delta E_{\text{st}}$  and  $\delta E_0$ . It expresses as

$$\Delta \Omega_{\text{exp}}^2 = \frac{1}{4 \ln(2)} \sqrt{(\delta E_{\text{st}} \Delta \delta E_{\text{st}})^2 + (\delta E_0 \Delta \delta E_0)^2} \quad (3)$$

The absolute uncertainties  $\Delta \delta E_{\text{st}}$  and  $\Delta \delta E_0$  were determined from Gaussian fits to the measured energy loss spectra with taking an uncertainty of 0.1% [22] in the energy-channel calibration curve.

The determined  $\Omega_{\text{exp}}^2$  experimental data were corrected for foil roughness and inhomogeneity using the method of Besenbacher et al. [45] based on the assumption that the target thickness variation follows a Gaussian distribution with standard deviation  $\sigma$ . The corrected straggling variance is then given by

$$\Omega^2(\bar{E}) = \Omega_{\text{exp}}^2(\bar{E}) - \rho^2 \Delta E^2 \quad (4)$$

where  $\Delta E$  is the measured formvar energy loss reported in Ref. [21].

For the formvar foil roughness coefficient  $\rho$ , we have used the upper bound value ( $\rho^2 = 11.7 \times 10^{-4}$ ) determined above and therefore, an overcorrection of the straggling data may arise. The derived straggling variance results versus the mean ion energy  $\bar{E} = E - \frac{\Delta E}{2}$  ( $E$  denoting the incident ion energy) are reported in Table 1 together with corresponding proton energy loss fractions  $\Delta E/E$ .

### 4. Discussion

Our energy loss straggling data are reported in Fig. 5 versus the proton mean energy in term of the variance ratio,  $\frac{\Omega^2}{\Omega_0^2}$ , where

$\Omega_0^2 = 23.49 \text{ keV}^2$  is the energy loss straggling variance calculated by the classical Bohr theory [14]. One can notice, first, that these data exhibit clear energy dependence (tendency of the energy loss straggling to increase as the projectile energy decreases) for proton energies below  $E_p = 1200 \text{ keV}$  while above this value they show to be energy independent, in an overall scale, as predicted by Bohr's theory. This trend of the energy loss straggling data has been reported previously in Ref. [46] for (0.5–2.0) MeV protons crossing polyester ( $\text{C}_{10}\text{H}_8\text{O}_4$ ) films of various thicknesses. As expected, our energy loss straggling data clearly lie above the values predicted by Bohr's theory [14] for  $E_p < 1200 \text{ keV}$  while above this proton energy limit, where Bohr's assumption of free target electrons becomes increasingly valid, they are in good agreement with theoretical predictions. In the proton energy region  $E_p < 1200 \text{ keV}$ , the deviation of our data from this theory attains a maximum of  $\sim 42\%$  at the lowest proton energy explored ( $E_p \simeq 530 \text{ keV}$ ) while it amounts to  $\sim 26\%$ , in average, over the energy interval ( $600 < E_p < 1200$ ) keV. Besides, relative values (to Bohr's theory) of the collisional energy loss straggling have been calculated by the Bethe–Livingston theory [15], Sigmund–Schinner's binary collision approximation scheme (BCAS [17]) using the program PASS and by Yang et al. empirical formula [16], and are also reported

**Table 1**  
Measured energy loss straggling variance data,  $\Omega^2$ , and corresponding energy loss fractions,  $\frac{\Delta E}{E}$ , versus mean energy,  $\bar{E}$ , of back-scattered protons.

$\bar{E}$ (keV)	$\frac{\Delta E}{E}$ (%)	$\Omega^2$ (keV <sup>2</sup> )
531.6	19.18	33.34 ± 3.63
584.0	16.65	30.52 ± 3.83
687.6	12.92	26.33 ± 3.11
738.7	11.57	29.56 ± 4.22
789.6	10.43	32.00 ± 3.42
840.7	9.38	30.09 ± 2.62
891.1	8.60	30.22 ± 2.42
941.7	7.84	31.16 ± 3.15
1042.3	6.63	28.33 ± 3.26
1142.5	5.71	28.61 ± 2.66
1242.6	4.94	23.91 ± 3.93
1342.3	4.35	23.85 ± 3.60
1441.7	3.87	24.87 ± 2.92
1540.5	3.52	24.23 ± 2.97
1640.3	3.10	26.33 ± 2.88
1739.2	2.82	24.17 ± 3.04
1838.3	2.56	23.76 ± 2.12
1937.4	2.33	22.58 ± 3.24

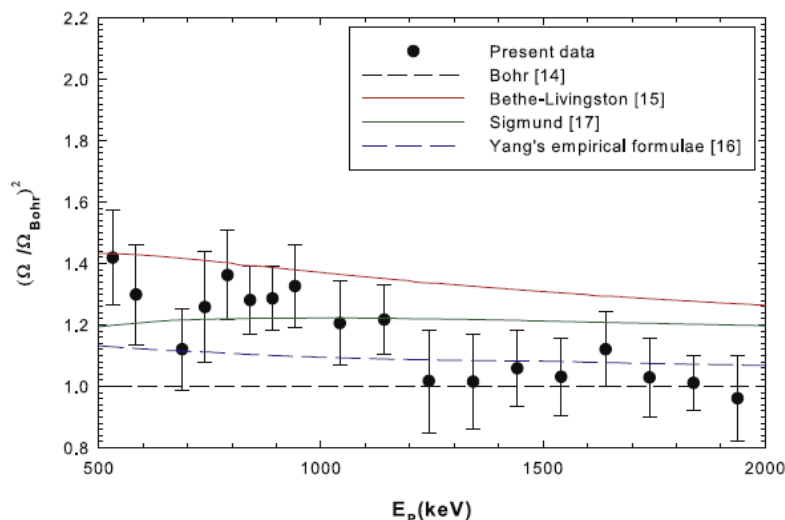


Fig. 5. Measured energy loss straggling variance data relative to Bohr theory [14] straggling variance (ratio  $\frac{\Omega}{\Omega_{Bohr}}$ ) for protons in formvar versus mean proton energy compared to counterparts from Bethe-Livingston [15] and Sigmund-Schinner (code PASS calculation) [17] theories, and to Yang et al. empirical formulae [16] assuming Bragg-Kleeman's additivity rule for compounds.

in Fig. 5. All theoretical calculations have been performed with assuming the validity of the Bragg-Kleeman additivity rule for compounds. As can be seen, our energy straggling data are in very good agreement with Yang et al. empirical formula over the proton energy range  $E_p > 1200$  keV where target roughness corrections are relatively less important (<16%). In the remaining lower energy region, however, our data are generally underestimated by the preceding formula, except for one data point measured at  $E_p = 687$  keV (see Fig. 5) which is practically mingled with the corresponding Yang's straggling value. The observed deviation from the Yang et al. formula ranges between  $\sim 9\%$  and  $\sim 25\%$ . Relative to the Bethe-Livingston classical theory, our energy loss straggling data are in overall consistency (within the involved experimental uncertainties) with predicted values over the proton energy region below  $E_p = 1.0$  MeV (note the excellent agreement for  $E_p = 530$  keV), while they are substantially overestimated by this theory over the remaining proton energy range explored with discrepancies ranging from  $\sim 10\%$  to  $\sim 24\%$ . As can be observed in Fig. 5, a general good consistency is pointed out (within experimental uncertainties) between our energy straggling data and the BCAS predictions over the low proton energy region  $E_p < 1200$  keV, except for  $E_p = 530$  keV where the measured data point is higher by  $\sim 18\%$  than the calculated value. One can see that the best quantitative agreement of our data with calculated values results from this improved binary collision stopping theory. However, in the remaining higher proton energy region explored, our data show to be overestimated by the BCAS calculation (with discrepancies extending from  $\sim 7\%$  up to  $19\%$ ) but much less than by the Bethe-Livingston theory. Indeed, the observed discrepancies in this energy region lie between  $\sim 7\%$  up to  $19\%$ . Notice that the difference between our experimental data and the BCAS predictions amounts to less than  $\sim 20\%$  over the whole proton energy range explored. This difference may be probably significantly reduced by taking into account the electron bunching and/or the atomic packing effects not included in the code PASS calculation  $H^+$  ions crossing the formvar target material. Indeed, the pointed out discrepancies are of the same order of magnitude as, e.g., the relative bunching correction calculated by the code PASS [19] with and without including the inverse-Bloch correction for  $H^+$  ions in

He and Ne targets, that amounts to 2% and 24%, respectively, at  $E_p = 500$  keV.

## 5. Conclusion

One can note that two important trends mostly feature the current energy loss straggling data. These features are:

- (i) the fair consistency of our data, within the experimental uncertainties, with the predictions of Bohr's theory and Yang et al. empirical formula predicting a steady state regime of the collisional energy loss straggling over the high proton velocity region explored, namely for  $E_p > 1.2$  MeV where the binary collision stopping theory of Sigmund and Schinner slightly overestimates the experimental data,
- (ii) the clear energy dependence exhibited by our data over the lower proton energy region, i.e., a slight increase of the energy loss straggling data as the projectile energy decreases, which is consistent with the variation predicted by the Bethe-Livingston theory and the Yang et al. empirical formula (see Fig. 5).

These features seem to obviously attest for the reliability of our energy loss straggling measurements. As discussed above, it turns out that the best quantitative agreement over the low proton velocity regime between the measured energy loss straggling data and corresponding theoretical values results from the BCAS calculation involving both the shell and the Barkas-Andersen corrections.

Finally, the pertinent inclusion in the PASS code calculation of projectile-target correlation effects (as the electron bunching and/or atomic packing effects) should likely allow to better account for the energy loss straggling experimental data.

## References

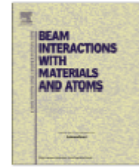
- [1] J. Sisterson, Nucl. Instr. Meth. B 241 (2005) 713.
- [2] O. Geithner, P. Andreo, N. Sobolevsky, G. Hartmann, O. Jäkel, Phys. Med. Biol. 51 (2006) 2279.
- [3] D. Schardt, T. Elsässer, D. Schulz-Ertner, Rev. Mod. Phys. 82 (2010) 383.

- [4] J.F. Ziegler (Ed.), *Ion Implantation—Science and Technology*, Ion Implantation Technology Co., Chester, MD, USA, 2008.
- [5] *Materials Science with Ion Beams* Harry Bernas (Ed.), Series: Topics in Applied Physics, Vol. 116, Springer, 2010.
- [6] Xiangdong Liu, Yueyuan Xia, Lu Qingming, Feng Li, Boda Huang, *Mater. Sci. Eng. B* 106 (2004) 105.
- [7] Y. Zhang, W.J. Weber, D.A. Grove, J. Jensen, G. Possnert, *Nucl. Instr. Meth. B* 250 (2006) 62.
- [8] M. Stocker, M. Döbeli, M. Grajcar, M. Suter, H.-A. Synal, L. Wacker, *Nucl. Instr. Meth. B* 240 (2005) 483.
- [9] F. Hubert, R. Bimbot, H. Gauvin, *Atom. Data Nucl. Data Table* 46 (1990) 1.
- [10] *ICRU Report 49, International Commission on Radiation Units and Measurements*, Bethesda, MD, USA, 1993.
- [11] J.F. Ziegler, <http://www.srim.org>.
- [12] P.L. Grande, G. Schiwietz, in: J. Sabin (Ed.), *Advances in Quantum Chemistry*, Vol. 45, Elsevier Inc., 2004, p. 7.
- [13] <http://www.nist.gov/pml/data/star/index.cfm>.
- [14] N. Bohr, *Philos. Mag.* 30 (1915) 581.
- [15] M.S. Livingston, H.A. Bethe, *Rev. Mod. Phys.* 9 (1937) 245.
- [16] Q. Yang, D.G. O'Connor, Z. Wang, *Nucl. Instr. Meth. B* 61 (1991) 149.
- [17] P. Sigmund, private communication (PASS program calculation).
- [18] P. Sigmund, A. Schimmer, *Eur. Phys. J. D* 23 (2003) 201.
- [19] P. Sigmund, A. Schimmer, *Eur. Phys. J. D* 58 (2010) 105.
- [20] W.H. Bragg, R. Kleeman, *Philos. Mag.* 10 (1905) 318.
- [21] S. Damache, D. Moussa, S. Ouichaoui, *Nucl. Instr. Meth. B* 268 (2010) 1759.
- [22] S. Damache, S. Ouichaoui, A. Belhout, A. Midouni, I. Toumert, *Nucl. Instr. Meth. B* 225 (2004) 449.
- [23] S. Damache, S. Ouichaoui, D. Moussa, A. Dib, *Nucl. Instr. Meth. B* 249 (2006) 22.
- [24] D. Moussa, S. Damache, S. Ouichaoui, *Nucl. Instr. Meth. B* 268 (2010) 1754.
- [25] S. Damache, D. Moussa, S. Ouichaoui, *Nucl. Instr. Meth. B* 308 (2013) 46.
- [26] S. Ouichaoui, L. Rosier, E. Hourany, R. Bimbot, N. Redjail, H. Beaumevielle, *Nucl. Instr. Meth. B* 95 (1995) 463.
- [27] J.C. Eckardt, G.H. Lantschner, *Thin Solid Films* 249 (1994) 11.
- [28] M. Mayer, SIMNRA program version 6.03.
- [29] W. Jiang, V. Shutthanandan, S. Thevuthasan, D.E. McCready, W.J. Weber, *Nucl. Instr. Meth. B* 227 (2005) 450.
- [30] W. Jiang, V. Shutthanandan, S. Thevuthasan, D.E. McCready, W.J. Weber, *Nucl. Instr. Meth. B* 207 (2003) 453.
- [31] A.F. Gurbich, S.L. Molodtsov, *Nucl. Instr. Meth. B* 226 (2004) 637.
- [32] G. Demortier, A. Gilson, *Nucl. Instr. Meth. B* 18 (1987) 286.
- [33] A. Weber, H. Mommsen, W. Sarter, A. Weller, *Nucl. Instr. Meth.* 198 (1982) 527.
- [34] A. Weber, Q. Fazly, H. Mommsen, *Nucl. Instr. Meth. B* 4 (1984) 79.
- [35] N.P. Barradas, C. Pascual-Izarra, *Nucl. Instr. Meth. B* 228 (2005) 378.
- [36] J.A. Moore, *Nucl. Instr. Meth.* 174 (1980) 577.
- [37] M. Mayer, *Nucl. Instr. Meth. B* 194 (2002) 177.
- [38] N.P. Barradas, K. Arstila, G. Battistig, M. Bianconi, N. Dytlewski, C. Jeynes, E. Kótai, G. Lulli, M. Mayer, E. Rauhala, E. Szilágyi, M. Thompson, *Nucl. Instr. Meth. B* 266 (2008) 1338.
- [39] N.P. Barradas, K. Arstila, G. Battistig, M. Bianconi, N. Dytlewski, C. Jeynes, E. Kótai, G. Lulli, M. Mayer, E. Rauhala, E. Szilágyi, M. Thompson, *Nucl. Instr. Meth. B* 262 (2007) 281.
- [40] W. Eckstein, M. Mayer, *Nucl. Instr. Meth. B* 153 (1999) 337.
- [41] N.P. Barradas, *Nucl. Instr. Meth. B* 225 (2004) 318.
- [42] N.P. Barradas, A. Fonseca, N. Franco, E. Alves, *Nucl. Instr. Meth. B* 241 (2005) 316.
- [43] Lev G. Glasov, *Nucl. Instr. Meth. B* 192 (2002) 239.
- [44] P. Sigmund, K.B. Winterbon, *Nucl. Instr. Meth. B* 12 (1985) 1.
- [45] F. Besenbacher, J.U. Andersen, E. Bonderup, *Nucl. Instr. Meth. B* 168 (1980) 1.
- [46] A. L'Hoir, D. Schmaus, *Nucl. Instr. Meth. B* 4 (1984) 1.



Contents lists available at ScienceDirect

Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/nimb](http://www.elsevier.com/locate/nimb)

## Stopping powers and energy loss straggling for (0.9–3.4) MeV protons in a kapton polyimide thin film

S. Damache<sup>a</sup>, S. Djaroum<sup>b</sup>, S. Ouichaoui<sup>c,\*</sup>, L. Amari<sup>c</sup>, D. Moussa<sup>c</sup><sup>a</sup> Division de Physique, CRNA, 02 Bd. Frantz Fanon, B.P. 399 Alger-gare, Algiers, Algeria<sup>b</sup> Division de Technologie Nucléaire, CRNB, B.P. 180 Ain-Cussara, Djelfa, Algeria<sup>c</sup> Université des Sciences et Technologie H. Boumediene (USTHB), Faculté de Physique, B.P. 32, 16111 Bab-Ezzouar, Algiers, Algeria

### ARTICLE INFO

#### Article history:

Received 27 May 2016

Received in revised form 5 July 2016

Accepted 8 July 2016

#### Keywords:

Swift protons

Kapton polyimide

Stopping power

Energy loss straggling

Binary collision theory

### ABSTRACT

The energy loss and energy loss straggling widths have been measured in transmission for  $E_p \approx (0.9\text{--}3.4)$  MeV protons traversing a thin kapton polyimide foil. In a prior step, the thickness and non-uniformity of the target foil were carefully investigated. The overall relative uncertainties in the stopping power and energy loss straggling variance data amount, respectively, to less than 2% and 8%. The  $S(E)$  experimental data show to be in excellent agreement with available previous ones and with those compiled in the ICRU-49 report. They are fully consistent with the predictions of Sigmund-Schinner's binary collision theory of electronic stopping over the whole proton energy range explored. An average deviation of  $\sim 2.5\%$  relative to values calculated by the SRIM-2008 code, likely due to effects of valence electrons involving the C–H, C=C and C=O bonds, is however observed at low proton velocities. The measured energy loss straggling data, which are unique to our knowledge, are found to be in good agreement with values derived by the classical Bohr formula for  $E_p \gtrsim 1300$  keV but they significantly exceed Bohr's collisional energy loss straggling at lower proton velocities where target electrons can no longer be considered as free. They also show to be consistent with the predictions of the Bethe-Livingston and Sigmund-Schinner theories over the low proton velocity region ( $E_p < 1300$  keV). However, they are significantly overestimated by these theories over the intermediate and high proton velocity regions, which may be due to bunching effect by inner shell electrons of the polymer target. Besides, our energy loss straggling data are in better overall consistency with the Yang, O'Connor and Wang empirical formula for  $E_p > 1300$  keV, while deviations above the latter amounting up to  $\sim 18\%$  are observed at lower proton velocities.

© 2016 Elsevier B.V. All rights reserved.

### 1. Introduction

When swift charged particles cross matter, they are slowed down with losing all or part of their energy mainly due to inelastic electronic collisions with target atoms. These collisions are statistical in nature and the resulting energy loss distributions are characterized by the associated mean energy losses and widths (FWHMs related to the energy loss straggling variances). The ion mean energy loss and energy loss straggling variance are statistical quantities of crucial importance regarding both the understanding of the fundamental aspects of ion-matter interactions and ion beam analysis various applications [1–8]. The ion mean energy loss per travelled path length, i.e., the target material stopping power,  $S(E)$ , has been extensively investigated for various ion-target combi-

nations over a wide range of ion bombarding energies [9–19]. In contrast, the energy loss straggling variance,  $\Omega^2(E)$ , is much more difficult to measure reliably, and still much more limited corresponding studies are available in the literature [20–25]. Indeed, the energy loss straggling is very sensitive to the target material non-uniformity, roughness and inhomogeneity in chemical composition that may be responsible for undesirable, supplementary broadenings to the effective energy loss straggling variance. These spurious effects of the target material are usually difficult to evaluate experimentally, and special precautions need to be taken for reducing them to a negligible level.

In the present paper, we report on energy loss and energy loss straggling measurements (Section 2) carried out for incident proton energies,  $E_p \approx (0.9\text{--}3.4)$  MeV, crossing a  $1062 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ -thick kapton polyimide foil. The derived stopping power and energy loss straggling data are reported and discussed in Section 3. The  $S(E)$  data are compared to previous experimental results available in

\* Corresponding author.

E-mail addresses: [souichaoui@gmail.com](mailto:souichaoui@gmail.com), [sdamache@gmail.com](mailto:sdamache@gmail.com) (S. Ouichaoui).

the literature [26–28] and to values from the ICRU-49 report [29]. They are also discussed in comparison to values calculated by the binary collision approximation scheme (BCAS) of Sigmund and Schinner [30–32] using the last version of the program PASS [33], and to values generated by the SRIM-2008 computer code [34]. The derived energy loss straggling data are compared to the predictions of the Bohr and Bethe-Livingston classical theories [35,36] of collisional energy loss straggling and to values derived by the empirical formula of Yang, O'Connor and Wang [37]. Besides, they are discussed in comparison to values generated by the Sigmund-Schinner [30,38] binary collision theory of electronic stopping using the PASS code [33]. Note that all the calculated  $S(E)$  and  $\Omega^2(E)$  values have been performed with assuming the validity of the Bragg-Kleeman additivity rule [39] for compound materials. Finally, concluding remarks from the current study are drawn in Section 4.

## 2. Experimental set up and methods

The experimental set up and methods used in this experiment have been described elsewhere [12–17,25]. Then, only an account of the main experimental aspects is given in the following subsection.

### 2.1. Proton beam and detection system

The energy loss and energy loss straggling measurements were carried out at the Algiers 3.75-MV Van de Graaff accelerator whose energy calibration has been checked [16] by exploring narrow resonances in the  $^{19}\text{F}(p, \alpha\gamma)^{16}\text{O}$  and  $^{27}\text{Al}(p, \gamma)^{28}\text{Si}$  nuclear reactions. A primary proton beam with energy in the range  $E_p \approx (0.9\text{--}3.4)$  MeV, mean current intensity of  $\sim 30$  nA and circular spot of  $\sim 1.5$  mm diameter was directed onto a very thin Au-Si scattering target through a series of electrostatic lenses and focusing slits. Then, a secondary proton beam, backscattered off the Au scattering target was used in transmission through the kapton target foil for measuring the proton energy loss distributions. The latter were recorded without and with target foil in place using a system designed [12] to allow one moving the target holder without breaking the high vacuum constantly maintained inside the scattering chamber. The backscattered proton beam was detected at laboratory angle of  $165^\circ$  relative the primary beam direction by means of a  $25\text{ mm}^2$  effective area,  $500\ \mu\text{m}$  thick ULTRA ion implanted Si detector, collimated by a 3 mm diameter slit and set at  $\sim 2$  cm from the investigated target foil. A maximum allowed bias voltage of 50 V was applied to the Si detector in order to minimize the associated pulse-high-defect that constitutes the main cause of the detector response non-linearity [40,41]. A data acquisition system made of standard EG & G Ortec electronics was associated to the detector for pulse processing and recording the proton energy loss spectra [14]. The achieved overall energy resolution of the detection system was of  $\sim 10.7$  keV (FWHM) for 882 keV backscattered protons.

### 2.2. Target foil properties, thickness and non-uniformity investigations

The kapton film was commercially supplied with stated thickness of  $\sim 7.5\ \mu\text{m}$ . This polymer compound is characterized by a density of  $1.43\text{ g/cm}^3$  and a chemical formula,  $(\text{C}_{22}\text{H}_{10}\text{N}_2\text{O}_5)_n$ , involving 31 single bonds (i.e., 13 C–C, 6 C–N, 2 C–O, 10 C–H) and 13 double bonds (9 C=C, 4 C=O) per molecule. Its elemental composition, expressed in weight fraction, is C: 69.12%, H: 2.63%, O: 20.92% and N: 7.33%.

The thickness of the used kapton film was accurately determined using the weight per area method [12]. Circular target

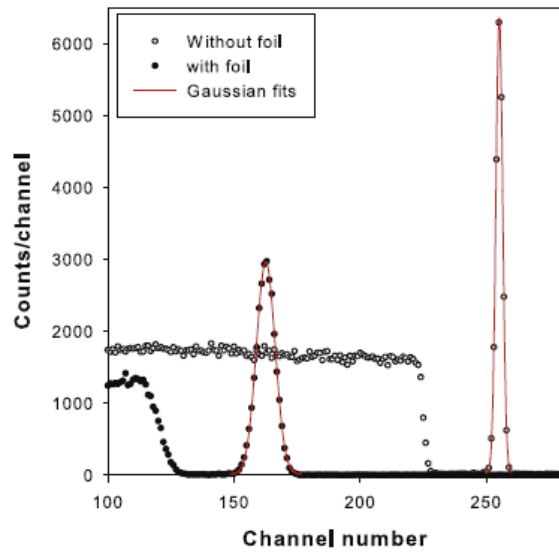
samples of  $\sim 12$  mm in diameter were cut out from the kapton film with a very accurately machined punching tool. They were immersed into an ethanol solution in order to clean them from possible surface dirt. Then, they were dried during  $\sim 12$  h in an oven maintained at a temperature of  $\sim 50^\circ\text{C}$ , and weighted several times each by means of a Sartorius super micro-balance of  $\pm 1\ \mu\text{g}$  absolute accuracy. The sample areas were determined by measuring an equivalent one of a  $\sim 5\ \mu\text{m}$ -thick nickel foil using a Carl Zeiss Hall 100 optical microscope able to read to  $\pm 2\ \mu\text{m}$ . For this purpose, the Ni sample was carefully cut out using the same punching tool as for the kapton samples. A mean areal thickness value,  $\bar{x} = (1062 \pm 13)\ \mu\text{g/cm}^2$ , of the target samples was obtained in these measurements, in good agreement with the value given by the supplier.

The macroscopic non-uniformity of the film thickness was estimated via systematic energy loss measurements for 4.824 MeV and 5.485 MeV alpha particles from a very thin  $^{241}\text{Am}$ - $^{239}\text{Pu}$ - $^{233}\text{U}$  mixed radioactive source crossing different points over the kapton foil area. This method [12–17,25] is very powerful for macroscopic non-uniformity scanning [25] since it relates only to  $\Delta E_x$  measurements achieved with good accuracy. Multi-Gaussian curves were fitted to the experimental energy loss distributions recorded for alpha particles from the mixed radioactive source crossing the kapton target. This allowed us to determine the alpha particle peak positions with relative uncertainty of less than 0.02%. The foil thickness variations over the scanned points over the target sample area induced fluctuations in the resulting alpha particle  $\Delta E_x$  energy loss data lying within one standard deviation of less than 1.5% for both considered alpha particle energies. Finally, a relative uncertainty of  $\sim 2\%$  in the determined kapton foil mean thickness was obtained by summing in quadrature the relative uncertainties originating from the target thickness determination ( $\sim 1.2\%$ ) and from the macroscopic non-uniformity scanning ( $\sim 1.5\%$ ).

Furthermore, at a microscopic scale the non-uniformity of the kapton foil was investigated similarly as in [25,42] via energy loss and energy loss straggling measurements for a 2.4 MeV alpha particle beam from the V.d.G. accelerator crossing the kapton foil. The energy loss distributions recorded with and without exposing the kapton foil to the alpha particle beam were adjusted by Gaussian fits allowing a precise determination of the corresponding mean peak positions and FWHM widths. Then, the energy loss straggling variance data,  $\Omega^2 = \langle (\Delta E - \langle \Delta E \rangle)^2 \rangle$ , can be elementarily deduced from the determined widths (FWHM) of these Gaussian shaped energy loss distributions. Finally, an upper bound value of the kapton foil roughness,  $\rho^2 < \frac{\Omega^2}{\langle \Delta E \rangle^2} = 3.17 \times 10^{-4}$ , was deduced from the derived results of the squared mean energy loss,  $\langle \Delta E \rangle^2$ , and straggling variance,  $\Omega^2$ .

### 2.3. Energy loss and energy loss straggling measurements

The experimental data of energy loss and energy loss straggling widths,  $\Delta E$  and  $\delta E_{\text{exp}}$ , were respectively deduced from the peak positions and widths (FWHM) of the measured proton energy loss distributions. Similarly as in [12,16] the latter have been carefully inspected for their Gaussian shapes by evaluating the overall dimensionless path-length [43,44] and distribution  $\gamma_3^2$ -skewness [12,45,46] parameters both for small ( $3\% \lesssim \frac{\Delta E}{E} \lesssim 5\%$ ) and large ( $20\% < \frac{\Delta E}{E} < 36\%$ ) energy loss fractions, respectively. The energy loss distributions recorded without and with the kapton foil exposed to a beam of 900 keV protons are reported in Fig. 1. These energy spectra correspond to the extreme case of maximum energy loss fraction,  $\frac{\Delta E}{E} = 35.5\%$ , considered in this work. Generated Gaussian fits to these experimental data are also plotted in Fig. 1 (solid curves), allowing an accurate determination of the



**Fig. 1.** Typical energy loss spectra recorded with and without the kapton foil in place for 900 keV incident protons using a 2048-channel portion of an Ortec MCB Card.

distribution peak positions and widths. As can be seen, the measured spectra are well reproduced by the Gaussian fits over the considered channel intervals defined by  $\sim 3$  up to 4 times one standard deviation around the peak positions [12]. The difference in mean peak positions in the recorded proton energy loss spectra without and with the kapton target in place (see Fig. 1) yields the mean energy loss,  $\Delta E$ , while the energy loss straggling width,  $\delta E_{exp}$ , was deduced from the measured widths (FWHM),  $\delta E_0$  and  $\delta E_{st}$ , of the unstraggled and straggled beam profiles using the relation:

$$\delta E_{exp}^2 = \delta E_{st}^2 - \delta E_0^2. \quad (1)$$

#### 2.4. Stopping power and energy loss straggling variance determinations

The experimental stopping power values were deduced from the mean energy loss data as in [12,14]. Briefly, for energy loss fractions,  $\frac{\Delta E}{E} < 20\%$ , the average stopping power of the target sample,  $S(\bar{E})$ , at the proton mean energy,  $\bar{E} = E - \frac{\Delta E}{2}$ , was derived as the ratio,  $\frac{\Delta E}{\bar{E}}$ , with 0.05% accuracy [47]. Note that here  $E$  is the energy of backscattered protons off the Au-Si scattering target. In some cases where large energy losses were recorded (Table 1), two corrections have been considered: (i) a quadratic correction term derived from an expansion of the  $S(\bar{E})$  function as in reference [47] and (ii) the increase in the projectile path length within the kapton target foil due to multiple scattering [12,48,49]. However, these two corrections amounted to at most  $\sim 0.17\%$  and  $\sim 0.06\%$ , respectively. For energy loss distributions of Gaussian shapes, the measured straggling width,  $\delta E_{exp}$ , is elementarily related to the experimental energy straggling variance,  $\Omega_{exp}^2$ , by the expression

$$\delta E_{exp}^2 = 8 \ln(2) \Omega_{exp}^2. \quad (2)$$

The present energy loss straggling experimental data were corrected for target foil roughness and inhomogeneity effects using the method due to Besenbacher et al. [50]. Then, the corrected straggling variance is given by

**Table 1**

Measured stopping power data (column 3) and energy loss straggling data (column 4) versus the proton mean energy (column 1) for the used kapton polyimide target. The corresponding energy loss fractions are also given in column 2.

$\bar{E}$ (keV)	$\frac{\Delta E}{E}$ (%)	$S(\bar{E})$ (keV)	$\Omega^2$ (keV <sup>2</sup> )
725.4	35.52	294.99 ± 5.91	104.60 ± 2.65
785.6	31.25	273.96 ± 5.49	104.11 ± 2.53
840.8	28.43	262.35 ± 5.25	109.69 ± 3.03
948.9	23.96	243.19 ± 4.87	099.46 ± 7.42
1055.9	20.45	226.43 ± 4.54	113.91 ± 5.81
1161.4	17.70	212.32 ± 4.25	104.30 ± 2.24
1265.4	15.55	200.91 ± 4.02	094.88 ± 3.10
1370.3	13.58	187.96 ± 3.77	084.28 ± 3.61
1472.9	12.15	179.42 ± 3.59	090.13 ± 3.20
1575.6	10.86	170.44 ± 3.41	088.22 ± 2.73
1677.8	09.79	162.63 ± 3.26	090.36 ± 3.00
1779.4	08.89	155.90 ± 3.12	086.73 ± 3.29
1880.7	08.11	149.63 ± 3.00	080.05 ± 3.42
2082.5	6.83	138.71 ± 2.78	082.98 ± 4.22
2282.8	5.90	130.63 ± 2.62	082.76 ± 3.42
2483.6	5.07	121.60 ± 2.44	082.27 ± 4.20
2683.8	4.40	113.82 ± 2.28	091.11 ± 4.06
2881.9	3.97	109.80 ± 2.20	089.02 ± 4.47
3081.4	3.50	103.22 ± 2.07	088.78 ± 4.30
3279.6	3.16	099.11 ± 1.99	082.93 ± 3.94

$$\Omega^2(\bar{E}) = \Omega_{exp}^2(\bar{E}) - \rho^2 \langle \Delta E \rangle^2, \quad (3)$$

where  $\langle \Delta E \rangle$  is the ion experimental mean energy loss in the target.

### 3. Results and discussions

The obtained results of the stopping power,  $S(\bar{E})$ , and energy loss straggling variance,  $\Omega^2(\bar{E})$ , for protons in kapton polyimide are reported in Table 1 together with the corresponding proton energies and energy loss fractions. The overall relative uncertainties in these  $S(\bar{E})$  and  $\Omega^2(\bar{E})$  experimental data, evaluated as in [12,25], amount to at most 2% and 8%, respectively. The  $S(\bar{E})$  experimental data are compared in Fig. 2 to other data sets from previous experiments [26–28] and from the ICRU-49 report [29]. In Fig. 3, our data are compared to  $S(\bar{E})$  values calculated by the binary collision approximation scheme (see [30–32] and references therein) using the last version of the PASS program [33] or generated by the SRIM-2008 code [34].

Concerning the energy loss straggling, our experimental data are plotted in Fig. 4 in form of the variance ratio,  $\frac{\Omega_{exp}^2}{\Omega_{st}^2}$ , versus the proton mean energy with  $\Omega_{st}^2 = 85.47 \text{ keV}^2$  being the collisional energy loss straggling variance calculated by Bohr's theory [35] for a 1062  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ -thick kapton foil assuming the validity of the Bragg-Kleeman additivity rule. Observing the trend of the energy loss straggling data over the low proton velocity region,  $E_p < 1300 \text{ keV}$ , we have noted an apparently large departure between the two data points at 950 keV and 1050 keV, lying well outside the initially calculated error bars. This has led us to carefully reexamine the corresponding energy spectra with and without the kapton target being exposed to the proton beam. Then, plotting the widths (FWHM) of the measured energy loss distribution versus the mean proton energy for these two data points and their immediate neighbors, we have pointed out a presumably pronounced fluctuation of the proton beam spot width with the kapton target being placed (for the point at  $\sim 950 \text{ keV}$ ) and without target in place (for the point at 1050 keV). Consequently, we have reevaluated the relative uncertainties in the latter two data points that have been increased, respectively, from 2.98% up to 7.86% and from 2.59% up to 5.01%, as can be seen in Fig. 4. In the latter representation, the measured energy loss straggling data are also conveniently compared to the predictions

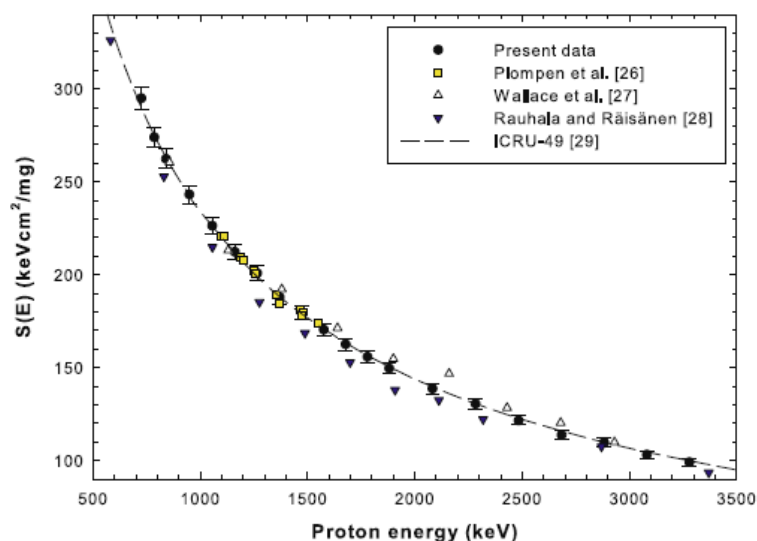


Fig. 2. Measured stopping powers of kapton polyimide versus the proton mean energy compared to previous  $S(E)$  experimental data [26–28] and to values compiled in the ICRU-49 report [29].

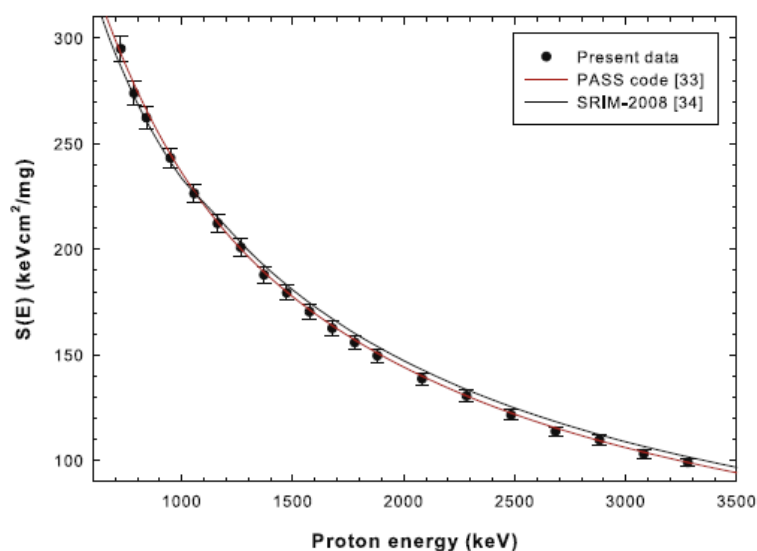
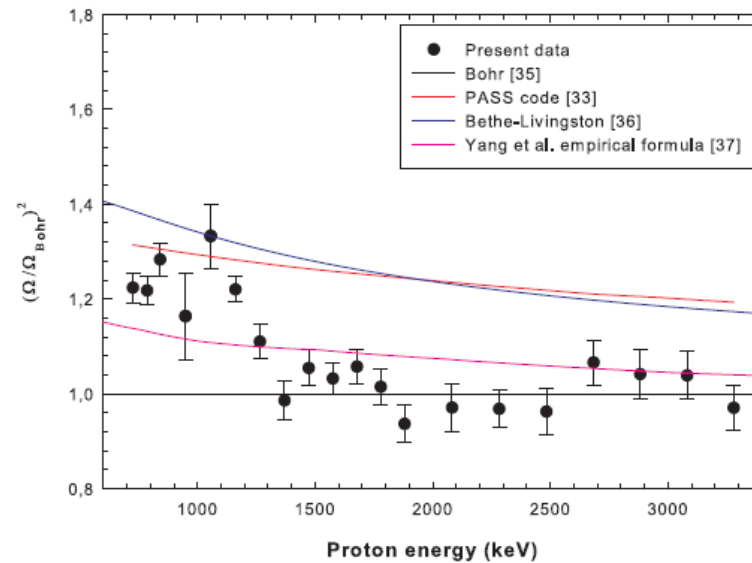


Fig. 3. Measured stopping powers of kapton polyimide versus the proton mean energy compared to  $S(E)$  values calculated by the Sigmund-Schinner binary collision approximation scheme (BCAS [30–32]) using the last version of program PASS [33] and to values generated by the SRIM-2008 computer code [34].

of: (i) the Bethe-Livingston theory [36] for the collisional energy loss straggling assuming the target electrons to be bound within the atomic shells, (ii) Sigmund-Schinner's binary collision theory [30,38] using the PASS computer code [33], and (iii) Yang et al. [37] empirical formula. In the Bethe-Livingston theory, the effective target atomic number expresses as,  $Z_2 = Z_2 - \sum_i Z_i$ , where the sum extends over the electrons excluded by the condition,  $I_i > 2m\bar{v}^2$ , with  $m$  and  $\bar{v}$  denoting the electron mass and projectile velocity, respectively. Note that in all the energy loss straggling calculations the input data used for the H, C, N and O constituent elements of the kapton target, reported in Table 2, were taken from the ICRU-73 report [51].

### 3.1. Stopping power data

As can be seen in Fig. 2, our  $S(E)$  experimental results are in fairly good agreement with both previous data from reference [26] and the ICRU-49 report [29] over the common explored proton energy ranges. They are also in excellent agreement with experimental data from references [27,28] for  $E_p < 1100$  keV. However, they lie above the data from reference [28] by  $\sim 3$  up to 6% and slightly below the data from reference [27] over the common explored higher energy interval. Relative to the  $S(E)$  values derived by the SRIM-2008 [34] and the PASS [33] computer codes based on the binary collision approximation (see Fig. 3), our data show to be



**Fig. 4.** Measured energy loss straggling data relative to Bohr's classical theory [35] of collisional energy loss straggling (variance ratio,  $\frac{\Omega^2}{\Omega_{Bohr}^2}$ ) for incident protons in kapton polyimide versus the mean proton energy compared to values predicted by the Bethe-Livingston [36] and Sigmund-Schinner [30–32] (PASS calculation [33]) theories, and by Yang et al. empirical formulae [37] assuming Bragg-Kleeman's additivity rule for compound materials.

**Table 2**

Average excitation energy,  $i_i$ , electron number,  $Z_i = f_i Z_2$  (where  $f_i$  is the oscillator strength of the  $i$ th shell/subshell) and binding energy,  $U_i$ , for shells or subshells of the (H, C, N et O) elementary constituents of the studied kapton polyimide target. These input data used in our calculations were extracted from the ICRU-73 report [51].

Element	$Z_2$	Subshell $i$	Subshell occupation $Z_2 f_i$	Subshell $i$ -value $h\nu_{ij}$ (eV)	Subshell binding energy $U_i$ (eV)
H	1	K: $n = 1$ ; $l = 0$	1	19.2	15.42
C	6	K: $n = 1$ ; $l = 0$	1.992	486.2	288.2
		$L_1$ : $n = 2$ ; $l = 0$	1.841	60.95	16.59
		$L_{21}$ : $n = 2$ ; $l = 1$	2.167	23.43	11.26
		$L_{11}$ : $n = 2$ ; $l = 1$	3.579	23.55	14.534
N	7	K: $n = 1$ ; $l = 0$	1.741	732.61	403.8
		$L_1$ : $n = 2$ ; $l = 0$	1.680	100.646	20.33
		$L_{21}$ : $n = 2$ ; $l = 1$	3.579	23.55	14.534
		$L_{11}$ : $n = 2$ ; $l = 1$	3.579	23.55	14.534
O	8	K: $n = 1$ ; $l = 0$	1.802	965.1	538.2
		$L_1$ : $n = 2$ ; $l = 0$	1.849	129.85	28.7
		$L_{21}$ : $n = 2$ ; $l = 1$	4.349	31.60	13.618
		$L_{11}$ : $n = 2$ ; $l = 1$	4.349	31.60	13.618

$n$  and  $l$  are respectively the principal and azimuthal quantum numbers.

fully consistent with the BCAS predicted values [30–32] over the entire proton energy range explored, and in good agreement (within the experimental uncertainties) with values derived by the SRIM-2008 code [34] over the proton energy region,  $E_p \sim (785\text{--}1300)$  keV. In the remaining proton energy regions explored, our  $S(\bar{E})$  data appear to be slightly overestimated by the SRIM-2008 code at higher energies ( $E_p > 1300$  keV) while they

are underestimated by the latter computer code at lower proton energies ( $E_p < 785$  keV). An average deviation of  $\sim 2.5\%$  is clearly observed between our data and SRIM-2008 calculated values in both precedent energy ranges. Notice that these trends of the experimental stopping powers of compounds relative to the values calculated by the SRIM code – indicating that more pronounced deviations are observed for oxides, nitrides and hydrocarbons – have also been pointed out previously by several groups of authors [12,14,52–56].

### 3.2. Energy loss straggling data

As can be seen in Fig. 4, the energy loss straggling ratio,  $\frac{\Omega^2}{\Omega_{Bohr}^2}$ , remains essentially constant in overall scale and close to unity for proton energies,  $E_p > 1300$  keV, while in the remaining lower energy region explored this ratio increases with decreasing the proton energy up to a maximum value of  $\sim 1.33$  around  $E_p = 1000$  keV. The present energy loss straggling data are consistently reproduced, in average, by the classical Bohr theory [35] of collisional energy straggling over the high proton energy region explored, i.e., for  $E_p \gtrsim 1300$  keV, where the bindings of target electrons within atomic shells are neglected. In contrast, our data are substantially underestimated by Bohr's theory over the lower proton energy region where the observed deviation amounts up to  $\sim 22\%$ , in average. Thus, a general trend of the energy loss straggling experimental data is that they exhibit significant energy dependence over the low proton energy region below  $E_p \approx 1300$  keV where target electrons are increasingly lesser free and subject to binding effects with decreasing the proton energy. Similar such trends of the energy loss straggling for ( $0.5 < E_p < 2$ ) MeV protons transmitted through compound targets have been observed previously for organic target materials of various thicknesses [25,52,57]. Besides, one can observe in Fig. 4 that our energy loss straggling data tend to the values predicted by the Bethe-Livingston [36] and Sigmund-Schinner [30,38] theories over the low proton energy range explored,  $E_p < 1300$  keV, while they are significantly overestimated by the latter two theories for higher

proton energies. Within the intermediate proton energy region,  $1300 < E_p \lesssim 2500$  keV, where the measured energy loss distributions are fully Gaussian-shaped, the observed discrepancies with the predictions of these theories vary between 11% and 17%: they are likely due to phase and spatial correlation effects of inner shell atomic electrons of the studied kapton target. Indeed, the input data for the H, O and N constituents of the latter used in our energy loss straggling calculation by the Bethe-Livingston theory [36] are those for molecular gases. Moreover, the bunching of electrons in their atomic orbits was ignored in this calculation, which may lead to a decrease of the energy loss straggling as predicted by this theory [36] for solid targets.

In our calculation of the energy loss straggling with the Yang et al. [37] empirical formula, we have also assumed the (H, N, O) elemental constituents of the kapton polyimide target to be solids. However, phase state effects, i.e., the solid–gas difference, has practically no incidence on the Yang et al. calculated values over the whole considered proton energy range. The induced difference in the energy loss straggling variances amounts only to less than 2%. Thus, our energy loss straggling experimental data can be considered to be in overall agreement with the values derived by the Yang et al. empirical formula [37] for  $E_p > 1300$  keV, while for lower proton energies they lie significantly higher than estimated by this formula. The observed deviation, that increases as the proton energy decreases towards the stopping power function maximum, amounts up to  $\sim 18\%$ . Similar large deviations between experimental data and the energy loss straggling derived by the Yang et al. empirical formula have also been recently reported [57] for C, O, Al and Kr ions crossing  $ZrO_2$  targets. Notice, however, that in addition to assuming an ionic charge of unity for the incident hydrogen ions, Yang et al. [37] have fitted a deformed resonant function to experimental data affected by discrepancies of up to 60%.

#### 4. Summary and conclusion

The observed general consistencies between theoretical predictions and our stopping power and energy loss straggling experimental data over the explored proton velocity regions clearly attest for the reliability of our measurements.

The measured  $S(\bar{E})$  stopping power data for  $\sim(0.9\text{--}3.4)$  MeV protons crossing a thin kapton polyimide foil are found in overall agreement with previously measured data [26–28] and with the ICRU-49 compilation. As discussed in the preceding section, they exhibit similar behaviors versus the proton energy relative to  $S(E)$  values calculated by theory. Notably, they are fully consistent with the predictions of Sigmund-Schinner's binary collision theory of electronic stopping over the whole proton energy range explored. Relative to values derived by the SRIM-2008 code based on the binary collision approximation, a good agreement is observed over the proton energy region,  $E_p \sim (785\text{--}1300)$  keV, while expected, small, deviations are pointed out, as has been observed in several previous studies.

Concerning the energy loss straggling experimental data for the same projectile-target system, one notes that they exhibit marked energy dependencies with two main distinct trends (see Fig. 4). (i) Over the high proton velocity region explored, i.e., for  $E_p > 1300$  keV, they are in overall good agreement with Bohr's classical theory predicting energy-independent collisional energy loss straggling with neglecting the bindings of the target atomic electrons. In this region, however, our data are slightly overestimated by the Bethe-Livingston theory assuming the target electrons to be bound within their atomic shells and by Sigmund-Schinner's binary collision theory involving both the shell and Barkas-Andersen corrections. (ii) Over the lower proton velocity region explored here,

i.e., for  $E_p < 1300$  keV, our data significantly increase as the proton energy decreases towards the stopping power function maximum where complex interaction effects, including charge exchange and target–projectile correlation effects, are expected to take place. Although the experimental data exhibit a more abrupt enhancement towards low proton velocities, this trend is qualitatively consistent with the energy loss straggling variations predicted both by the Bethe-Livingston and Sigmund-Schinner theories. However, none of the performed theoretical calculations does completely account for the observed trends of the energy loss straggling experimental data throughout the pointed out proton velocity regimes, especially the pronounced enhancement of the data at low projectile velocities. It turns out, consequently, that together with additional accurate experimental data, theoretical refinements, such as the inclusion of projectile-target correlation effects like the electron bunching and atomic packing, are still needed in order to better clarify the situation within the low projectile velocity region. Besides, even the Yang, O'Connor and Wang empirical formula that, apart from Bohr's theory, yields the closest energy loss straggling values to experimental data over the high proton velocity regime, appears to be obviously exceeded over the low projectile velocity regime. It therefore needs to be further improved with considering up-to-date and accurate experimental data.

#### References

- [1] M. Nastasi, J.W. Mayer, J.K. Hirvonen, *Ion-Solid Interactions: Fundamentals and Applications*, Cambridge Solid State Science Series, Cambridge University Press, Cambridge Solid State Science Series, 1996.
- [2] D. Fink, *Fundamentals of Ion-Irradiated Polymers*, Springer Science & Business Media Editor, 2013.
- [3] C. Udalagama, A.A. Bettioli, F. Watt, *Phys. Rev. B* 80 (2009) 224107.
- [4] M.K. Patel, V. Vijayakumar, S. Kailas, D.K. Avasthi, J.C. Pivin, A.K. Tyagi, *J. Nucl. Mater.* 380 (2008) 93.
- [5] C. Baker, D. Shipley, H. Palmans, A. Kacperek, *Nucl. Instr. Meth. A* 562 (2006) 1005.
- [6] L. Burigo, I. Pshenichnov, I. Mishustin, M. Bleicher, *Nucl. Instr. Meth. B* 310 (2013) 37.
- [7] T. LaGrange, C. Abromeit, R. Gotthardt, *Mater. Sci. Eng., A* 438–440 (2006) 521.
- [8] Harry Bernas (Ed.), *Materials Science with Ion Beams, Series: Topics in Applied Physics*, vol. 116, Springer, 2010.
- [9] J.P. Biersack, D. Fink, W. Mielekeley, K. Tjan, *Nucl. Instr. Meth. B* 15 (1986) 96.
- [10] F. Hubert, R. Bimbot, H. Gauvin, *Atom. Data Nucl. Data Tables* 46 (1990) 1.
- [11] S. Ouichaoui, L. Rosier, E. Hourany, R. Bimbot, N. Redjhal, H. Beaumeville, *Nucl. Instr. Meth. B* 95 (1995) 463.
- [12] S. Damache, S. Ouichaoui, A. Belhout, A. Midouni, I. Toumert, *Nucl. Instr. Meth. B* 225 (2004) 449.
- [13] S. Damache, S. Ouichaoui, D. Moussa, A. Dib, *Nucl. Instr. Meth. B* 249 (2006) 22.
- [14] S. Damache, D. Moussa, S. Ouichaoui, *Nucl. Instr. Meth. B* 268 (2010) 1759.
- [15] D. Moussa, S. Damache, S. Ouichaoui, *Nucl. Instr. Meth. B* 268 (2010) 1754.
- [16] S. Damache, D. Moussa, S. Ouichaoui, *Nucl. Instr. Meth. B* 308 (2013) 46.
- [17] D. Moussa, S. Damache, S. Ouichaoui, *Nucl. Instr. Meth. B* 343 (2015) 44.
- [18] I. Abril, R. Garcia-Molina, N.R. Arista, C.F. Sanz-Navarro, *Nucl. Instr. Meth. B* 190 (2002) 89.
- [19] M. Abdesselam, S. Ouichaoui, M. Azzouz, A.C. Chami, M. Siad, *Nucl. Instr. Meth. B* 266 (2008) 3899.
- [20] I. Abril, M. Behar, R. Garcia-Molina, R.C. Fadanelli, L.C.C.M. Nagamine, P.L. Grande, L. Schünemann, C.D. Denton, N.R. Arista, E.B. Saitovitch, *Eur. Phys. J. D* 54 (2009) 65.
- [21] M. Behar, R.C. Fadanelli, I. Abril, R. Garcia-Molina, L.C.C. Nagamine, *Eur. Phys. J. D* 64 (2011) 297.
- [22] P.K. Diwan, Neetu, Shyam Kumar, *Radiat. Phys. Chem.* 81 (2012) 1543.
- [23] V. Sharma, Pratibha, T. Sharma, P.K. Diwan, S. Kumar, S.A. Khan, D.K. Avasthi, *Nucl. Instr. Meth. B* 266 (2008) 1933.
- [24] J.R. Comfort, J.F. Decker, E.T. Lynk, M.O. Scully, A.R. Quinton, *Phys. Rev.* 150 (1966) 249.
- [25] S. Djaroum, S. Damache, D. Moussa, S. Ouichaoui, L. Amari, *Nucl. Instr. Meth. B* 354 (2015) 210.
- [26] A.J.M. Plompen, F. Munnik, J. Räsänen, U. Wätjen, *J. Appl. Phys.* 80 (1996) 3147.
- [27] W.E. Wallace, J.B. Rothman, R.J. Composto, *J. Appl. Phys.* 75 (1994) 2312.
- [28] E. Rauhala, J. Räsänen, *Nucl. Instr. Meth. B* 35 (1988) 130.
- [29] ICRU-49 report, International Commission on Radiation Units and Measurements (1993).
- [30] P. Sigmund, A. Schinner, *Eur. Phys. J. D* 12 (2000) 425.
- [31] A. Schinner, P. Sigmund, *Eur. Phys. J. D* 56 (2010) 41.
- [32] P. Sigmund, A. Schinner, *Nucl. Instr. Meth. B* 193 (2002) 49.
- [33] P. Sigmund, private communication.

- [34] J.F. Ziegler, M.D. Ziegler, J.P. Biersack, SRIM-2008 Computer Code, Version SRIM 2008.03, 2008.
- [35] N. Bohr, *Philos. Mag.* 30 (1915) 581.
- [36] M.S. Livingston, H.A. Bethe, *Rev. Mod. Phys.* 9 (1937) 245.
- [37] Q. Yang, D.G. O'Connor, Z. Wang, *Nucl. Instr. Meth. B* 61 (1991) 149.
- [38] P. Sigmund, A. Schinner, *Eur. Phys. J. D* 58 (2010) 105.
- [39] W.H. Bragg, R. Kleeman, *Philos. Mag.* 10 (1905) 318.
- [40] C. Pascual-Izarra, N.P. Barradas, *Nucl. Instr. Meth. B* 266 (2008) 1866.
- [41] N.P. Barradas, A.R. Ramos, E. Alves, *Nucl. Instr. Meth. B* 266 (2008) 1180.
- [42] J.C. Eckardt, G.H. Lantschner, *Thin Solid Films* 249 (1994) 11.
- [43] Lev G. Glasov, *Nucl. Instr. Meth. B* 192 (2002) 239.
- [44] P. Sigmund, K.B. Winterbon, *Nucl. Instr. Meth. B* 12 (1985) 1.
- [45] C. Tschalär, *Nucl. Instr. Meth.* 61 (1968) 141.
- [46] C. Tschalär, *Nucl. Instr. Meth.* 64 (1968) 237.
- [47] H.H. Andersen, A.F. Garfinkel, C.C. Hanke, H. Sorensen, *Mater. Fys. Medd. Dan. Vidensk. Selsk.* 35 (1966) 4.
- [48] N. Sakamoto, H. Ogawa, H. Tsuchida, *Nucl. Instr. Meth. B* 164–165 (2000) 250.
- [49] R. Ishiwari, N. Shiomi-Tsuda, N. Sakamoto, H. Ogawa, *Nucl. Instr. Meth. B* 47 (1990) 111.
- [50] F. Besenbacher, J.U. Andersen, E. Bonderup, *Nucl. Instr. Meth.* 168 (1980) 1.
- [51] ICRU-73 report, *International Commission on Radiation Units and Measurements* (2005).
- [52] D.I. Thwaites, *Nucl. Instr. Meth. B* 27 (1987) 293.
- [53] J.F. Ziegler, J.M. Manoyan, *Nucl. Instr. Meth. B* 35 (1988) 215.
- [54] H. Paul, A. Schinner, *Nucl. Instr. Meth. B* 249 (2006) 1.
- [55] A. Sharma, A. Fettouhi, A. Schinner, P. Sigmund, *Nucl. Instr. Meth. B* 218 (2004) 19.
- [56] Y.C. Yu, J.Y. Hsu, K.M. Chen, *Nucl. Instr. Meth. B* 261 (2007) 1184.
- [57] M. Msimanga, C.A. Pineda-Vargas, C.M. Comrie, S. Murray, *Nucl. Instr. Meth. B* 273 (2012) 6.