

N° d'ordre : 27 / 2012 – M / PH

**REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEURE
ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE**

**UNIVERSITE DES SCIENCES ET DE LA TECHNOLOGIE
"HOUARI BOUMEDIENNE"
U.S.T.H.B. - ALGER –
FACULTE DE PHYSIQUE**



MEMOIRE

Présenté pour l'obtention du diplôme de MAGISTER

En : PHYSIQUE

Spécialité : Sciences Nucléaires

Par : AMARI Lounès

Sujet:

Contribution à l'étude de la perte d'énergie et du straggling des protons et des particules alpha traversant les cibles de formvar et de kapton.

Soutenu publiquement le 25 / 04 / 2012, devant le jury composé de:

M. S. OUICHAOUI	Professeur,	à l'USTHB	Président
M. S. DAMACHE	Maître de Recherche /A,	au CRNA	Directeur de mémoire
M. M. ABDESSELAM	Maître de Conférences /A,	à l'USTHB	Examineur
M. B. BOUZID	Maître de Conférences /A,	à l'USTHB	Examineur
M. S. TOBBECHE	Maître de Conférences /A,	à l'Univ / Batna	Examineur

Remerciements

Ce travail a été effectué au Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA). Je tiens à remercier Monsieur le Directeur Général du CRNA pour avoir rendu possible mes différents séjours au CRNA et d'avoir réuni les conditions nécessaires à l'aboutissement de ce travail. J'exprime mes remerciements à Monsieur S. HASSANI, Directeur de Division de Physique au CRNA où j'ai eu à séjourner et à travailler.

Je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance à Monsieur Smail DAMACHE, Maître de Recherche A au CRNA, pour avoir dirigé ce travail avec une exigence et un dévouement constants. Son aide amicale, son expérience, sa rigueur scientifique et pédagogique m'ont été d'un grand apport pour l'aboutissement de ce travail. Il m'a inculqué son souci permanent de rigueur et de qualité. C'était un honneur et un plaisir de travailler sous sa bienveillante direction.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à Monsieur Saâd OUICHAOUI, Professeur à l'USTHB, qui m'a constamment manifesté son aide et pour m'avoir fait l'honneur de présider le jury de ce mémoire.

J'exprime tous mes remerciements à Monsieur Said TOBBECHE, Professeur à Université de Batna et Messieurs Mehana ABDESSELAM, Boualem BOUZID, maîtres de conférences A à l'USTHB, pour avoir accepté de faire partie du jury de ce mémoire.

Je tiens à remercier particulièrement Monsieur Djamel MOUSSA, Maître assistant A à l'USTHB et membre du projet mixte CRNA-USTHB. Son aide amicale, son expérience professionnelle et ses nombreux conseils m'ont été d'une grande aide pour l'aboutissement de ce travail.

Mes remerciements vont aussi aux personnes du CRNA, particulièrement, Messieurs A. Midouni, Technicien du V.d.G, Djamel TAHTAT attaché de Recherche ainsi que Assia NACER KHODJA Ing. Niv.3.et Krimo REKKIS.

J'exprime tous mes remerciements à Messieurs Djamel LABIDI, professeur à l'Université de Bouzareah, A. FEDALA, maître de conférences à l'USTHB, ainsi que Madame A. FERAHI Professeur à l'USTHB pour leurs soutiens permanents.

Je ne pourrais omettre de remercier vivement tous les enseignants de la faculté de Physique qui par leur savoir ont contribué à ma formation. Ma famille et mes amis ont été toujours là durant les moments difficiles pour me soutenir et m'encourager : qu'ils en soient remerciés.

Table des matières

Introduction	1
Chapitre 1 : Notions théoriques sur le pouvoir d'arrêt et le straggling.....	3
1. Introduction.....	3
2. Théories usuelles de la perte d'énergie et du pouvoir d'arrêt.....	5
2.1. Théorie classique de Bohr.....	5
2.2. Théorie quantique de Bethe.....	6
3. Straggling collisionnel.....	7
3.1. Description classique de Bohr.....	7
3.2. Approche de Bethe-Livingston.....	8
4. Règle de sommation de Bragg-Kleeman : matière composée.....	8
Chapitre 2 : Procédure expérimentale et prise de données.....	9
1. Introduction.....	9
2. Dispositif expérimental de mesure de perte d'énergie et du straggling.....	10
2.1. Accélérateur Van de Graaff du CRNA.....	10
2.2. Chambre à réaction	12
a) Méthode de "transmission après rétrodiffusion".....	13
b) Cible de rétrodiffusion Au/Si.....	14
2.3. Détecteur et électronique associée.....	16
a) Détecteur	16
b) Chaîne électronique et traitement de signal.....	17
c) Système d'acquisition et de stockage de données.....	18
3. Cibles et leurs caractérisations.....	19
3.1. Détermination des épaisseurs de cibles.....	20
a) Méthode dite pesée par surface.....	20
b) Méthode basée sur l'utilisation des sources radioactives.....	22
3.2. Analyse du film de formvar par la technique "NRA".....	26
4. Prise de données : perte d'énergie et straggling.....	27

Chapitre 3 : Résultats, analyses et discussions.....	29
1. Introduction.....	29
2. Inspection du caractère gaussien des spectres mesurés.....	30
3. Détermination de la perte d'énergie ΔE et la dispersion en énergie δE_{exp}.....	31
3.1. Perte d'énergie ΔE	32
3.2. Dispersion en énergie δE_{exp}	32
4. Pouvoir d'arrêt et des straggling.....	33
4.1. Pouvoir d'arrêt.....	33
4.1.1 Correction sur le pouvoir d'arrêt.....	33
4.1.2 Incertitude sur le pouvoir d'arrêt.....	36
4.2. Straggling.....	37
4.2.1 Correction de rugosité des films	38
4.2.2 Incertitude sur le straggling.....	38
5. Résultats des pouvoirs d'arrêt et des stragglings	38
6. Comparaison et confrontation des données expérimentales.....	41
6.1. Pouvoir d'arrêt.....	42
6.1.1. Cible de kapton.....	42
6.1.2. Cible de formvar.....	43
6.2. Straggling.....	46
6.2.1. Straggling de Bohr et de Bethe-Livingston.....	46
6.2.2. Cible de kapton.....	49
6.2.3. Cible de formvar.....	51
Conclusion.....	56
Références bibliographiques.....	59

Introduction générale

L'éventail des questions scientifiques et technologiques faisant appel à l'utilisation d'un faisceau de particules chargées est considérable et il ne cesse de croître avec le progrès de la physique moderne. Les faisceaux d'ions énergétiques sont utilisés dans diverses disciplines telles que la physique médicale et l'analyse des matériaux par faisceaux d'ions où des résolutions en profondeur de l'ordre de la monocouche atomique sont souvent demandées. Ceci a suscité un regain d'intérêt pour l'étude aussi bien théorique qu'expérimentale du processus de la perte d'énergie des particules chargées dans la matière où des bases de données très précises sont demandées. La perte d'énergie moyenne rapportée à l'unité du parcours de l'ion projectile dans la matière cible, communément appelée pouvoir d'arrêt ou force d'arrêt, est l'observable physique la plus recherchée du processus de ralentissement. Un autre paramètre intrinsèquement lié au processus de perte d'énergie est le straggling qui traduit l'élargissement du faisceau d'ions, initialement mono-énergétique, au cours de son cheminement dans la cible. Le straggling de la perte d'énergie résulte des fluctuations statistiques aussi bien du nombre de collisions subies que de l'énergie transférée lors de chaque collision. Des techniques d'analyses par faisceaux d'ions ne cessent d'être améliorées notamment par l'utilisation de microfaisceaux et des moyens de détections de plus en plus performants. Pour des interprétations satisfaisantes des données issues de ces analyses, il est, cependant, impératif de disposer de données précises et fiables du pouvoir d'arrêt et du straggling pour diverses combinaisons projectile-cible.

L'objectif de ce travail est de contribuer à la physique fondamentale du processus de la perte d'énergie des ions légers dans la gamme des énergies de l'ordre du MeV/u. Plus précisément, Il est question de l'investigation expérimentale du pouvoir d'arrêt et du straggling dans deux types de cibles polymériques (formvar, kapton) pour des protons et des particules alpha délivrés par l'accélérateur V.d.G (Van de Graaff) de 3.75 MV. Ce travail a été réalisé au Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA) dans le cadre du projet de recherche mixte "Interaction Ions-Matière : aspects expérimental et théorique" entre le CRNA et le Laboratoire des Sciences Nucléaires (LSN) de l'USTHB.

Dans le premier chapitre, nous rappellerons brièvement les deux approches collisionnelles principales du processus de ralentissement des particules chargées dans la matière, à savoir la théorie classique de Bohr et la théorie quantique de Bethe. Pour la matière composée, des expressions du pouvoir d'arrêt et du straggling (Bohr et Bethe-Livingston) seront déduites par l'application de la relation d'additivité de Bragg-Kleeman. Le deuxième chapitre sera consacré à la description détaillée des procédures expérimentales mises en œuvre où nous présentons le dispositif expérimental et les résultats de caractérisation des cibles utilisées. Les résultats expérimentaux du pouvoir d'arrêt et du straggling obtenus seront présentés puis discutés dans le chapitre 3. Enfin, nous terminerons par une conclusion où nous résumerons les principaux résultats et conclusions obtenus au cours de ce travail. Quelques perspectives seront également données.

Chapitre 1

Notions théoriques sur le pouvoir d'arrêt et le straggling

1. Introduction

Les travaux théoriques de la perte d'énergie des particules chargées dans la matière remontent au début du 20^{ème} siècle. Différents modèles ont été proposés par plusieurs auteurs : Bohr [1-3], Bethe [4-6], Bloch [7], Lindhard [8-11] et Firsov [12]. Dans une première approche classique de la perte d'énergie, Bohr [1, 2] a considéré que la collision entre le projectile et l'atome cible est coulombienne et que celle-ci se traduit par un transfert d'énergie du projectile aux électrons cibles. Juste après, Bethe [4] établit un modèle quantique, basé sur les concepts de Bohr, en utilisant la théorie quantique des perturbations (approximation de Born) [13, 14]. Par la suite, d'autres extensions théoriques, incorporant un certain nombre de phénomènes physiques (écranage de l'interaction, correction de couches atomiques, effet Barkas, ...), ont été proposées [15-20] afin de combler les insuffisances des modèles précédents. Parmi ces extensions théoriques, nous pouvons citer la théorie de Bethe-Bloch modifiée (extension de la théorie quantique de Bethe) [15-17] et la théorie binaire de Sigmund-Schinner (réévaluation de la théorie classique de Bohr) [18-20]. Ces approches théoriques, conjuguées aux bases de données expérimentales existantes, ont permis d'établir des tabulations semi-empiriques et des codes de calculs d'intérêt pratique [21-24].

Un autre paramètre indissociable du processus du ralentissement des particules chargées dans la matière est le straggling qui traduit simplement la fluctuation statistique de la perte d'énergie. Plusieurs approches théoriques décrivant le straggling collisionnel ont été proposées par Bohr [3], Bethe-Livingston [25], Titeica [26] et Lindhard et Scharff [8]. Par la suite, d'autres développements théoriques ont été proposés pour tenir compte des effets de corrélations (Tschalar [27]) et d'échange de charges (Yang et al [28]) qui peuvent être significatifs pour des pertes d'énergie supérieure à 20%. Ces effets ont été

considérés [28] dans l'analyse des données expérimentales pour le cas de protons traversant des cibles solides et gazeuses.

L'interaction, très complexe, du projectile avec l'atome cible se traduit par un transfert d'une partie ou de la totalité de l'énergie de l'ion projectile à la cible.

Une des conclusions importantes de Bohr [1, 2] est que la perte d'énergie de l'ion projectile se fait selon deux modes d'interactions:

- Interaction nucléaire: collisions coulombiennes élastiques avec les noyaux des atomes cibles qui donnent lieu à des "pertes d'énergie nucléaires". Cette quantité n'est significative que pour des énergies du projectile très faibles (de l'ordre du keV/u).
- Interaction électronique: collisions inélastiques avec les électrons du milieu cible qui se traduisent par des excitations et/ou des ionisations des atomes de la cible et/ou du projectile. Ce mode d'interaction entraîne une "perte d'énergie électronique".

La perte d'énergie linéique, $\frac{dE}{dx}$, est la quantité d'énergie déposée (par le projectile) par unité de longueur du milieu ralentisseur. Elle est la somme des contributions électronique $(dE/dx)_{el}$ et nucléaire $(dE/dx)_{nucl}$.

$$\frac{dE}{dx} = \left(\frac{dE}{dx}\right)_{el} + \left(\frac{dE}{dx}\right)_{nucl}. \quad (1.1)$$

Dans la gamme des énergies de l'accélérateur V.d.G du CRNA ($1 \leq E \leq 3.75$ MeV/u), la contribution nucléaire est insignifiante, de telle sorte que $\frac{dE}{dx} \cong \left(\frac{dE}{dx}\right)_{el}$.

Soit un ion projectile de masse M_1 , de charge Z_1e , traversant à la vitesse v (vitesse non relativiste) un milieu ralentisseur donné. On peut distinguer trois régions d'interaction [29] :

1. Région des grandes vitesses : $v \gg v_0 Z_1^{2/3}$ (où $v_0 = \frac{e^2}{\hbar}$ est la vitesse de Bohr)

La charge de l'ion projectile est supposée ponctuelle (Z_1e). Dans cette région, la perte d'énergie résulte d'un transfert d'énergie de l'ion projectile aux électrons cibles qui se traduit par des excitations et / ou des ionisations des atomes cibles.

2. Région des vitesses intermédiaires : $v \approx v_0$

L'ion projectile conserve partiellement ses électrons et sa vitesse est du même ordre de grandeur que celles des électrons cibles. L'interaction entre le projectile et les électrons cibles sera relativement longue et le transfert d'énergie, dans ce cas, est maximum. Cette région d'énergie est le siège de plusieurs processus d'interactions complexes: excitation et/ou ionisation de l'atome cible et/ou du projectile, échange de charges entre l'ion

projectile et l'atome cible, effet de structure de valence etc. Ces processus conduisent à une perte d'énergie maximale (maximum du pouvoir d'arrêt).

3. Région de faibles vitesses : $v \ll v_0 Z_1^{2/3}$

La charge de l'ion projectile est pratiquement neutralisée et seuls les électrons des couches externes (électrons les moins liés) de la cible contribuent à la perte d'énergie. Dans cette région le pouvoir d'arrêt est proportionnel à la vitesse v ($\frac{dE}{dx} \propto v$) qui est bien décrit par la théorie de Lindhard, Scharff et Schiott [10] et de Firsov [12].

2. Théories usuelles de la perte d'énergie et du pouvoir d'arrêt

Soit un faisceau d'ions d'énergie E traversant une cible d'épaisseur x et de densité atomique N (atomes/unité de volume), la perte d'énergie moyenne $\langle \Delta E \rangle$, dans le cas de transferts d'énergie T continus, est donnée par :

$$\langle \Delta E \rangle = \int T d\mathcal{P}(T) = x N \int_{T_{min}}^{T_{max}} T d\sigma(T). \quad (1.2)$$

où $d\mathcal{P}$ et $d\sigma$ sont respectivement la probabilité et la section efficace différentielle de transfert d'une énergie comprise entre T et $T + dT$. T_{min} et $T_{max} = 2mv^2$ (où m est la masse de l'électron) sont respectivement les énergies minimale et maximale transférées.

La section efficace d'arrêt (liée au pouvoir d'arrêt) est définie par :

$$S(E) = -\frac{1}{N} \frac{dE}{dx} = \int_{T_{min}}^{T_{max}} T d\sigma(T). \quad (1.3)$$

2.1. Théorie classique de Bohr

Soit un ion projectile de masse M_1 et de charge $Z_1 e$ traversant avec la vitesse v une cible monoatomique caractérisée par un numéro atomique Z_2 et une masse M_2 . Dans un premier temps, Bohr supposa que la charge du projectile est ponctuelle et que les électrons cibles sont libres et au repos. Il traita alors l'interaction ion-électron par la théorie de diffusion coulombienne de Rutherford. Son modèle est basé sur le concept du paramètre d'impact p . La section efficace différentielle de transfert d'énergie à un électron est donnée par :

$$d\sigma(T) = 2 \pi \frac{Z_1^2 e^4}{mv^2} \frac{dT}{T^2}. \quad (1.4)$$

Bohr définit un paramètre d'impact $P_0 = \frac{v}{\langle \omega_0 \rangle}$, déduit de la comparaison du temps d'interaction ion-électrons cible et du temps moyen $t = \frac{1}{\langle \omega_0 \rangle}$ ($\langle \omega_0 \rangle$ la vitesse angulaire moyenne des électrons atomiques) de précession des électrons autour du noyau atomique.

Au-delà de ce paramètre, les chocs sont adiabatiques et ils ne causent aucun transfert d'énergie. Pour des paramètres d'impacts inférieurs à P_0 , Bohr obtint l'expression suivante de la section efficace d'arrêt électronique:

$$S(v) = -\frac{1}{N} \frac{dE}{dx} = 4 \pi \frac{Z_1^2 Z_2 e^4}{mv^2} \ln \left(\frac{mv^3}{Z_1 e^2 \langle \omega_0 \rangle} \right). \quad (1.5)$$

Par la suite, Bohr incorpora les chocs lointains en utilisant les perturbations classiques pour de faibles déviations. Il décrivit alors les électrons-cibles par des oscillateurs harmoniques liés aux noyaux et il considéra que l'interaction ion-électron comme une excitation électromagnétique de ces oscillateurs harmoniques par un champ électrique uniforme induit par le passage de l'ion projectile. Bohr aboutit à l'expression du pouvoir d'arrêt suivante :

$$S(v) = 4 \pi \frac{Z_1^2 Z_2 e^4}{mv^2} \ln \left(\frac{C mv^3}{Z_1 e^2 \langle \omega_0 \rangle} \right). \quad (1.6)$$

Le terme $\ln \left(\frac{C mv^3}{Z_1 e^2 \langle \omega_0 \rangle} \right)$ est le nombre d'arrêt de Bohr par électron où $C = 2 \exp(-\gamma)$ et $\gamma = 0.5772$ est la constante d'Euler.

En tenant compte des différentes fréquences ω_j des résonances des électrons de l'atome cible, la formule de Bohr devient :

$$S(v) = 4 \pi \frac{Z_1^2 Z_2 e^4}{mv^2} \sum_j f_j \ln \left(\frac{C mv^3}{Z_1 e^2 \omega_j} \right). \quad (1.7)$$

où f_j est la force d'oscillation dipolaire du $j^{\text{ième}}$ électron-cible.

2.2. Théorie quantique de Bethe

Bethe élaborera un modèle basé sur un traitement quantique où il a considéré l'échange d'énergie entre l'ion projectile et l'atome cible comme une transition de l'état quantique initial du système $|q 0\rangle$ vers l'état final $|q' n\rangle$, sous l'effet du potentiel perturbateur $V(R)$ donné par :

$$V(R) = - \sum_{j=1}^{Z_2} \frac{Z_1 e^2}{|R-r_j|} + \frac{Z_1 Z_2 e^2}{R}. \quad (1.8)$$

où q et q' sont respectivement les impulsions de l'ion projectile avant et après l'interaction, $|0\rangle$ et $|n\rangle$ sont respectivement les vecteurs d'états de l'atome cible avant et après l'interaction et R et r_j sont respectivement les positions du projectile et du $j^{\text{ième}}$ électron dans le référentiel du noyau de l'atome cible. En utilisant la théorie quantique des perturbations dépendante du temps (approximation de Born au premier ordre), Bethe calcula alors la probabilité de transition (règle d'or de Fermi) de l'état quantique $|q 0\rangle$ vers

l'état $|q'n\rangle$ et par la suite, il déduit l'expression de la section efficace différentielle de transition :

$$d\sigma_n = 2\pi \frac{Z_1^2 e^4}{mv^2} \frac{dQ}{Q^2} \left| \langle n | \sum_{j=1}^{Z_2} \exp(ikr_j) | 0 \rangle \right|^2. \quad (1.9)$$

où $p = q - q' = \hbar k = (2mQ)^{1/2}$ et k est le vecteur d'onde associé au transfert d'impulsion p .

En introduisant les énergies minimale Q_{min} et maximale Q_{max} que l'électron cible peut recevoir, Bethe obtint l'expression suivante de section efficace d'arrêt :

$$S(v) = 4\pi \frac{Z_1^2 Z_2 e^4}{mv^2} \ln\left(\frac{2mv^2}{I}\right). \quad (1.10)$$

Le terme $\ln\left(\frac{2mv^2}{I}\right)$ est le nombre d'arrêt de Bethe où I est le potentiel moyen d'ionisation et d'excitation de l'atome cible.

3. Straggling collisionnel

Le straggling de la perte d'énergie résulte des fluctuations statistiques aussi bien du nombre de collisions subies que de l'énergie transférée lors de chaque collision. En d'autres termes, la perte d'énergie ΔE mesurée s'accompagne toujours d'un élargissement statistique. Ce dernier est caractérisé par une grandeur statistique communément appelée le straggling, Ω^2 , ou variance qui est défini par :

$$\Omega^2 = \langle (\Delta E - \langle \Delta E \rangle)^2 \rangle. \quad (1.11)$$

Dans le cas de transferts d'énergie continus l'expression (1.11) peut s'écrire :

$$\Omega^2 = x N \int_{T_{min}}^{T_{max}} T^2 d\sigma. \quad (1.12)$$

3.1. Description classique de Bohr

Avec les mêmes hypothèses que pour le pouvoir d'arrêt, Bohr utilisa la section efficace différentielle coulombienne (expression (1.4)) et supposa que $T_{max} \gg T_{min}$. Bohr obtint l'expression du straggling suivante :

$$\Omega_B^2 = 4\pi Z_1^2 Z_2 e^4 N x \quad (1.13)$$

D'une manière plus pratique, le straggling Ω_B^2 , exprimé en unité MeV^2 , peut s'écrire :

$$\Omega_B^2 = 1.57 \cdot 10^{-4} Z_1^2 \frac{Z_2}{A_2} x \quad (1.14)$$

où A_2 est la masse atomique de l'atome cible et l'épaisseur de cible x est exprimée mg/cm^2 .

Les expressions (1.13) et (1.14) sont indépendantes de l'énergie de l'ion projectile et ne tiennent pas compte des liaisons atomiques des électrons cibles.

3.2. Approche de Bethe-Livingston

Bethe et Livingston ont élaboré une expression théorique du stragglng collisionnel en tenant compte des liaisons électroniques des atomes cibles. Ils obtiennent, pour le cas d'une cible monoatomique, l'expression du stragglng collisionnel suivante :

$$\Omega_{BL}^2 = 4 \pi Z_1^2 e^4 \left[Z_2' + \sum_i \left(k_i \frac{I_i Z_i}{m v^2} \ln \left(\frac{2 m v^2}{I_i} \right) \right) \right] N x \quad (1.15)$$

Dans l'expression (1.15), Z_2' est le nombre total effectif d'électrons atomiques de l'atome cible, k_i est un facteur correctif qui vaut $\sim 4/3$ pour toutes les couches atomiques et I_i , Z_i sont respectivement le potentiel d'excitation moyen, le nombre d'électrons pour la $i^{\text{ème}}$ couche ou sous couche de l'atome cible. Il est à noter que la sommation dans l'expression (1.15) est faite sur tous les électrons cibles pour lesquels la condition $2 m v^2 > I_i$ est satisfaite.

De même que pour le stragglng de Bohr, le stragglng de Bethe-Livingston peut s'écrire de façon plus pratique :

$$\Omega_{BL}^2 = 1.57 \cdot 10^{-4} Z_1^2 \frac{\left[Z_2' + \sum_i \left(\frac{4}{3} \frac{I_i Z_i}{m v^2} \ln \left(\frac{2 m v^2}{I_i} \right) \right) \right]}{A_2} x \quad (1.16)$$

où les unités de Ω_{BL}^2 et x sont en MeV^2 et mg/cm^2 , respectivement.

4. Règle de sommation de Bragg-Kleeman : matière composée

Les théories précédentes du pouvoir d'arrêt et du stragglng considèrent le milieu ralentisseur monoatomique. Pour la matière composée, le pouvoir d'arrêt $S_{BK}(E)$ et le stragglng Ω_{BK}^2 sont donnés par la règle de sommation de Bragg-Kleeman [30] :

$$S_{BK} = \sum_j w_j S_j \quad (1.17)$$

$$\Omega_{BK}^2 = \sum_j w_j \Omega_j^2 \quad (1.18)$$

où w_j est la fraction massique du $j^{\text{ème}}$ atome constituant et S_j et Ω_j^2 sont respectivement le pouvoir d'arrêt et le stragglng de ce même constituant.

Ces relations ne tiennent pas compte des effets d'agrégation de la matière (état de phase et liaisons chimiques). L'application de la relation (1.18) aux expressions (1.14) et (1.16) permet d'obtenir les stragglng de Bohr et de Bethe-Livingston pour la matière composée.

Chapitre 2

Procédure expérimentale et prise de données

1. Introduction

Les données expérimentales du pouvoir d'arrêt et du straggling rapportées dans ce travail ont été mesurées, auprès de l'accélérateur Van de Graaff du CRNA (Centre de Recherche Nucléaire d'Alger), par la méthode dite de "transmission après rétrodiffusion" (cf. § 2.2. ci-après). Le montage expérimental utilisé est composé d'un accélérateur, d'une chambre à réaction et d'un système de détection et d'acquisition de données. Outre les ions générés par l'accélérateur, une source radioactive fine de particules alpha a aussi été utilisée en vue de sonder les épaisseurs des cibles utilisées ainsi que leurs degrés d'uniformité. Nous nous sommes intéressés particulièrement à l'étude de deux matériaux polymériques qui sont : le polyvinyl formal (formvar) et le polyamide (kapton). Pour le formvar, il s'agit d'une ré-analyse d'une expérience, réalisée par le groupe [31], en vue de déterminer principalement le straggling collisionnel des protons des particules alpha dans ce polymère.

Dans ce chapitre, il est question de la description détaillée des procédures expérimentales mises en œuvre et de la présentation des résultats de caractérisation (notamment les épaisseurs) des cibles utilisées. Un exemple de spectres typique de pertes d'énergie sera donné et discuté en vue de cerner l'information utile requise à la détermination de la perte d'énergie ΔE et de la dispersion en énergie δE_{exp} .

2. Dispositif expérimental de mesure de perte d'énergie et du straggling

Le dispositif expérimental utilisé pour mesurer la perte d'énergie et le straggling des protons et des particules alpha dans les différentes cibles considérées est schématisé sur la figure (Fig. 2.1) ci-dessous. Il est essentiellement composé de trois parties :

- l'accélérateur de particules de type Van de Graaff (V.d.G.-3.75MV),
- la chambre à réaction,
- le détecteur, la chaîne électronique associée et le système d'acquisition et de stockage de données.

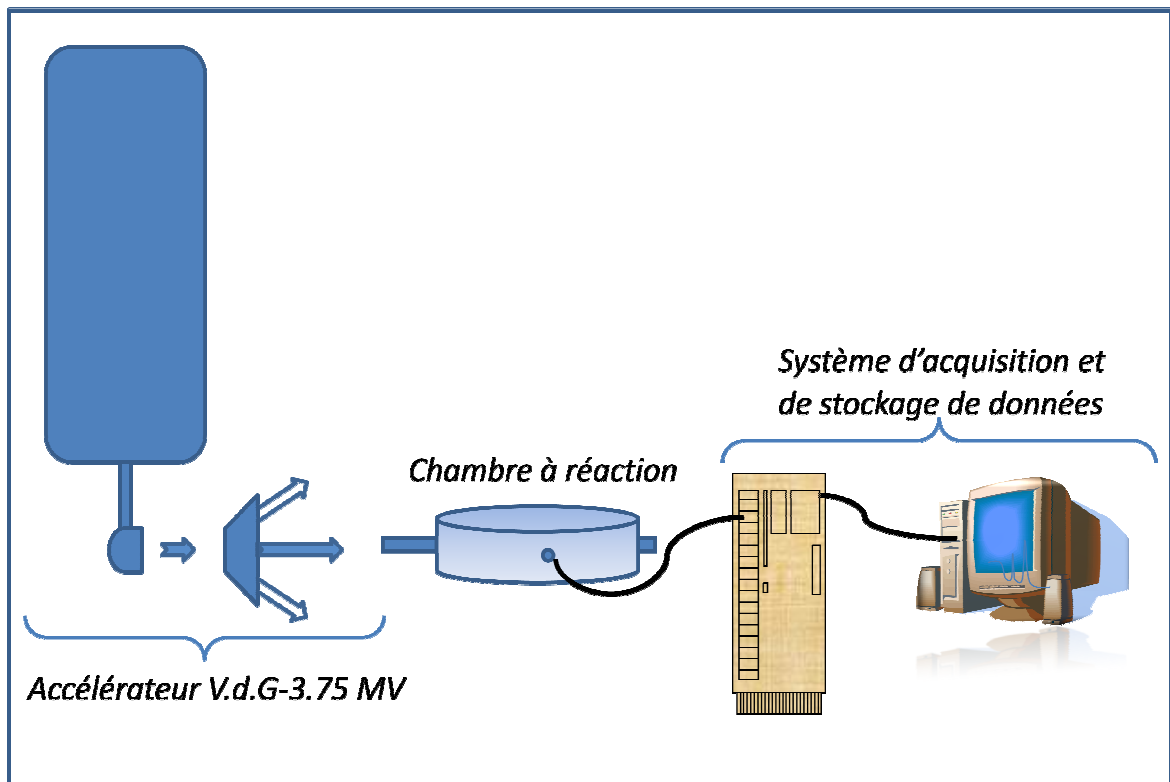


Fig. 2. 1: Dispositif expérimental montrant ses trois parties principales.

2.1. Accélérateur V.d.G du CRNA

L'accélérateur Van de Graaff (V.d.G-3.75) du CRNA est un accélérateur électrostatique de 3.75 MV de tension maximale. Il permet de délivrer des ions légers mono-énergétiques de type monoatomique (protons, particules alpha et deutérons) et moléculaire (H_2^+ , H_3^+ et $^4D_2^+$) avec des énergies dans la gamme (900 keV - 3750 keV) et des intensités allant de quelques nA à quelques μA .

Dans ce travail, nous avons utilisé aussi bien les ions monoatomiques (H^+ , He^+) que les ions moléculaires (H_2^+ , H_3^+). Ces derniers servent principalement à explorer la région des protons de basses énergies ($300 < E_p < 900$) keV. Par ailleurs, un faisceau de D^+ de 900

keV a été nécessaire pour l'utilisation de la technique d'analyse par réactions nucléaires (cf. 2.3.2). Pour les mesures de perte d'énergie, nous avons limité l'intensité des faisceaux incidents à une valeur moyenne de l'ordre de 30 nA.

Calibration de l'accélérateur

La calibration de l'accélérateur a été contrôlée en utilisant quelques résonances bien connues des réactions nucléaires $^{19}\text{F}(p, \alpha\gamma)^{16}\text{O}$ [32] et $^{27}\text{Al}(p, \gamma)^{28}\text{Si}$ [33]. La figure (Fig. 2.2.) montre un exemple de spectres gamma obtenus en bombardant une cible de CaF_2/Ta par un faisceau de protons, en balayant minutieusement la région d'énergie autour de la résonance $E_R = 1135.6$ keV [32] de la réaction $^{19}\text{F}(p, \alpha\gamma)^{16}\text{O}$. Ces spectres ont été enregistrés, à charge constante $Q = 60$ μC , en utilisant une chaîne de spectroscopie gamma standard (détecteur $\text{NaI}(\text{Tl})$ de (3×3) inch^2 et modules au standard NIM "Nuclear Instrumentation Module"). Sur la même figure, on montre aussi le spectre du bruit de fond (normalisé) obtenu en absence du faisceau de protons.

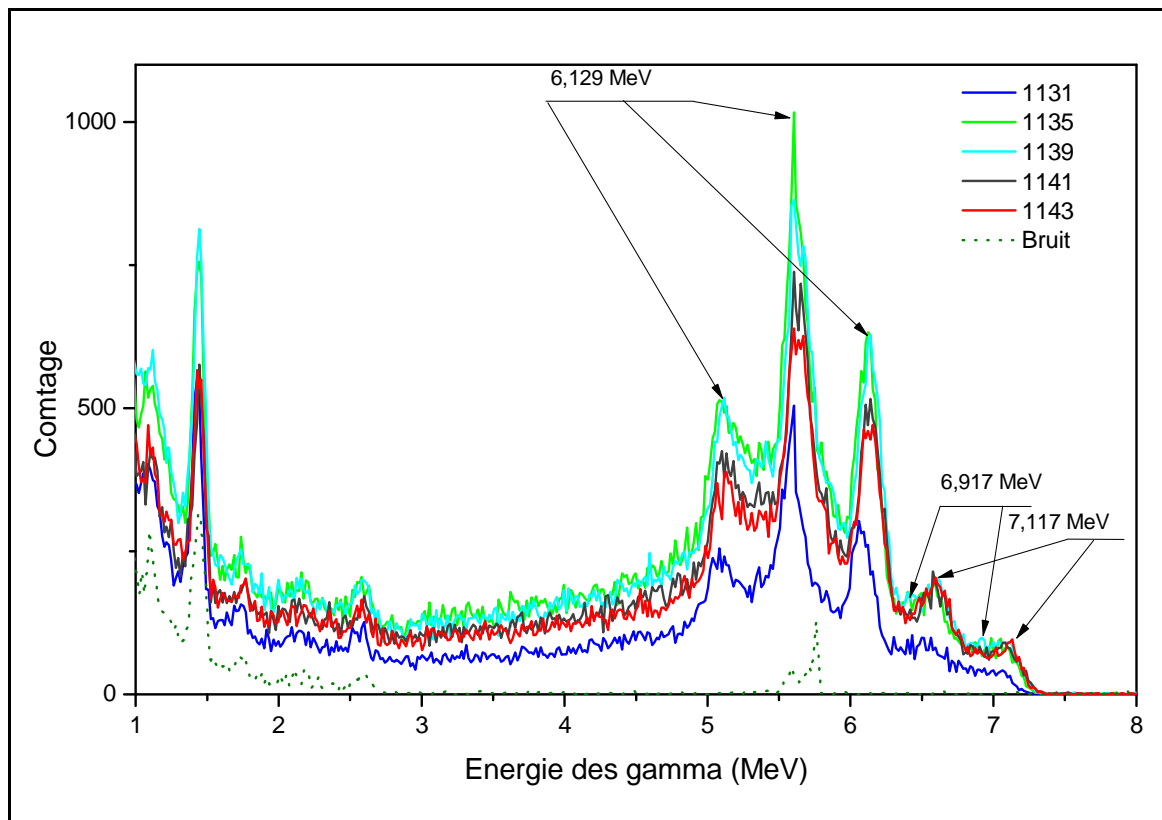


Fig.2.2: Exemples de spectres gamma de la réaction $^{19}\text{F}(p, \alpha\gamma)^{16}\text{O}$ obtenus pour différentes énergies E_p des protons et le spectre-bruit (en pointillé) enregistré sans faisceau.

La figure (Fig. 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 $E_R = 992$ keV. Par ailleurs, la résolution du faisceau à cette énergie a été déduite. Elle est de $\sim 0.1\%$ [34].

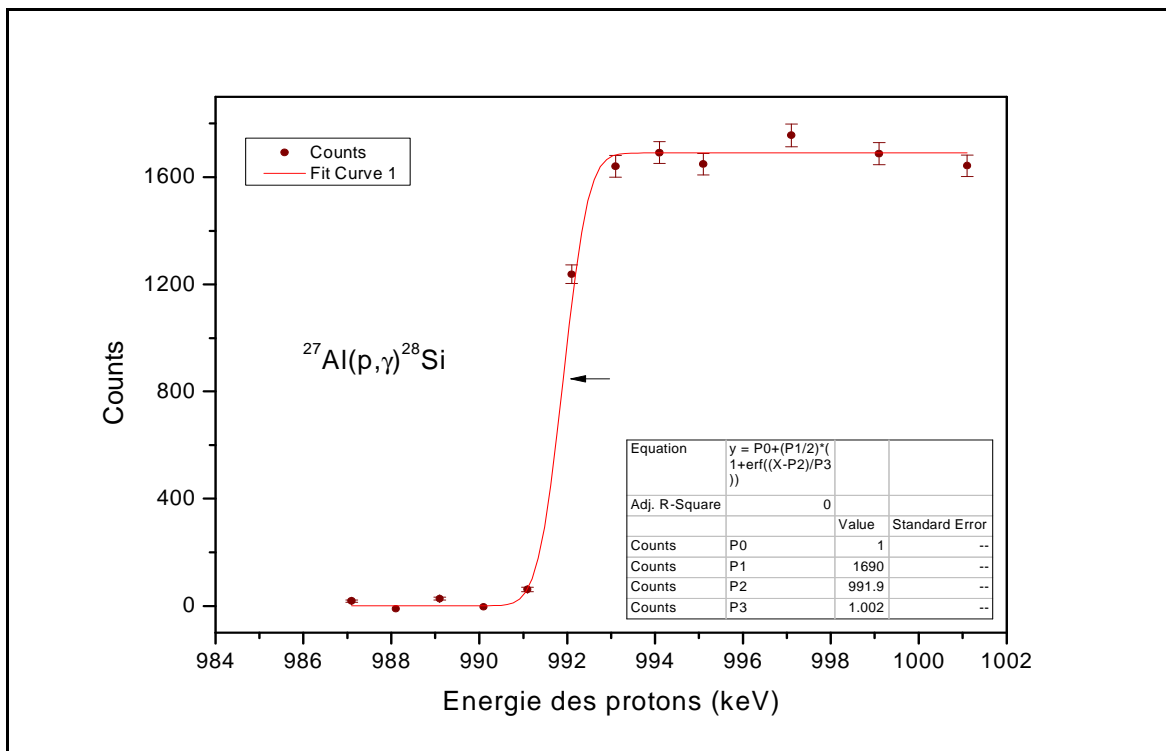


Fig. 2. 3: Fonction d'excitation et son ajustement par la fonction erf permettant la détermination de l'énergie de résonance $E_R = 992$ keV. Les barres d'erreurs sont d'origine statistique.

2.2. Chambre à réaction

La chambre à réaction est montée sur l'extension centrale de l'accélérateur. Le détail de son intérieur est schématisé par la figure (Fig. 2.4) ci-dessous. Tout au long des expériences, un vide secondaire de $\sim 10^{-6}$ Torr est maintenu à l'intérieur de la chambre grâce à un ensemble de pompage constitué d'une pompe à palettes du type Alcatel 2033 (pompage primaire) et d'une pompe à diffusion de type Alcatel Crystal 162 (pompage secondaire).

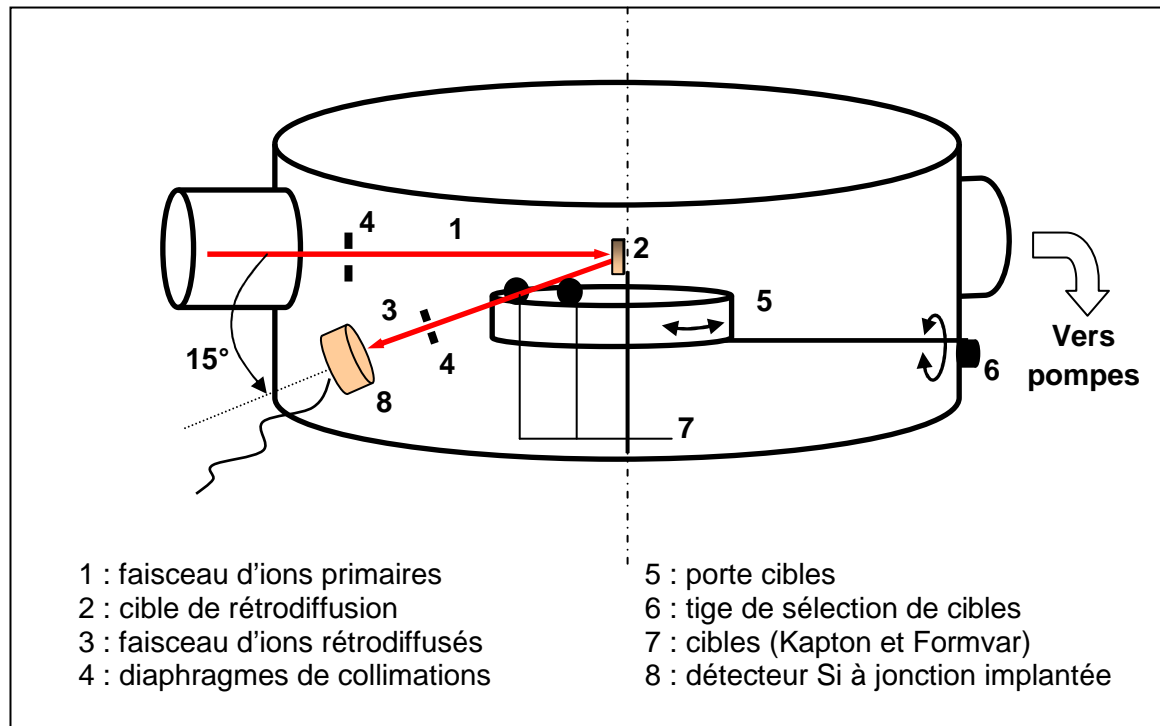


Fig. 2. 4: Représentation schématique de la chambre à réaction et principe de la méthode dite de "transmission après rétrodiffusion"

La mise sous faisceau rétrodiffusé (3) de l'une ou l'autre des deux cibles à étudier (7) s'opère de l'extérieur et sous vide au moyen de la tige de sélection (6). En effet, le mouvement de rotation de la tige (6) est transmis via un système de pignons au support de cibles (5) qui se traduit alors par un mouvement de rotation autour de l'axe vertical de la chambre à réaction. La position de mise sous faisceau de chaque cible est repérée à ± 0.25 degré par un goniomètre. Cette incertitude induit un déplacement dans le sens horizontal de l'échantillon cible d'environ 0.4 mm qui reste insignifiant devant le diamètre (3 mm) du collimateur (4) placé juste devant le détecteur (8). Il est à noter que lors de chacune des séquences expérimentales de prise de données, des spectres à vides (sans cibles) ont été enregistrés en choisissant des positions du porte-échantillons (qui peut supporter jusqu'à 06 cibles au même temps) qui permettent la détection du faisceau d'ions rétrodiffusés.

a) Méthode de "transmission après rétrodiffusion"

La méthode utilisée, dite de "transmission après rétrodiffusion" (schématisée sur la figure (Fig. 2.4)), a l'avantage de réduire considérablement l'intensité du faisceau primaire. Par conséquent, elle permet d'éviter la dégradation pouvant être induite par la mise sous faisceau du détecteur et des échantillons cibles utilisés. Cette méthode a aussi l'avantage de réduire à un niveau négligeable la contribution globale de l'effet du PHD "Pulse Height Defect" [31, 35-36] induit par la couche morte du détecteur (cf. section 2.3 ci-après).

Pour diaphragmer le faisceau d'ions, deux collimateurs circulaires ont été utilisés : un premier de 1.5 mm de diamètre placé à l'entrée de la chambre à réaction et un autre de 3 mm de diamètre positionné juste devant le détecteur. Dans cette configuration expérimentale, le courant du faisceau primaire (1) lu sur la cible de rétrodiffusion (2) a été réduit d'un facteur de $\sim 10^4$ au niveau du détecteur.

Dans son principe, cette méthode consiste à mesurer, avec et sans cible interposée, l'énergie des ions rétrodiffusés par la cible de Au/Si placée au centre de la chambre à réaction. Dans notre cas, le détecteur est positionné à $\theta = 165^\circ$ par rapport au faisceau primaire. Si E_i est l'énergie des ions primaires, celle des ions rétrodiffusés E_r est simplement donnée par [37] :

$$E_r = K_{Au} * E_i \quad (2.1)$$

où K_{Au} est le facteur cinématique de Au dont les valeurs pour les protons et les particules alpha à $\theta = 165^\circ$ sont de 0.98008 et de 0.92320, respectivement.

b) Cible de rétrodiffusion Au/Si

La cible de rétrodiffusion (Au/Si), utilisée dans nos expériences, a été élaborée par la technique d'évaporation thermique au niveau de l'UDTS (Unité de Développement de la Technologie du Silicium). L'épaisseur du dépôt de Au doit répondre aux impératifs de nos expériences qui sont principalement liés à la sensibilité du straggling aux allures des distributions de pertes d'énergies. En d'autres termes, en plus d'être bien résolus (faibles largeurs FWHM et donc faible épaisseur de Au), les spectres enregistrés à vide (sans cibles de polymère) doivent avoir des allures gaussiennes. Une couche d'environ $20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ a été déposée, sous un vide de $\sim 10^{-5}$ torr, sur quelques substrats de Si.

La qualité et l'épaisseur du dépôt de Au ont été inspectées en effectuant des analyses en spectroscopie RBS (Rutherford Backscattering Spectroscopy). Pour cela nous avons utilisé la même configuration expérimentale que pour les mesures de perte d'énergie et du straggling avec l'installation d'un piège à azote liquide pour minimiser le dépôt de carbone sur la cible Au/Si. La figure (Fig. 2.5) ci-dessous montre une série de spectres RBS obtenus avec un faisceau de particules alpha à 03 énergies différentes (1.5 MeV, 1.8 MeV et 2 MeV) en incidence normale sur la cible Au/Si. Comme on peut le constater, le dépôt est propre et aucune impureté notable n'est détectée. Ces spectres RBS ont été simulés par le programme SIMNRA [38] (traits pleins sur Fig. 2.5) où les sections efficaces considérées sont du type Rutherford et la densité de Au est prise égale à $19.31 \text{ g}/\text{cm}^3$. Il est à noter aussi que lors de ces simulations, nous avons pris en compte l'effet PHD (Pulse

Height Defect) du détecteur en plaçant devant ce dernier une couche de Si de 50 nm d'épaisseur. Les épaisseurs de la couche de Au déposée obtenues par ces simulations pour les trois énergies sont de : a) $70.9 \cdot 10^{15}$ atomes/cm², b) $64.9 \cdot 10^{15}$ atomes/cm² et c) $63.9 \cdot 10^{15}$ atomes/cm². A partir de cette série de valeurs, on peut conclure que l'épaisseur du dépôt de Au est de $(21.80 \pm 1.40) \mu\text{g}/\text{cm}^2$.

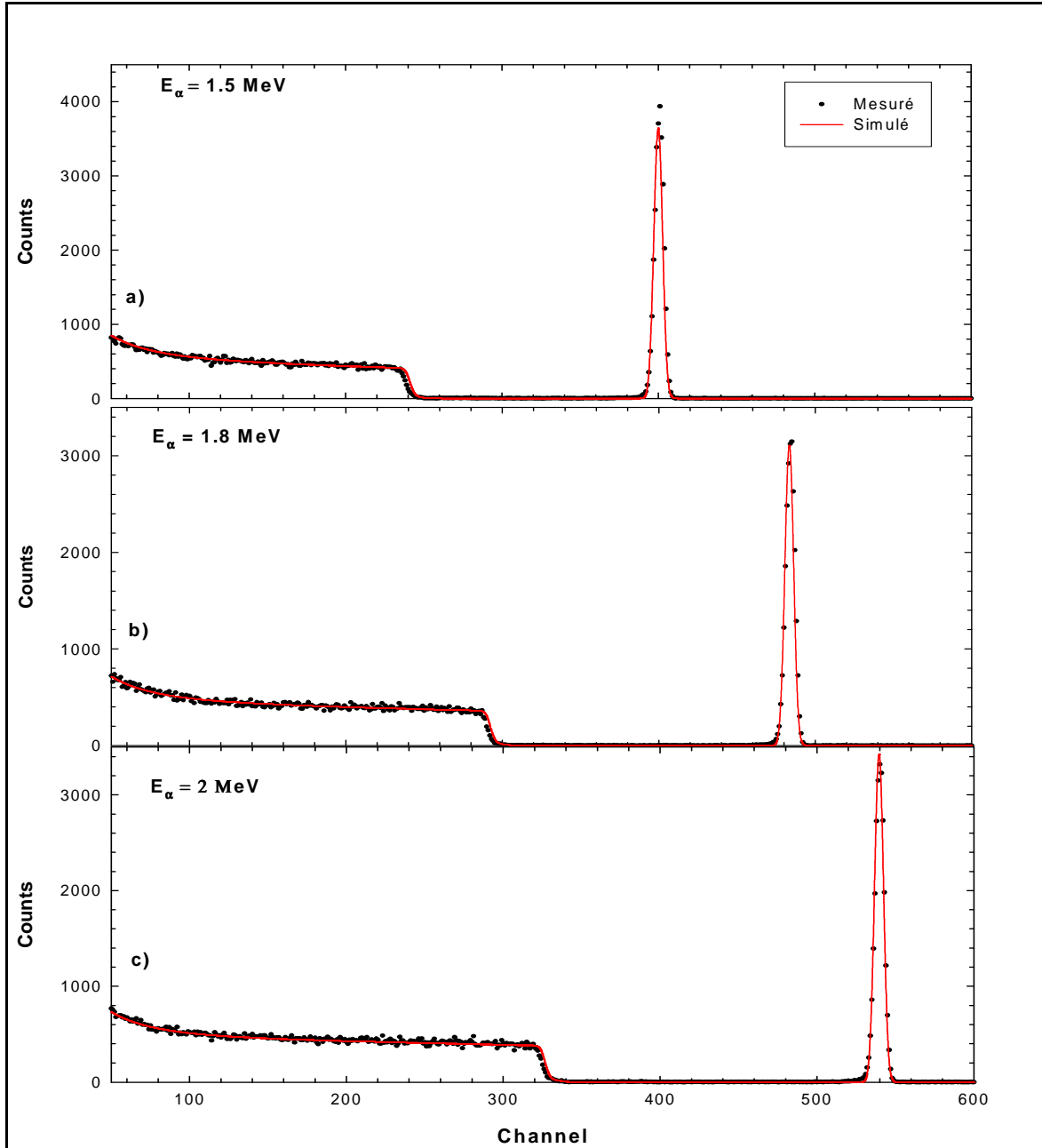


Fig. 2.5: Spectres RBS détectés à $\theta = 165^\circ$ pour un faisceau de particules alpha de a) 1.5 MeV, b) 1.8 MeV et c) 2 MeV d'énergie en incidence normale sur la cible de Au/Si utilisée. Les valeurs (exprimées en $\mu\text{g}/\text{cm}^2$) de l'épaisseur de Au obtenues sont : 23.22, 20.3 et 21.26, respectivement.

2.3. Détecteur et électronique associée

Pour effectuer les mesures de distributions de pertes d'énergies, nous avons utilisé une chaîne de détection standard composée d'un détecteur de particules chargées, d'une chaîne électronique qui permet le traitement de signal et d'un système d'acquisition et de stockage des données.

a) Détecteur

Le détecteur utilisé dans nos expériences est un détecteur à base de semi-conducteur silicium, implanté en surface par des ions de bore (ULTRA ion implanted Si detector [39, 40]). Ce type de détecteur présente, entre autres, une meilleure linéarité de la réponse, une meilleure résolution en énergie, une bonne efficacité de détection et de faibles courants de fuite (faibles bruits) qui contribuent à l'amélioration de la résolution en énergie. Les caractéristiques techniques du détecteur "Ortec /ULTRA U-011-025-500" que nous avons utilisé sont :

- épaisseur : 500 μm .
- fenêtre d'entrée : 50 nm en équivalent Si.
- surface active : 25 mm^2 .
- résolution en énergie : 11 keV à l'énergie des alpha de 5486 keV (source de ^{241}Am)
- courant de fuite : 1.25 nA à 12.50 nA [40].
- tension maximale de polarisation : 50 Volts.

Au cours des expériences, le détecteur a été placé en configuration horizontale à des angles connus (150° ou 165°) par rapport au faisceau d'ions primaires. Afin de réduire la capacité de charge du préamplificateur, nous avons jugé utile de polariser le détecteur à 50 Volts (tension maximale). Enfin, nous avons installé un collimateur de 3 mm de diamètre juste devant le détecteur afin de réduire le courant de fuite. Dans cette configuration, le courant de fuite a été réduit d'un facteur d'environ 3.6. Il est dans la gamme (0.35 - 3.5) nA.

Outre l'amélioration de la résolution en énergie (minimisation du courant de fuite), nous avons examiné l'effet PHD du détecteur qui représente la principale source de la non linéarité de la réponse en énergie de ce type de détecteur. La contribution importante à cet effet PHD provient de la perte d'énergie des ions détectés dans la couche morte du détecteur. Dans ce travail, nous avons estimé cet effet dans le cas le plus défavorable de projectiles à faible pouvoir de pénétration (particules alpha) pour lesquels les pertes d'énergies dans la fenêtre d'entrée du détecteur sont plus importantes. La figure (Fig. 2.6) ci-dessous montre les résultats de calcul des effets PHD de la couche morte de notre

détecteur, obtenus avec et sans cible de formvar, pour les énergies des particules alpha considérées. Comme on peut le constater la perte d'énergie dans la zone inactive du détecteur se situe entre ~ 10.7 keV et ~ 16.0 keV. Ceci correspond à des pertes d'énergies relatives allant de $\sim 0.42\%$ à $\sim 1.75\%$ et par conséquent cet effet peut induire des erreurs importantes sur les données déduites de mesures absolues telles que celles basées sur la technique RBS (Rutherford Backscattering Spectrometry). Enfin, il est à noter que dans le cas de notre procédure expérimentale, cet effet ne doit pas induire d'erreur significative sur les mesures de pertes d'énergies et des stragglings vue qu'il y a pratiquement une compensation de l'effet en considérant à la fois les spectres obtenus sans et avec la présence de la cible. L'erreur absolue commise est alors au plus de l'ordre de 1.9 keV qui correspond à la perte d'énergie (ΔE) dans la couche morte du détecteur avec une incertitude relative de $\sim 0.3\%$.

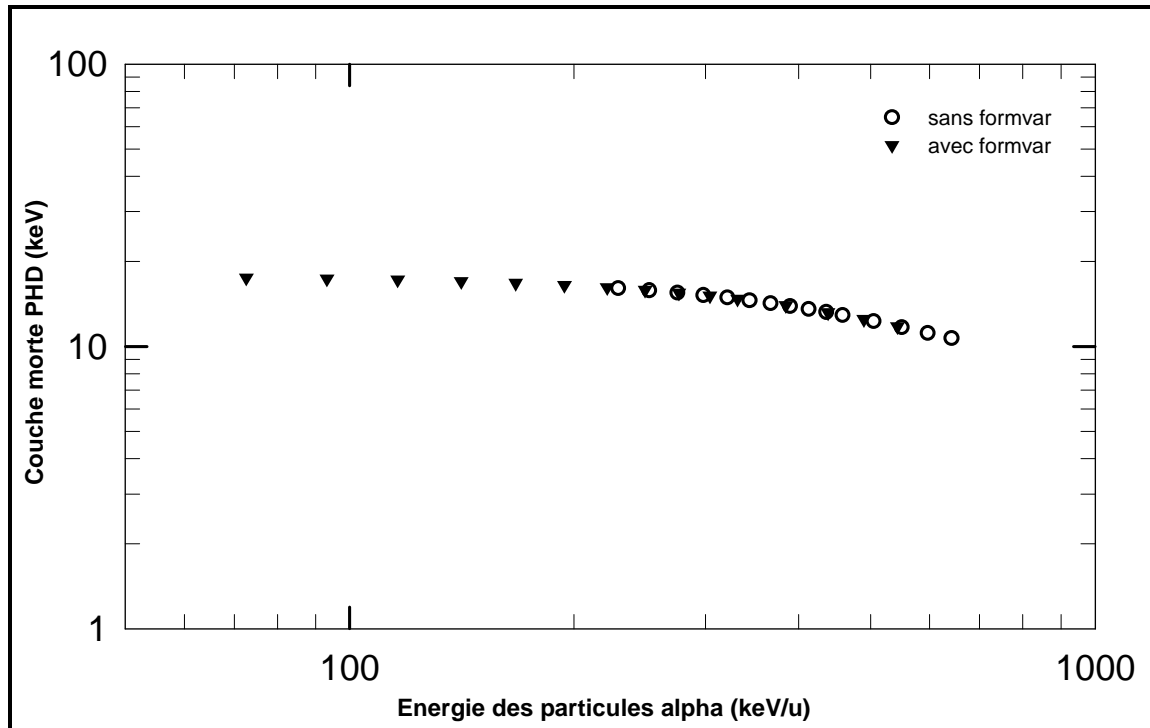


Fig. 2.6: PHD (Pulse Height Defect) due à la couche morte du détecteur utilisé (50 nm Si) pour les particules alpha de 1 à 2.8 MeV d'énergie avec et sans cible de formvar.

b) Chaîne électronique de traitement de signal

Le signal délivré par le détecteur subit un traitement de mise en forme en utilisant une chaîne électronique au standard NIM composée :

- 1) d'un préamplificateur de charge de type "Ortec /142-A" de grande sensibilité (~ 45 mV/MeV) qui délivre des impulsions proportionnelles à la charge collectée par le

détecteur. Il est placé aussi près que possible du détecteur afin de ne pas dégrader de façon significative le rapport intrinsèque signal/bruit.

- 2) d'un Amplificateur linéaire de type "Ortec /572". Dans ce module, l'impulsion de quelques mV délivrée par le préamplificateur est d'abord amplifiée pour atteindre une amplitude dans la gamme (0.1 – 10) Volts. Par la suite, le signal est mis en forme grâce à un filtre de mise en forme (active filter shaping) incorporé dans ce module. La constante de temps (shaping time) sélectionnée pour ce filtre est de 1 μ s. Ainsi, cet élément de la chaîne électronique permet d'obtenir des impulsions unipolaires symétriques (formes gaussiennes) avec de bonnes résolutions.

Enfin, le gain d'amplification doit être judicieusement choisi afin d'éviter les phénomènes de saturation induits par les impulsions amplifiées à plus de 10 Volts.

c) Système d'acquisition et de stockage de données

L'acquisition et le stockage des données se font au moyen d'une carte M B C (Multichannel Buffer Card) de type "Ortec/TRUMP PCI-8K" [41] et d'un micro-ordinateur pentium 4. La carte MBC, reliée à un micro ordinateur via son port PCI, sert à convertir les signaux électriques (impulsions) issus de l'amplificateur en digits numériques grâce à son Convertisseur Analogique Digital (ADC). Pour ce modèle de carte, le codage numérique peut se faire sur un maximum de 1024, 2048 ou 4096 canaux. Le choix de l'une des gammes est dicté par le compromis entre une bonne résolution des spectres et une bonne statistique de comptage. Dans ce travail, nous avons sélectionné un maximum de 2048 canaux. Enfin, la carte MCB est gérée par le logiciel informatique "MAESTRO-32 MCA Emulation" [42] fonctionnant sous le système d'exploitation Microsoft Windows (95, 98 ou NT) qui permet la visualisation en ligne des spectres, leur analyse et leur stockage. La figure (Fig. 2.7) montre un exemple de spectre brut visualisé sur le micro-ordinateur grâce au programme MAESTRO-32.

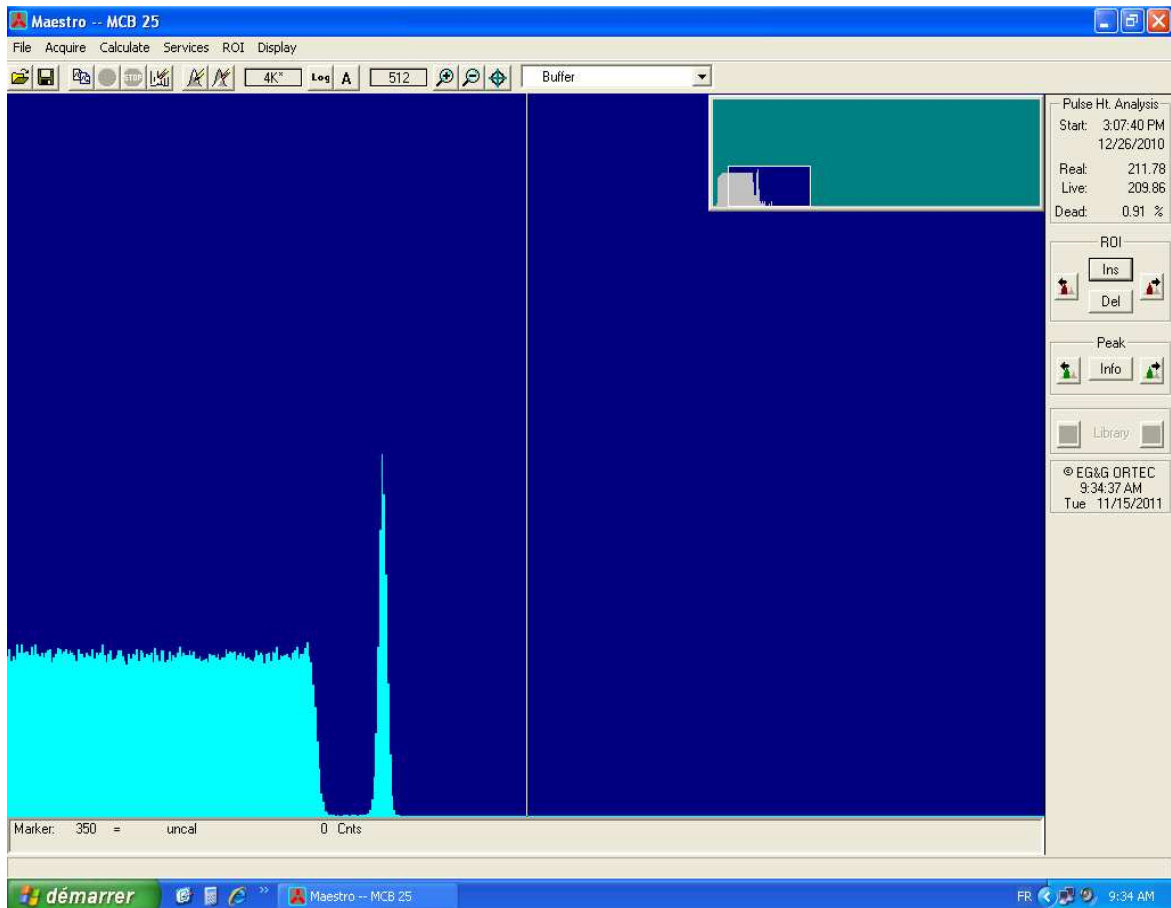


Fig. 2. 7: Image visualisée sur le micro-ordinateur grâce au programme "MAESTRO-32 MCA Emulation" en sélectionnant un maximum de 2048 canaux de la carte MCB pour un faisceau de protons de 987 keV rétrodiffusé par la cible Au-Si.

3. Cibles et leurs caractérisations

Les cibles utilisées dans notre travail sont des cibles polymériques (formvar et kapton). Elles ont été fournies par le laboratoire de chimie de l'institut In ESS/CNRS de Strasbourg (France) avec des épaisseurs de 2.5 μm et de 7.5 μm pour le formvar et le kapton, respectivement. La molécule de formvar possède 16 liaisons chimiques simples [8 ($C - H$), 4 ($C - C$) et 4 ($C - O$)] alors que celle du kapton en possède 31 liaisons simples et 13 liaisons doubles [9 ($C = C$), 4 ($C = O$), 13 ($C - C$), 6 ($C - N$), 2 ($C - O$) et 10 ($C - H$)]. Les autres caractéristiques [15, 43] de ces deux polymères sont cosignées dans le tableau (Tab. 2.1) ci-dessous. Des échantillons de ces polymères ont été découpés et montés sur des anneaux en cuivre. Ces derniers sont, par la suite, soigneusement placés sur le porte-échantillons au niveau de la chambre à réaction (cf. Fig. 2.4)

	Formule chimique	Densité (g/cm ³)	Composition (%)	massique
Formvar	(C ₅ H ₈ O ₂) _n	1.31	C : 59.98 H : 08.05 O : 31.97	
Kapton	(C ₂₂ H ₁₀ N ₂ O ₅) _n	1.43	C : 69.12 H : 02.63 O : 20.92 N : 07.33	

Tab. 2. 1: Caractéristiques des films polymères utilisés.

Une meilleure connaissance des propriétés physico-chimiques (épaisseur, composition chimique, etc.) de la cible est nécessaire afin de disposer de résultats expérimentaux du pouvoir d'arrêt et du straggling fiables. En d'autres termes, la maîtrise du paramètre cible est d'une importance cruciale dans toute expérience de mesures précises du pouvoir d'arrêt et du straggling ; vu que la majeure partie de l'incertitude de ce type de données provient de la cible, notamment la valeur de son épaisseur. Deux méthodes de détermination des épaisseurs de cibles sont utilisées : i) la méthode dite de "pesée par surface" (weight per area method) et ii) la méthode basée sur les mesures des pertes d'énergies et des stragglings des particules alpha émises par des sources radioactives fines [44-51]. Il est à noter que pour le cas de formvar, seule la première méthode ("pesée par surface") a été utilisée vue que pour ce polymère, nous avons simplement ré-analysé les données brutes obtenus par le groupe avec l'objectif d'extraire le straggling et d'améliorer la précision sur les mesures du pouvoir d'arrêt. En effet, les résultats des pouvoirs d'arrêt des protons et des particules alpha déduites de l'analyse de ces données et rapportés dans la Ref. [31] sont obtenus avec une précision de $\sim 2.5\%$ qui est pratiquement celle de l'épaisseur du film, $(277.46 \pm 6.66) \mu\text{g}/\text{cm}^2$, déterminée en utilisant une source radioactive mixte (^{241}Am , ^{239}Pu et ^{233}U).

Enfin, un échantillon du film de formvar a été sondé par la technique d'analyse par réactions nucléaires "NRA" (Nuclear Reaction Analysis) en vue de contrôler sa composition élémentaire en exploitant les réactions nucléaires induites par un faisceau de deutérons de 900 keV avec les constituants C et O du formvar.

3.1. Détermination des épaisseurs de cibles

a) Méthode dite de "pesée par surface"

Cette méthode, qui est très simple dans son principe, consiste à déterminer l'épaisseur surfacique de l'échantillon cible en faisant simplement le rapport entre les

valeurs, déterminées séparément, de sa masse son aire. La précision de cette méthode dépend de celles de la pesée et de la mesure de l'aire de l'échantillon considéré. Dans notre cas, les pesées ont été effectuées au moyen d'une microbalance électronique de type "Sartorius" dont la précision nominale est de $\pm 0.1\mu\text{g}$ alors que les aires des échantillons sont mesurées, de façon indirecte (cf. ci-après), en utilisant un microscope optique dont la précision de lecture est de l'ordre de $\pm 2\mu\text{m}$. Ainsi, cette méthode s'avère très précise ($< 1\%$) mais sa mise en œuvre est, en revanche, très délicate dans le cas de cibles fines et fragiles telles que celles utilisées dans ce travail. Une attention particulière a donc été accordée à ces mesures notamment lors de la procédure de pesées. Vu la nature transparente des films de polymères utilisés, ces derniers ne s'approprient pas à des observations au microscope optique. Nous avons alors mesuré l'aire équivalente d'une feuille de Ni (matériau opaque) d'environ $5\mu\text{m}$ d'épaisseur. Plusieurs échantillons de films polymères (formvar et kapton) ont été découpés à l'aide d'un découpeur étalon de forme circulaire (de 1.2 cm de diamètre intérieur) puis plongés dans une solution d'éthanol afin de les nettoyer des éventuelles saletés de surface. Ils ont été ensuite séchés pendant 12 heures dans une étuve de type "Meraeus Instruments" maintenue sous une pression de $\sim 10^{-1}$ Torr et à une température de $\sim 50^\circ\text{C}$ avant de procéder à leurs pesées. Pour chaque échantillon, nous avons effectué plusieurs pesées en vue, au départ, de déterminer sa masse moyenne. Cependant, nous avons remarqué que la valeur de la masse, donnée par la microbalance, augmente avec la durée de mise sous atmosphère (à l'extérieur de l'étuve) de l'échantillon. La figure (Fig. 2.8) ci-dessous montre deux séries de pesées d'un même échantillon de kapton effectuées à deux jours différents J1 et J2. La courbe en trait plein correspond à un ajustement des données J1 par un polynôme (pour guide l'œil). Comme on peut le constater à travers ces pesées, la masse de l'échantillon augmente avec le temps d'exposition à l'atmosphère pour atteindre une quasi-même valeur de saturation au bout de 15 à 20 mn. La quasi-reproductibilité des pesées J1 et J2 suggère que ce comportement n'est pas due à des erreurs de manipulation de la μ -balance mais à des micro-impuretés (humidité et autres) qui se déposent graduellement sur les surfaces des échantillons. Un excès maximal de masse de $\sim 1\%$ et de $\sim 3.5\%$ est observé pour le kapton et le formvar, respectivement. Ceci renseigne sur l'effet, parfois non négligeable, induit par ces impuretés sur la pesée des échantillons, notamment, lorsque ceux-ci sont très minces et à faible masse atomique. Pour éviter les erreurs provenant de ces excès de masse, seulement les premières pesées ont été considérées (i.e. ; celles faites aux instants $t = 0$).

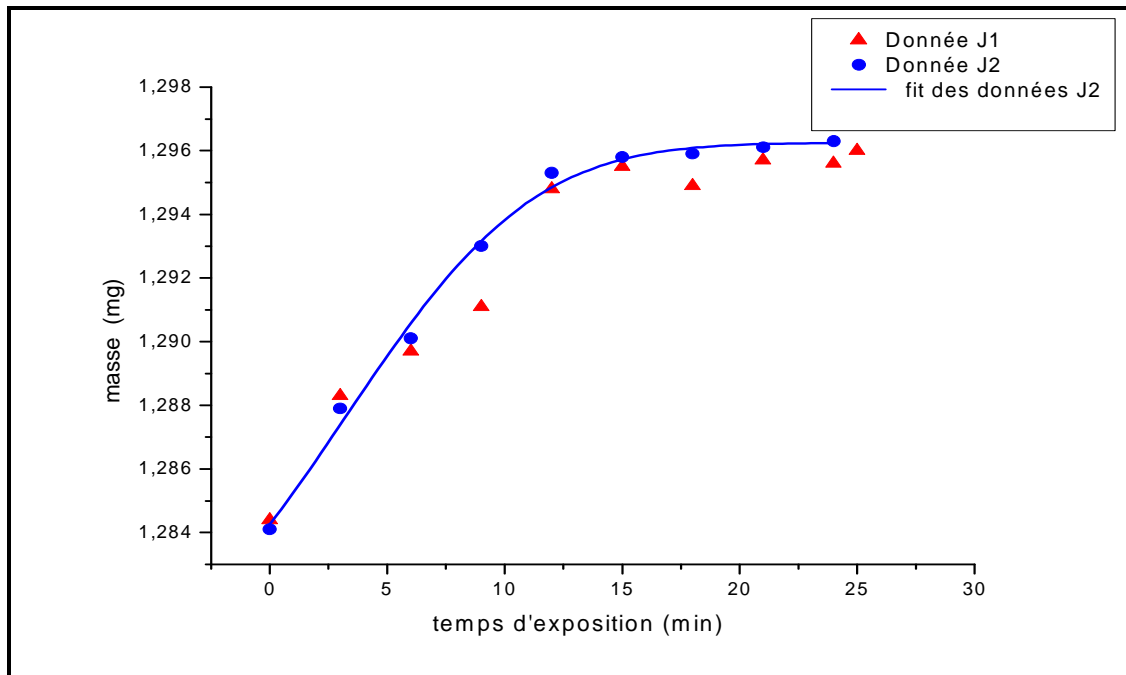


Fig. 2.8 : Masse d'un échantillon de kapton en fonction de la durée d'exposition à l'atmosphère, effectuées à deux jours différents J1 et J2. La courbe en trait plein représente l'ajustement polynomial des points J2.

Les valeurs moyennes déduites de ces premières pesées pour les échantillons de formvar et ceux de kapton sont respectivement de $341.1 \mu\text{g}$ et de $1284.4 \mu\text{g}$. Elles sont obtenues avec des précisions respectives de $\sim 0.85\%$ et de $\sim 0.26\%$.

L'échantillon de Ni découpé a été observé au microscope optique et son diamètre a alors été estimé en différents points de sa circonférence. La valeur moyenne déduite pour ce diamètre est de $12361 \mu\text{m}$. Elle est obtenue avec une déviation standard de $\sim 66 \mu\text{m}$. L'aire de l'échantillon Ni déterminée, qui est équivalente à celles des échantillons de formvar et de kapton, est de $(120.0 \pm 1.4) \text{mm}^2$. En combinant ce résultat avec ceux donnés par les pesées, on obtient les épaisseurs $x = (284 \pm 4) \mu\text{g}/\text{cm}^2$ et $x = (1070 \pm 13) \mu\text{g}/\text{cm}^2$ pour la cible de formvar et celle de kapton, respectivement.

b) Méthode basée sur l'utilisation de sources radioactives

Le principe de cette méthode consiste à combiner les mesures de pertes d'énergie des particules alpha émises par une source radioactive et les valeurs des pouvoirs d'arrêts connues. De ce fait, la précision de cette méthode est conditionnée non seulement par celle des mesures des pertes d'énergie effectuées mais aussi par la précision des valeurs des pouvoirs d'arrêts utilisées. Cette méthode est particulièrement utilisée pour le contrôle de l'uniformité des épaisseurs des cibles en exploitant aussi bien la perte d'énergie que le straggling. Dans ce travail, une source radioactive mixte composée de trois radioéléments

(^{241}Am , ^{239}Pu et ^{233}U), émettrice des particules alpha a été utilisée. Les énergies et les rapports d'embranchements des différents groupes les plus importants de particules alpha émises par ces radioéléments sont donnés dans le tableau (Tab. 2.2) suivant :

Radioélément	Energie (keV)	Rapport d'embranchement (%)
^{241}Am	5485.56	85.2
	5442.8	12.8
	5388	1.3
^{239}Pu	5156.59	73.3
	5144.3	15.1
	5105.8	11.5
^{233}U	4824.2	82.7
	4783.5	14.9
	4729.0	1.9

Tab. 2.2: Les énergies des particules alpha avec leurs rapports d'embranchements pour la source radioactive mixte (^{241}Am , ^{239}Pu et ^{233}U).

Cette source mixte permet, d'une part, d'obtenir une bonne calibration en énergie dans la gamme (4.7-5.5) MeV en exploitant tous les pics des particules alpha émises et d'autre part, de disposer de plusieurs mesures simultanées pour une meilleure fiabilité de mesure. Les figures (Fig. 2.9) et (Fig. 2.10) ci-dessous, montrent les spectres des particules alpha détectées sans et avec installation de l'échantillon de kapton, respectivement. Nous avons aussi représenté sur ces mêmes figures, les différents ajustements multi gaussiens (traits pleins) qui permettent la détermination précise des positions des pics.

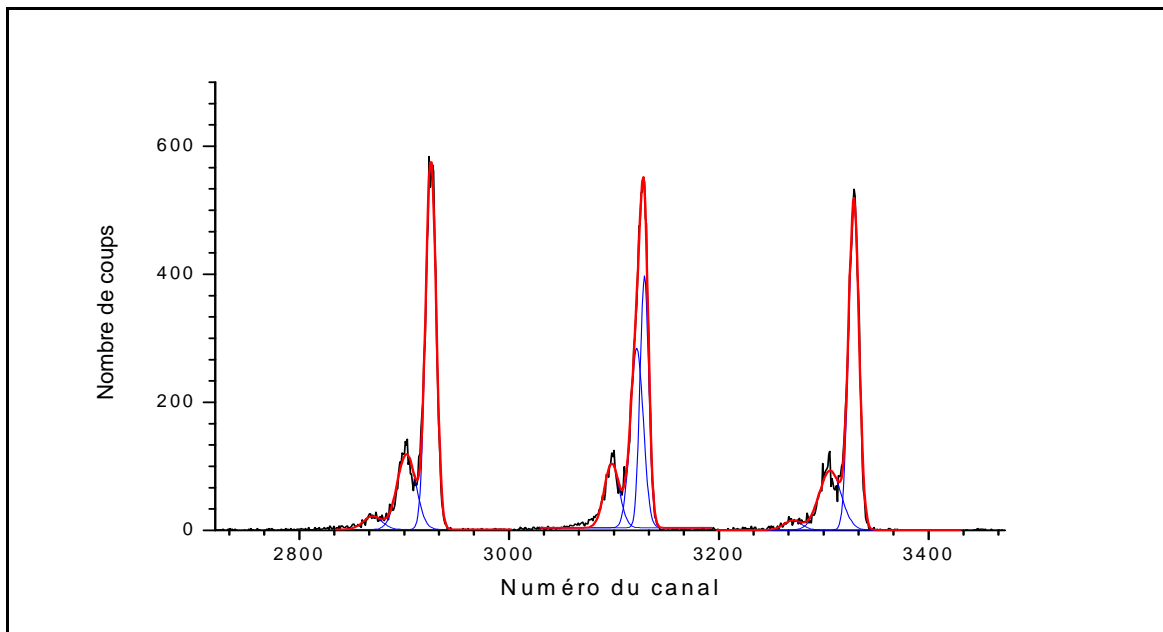


Fig. 2.9 : Spectres des particules alpha émises par la source radioactive mixte (^{241}Am , ^{239}Pu et ^{233}U) et leurs ajustements multi gaussiens (traits pleins).

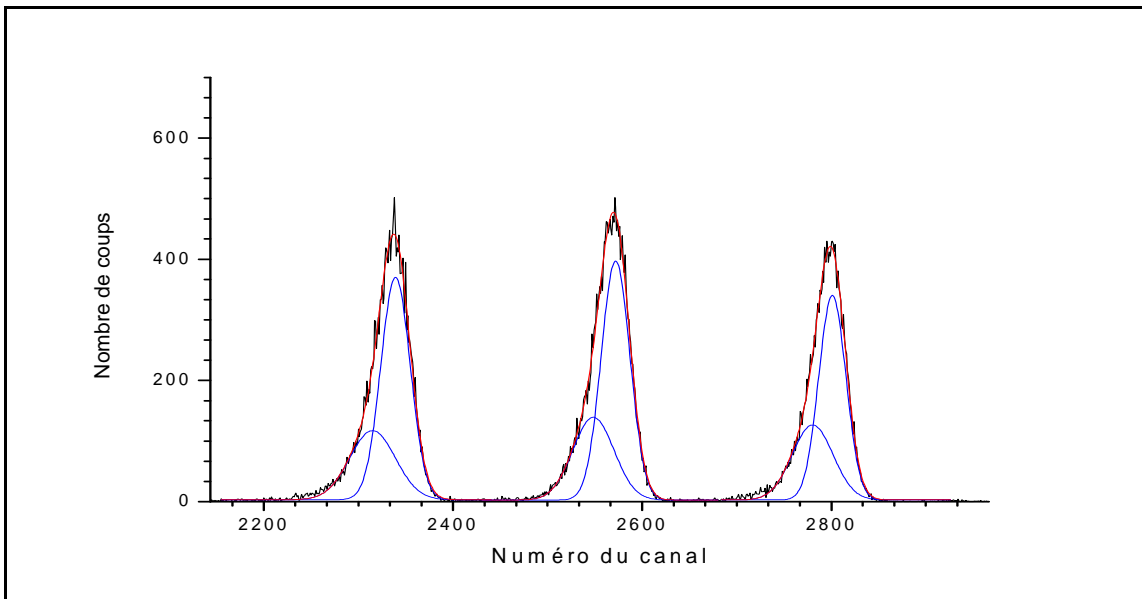


Fig. 2.10 : Idem que la figure (Fig. 2.9) avec la mise en place de la cible de kapton

La figure ci-dessous (Fig. 2.11) montre la droite de calibration obtenue par la régression linéaire des 09 points (canal, énergie) avec un coefficient de corrélation de $\sim 99.99\%$.

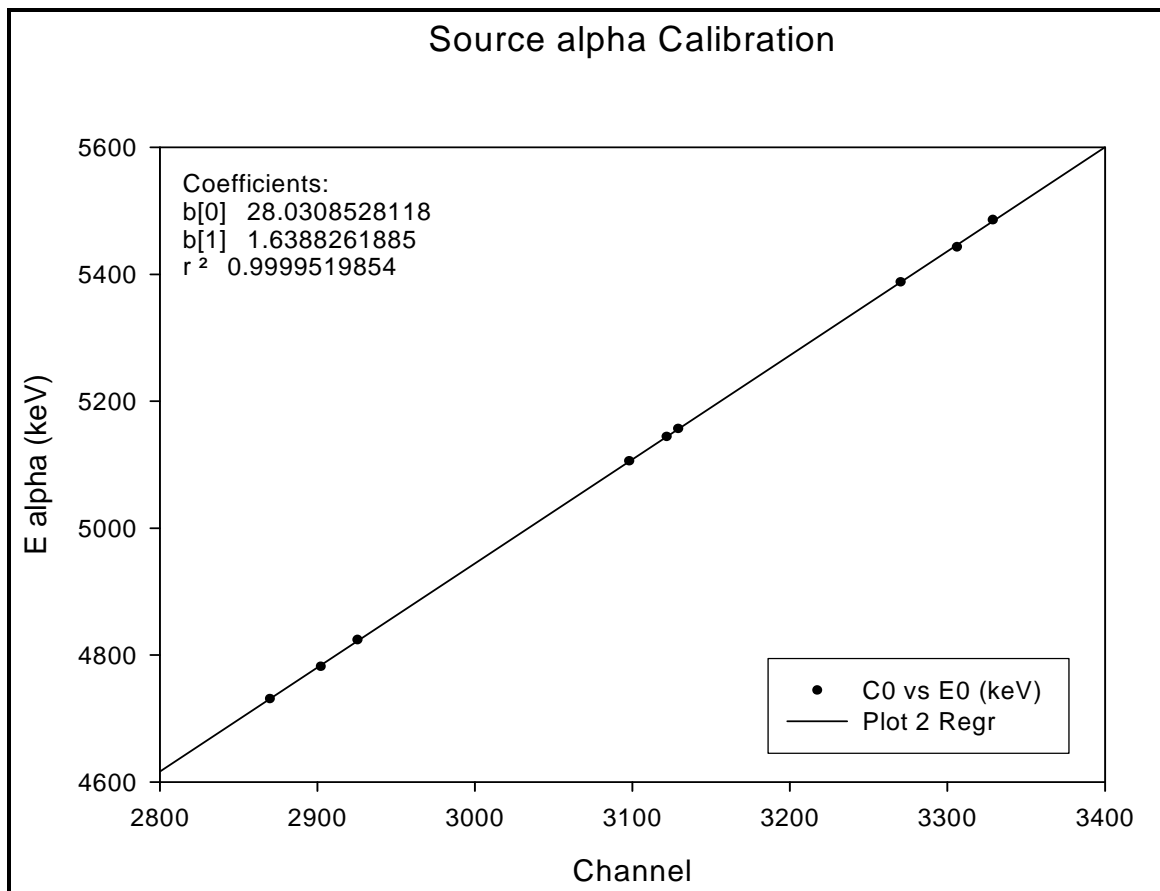


Fig. 2.11 : Droite de calibration en énergie pour les particules alpha émises par la source radioactive mixte (^{241}Am , ^{239}Pu et ^{233}U).

La figure (Fig. 2.12) montre les résultats de mesure de la perte d'énergie ΔE subie par les trois plus importants groupes de particules alpha (issues de la source mixte) lors de leurs parcours dans le film de kapton. Ces données (obtenues avec une précision de l'ordre de 1%) sont reportées en fonction des valeurs $S(\bar{E})$ du pouvoir d'arrêt prises aux énergies moyennes $\bar{E} = E_0 - \frac{\Delta E}{2}$ (où E_0 étant l'énergie incidente des particules alpha) de la fonction S compilée dans le rapport ICRU-49 [15]. Pour le kapton, la précision des données $S(E)$ de ce rapport est comprise entre 2% et 4%.

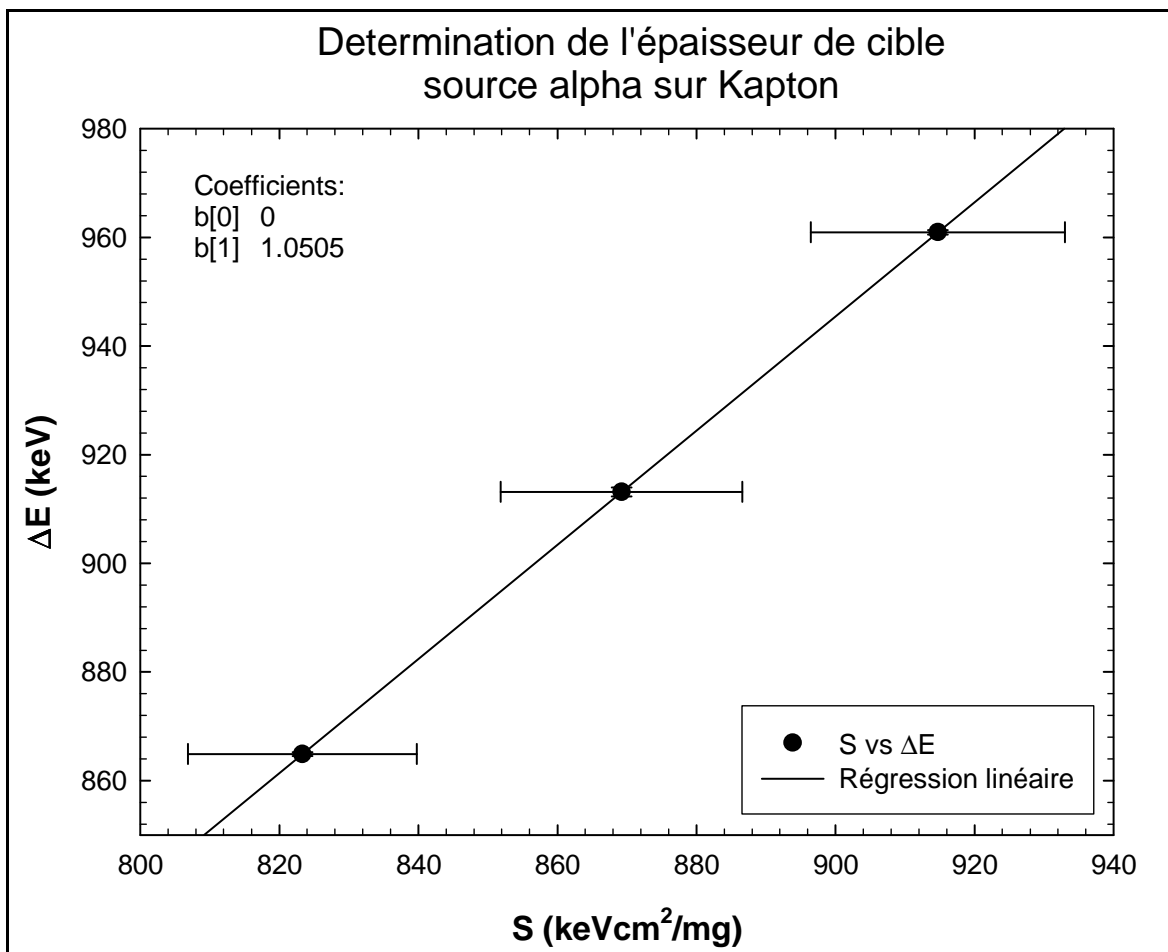


Fig. 2.12 : Perte d'énergie ΔE des particules alpha traversant la cible du kapton en fonction des valeurs $S(\bar{E})$, prises à $\bar{E} = E_0 - \frac{\Delta E}{2}$, du pouvoir d'arrêt compilé dans ICRU-49.

La perte d'énergie relative de ces trois points-mesures se situe entre 15% et 20%. Par conséquent, on peut utiliser l'expression $S(\bar{E}) = \frac{\Delta E}{\bar{x}}$ pour déduire, avec une bonne précision, la valeur moyenne de l'épaisseur de la cible. En effet, pour des pertes d'énergie inférieur à 20%, la fonction $S(E)$ peut être approximée à 0.05% [52] par la relation précédente. L'épaisseur moyenne \bar{x} du film de kapton investigué est simplement donnée

par la pente de la régression linéaire des trois points de la figure (Fig. 2.12). Elle est de 1.05 mg/cm^2 . L'incertitude relative de cette valeur est pratiquement égale à celle des valeurs $S(E)$ du pouvoir d'arrêt utilisées qui peut être, dans notre cas, prise égale à 2%. En effet, les énergies des particules alpha considérées se situent bien dans la région de Bethe où le pouvoir d'arrêt est bien connu.

L'uniformité de la surface de l'échantillon du kapton a été inspectée en exploitant plusieurs points de scans. Ces irrégularités de surfaces induisent des erreurs de l'ordre de $\sim 0.7\%$ et elles sont donc négligeables. Enfin, il est à noter que les valeurs moyennes des épaisseurs déterminées par les deux méthodes sont en bon accord. Elle diffèrent pratiquement de $\sim 1.9\%$. La valeur $x = (1070 \pm 13) \text{ } \mu\text{g/cm}^2$, déterminée par la première méthode, sera adoptée dans le présent travail.

3.2 Analyse du film de formvar par la technique "NRA"

La composition du film de formvar a été qualitativement étudiée en utilisant la technique NRA. Pour cela, nous avons utilisé un faisceau de deutérons de 900 keV et d'intensité $I = 10 \text{ nA}$ en incidence normale sur notre échantillon. Un film de mylar de $\sim 12 \text{ } \mu\text{m}$ d'épaisseur a été placé devant le détecteur afin d'arrêter les deutons rétrodiffusés et réduire ainsi le bruit de fond et le temps mort du détecteur. Ce dernier a été positionné à un angle $\theta = 150^\circ$ par rapport à la direction incidente. La figure (Fig. 2. 13) montre le spectre NRA enregistré ainsi que la meilleure simulation (spectre simulé) donnée par le programme SIMNRA [38] où les sections efficaces des réactions $^{12}\text{C}(d,p_0)^{13}\text{C}$, $^{16}\text{O}(d,p_1)^{17}\text{O}^*$ et $^{16}\text{O}(d,p_0)^{17}\text{O}$ utilisées sont respectivement celles mesurées par Jiang et al. [53, 54] et Gurbich et Molodtsov [55] et les valeurs du pouvoirs d'arrêt sont celles de la réf. [56]. Comme on peut le constater le spectre simulé reproduit parfaitement bien le spectre mesuré dans la région d'énergie $\sim (980 - 2900) \text{ keV}$ qui correspond à la région $\sim (500 - 1500) \text{ canal}$ sur la figure (Fig. 2. 13). La partie du spectre non simulée (région des énergies $E \lesssim 980 \text{ keV}$) est due aux constituants H du mylar détectés (spectre de recul de l'hydrogène). En effet, des particules alpha d'énergie $E_\alpha = 2601 \text{ keV}$ issues de la réaction $^{16}\text{O}(d, \alpha_0)^{14}\text{N}$ induisent des collisions élastiques avec l'hydrogène du mylar et par conséquent, cette partie du spectre représente les atomes H de reculs détectés. En d'autres termes, c'est le spectre du type "ERD" (Elastic Recoil Detection spectrum). Le meilleur spectre simulé est obtenu pour une épaisseur d'environ $22400 \cdot 10^{15} \text{ atomes/cm}^2$ avec une stœchiométrie atomique de l'ordre de 44% C, 9% O et 47% H. Cependant, il y a lieu de souligner que la mise sous faisceau de deutons du film de formvar induit un phénomène de

désorption qui se traduit entre autres par la production d'espèces volatiles (H, O, CO₂ ...) généralement observé dans les polymères ([57] et quelques Références citées dedans).

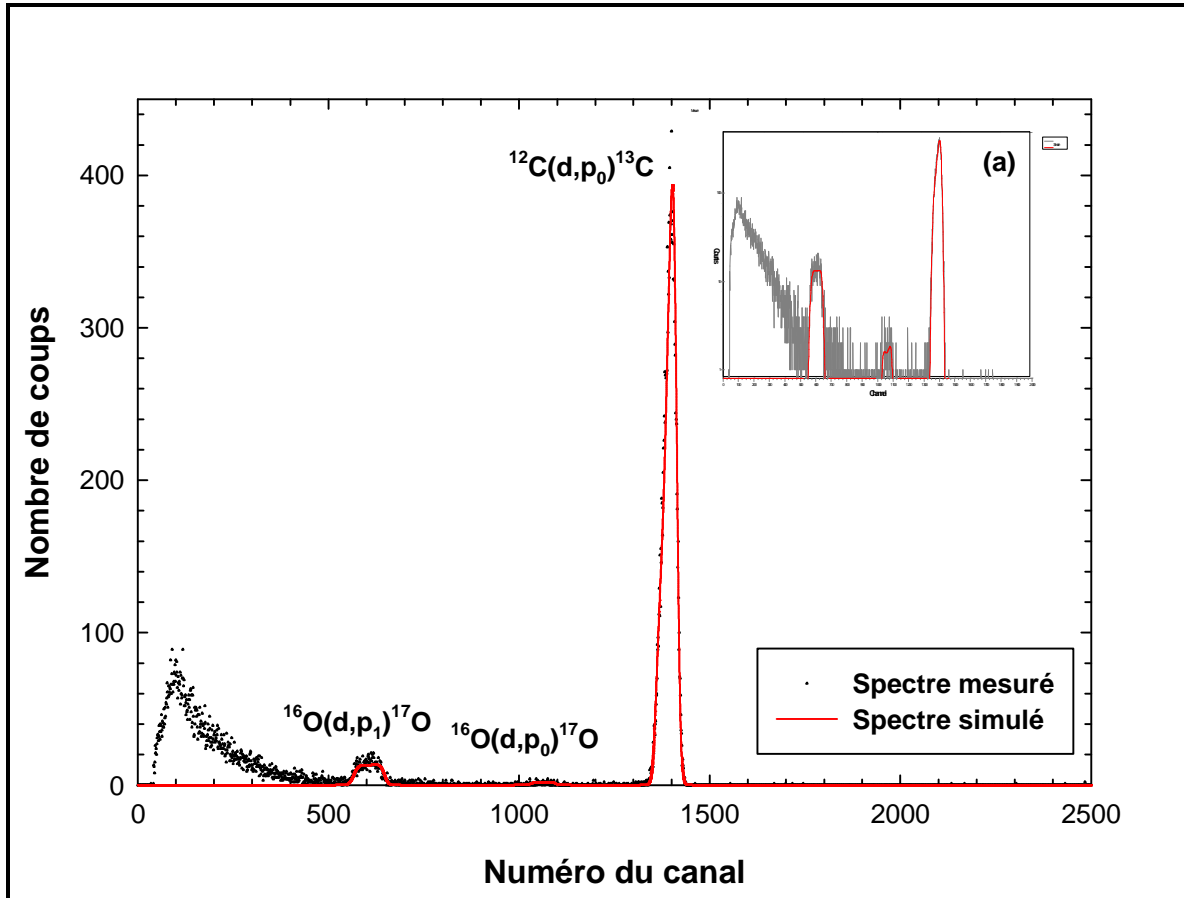


Fig. 2.13: Spectres NRA mesuré (points) et simulé (trait plein) par le programme "SIMNRA" pour un faisceau de deutérons de 900 keV en incidence normale sur le film de formvar. (a) les mêmes spectres en échelle logarithmique.

4. Prise de données : distributions de pertes d'énergie

La détermination expérimentale du pouvoir d'arrêt et du straggling (cf. chapitre 3) des protons et des particules alpha dans les cibles polymériques considérées nécessite d'abord la mesure des distributions de pertes d'énergie de ces particules dans ces mêmes cibles. La figure (Fig. 2. 14) montre un exemple de spectres mesurés (a) sans et (b) avec le placement de la cible de kapton de $1070 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ d'épaisseur pour un faisceau de protons de 1 MeV. Ces spectres sont obtenus avec une statistique de comptage meilleure que 0.7%. De ce type de spectres, on peut obtenir la perte d'énergie moyenne et le straggling à condition de pouvoir extraire les valeurs moyennes C_m et les variances Ω^2 de ces distributions. Ces paramètres représentent les quantités cruciales utilisées dans les approches théoriques. La détermination expérimentale de ces deux paramètres (C_m, Ω^2) reste très délicate et voire même impossible et que seules les valeurs les plus probables C_p

et les dispersions en énergie δE_{exp} (largeurs à mi-hauteur FWHM) sont accessibles. Cependant, pour des spectres à distributions gaussiennes (ou quasi-gaussiennes), les deux valeurs C_m et C_p sont très proches ($C_m \cong C_p$) et que les valeurs δE_{exp} sont reliées aux variances Ω^2 via la relation

$\delta E_{exp} = 2(2\ln 2)^{1/2} \Omega$ [47, 58-63]. De ce fait, seuls les spectres gaussiens seront exploités et par conséquent ce caractère gaussien sera inspecté pour chaque spectre mesuré (cf. chapitre 3).

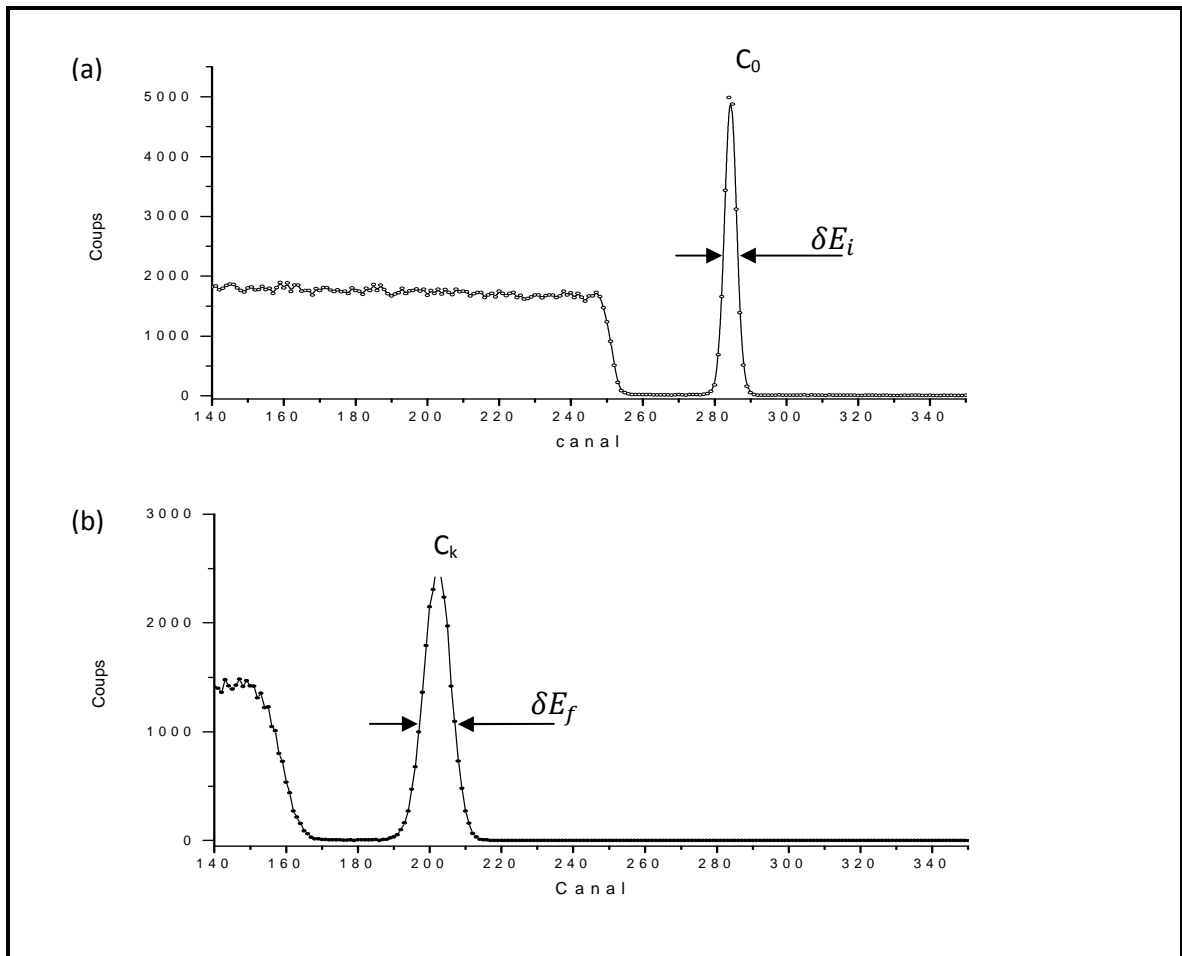


Fig. 2.14 : Spectres typiques de perte d'énergie pour des protons de 1 MeV traversant le film de kapton de $1070 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ d'épaisseur. (a) sans cible et (b) avec la cible.

Chapitre 3

Résultats, analyses et discussions

1. Introduction

Dans ce chapitre, nous présenterons les résultats expérimentaux du pouvoir d'arrêt et du stragglng pour le deux polymères utilisés (formvar et kapton). Au préalable, nous exposerons d'abord les différentes étapes nécessaires à la détermination la plus précise de la perte d'énergie ΔE et de sa dispersion δE_{exp} . Les résultats du pouvoir d'arrêt et du stragglng obtenus seront comparés aux données expérimentales de la littérature et aux différents modèles théoriques puis discutés. La relation de Bragg-Kleeman, généralement utilisée comme une simple alternative pour décrire le pouvoir d'arrêt de la matière composée, sera examinée et discutée pour les deux polymères considérés. Enfin, une tentative de détermination du stragglng d'échange de charge des particules alpha dans le formvar avec la correction des corrélations électroniques sera présentée en fin du chapitre.

2. Inspection du caractère gaussien de distributions mesurées

Comme nous l'avons signalé dans le chapitre précédent, l'inspection du caractère gaussien des spectres mesurés est primordiale pour la détermination fiable de la perte d'énergie moyenne ΔE et du straggling Ω^2 . Dans un premier temps, nous avons déterminé, pour l'ensemble des spectres, les pertes d'énergie en exploitant les valeurs les plus probables C_p des distributions mesurées. Pour des valeurs de pertes d'énergie relatives comprises entre 5% et 20%, la forme des distributions est gaussienne [65, 66] et par conséquent les valeurs les plus probables C_p se confondent avec les valeurs moyennes C_m . Pour de faibles pertes d'énergie (cibles très minces où $\frac{\Delta E}{E} < 5\%$) où les collisions uniques et les collisions coulombiennes quasi-libres l'emportent sur les fluctuations statistiques de la perte d'énergie [67, 68], la forme gaussienne sera inspectée en calculant le rapport (Ω_t^2/T_m^2) [69, 70] où Ω_t^2 et T_m désignent respectivement le straggling total et l'énergie maximale transférée en une seule collision. La plus faible valeur ($\frac{\Omega_t^2}{T_m^2} = 1.32$) de ce rapport, obtenue dans le cas des protons sur la cible de formvar, est supérieure à l'unité. L'allure de ces spectres est alors quasi-gaussienne et les deux valeurs C_m et C_p se confondent pratiquement. Pour les distributions à grandes pertes d'énergie ($\frac{\Delta E}{E} > 20\%$), les moments d'ordre supérieurs (skewness et curtosis) devraient, en principe, être évalués pour estimer le degré de dissymétrie de ces distributions. Cependant, ces moments sont d'une importance minime [71] du fait que les formes gaussiennes prévalent pour les épaisseurs de cibles où le critère de Bohr, $\Omega \gg T_{\max}$ (ie. la déviation standard du profil de la distribution de la perte d'énergie, est beaucoup plus grande que le maximum d'énergie transféré en une seule collision) est largement satisfait.

La figure (Fig. 3.1) ci-dessous montre les deux cas extrêmes de spectres obtenus sans {(a), (c)} et en {(b), (d)} présence de la cible de kapton de $1070 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ d'épaisseur pour des énergies des protons rétrodiffusés de $E_{\min} = 637.05 \text{ keV}$ et $E_{\max} = 3332.27 \text{ keV}$. Ces spectres correspondent aux deux valeurs extrêmes (71.37% et 3.16%) de pertes d'énergie relatives $\left(\frac{\Delta E}{E}\right)$ enregistrées dans ce travail. Nous avons représenté sur la même figure (Fig. 3.1) les ajustements gaussiens (traits pleins) de ces spectres. Comme on peut facilement le constater les spectres mesurés sont parfaitement reproduits par des ajustements gaussiens (avec un coefficient de détermination ajusté R^2 meilleur que 0.99726).

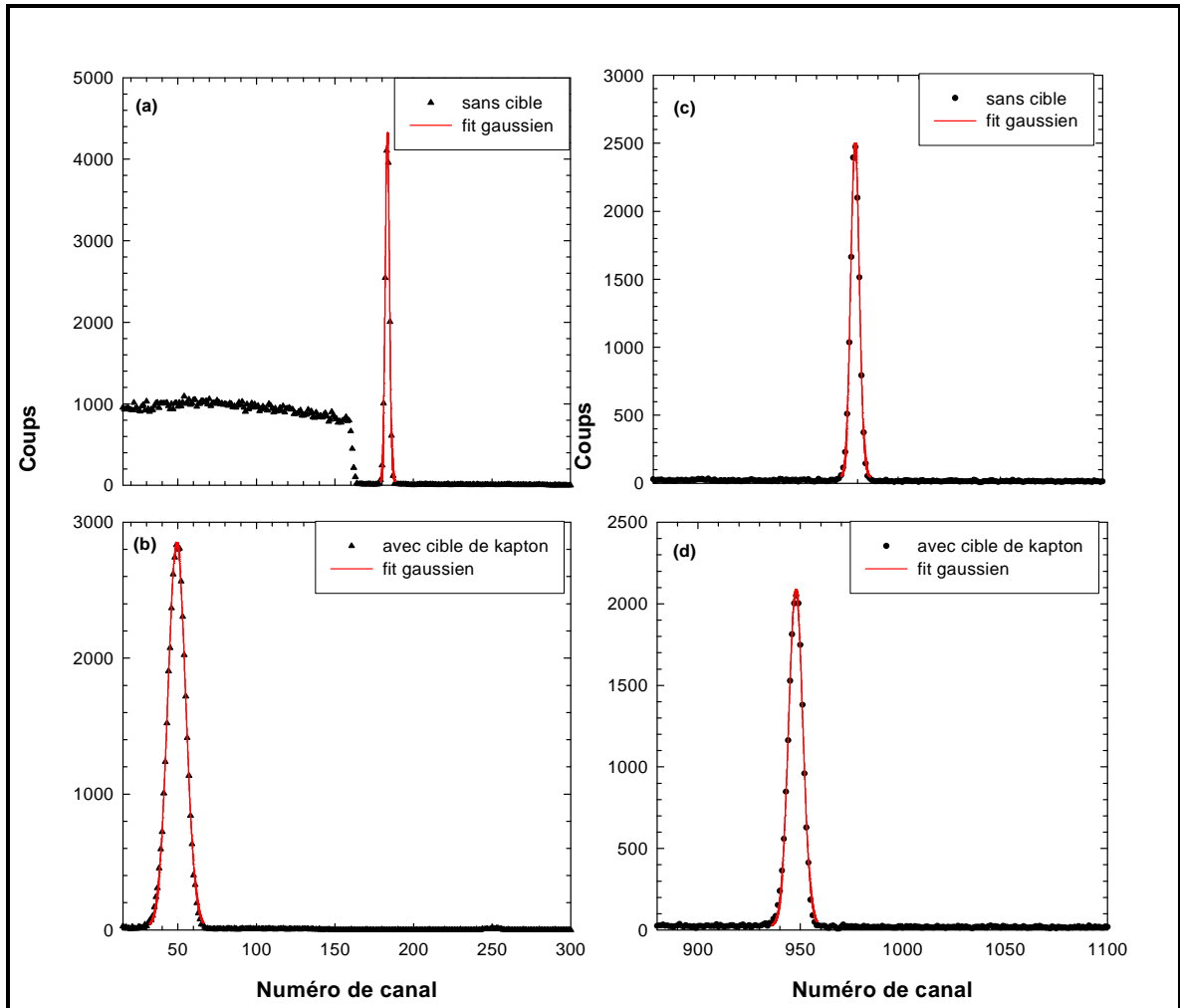


Fig. 3.1 Spectres de pertes d'énergie et leurs ajustements gaussiens pour des protons rétrodiffusés d'énergies $E_{min} = 637.05$ keV et $E_{max} = 3332.27$ keV (valeurs extrêmes de perte d'énergie obtenues dans ce travail). Les spectres {(a), (c)} et {(b), (d)} sont obtenus sans et avec interposition de film de kapton.

3. Détermination de la perte d'énergie ΔE et de la dispersion en énergie δE_{exp}

Après l'étape de contrôle de l'allure gaussienne des spectres enregistrés, nous avons procédé à leurs ajustements (fits) par des fonctions gaussiennes afin d'extraire les valeurs moyennes C_m et les largeurs à mi-hauteurs (FWHM) de ces distributions. En effet, ces données seront utilisées pour la détermination de la perte d'énergie et du straggling (cf. ci-dessous). Les ajustements gaussiens ont été effectués sur des intervalles, d'environ 7 fois la déviation standard σ , centrés autour des valeurs moyennes C_m des distributions (ie. $C_m \pm 3.5\sigma$) [45, 51]. Enfin, notons que dans la procédure d'ajustement nous avons introduit une fonction constante ($y = Cst$) pour tenir compte du bruit de fond des spectres mesurés.

3.1. Perte d'énergie ΔE

La perte d'énergie des protons et des particules alpha dans les cibles étudiées est donnée par la différence entre les énergies moyennes E_0 et E_c qui correspondent respectivement aux énergies du faisceau rétrodiffusé sans et avec interposition de la cible. Elle est donnée par:

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

C_0 et C_c sont les valeurs moyennes des positions des spectres (exprimées en numéro du canal) données par des ajustements gaussiens sans et avec le placement de la cible, respectivement. a désigne la pente de la droite de calibration $E_0 = f(C_0)$ obtenue par la régression linéaire.

3.2. Dispersion en énergie δE_{exp}

La dispersion en énergie δE_{exp} subie par un faisceau d'ions d'énergie moyenne E_0 lors de sa traversée de la cible est déduite de la différence quadratique des largeurs à mi-hauteur FWHM des ajustements gaussiens des spectres de pertes d'énergie enregistrés avec et sans la cible. Elle est donnée par la relation suivante [58-64]. :

$$\delta E_{exp} = \sqrt{\delta E_c^2 - \delta E_0^2} \quad (3.2)$$

où δE_c et δE_0 sont donc les largeurs FWHM des distributions obtenues avec et sans la cible. La figure (Fig. 3.2) montre la variation, sur toute la gamme des énergies des protons exploitée dans ce travail, des largeurs $(FWHM)_0$ et $(FWHM)_c$ dans le cas de la cible de kapton. Les incertitudes de ces largeurs sont données par les fits gaussiens et elles sont au plus de 2.1%.

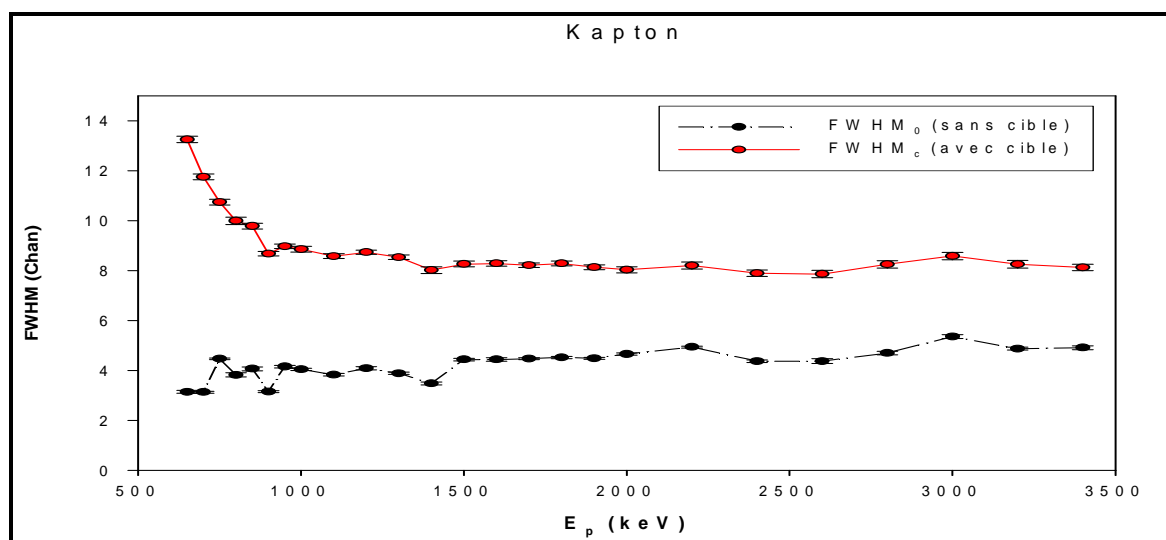


Fig. 3.2 Largeurs à mi-hauteur $(FWHM)_0$ et $(FWHM)_c$ en fonction de l'énergie des protons pour le cas de la cible de kapton de $1070 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ d'épaisseur.

A première vue, on peut facilement constater que les allures de ces deux largeurs sont approximativement similaires pour des énergies $E_p \gtrsim 2000$ keV. Par ailleurs, elles sont pratiquement indépendantes de l'énergie dans cette même région d'énergie. Ceci est en faveur de la validité du straggling de Bohr pour les énergies élevées du projectile. Par contre, dans la région des énergies basses, on constate d'une part, une différence appréciable de comportement des deux largeurs (sans et avec la cible de kapton) et d'autre part, un accroissement considérable des valeurs de la largeur $(FWHM)_c$ et particulièrement aux énergies où s'opèrent des pertes d'énergie relatives très élevées ($\Delta E/E > 40\%$).

4. Pouvoir d'arrêt et straggling

4.1. Pouvoir d'arrêt

Pour des pertes d'énergie relatives inférieures à 20%, Andersen et al. [52] ont montré que le pouvoir d'arrêt $S(\bar{E})$, défini à l'énergie moyenne $\bar{E} = E_0 - \frac{\Delta E}{2}$, peut être donné avec une précision de 0.05% par la relation suivante :

$$S(\bar{E}) = \frac{\Delta E}{x} = \frac{a(C_0 - C_C)}{x} \quad (3.3)$$

où x est la valeur moyenne de l'épaisseur de la cible traversée par le projectile. Dans le cas où cette condition n'est pas satisfaite (ie. $\frac{\Delta E}{E} > 20\%$), la relation (3.3) doit être reconsidérée en y incorporant deux types de corrections: une correction due aux diffusions multiples subies par les projectiles à l'intérieur du matériau cible et une autre pour corriger l'approximation de la variation linéaire de la fonction $S(E)$ sur l'intervalle d'énergie ΔE .

4.1.1. Corrections sur le pouvoir d'arrêt

Pour des pertes d'énergie relatives supérieures à 20%, les valeurs du pouvoir d'arrêt ont été corrigées en ajoutant un terme de correction quadratique δS , obtenu en considérant le développement de Taylor, au second ordre en $\left(\frac{\Delta E}{E}\right)$, de la fonction $S(\bar{E})$ [52]. La valeur maximale $\left(\frac{\delta S}{S}\right)$ obtenue pour les deux cibles considérées (kapton et formvar) est $\sim 0.39\%$.

Une autre correction approximative apportée à l'expression (3.3) est due aux diffusions multiples du projectile dans la cible étudiée. En traversant cette dernière, les particules rétrodiffusées subissent des déviations angulaires. La distance moyenne parcourue par les particules rétrodiffusées est alors supérieure à l'épaisseur x de la cible. En se basant sur l'approximation de diffusion à petits angle (condition bien satisfaite dans notre procédure expérimentale), l'accroissement moyen $\langle \delta x \rangle$ a été calculé pour les protons et les particules

alpha traversant les films de polymère étudiés (formvar et kapton) en utilisant l'expression suivante [72] :

$$\langle \delta x \rangle \simeq \int_0^x \langle \theta^2 \rangle dt \quad (3.4)$$

où $\langle \theta^2 \rangle$ étant la valeur moyenne du carré de l'angle de diffusion [73].

Les figures (Fig. 3.3) et (Fig. 3.4) ci-dessous, montrent les valeurs relatives des accroissements moyens ($\langle \delta x \rangle / x$) du parcours des protons respectivement dans le kapton et le formvar, en fonction des énergies des protons explorées. La valeur maximale de ce rapport est obtenue pour le kapton à $E_p = 650$ keV et pour le formvar à $E_p = 300$ keV. Elles sont respectivement de $\sim 0.080\%$ et de $\sim 0.085\%$.

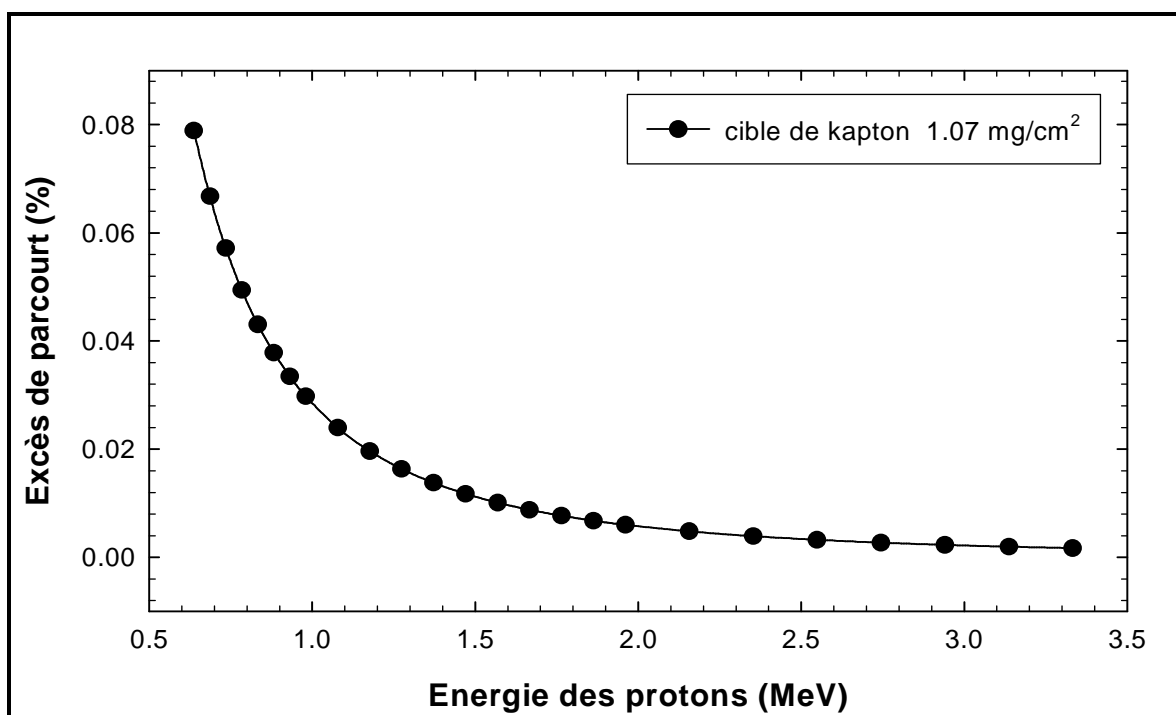


Fig. 3.3 Excès du parcours des protons en fonction de leurs énergies dans la cible du kapton de $1070 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ d'épaisseur.

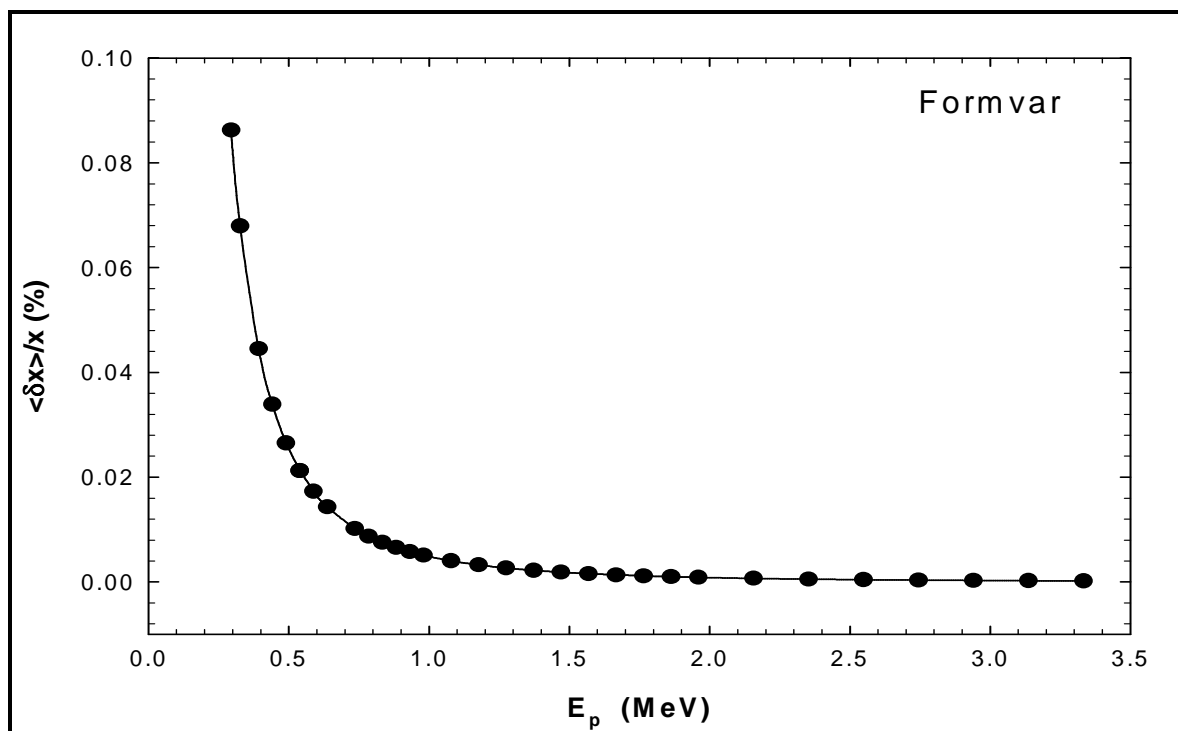


Fig. 3.4 Excès du parcours des protons en fonction de leurs énergies dans la cible du formvar de $284 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ d'épaisseur.

De même, la figure (Fig.3.5) montre le résultat de calcul de l'accroissement relatif ($\langle \delta x \rangle / x$) pour le cas de particules alpha traversant la cible de formvar de $284 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ d'épaisseur. La valeur maximale de 0.031% est obtenue à l'énergie $E_\alpha = 920 \text{ keV}$.

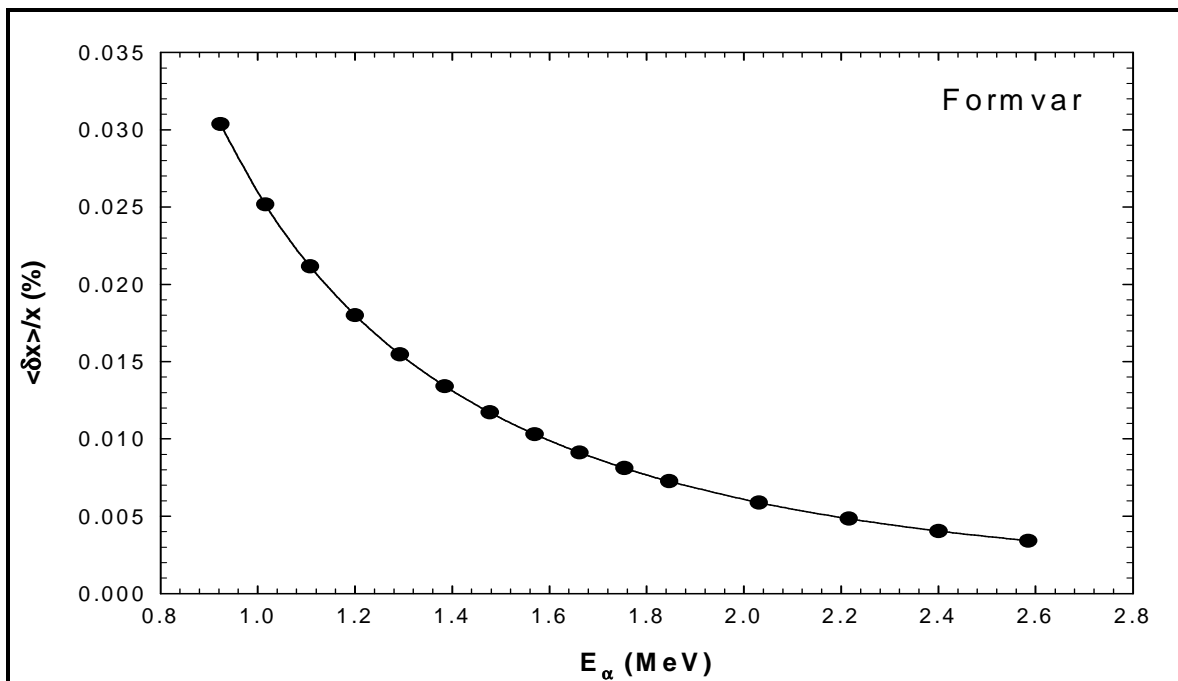


Fig. 3.5 Excès du parcours des particules alpha en fonction de leurs énergies dans la cible du formvar de $284 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ d'épaisseur.

Comme on peut le constater, cette correction est négligeable pour les trois cas considérés. Ceci est très attendu vu que les constituants des polymères utilisés sont des éléments légers (H, C, O et N) et par conséquent, le phénomène de diffusion multiple est peu accentué.

4.1.2. Incertitude sur le pouvoir d'arrêt

Les incertitudes relatives $\left(\frac{\Delta S}{S}\right)$ sur les valeurs expérimentales du pouvoir d'arrêt $S_{exp}(\bar{E})$ proviennent principalement de celles sur la détermination des valeurs des épaisseurs de cibles étudiées. En déterminant la différentielle totale de la fonction $S(\bar{E}) = S(\bar{x}, C_0, C_c, a)$ (voir expressions (3.1) et (3.2) précédentes) qui présente quatre variables indépendantes (mesures indépendantes), on peut facilement déduire l'incertitude relative $\left(\frac{\Delta S}{S}\right)$. Elle est donnée par l'expression suivante :

$$\frac{\Delta S}{S} = \left(\left(\frac{\Delta x}{\bar{x}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta a}{a}\right)^2 + \frac{(\Delta C_0)^2 + (\Delta C_c)^2}{(C_0 - C_c)^2} \right)^{1/2} \quad (3.5)$$

Les incertitudes absolues ΔC_0 et ΔC_c sont données par les ajustements gaussiens des distributions sans et avec cible, respectivement. Δx représente l'erreur sur l'épaisseur de cible (voir chapitre 2 précédent). En tenant compte des fluctuations en énergie du faisceau incident qui est de l'ordre de 0.1%, l'incertitude relative $\frac{\Delta a}{a}$ sur la pente de calibration est déduite en utilisant la méthode des moindres carrés sur l'ensemble des points (C_0, E) de la droite de calibration. Elle est de l'ordre de 0.1%. La figure (Fig.3.6) montre la droite de calibration pour les protons où la totalité des points (C_0, E) mesurés a été exploitée. Il est à noter, enfin, que dans cette calibration, nous avons pris en considération l'incertitude due à l'effet PHD du détecteur qui est au plus égale à 0.3% (cas des particules alpha).

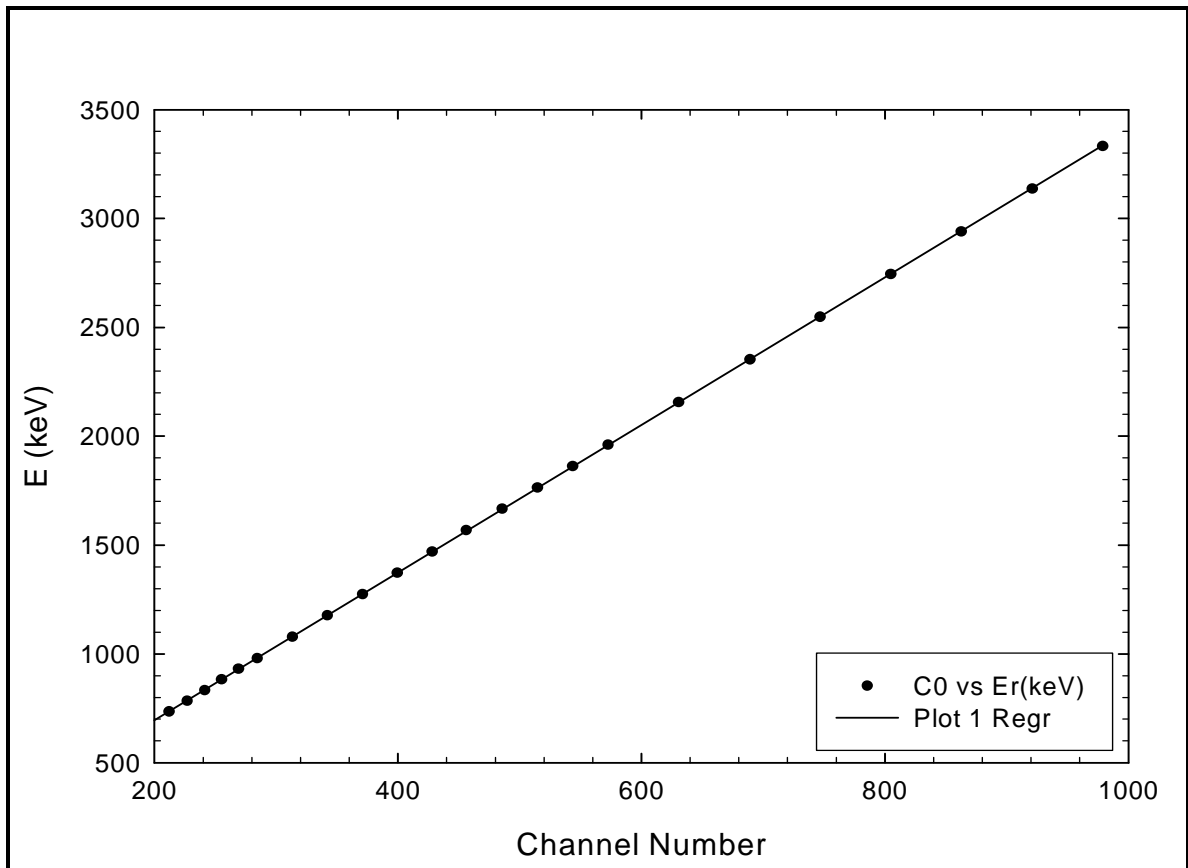


Fig. 3.6 Représentation des points mesures (C_0, E) et le résultat de la régression linéaire (droite de calibration) pour les protons rétrodiffusés.

4.2. Straggling

Pour les spectres à caractère gaussien, le straggling expérimental Ω_{exp}^2 (variance du profil de la perte d'énergie) est relié à la largeur mesurée δE_{exp} via la relation suivante :

$$\delta E_{exp}^2 = (8 \ln 2) \Omega_{exp}^2 \quad (3.5)$$

Dans notre cas, les spectres considérés sont quasi-gaussiens et en première approximation, la relation (3.5) peut être appliquée. Il est à noter, cependant, que pour les cas où la perte d'énergie est élevée, des élargissements et même des dissymétries d'origine non stochastique (non attribués aux fluctuations statistiques) peuvent avoir lieu. Si ces phénomènes d'élargissement n'ont pratiquement aucune incidence sur les mesures de perte d'énergie, ils peuvent en revanche contribuer de façon significative au straggling collisionnel. Dans ce qui suit, nous allons déterminer le straggling expérimental en faisant abstraction de ces effets d'élargissements non statistiques qui seront ensuite discutés dans la section 6 de ce chapitre.

4.2.1. Correction de rugosité des films

Les données expérimentales du straggling déduites de la relation (3.5) ont été corrigées pour tenir compte de l'effet de la rugosité des surfaces des cibles (foil roughness corrections). Expérimentalement, il est pratiquement impossible de séparer cet effet du straggling collisionnel et l'on peut seulement réduire son amplitude en disposant de cibles minces avec une bonne uniformité de surface. Cette correction, à retrancher du straggling expérimental, est donnée par l'approche de Besenbacher et al. [74] :

$$\delta(\Omega^2) = \left(\frac{\sigma}{x}\right)^2 \Delta E^2 \quad (3.7)$$

où σ et x sont respectivement la déviation standard et la valeur moyenne de l'épaisseur de la cible. ΔE est la perte d'énergie dans la cible.

Les valeurs des déviations standards σ considérées sont celles données par la méthode basée sur l'utilisation d'une source radioactive (cf. chapitre 2 précédent). Il est à noter que cette correction n'est significative que pour de faibles vitesses du projectile où des fractions importantes de pertes d'énergie ont été enregistrées. Enfin, dans la suite du document nous désignerons par Ω_{exp} le straggling expérimental corrigé.

4.2.2. Incertitude sur le straggling

Les incertitudes relatives $\left(\frac{\Delta\Omega_{exp}^2}{\Omega_{exp}^2}\right)$ des valeurs du straggling mesurées ont été évaluées en considérant la propagation d'erreurs affectant les largeurs δE_c et δE_0 dans l'expression (3.2) précédente. Elles sont déduites par la relation suivante :

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

$\Delta\delta E_0$ et $\Delta\delta E_c$ sont les erreurs absolues des largeurs δE_0 et δE_c données par les fits gaussiens.

5. Résultats des pouvoirs d'arrêt et des stragglings

Dans cette section, nous présenterons les résultats, sous forme numérique, des pouvoirs d'arrêts S_{exp} et des stragglings réduits $\left(\frac{\Omega_{exp}}{\Omega_B}\right)^2$ (ie. rapporté au straggling de Bohr avec les incertitudes correspondantes). Nous donnerons également la perte d'énergie relative associée à chaque mesure. Pour la cible de formvar, outre la détermination du straggling, nous avons pu améliorer la précision de mesure de pouvoir d'arrêt de ce matériau en adoptant la valeur de l'épaisseur obtenue par la méthode dite de "pesée par surface" (cf. chapitre 2). En effet, la précision de cette méthode ne dépend que de la procédure de sa mise

en œuvre qui peut être très précise alors que celle de la méthode "des sources radioactives" dépend de l'incertitude des valeurs des pouvoirs d'arrêt utilisés (généralement générées par des codes de calcul ou rapportées dans la littérature).

Les résultats de mesures du pouvoir d'arrêt et du straggling réduit obtenus pour le cas des protons traversant le film de kapton sont reportés dans le tableau (Tab.3.1) ci-dessous. La précision de ces données est meilleure que 1.2% pour le pouvoir d'arrêt alors qu'elle est au plus égale à 11% pour le straggling réduit.

E_p (keV)	S_{exp} (keV cm ² /mg)	$\Delta E/E_0$ (%)	$(\Omega_{exp}/\Omega_B)^2$
409.8	424.7 ± 4.3	71.33	3.78 ± 0.09
481.4	382.4 ± 3.8	59.64	2.91 ± 0.06
546.9	351.5 ± 3.5	51.17	2.15 ± 0.06
608.8	327.5 ± 3.2	44.70	1.92 ± 0.08
668.4	307.7 ± 3.0	39.52	1.79 ± 0.06
725.2	293.0 ± 2.9	35.54	1.47 ± 0.04
785.4	272.1 ± 2.7	31.27	1.43 ± 0.05
840.6	260.6 ± 2.6	28.45	1.41 ± 0.11
948.8	241.6 ± 2.4	23.97	1.35 ± 0.05
1055.7	224.9 ± 2.2	20.46	1.37 ± 0.15
1161.2	210.9 ± 2.1	17.71	1.33 ± 0.04
1265.3	199.5 ± 2.0	15.56	1.20 ± 0.05
1370.2	186.7 ± 1.8	13.59	1.12 ± 0.08
1472.7	178.2 ± 1.7	12.16	1.14 ± 0.05
1575.5	169.3 ± 1.7	10.87	1.11 ± 0.04
1677.7	161.5 ± 1.6	9.79	1.13 ± 0.05
1779.2	154.8 ± 1.5	8.89	1.07 ± 0.04
1880.6	148.6 ± 1.4	8.11	1.00 ± 0.05
2082.4	137.8 ± 1.3	6.83	1.01 ± 0.06
2282.7	129.7 ± 1.3	5.90	1.01 ± 0.06
2483.5	120.8 ± 1.2	5.07	1.01 ± 0.07
2683.7	113.0 ± 1.1	4.40	1.09 ± 0.07
2881.8	109.0 ± 1.0	3.96	1.06 ± 0.08
3081.3	102.5 ± 1.0	3.49	1.05 ± 0.07
3279.5	98.4 ± 0.9	3.16	0.99 ± 0.06

Tab.3.1 Les valeurs expérimentales du pouvoir d'arrêt (S_{exp}) et du straggling réduit ($\frac{\Omega_{exp}^2}{\Omega_B^2}$) pour les protons traversant le film de kapton de 1070 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ d'épaisseur. Les fractions de pertes d'énergie relatives correspondantes (colonne 3) sont également reportées.

De même, sont reportés dans le tableau (Tab.3.2), les résultats expérimentaux du pouvoir d'arrêt et du straggling réduit des protons traversant la cible de formvar. Les incertitudes relatives de ces données sont au plus égales à 1.5% et à 15% pour le pouvoir d'arrêt et le straggling réduit respectivement.

E_p (keV)	S_{exp} (keV cm ² /mg)	$\Delta E/E_0$ (%)	$(\Omega_{\text{exp}}/\Omega_B)^2$
193.4	708.3 ± 9.9	68.41	-
234.2	648.7 ± 9.1	56.45	-
313.6	552.2 ± 7.7	40.00	2.44 ± 0.23
370.3	497.8 ± 7.0	32.05	2.09 ± 0.21
425.0	457.8 ± 6.4	26.53	1.93 ± 0.17
478.5	426.2 ± 6.0	22.45	1.80 ± 0.16
478.6	425.1 ± 5.9	22.39	1.86 ± 0.15
531.6	397.2 ± 5.5	19.18	1.58 ± 0.16
584.0	373.6 ± 5.2	16.65	1.44 ± 0.12
687.5	334.5 ± 4.7	12.92	1.34 ± 0.13
738.6	319.5 ± 4.5	11.57	1.46 ± 0.17
789.6	305.9 ± 4.3	10.42	1.55 ± 0.14
840.6	291.4 ± 4.1	9.38	1.45 ± 0.11
891.0	281.8 ± 3.9	8.59	1.44 ± 0.10
941.6	270.6 ± 3.8	7.84	1.47 ± 0.13
1042.3	251.8 ± 3.5	6.63	1.33 ± 0.13
1142.4	236.6 ± 3.3	5.71	1.33 ± 0.11
1242.6	221.7 ± 3.1	4.94	1.11 ± 0.16
1342.2	210.0 ± 2.9	4.34	1.10 ± 0.15
1441.7	200.1 ± 2.8	3.86	1.14 ± 0.12
1540.4	194.6 ± 2.7	3.52	1.10 ± 0.12
1640.3	181.7 ± 2.5	3.09	1.18 ± 0.12
1739.2	175.4 ± 2.4	2.82	1.09 ± 0.12
1838.2	168.0 ± 2.3	2.56	1.06 ± 0.09
1937.3	160.5 ± 2.2	2.32	1.01 ± 0.13
2134.6	151.8 ± 2.1	1.99	-
2331.6	144.6 ± 2.0	1.74	-
2528.9	135.4 ± 1.9	1.50	-
2726.2	126.2 ± 1.8	1.30	-
2923.8	115.6 ± 1.6	1.11	-
3120.0	113.8 ± 1.6	1.03	-
3316.7	109.4 ± 1.6	0.93	-

Tab. 3.2 Idem que pour Tab. 3.1 pour le cas des protons traversant le film de formvar de 284 μg/cm² d'épaisseur.

Notons que nous n'avons pas exploité les données pour lesquelles $\frac{\Delta E}{E} \lesssim 2\%$ (cas de cibles très minces) pour déduire le straggling. En effet, les collisions uniques et/ou Coulombienne quasi-libres contribuent alors de façon considérable dans les fluctuations statistiques de la perte d'énergie et par conséquent, l'allure du spectre de 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.

Enfin, le tableau (Tab.3.3) rapporte les données pour les particules alpha obtenues pour le cas de la cible de formvar. La précision sur les valeurs de S_{exp} est inférieure à 1.4% alors que celle du stragglng réduit est meilleure que 14% uniquement pour les valeurs dont la perte d'énergie relative n'excède pas les 60%. En d'autres termes, seuls deux valeurs ont été mesurées, aux basses énergies des particules alpha, avec des incertitudes de $\sim 18\%$ et de $\sim 30\%$.

$E_\alpha(\text{keV})$	$S_{exp}(\text{keV cm}^2/\text{mg})$	$\Delta E/E_0(\%)$	$(\Omega_{exp}/\Omega_B)^2$
605.7	2235 ± 31	68.78	0.81 ± 0.24
694.4	2261 ± 31	63.23	1.46 ± 0.26
786.4	2263 ± 31	58.02	2.20 ± 0.30
883.6	2229 ± 31	52.75	2.58 ± 0.34
982.6	2181 ± 30	47.94	2.97 ± 0.36
1083.9	2118 ± 29	43.44	3.00 ± 0.36
1185.1	2055 ± 28	39.52	3.11 ± 0.35
1287.2	1986 ± 27	35.95	3.06 ± 0.33
1388.4	1924 ± 27	32.88	3.14 ± 0.31
1490.1	1858 ± 26	30.09	3.05 ± 0.31
1591.1	1797 ± 25	27.65	2.81 ± 0.28
1791.7	1685 ± 23	23.56	2.62 ± 0.28
1990.3	1586 ± 22	20.34	2.46 ± 0.24
2188.0	1494 ± 21	17.68	2.38 ± 0.27
2379.7	1445 ± 20	15.87	2.16 ± 0.23

Tab.3.3 Idem que pour Tab. 3.2 pour les particules alpha.

6. Comparaison et confrontation des données expérimentales

Dans cette section, nous allons comparer nos résultats du pouvoir d'arrêt et du stragglng aux données rapportées dans la littérature. Pour le pouvoir d'arrêt, nos données seront comparées aux mesures disponibles dans la littérature [31, 75-77] et aux valeurs compilées dans le rapport ICRU-49 [15] ou générées par le code de calcul SRIM-2008 [43] sous l'hypothèse de la validité de la règle de Bragg-Kleeman [30] pour la matière composée. Pour les résultats du stragglng qui sont à notre connaissance uniques, seules des confrontations avec des modèles théoriques de Bohr, de Bethe-Livingston et Sigmund seront présentées vu l'indisponibilité de données expérimentales du stragglng pour les cas considérés dans ce travail. Les modèles de Bohr et de Bethe-Livingston pour les cibles élémentaires ont été étendus aux composés en utilisant la relation de sommation de Bragg-

Kleeman (cf. chapitre 1). Enfin, pour les valeurs de Sigmund [78], seul le cas des protons dans formvar est considéré.

6.1. Pouvoir d'arrêt

6.1.1. Cible de kapton

La figure (Fig. 3.7), ci-dessous, montre nos résultats expérimentaux du pouvoir d'arrêt en fonction de l'énergie E_p des protons pour le kapton. Ils sont comparés aux données expérimentales rapportées précédemment dans les références [75-77]. Comme on peut le constater, nos mesures sont en excellent accord avec celles rapportés dans [75] et elles sont légèrement au dessus (écart de $\sim 6\%$) des données mesurées par Rauhala et Räsänen [77]. Par rapport aux données de la Réf. [76], l'accord est excellent pour $E_p \lesssim 1.2$ MeV alors qu'il est seulement global dans la région des énergies élevées ($E_p > 1.2$ MeV).

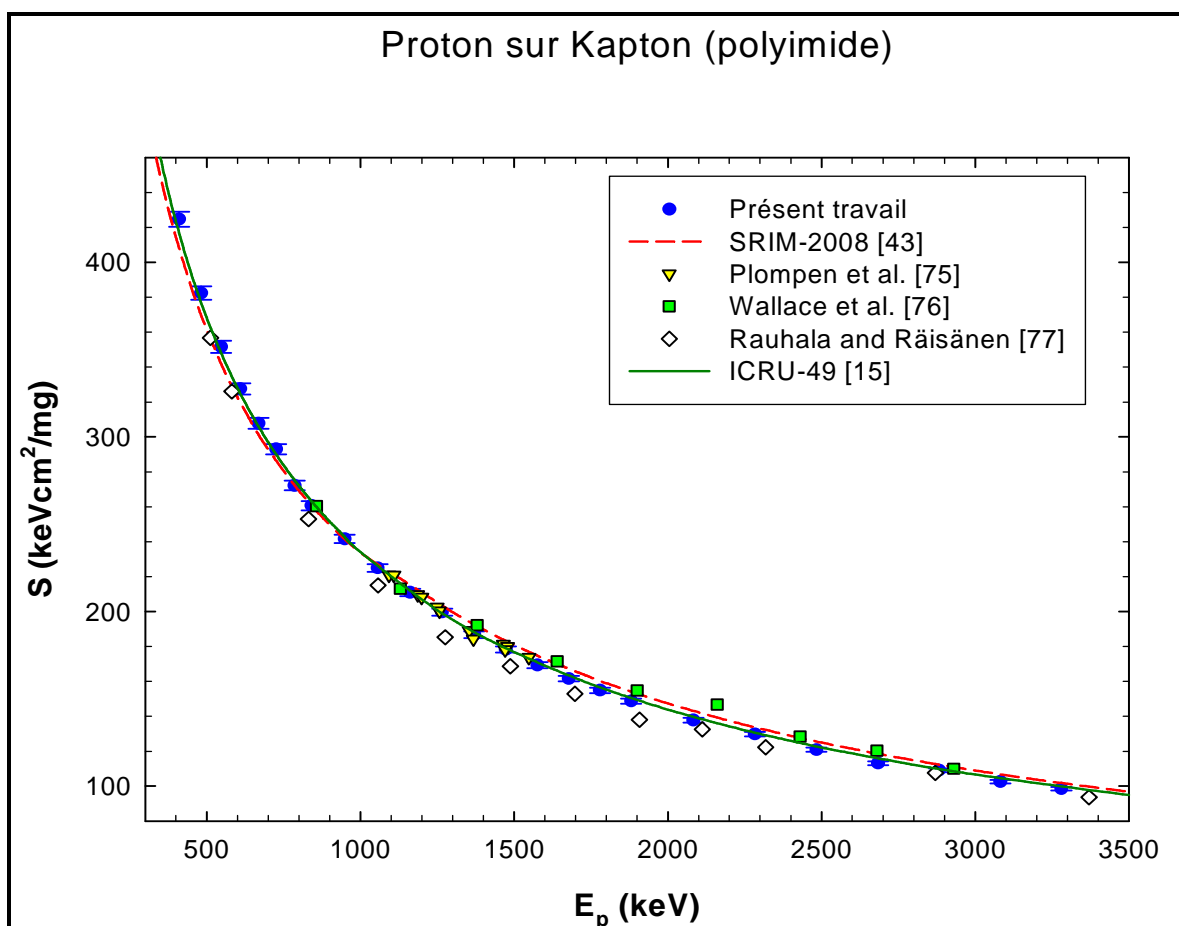


Fig. 3.7 Pouvoir d'arrêt expérimental (S_{exp}) en fonction de l'énergie E_p des protons pour le film de kapton comparé aux données expérimentales rapportées dans les Réfs. [75-77] et aux valeurs compilées dans le rapport ICRU-49 [15] ou générées par le code SRIM-2008 [43].

Nous avons aussi reporté sur la même figure ci-dessus les valeurs de $S(E)$ compilées dans le rapport ICRU-49 [15] ou générées par le code SRIM-2008 [43]. Un très bon accord entre nos valeurs et celles du rapport ICRU-49 est observé sur toute la gamme d'énergie explorée. Un très bon accord est noté entre nos mesures et les valeurs de SRIM-2008 sur une étroite région d'énergie, $E_p \sim (750 - 1100)$ keV. Dans la région des énergies plus élevées des protons, nos données sont surestimées par le code SRIM et elles passent, par contre, au-dessus des valeurs de SRIM pour $E_p < 750$ keV. L'écart observé augmente au fur et à mesure qu'on s'approche du maximum du pouvoir d'arrêt. On peut conclure qu'une déviation, d'environ 4.5% (écart moyen observé aux basses énergies), de la relation de Bragg est observée aux faibles énergies.

6.1.2. Cible de formvar

La figure (Fig. 3.8) montre une comparaison entre les données du pouvoir d'arrêt obtenues dans ce travail et celles mesurées précédemment [31, 79] ou calculées par le code SRIM-2008 [43]. Nos données se situent respectivement à 4.8% (en moyenne) et à 2.4% au-dessous de celles mesurées par Munnik et al. [79] et celles mesurées par Damache et al. [31]. L'écart de 2.4% représente justement la différence relative des deux valeurs de l'épaisseur de la cible de formvar adoptées dans [31] et dans le présent travail. Par rapport aux valeurs de SRIM-2008, nos données sont, aux erreurs expérimentales près, très bien reproduites dans la région des énergies $E_p \gtrsim 1$ MeV alors qu'ailleurs, un écart de 2 à 3.5 % est observé. La relation de Bragg cesse donc d'être valide dans la région des faibles vitesses des protons où une déviation moyenne de $\sim 3\%$ est observée.

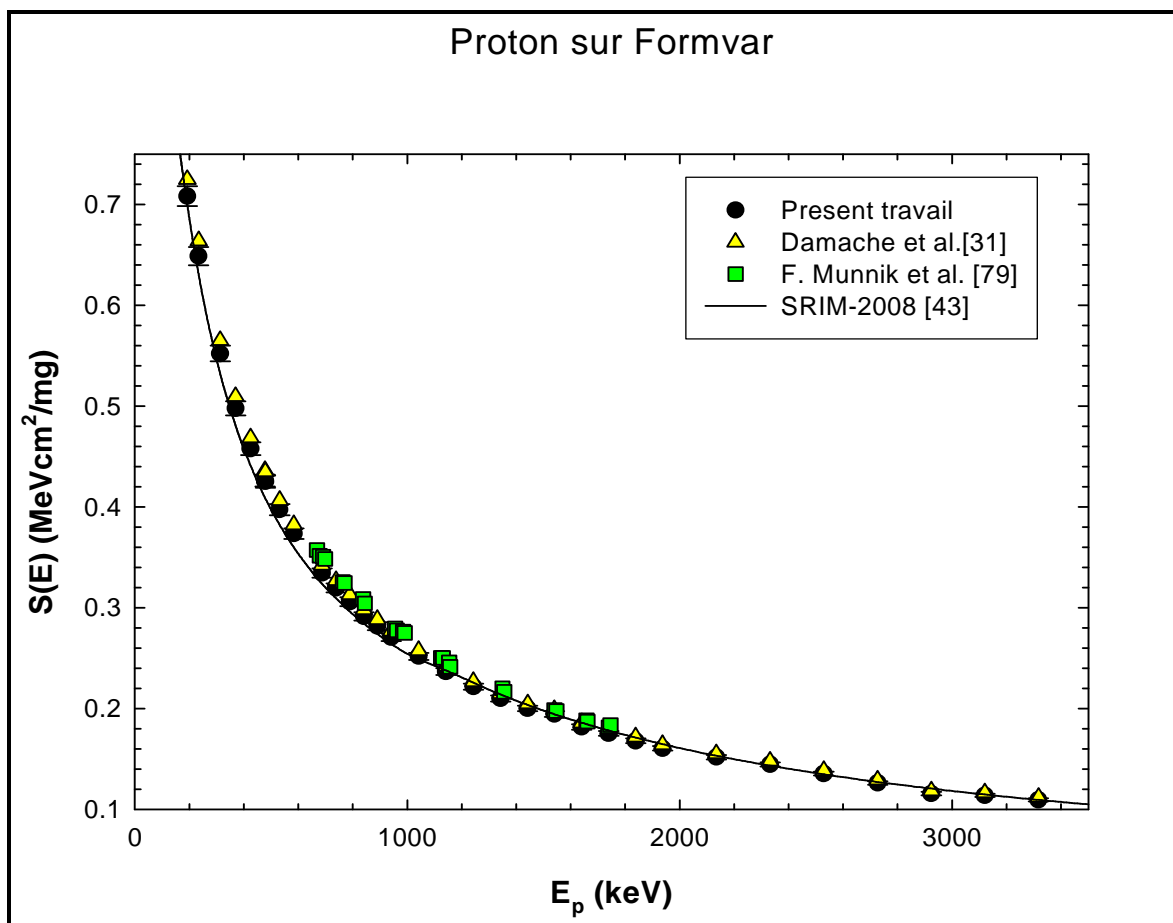


Fig. 3.8 Pouvoir d'arrêt expérimental (S_{exp}) en fonction de l'énergie E_p des protons pour le formvar comparé aux données des Réfs. [31, 79] et aux valeurs calculées par SRIM-2008 [43].

De même, nos résultats obtenus avec un faisceau de particules alpha sont reportés, avec ceux des réfs. [31, 79] et ceux générés par le code SRIM-2008 [43], sur la figure (Fig. 3.9). Comme on peut clairement le constater, les données de réf. [79] se situent bien au dessus de nos valeurs et particulièrement au voisinage du maximum du pouvoir d'arrêt où un écart appréciable de $\sim 12.5\%$ est facilement observable. On peut aussi remarquer que le maximum du pouvoir d'arrêt observé pour les particules alpha pour les précédentes données [79] a été déplacé de ~ 40 keV vers les faibles énergies. Pour les données rapportées dans [31], la même constatation que pour les protons est valide ; c'est-à-dire un écart de 2.4% , dû exclusivement à la valeur de l'épaisseur de cible adoptée, entre les deux ensemble de données est noté. La qualité (pureté, uniformité, homogénéité,...) de la cible et son épaisseur représentent donc des paramètres cruciaux dans la détermination expérimentale du pouvoir d'arrêt.

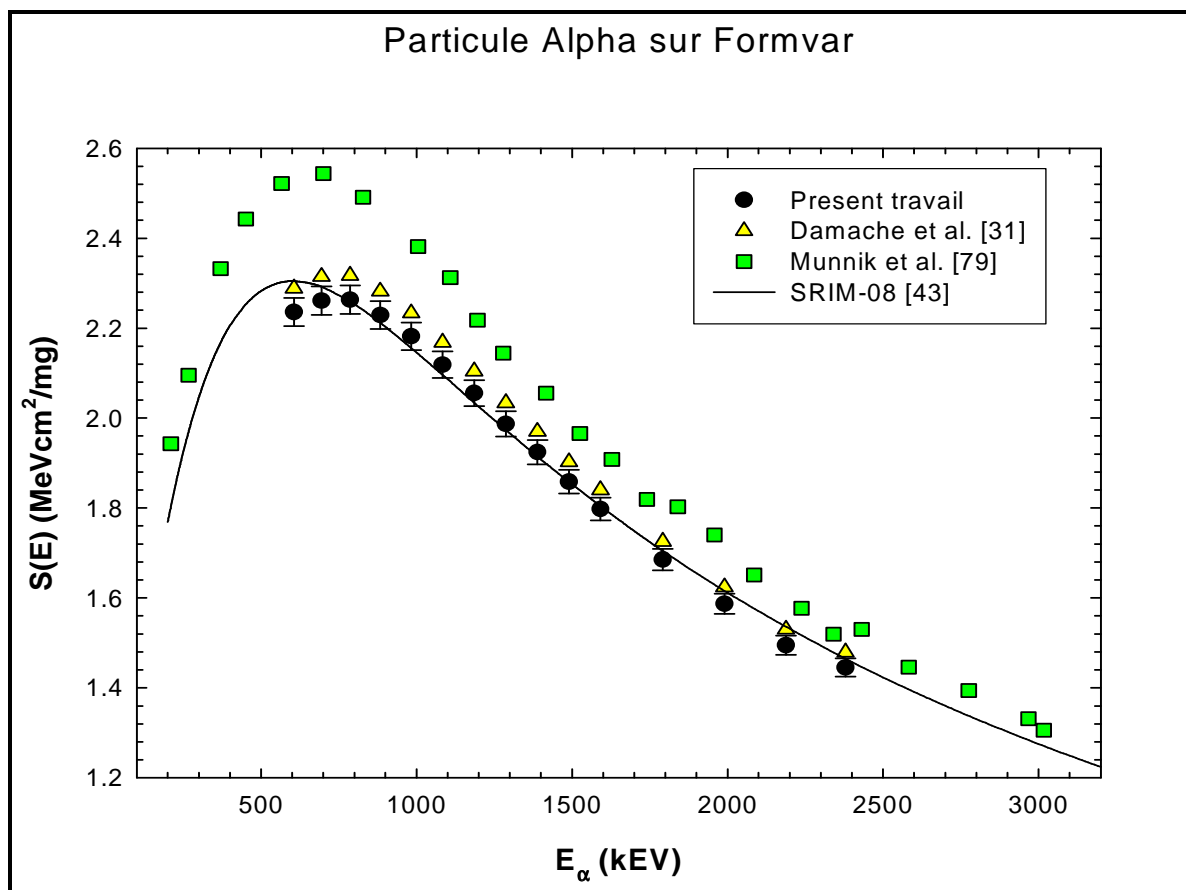


Fig. 3.9 Idem que pour Fig. 3.8 pour les particules alpha.

Enfin, nos mesures sont globalement bien reproduites par les valeurs SRIM-2008 sur toute la gamme d'énergie explorée à l'exception d'une région d'énergie très étroite autour du maximum du pouvoir d'arrêt où elles sont, au contraire, surestimées par ce code. Cependant, Il est important de souligner que, d'une part, la dérivée de la fonction du pouvoir d'arrêt change de signe dans cette région d'énergie et que, d'autre part, la perte d'énergie relative correspondant aux mesures effectuées dans cette même région est très élevée ($\frac{\Delta E}{E} > 60\%$). Par conséquent, l'approximation d'énergie moyenne, $\bar{E} = E_0 - \frac{\Delta E}{2}$, généralement utilisée par les expérimentateurs, n'est certainement pas valide. Cette région du maximum du pouvoir d'arrêt doit être soigneusement explorée en utilisant des cibles encore plus minces d'autant plus qu'elle est connue pour être le siège d'une compétition entre un nombre important de processus complexes (échange de charge, corrections de couches, effet Barkas, structure de valence pour les composés,...) de perte d'énergie.

La déviation de la relation d'additivité de Bragg, observée aux faibles énergies pour les deux polymères étudiés, est due à cette compétition de ces processus avec un rôle probablement plus dominant pour l'effet de la structure de valence. Par conséquent, les déviations

observées sont dues principalement aux liaisons chimiques et à l'état de phase ou l'altération de la structure des composés considérés. En d'autres termes, la contribution au processus du ralentissement des électrons des couches de valence des monomères $C_5H_8O_2$ et $C_{22}H_{10}N_2O_5$ devient vraisemblablement de plus en plus prononcée avec la décroissance de la vitesse du projectile et, en revanche, on assiste à la fermeture graduelle des voies d'excitation des couches internes (contribution des électrons des couches internes). Pour le formvar, cette déviation est pratiquement induite par les liaisons $C - H$ qui représentent la moitié des liaisons chimiques de la molécule $C_5H_8O_2$ [31]. En effet, les transitions des électrons 1s des atomes d'H vers les états 2p des atomes de C (formation des liaisons chimiques $C - H$) induit un changement drastique dans leurs vitesses orbitales et leurs spectres d'excitation. L'influence des liaisons $C - H$ sur le pouvoir d'arrêt a été confirmée par Boutard et collaborateurs [80] en mesurant le pouvoir d'arrêt des ions H^+ et $^4He^+$ dans des films de carbone-hydrogène déposés sur des substrats de Si par des décharges plasma effectuées dans une enceinte remplie de méthane de haute pureté (à 99.95% de CH_4). Pour le kapton, en plus des liaisons $C - H$, qui représentent $\sim 23\%$ des liaisons chimiques de la molécule $C_{22}H_{10}N_2O_5$, un effet de corrélation électronique des liaisons doubles $C = C$ et $C = O$ (représentant $\sim 30\%$) ne peut certainement pas être négligé et contribue donc à la déviation de la relation de Bragg.

6.2. Straggling

6.2.1. Straggling de Bohr et de Bethe-Livingston

Dans le présent travail, nous avons évalué les stragglings de Bohr (Ω_B^2) et de Bethe-Livingston (Ω_{BL}^2) pour les cibles de formvar et de kapton en supposant que la relation de sommation linéaire de Bragg-Kleeman [30] est valide. Pour le modèle de Bohr, nous ne détaillerons pas ici les calculs (qui sont relativement simples) et nous nous contenterons de donner uniquement des résultats pour le cas de nos cibles. La simple application de la relation (1.13) du chapitre 1 conduit aux valeurs respectives du straggling $\Omega_B^2 = 23.49 \text{ keV}^2$ et $\Omega_B^2 = 93.98 \text{ keV}^2$ pour les protons et les particules alpha traversant la cible de formvar de $284 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ d'épaisseur. De même, le straggling de Bohr pour le cas des protons dans le kapton de $1070 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ d'épaisseur est de $\Omega_B^2 = 86.12 \text{ keV}^2$. Pour le modèle de Bethe-Livingston, nous avons d'abord calculé le straggling Ω_{BL}^2 pour chacun des constituants élémentaires (H, C, N et O) des deux polymères étudiés et, par la suite, nous avons utilisé la relation de Bragg-Kleeman, l'expression (1.18), pour déduire les valeurs du straggling Ω_{BL}^2

des composés. Les données d'inputs, 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 [81]. Elles sont reportées dans le tableau (Tab. 3.4) ci-dessous.

Élément constituant	Numéro atomique Z_2	Couche ou sous-couche i	$Z_i = Z_2 f_i^*$	I_i (eV)
H	1	K	$Z_K = 1$	$I_K = 19.2$
C	6	K	$Z_K = 1.992$	$I_K = 486.2$
		L _I	$Z_{L_I} = 1.841$	$I_{L_I} = 60.95$
		L _{II}	$Z_{L_{II}} = 2.167$	$I_{L_{II}} = 23.43$
N	7	K	$Z_K = 1.741$	$I_K = 732.61$
		L _I	$Z_{L_I} = 1.680$	$I_{L_I} = 100.646$
		L _{II}	$Z_{L_{II}} = 3.579$	$I_{L_{II}} = 23.55$
O	8	K	$Z_K = 1.802$	$I_K = 965.1$
		L _I	$Z_{L_I} = 1.849$	$I_{L_I} = 129.85$
		L _{II}	$Z_{L_{II}} = 4.349$	$I_{L_{II}} = 31.60$

* f_i est la force d'oscillation (probabilité d'occupation de l'état i)

Tab. 3.4 Potentiel d'excitation moyen I_i et nombre d'électrons Z_i des couches ou sous-couches atomiques des différents constituants élémentaires (H, C, N et O) des deux polymères étudiés. Ces données d'entrée, utilisées dans nos calculs, ont été tirées du rapport ICRU-73 [81].

La figure (Fig. 3.10) montre le straggling réduit de Bethe-Livingston $\left(\frac{\Omega_{BL}^2}{\Omega_B^2}\right)$ calculé (Eq (1.15), (1.16)) pour des protons d'énergie $E_p = (100 - 3400)$ keV traversant les cibles élémentaires H, C, N et O. Comme on s'y attendait, le modèle de Bethe-Livingston donne des valeurs du straggling substantiellement plus grandes que la valeur classique de Bohr pour les faibles énergies E_p du projectile où l'effet des liaisons électroniques ne peut plus être négligé. Pour les énergies élevées où les électrons cibles peuvent être considérés comme libres, le straggling de Bethe-Livingston évalue asymptotiquement vers celui de Bohr. Cet accroissement du straggling aux faibles énergies est interprété comme une correction de couche, vu que dans leur traitement, Livingston et Bethe ont seulement pris en compte les différentes couches atomiques (donc les différentes vitesses orbitales) de l'atome cible. Comme on peut le constater, les épaulements de Bethe-Livingston (shoulders) pour les éléments C, N et O sont clairement distingués sur la figure (Fig. 3.10). Par ailleurs, on remarque que la valeur du maximum du straggling est directement liée à la proportion des électrons K de l'atome cible considéré. En effet, ces proportions, tirées du tableau Tab.3.4 ci-dessus, sont respectivement de 33.2%, de 24.9% et de 22.5% pour les éléments C, N et O.

Enfin, on voit clairement que tous les électrons cibles participent au straggling sur toute la gamme d'énergie explorée exception faite pour $E \lesssim 400$ keV où les couches K commencent à se fermer d'abord pour O puis pour N et enfin pour C.

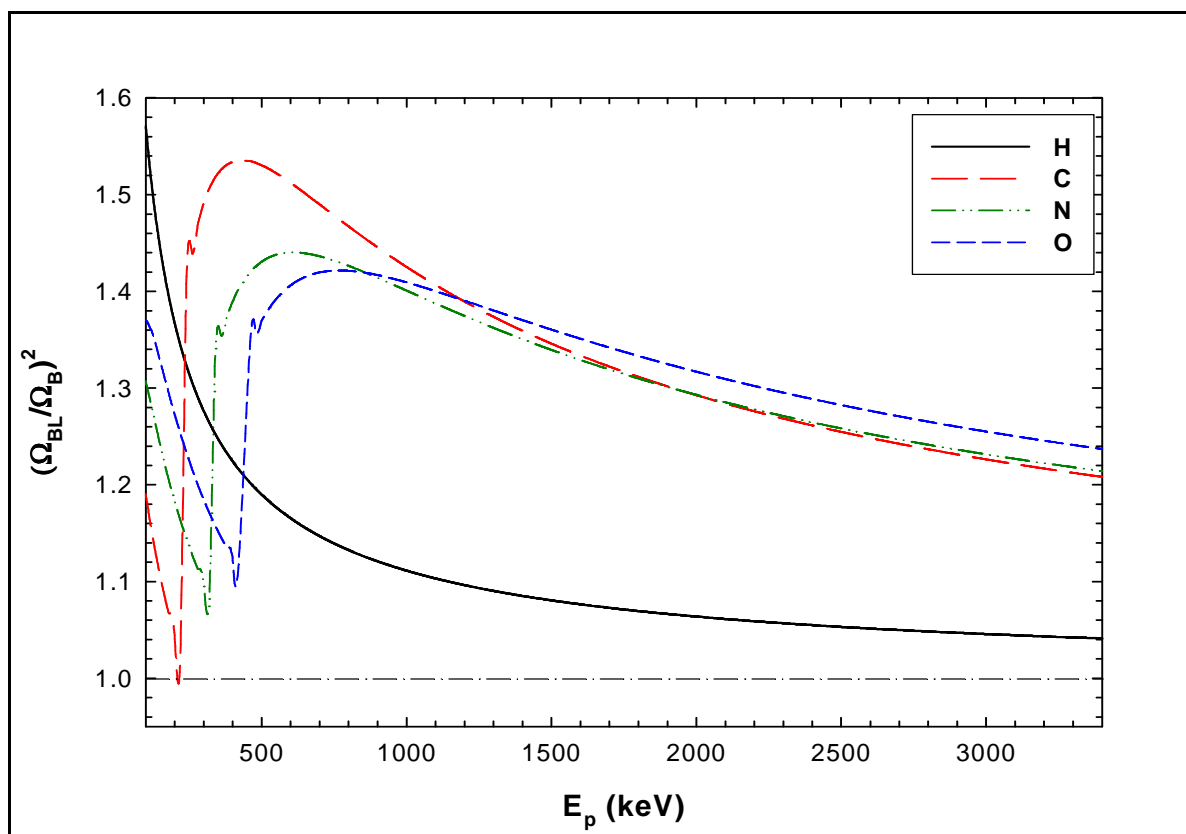


Fig. 3.10 Straggling réduit de Bethe-Livingston $\left(\frac{\Omega_{BL}^2}{\Omega_B^2}\right)$ pour les éléments H, C, N et O (constituants élémentaires des deux polymères étudiés dans ce travail) en fonction de l'énergie E_p des protons.

Le straggling de Bethe-Livingston déduit du calcul précédent (cf. Fig. 3.10), sous l'hypothèse de la validité de la relation d'additivité de Bragg-Kleeman [30], est représenté graphiquement sur la figure (Fig. 3.11) pour les deux polymères étudiés. Comme on peut le constater, les stragglings Ω_{BL}^2 ainsi obtenus pour les deux polymères sont très voisins avec des valeurs légèrement élevées à $E_p \geq 500$ keV pour le formvar. La différence ($\sim 2.1\%$ en moyenne) entre les deux stragglings est probablement liée à la différence des rapports $\left(\frac{Z_2}{A_2}\right)$ des deux polymères. Les valeurs de ce rapport, obtenues par la relation de Bragg, sont de 0.539 et de 0.512 pour le formvar et le kapton, respectivement. De la même façon que le pouvoir d'arrêt, une influence du nombre de liaisons fortes $C-H$ du monomère n'est certainement pas à écarter. Ces liaisons sont plus importantes dans le formvar (50%) que dans le kapton (23%) et ceci est en faveur de la constatation précédente.

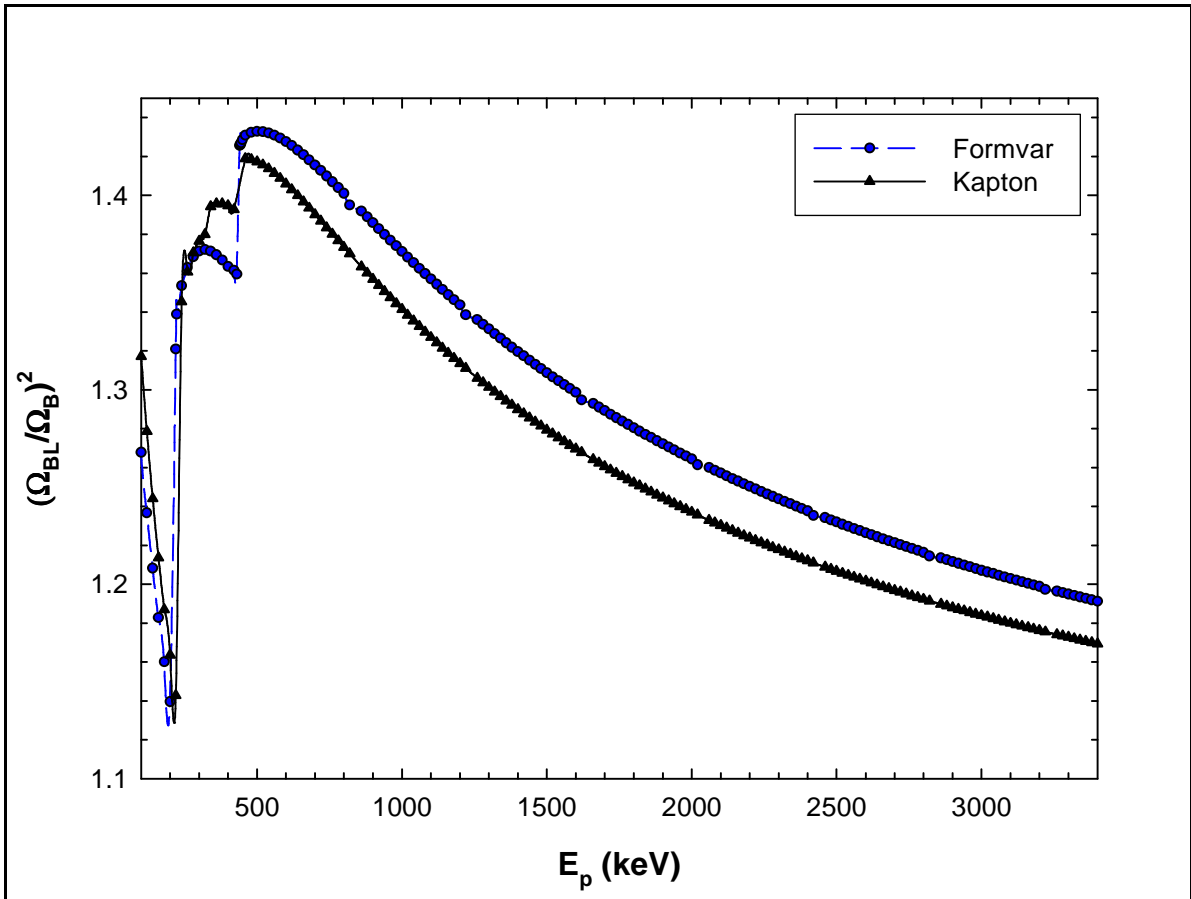


Fig. 3.11 Stragglings réduits de Bethe-Livingston $\left(\frac{\Omega_{BL}^2}{\Omega_B^2}\right)$ pour les deux polymères étudiés, déduits de ceux des éléments constituants en utilisant la relation de Bragg.

6.2.2. Cible de kapton

La figure (Fig. 3.12) ci-dessous montre une confrontation entre nos données expérimentales du straggling et les valeurs calculées précédemment (cf. Fig. 3.11) en utilisant les expressions du straggling de Bohr et de Bethe-Livingston pour le cas des protons dans le kapton. a) Comme on peut le constater, nos mesures sont en très bon accord avec le modèle de Bohr pour les énergies $E_p \gtrsim 1800$ keV et qu'elles s'en écartent progressivement lorsque E_p diminue par rapport à cette limite. Il est à noter que pour des pertes d'énergie ne dépassant pas les 15% ($1265 \text{ keV} \lesssim E_p \lesssim 1800 \text{ keV}$), l'écart observé est, au plus, égal à 20% alors qu'il est au maximum de 43% dans la région de pertes d'énergie ($15\% \lesssim \frac{\Delta E}{E} \lesssim 35\%$). b) Par rapport au modèle de Bethe-Livingston, nos mesures ne sont bien reproduites que dans la région d'énergie ($700 \lesssim E_p \lesssim 1200$) keV et pour $E_p > 1200$ keV, elles se situent en moyenne à 12% au dessous des valeurs de Bethe-Livingston. Pour les pertes d'énergie supérieures à 36% aux basses valeurs de E_p , nous

avons obtenu des valeurs de la dispersion en énergie δE_{exp} relativement très élevées qui, exploitées, conduisent à des valeurs du "stragglings" réduit dépassant les 80% (cf. Fig. 3.12). En plus des effets de corrélations électroniques [74] (corrélations spatiale et énergétiques des électrons cibles) qui peuvent être significatifs, le phénomène de collisions multiples devient tellement important pour de grandes pertes d'énergie que l'approximation de collisions statistiquement indépendantes ne peut plus être valide : on assiste vraisemblablement à un élargissement d'origine non stochastique. En d'autres termes, une attention particulière doit être accordée à la limitation à la statistique de Poisson utilisée essentiellement dans l'élaboration théorique du stragglings. De plus, pour de grandes pertes d'énergie, la section efficace de diffusion peut varier de façon significative sur la trajectoire des ions et par conséquent, le profil des distributions tend à se déformer vers les basses énergies introduisant ainsi des élargissements et dissymétries non liés aux fluctuations statistiques (stragglings collisionnel). Enfin, on peut conclure que pour les points correspondant à $\frac{\Delta E}{E} > 36\%$ (Fig. 3. 12), le stragglings total (collisionnel, échange de charge) est certainement noyé par cet élargissement d'origine non statistique qui prédomine dans les cibles épaisses. Par conséquent, la détermination expérimentale la plus fiable possible du stragglings dans cette région d'énergie nécessite au préalable la réduction, à un niveau négligeable, de l'élargissement non stochastique en utilisant des cibles relativement fines ($10\% < \frac{\Delta E}{E} < 20\%$).

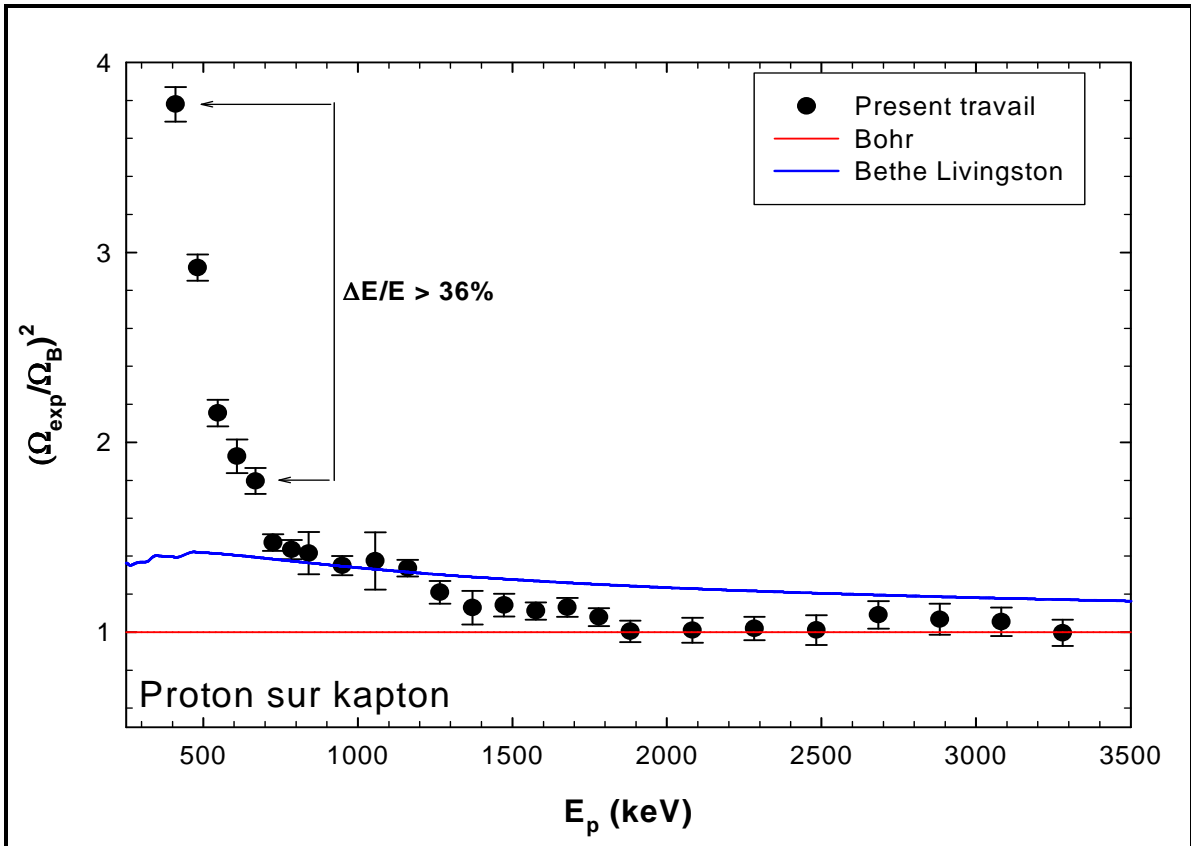


Fig. 3.12 Straggling expérimental $(\frac{\Omega_{\text{exp}}}{\Omega_{\text{B}}})^2$ des protons dans le kapton confronté aux différents modèles théoriques de Bohr et de Bethe-Livingston, sous l'hypothèse de la validité de la relation de Bragg-Kleeman.

6.2.3. Cible de formvar

La figure (Fig. 3.13) montre une comparaison entre nos mesures du straggling et les valeurs théoriques obtenues par les approches de Bohr et de Bethe-Livingston pour le cas des protons traversant une cible de formvar. Comme on peut facilement le voir, le comportement de nos données pour le formvar est similaire de celui observé pour les données du kapton (cf. Fig. 3.12) : a) aux erreurs expérimentales près, nos données sont en assez bon accord avec la valeur classique de Bohr pour $E_p > 1200$ keV. Ailleurs, elles se situent au dessus de cette valeur. L'écart moyen observé est de $\sim 40\%$ aux énergies ($450 < E_p < 1200$) keV. b) Le modèle de Bethe-Livingston reproduit parfaitement nos données dans la région des vitesses intermédiaires ($600 < E_p < 1200$) keV. Par contre, il surestime (écart moyen de 15%) nos données pour $E_p > 1200$ keV. Sur la même figure (Fig. 3.13) sont également reportées les valeurs [78] calculées par Sigmund en utilisant le code PASS [78] de la théorie "BCAS" (Binary Collision Approximation Scheme) de Sigmund-Schinner [18-19, 82]. Dans ce calcul, il est à noter que Sigmund a utilisé la relation de Bragg pour les

composés et que l'effet de groupement "bunching effect" (corrélation spatiale entre les électrons cibles) et le straggling d'échange de charge n'ont pas été inclus (non encore incorporés dans le code PASS). Aux incertitudes expérimentales près, nos données sont globalement bien reproduites par la théorie BCAS pour les énergies $E_p > 1000$ keV alors que pour les énergies basses, nos données se situent au-dessus de valeurs de BCAS. Par ailleurs, on peut aisément noter l'allure d'un épaulement du type Bethe-Livingston (fit polynomial sur la figure (Fig. 3.13)) de nos données dans la région $600 < E_p < 1500$ keV. Dans cette gamme d'énergie, on constate que l'épaulement mesuré est plus prononcé ($\sim 20\%$) que celui obtenu par le calcul BCAS. Ceci peut vraisemblablement être attribué à des effets de corrélations entre les électrons de la molécule cible (bunching effects). En effet, l'évidence expérimentale de corrélation moléculaire a été donnée par Besenbacher et al. [74] en mesurant le straggling des particules alpha dans deux gaz moléculaire (N_2 et Ne) ayant des propriétés électroniques pratiquement similaires. Enfin, pour de larges pertes d'énergies ($\frac{\Delta E}{E} > 20\%$), la même interprétation que pour le cas de kapton est valable à savoir la forte influence des élargissements d'origine non statistiques et les points correspondants ne peuvent pas être considérés comme étant du straggling.

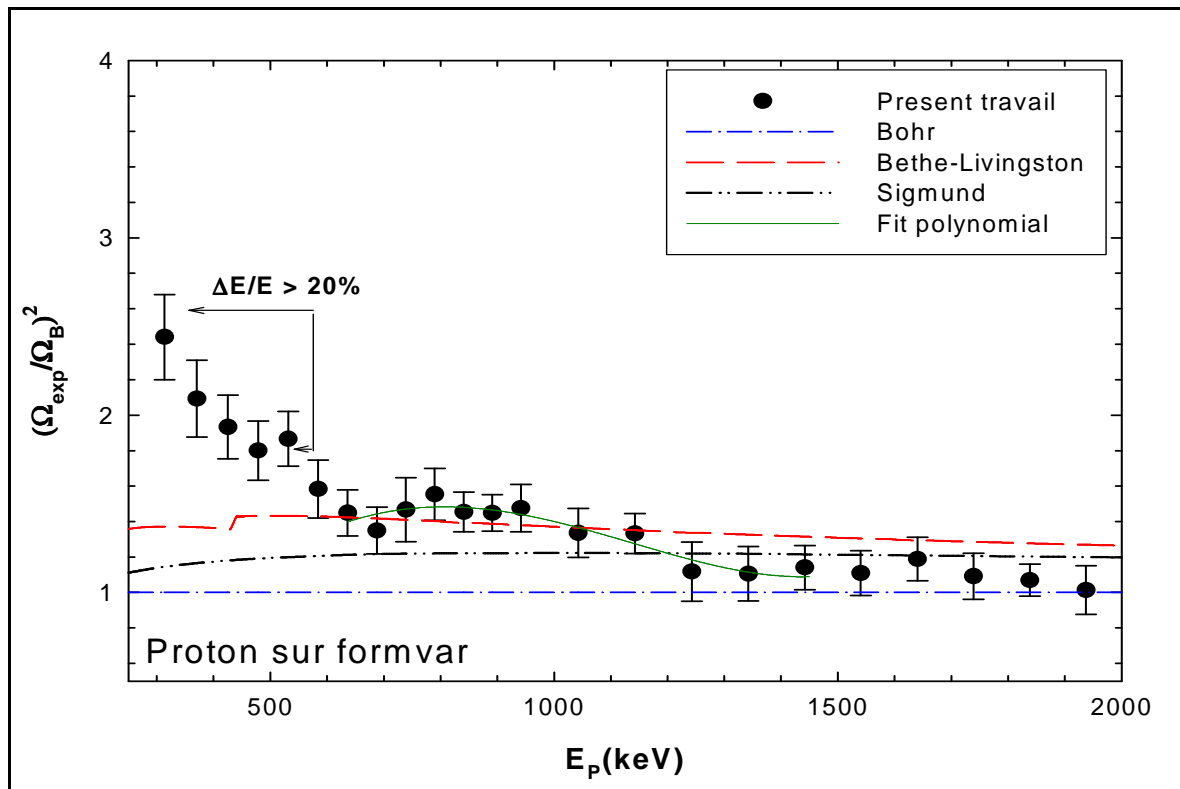


Fig. 3.13 Idem que pour Fig. 3.12 pour le cas du film de formvar. Nos données sont aussi comparées aux valeurs générées par le code PASS (théorie binaire de Sigmund-Schinner).

De même, nous avons reporté sur la figure (Fig. 3.14) nos données expérimentales du straggling réduit $\left(\frac{\Omega_{\text{exp}}}{\Omega_{\text{B}}}\right)^2$ et les valeurs prédites par les modèles de Bohr et de Bethe-Livingston pour le cas des particules alpha dans le formvar. Comme on peut le voir, nos données sont nettement plus élevées que les valeurs de Bohr et de Bethe-Livingston sur pratiquement toute la gamme d'énergie explorée. Cependant, il ya lieu de souligner que nos données correspondent à des pertes d'énergie relativement importantes exception faite pour les 03 points aux hautes énergies où $15\% < \frac{\Delta E}{E} \lesssim 20\%$. Par conséquent, la même constatation (prédominance d'élargissement non statistique) faite pour les données protons reste valide. De plus, les contributions du straggling d'échange de charge Ω_{EC}^2 et de la correction des corrélations électroniques Ω_{C}^2 ne sont certainement pas négligeables mais elles restent tout de même masquée par cet élargissement non stochastique et donc difficile à extraire.

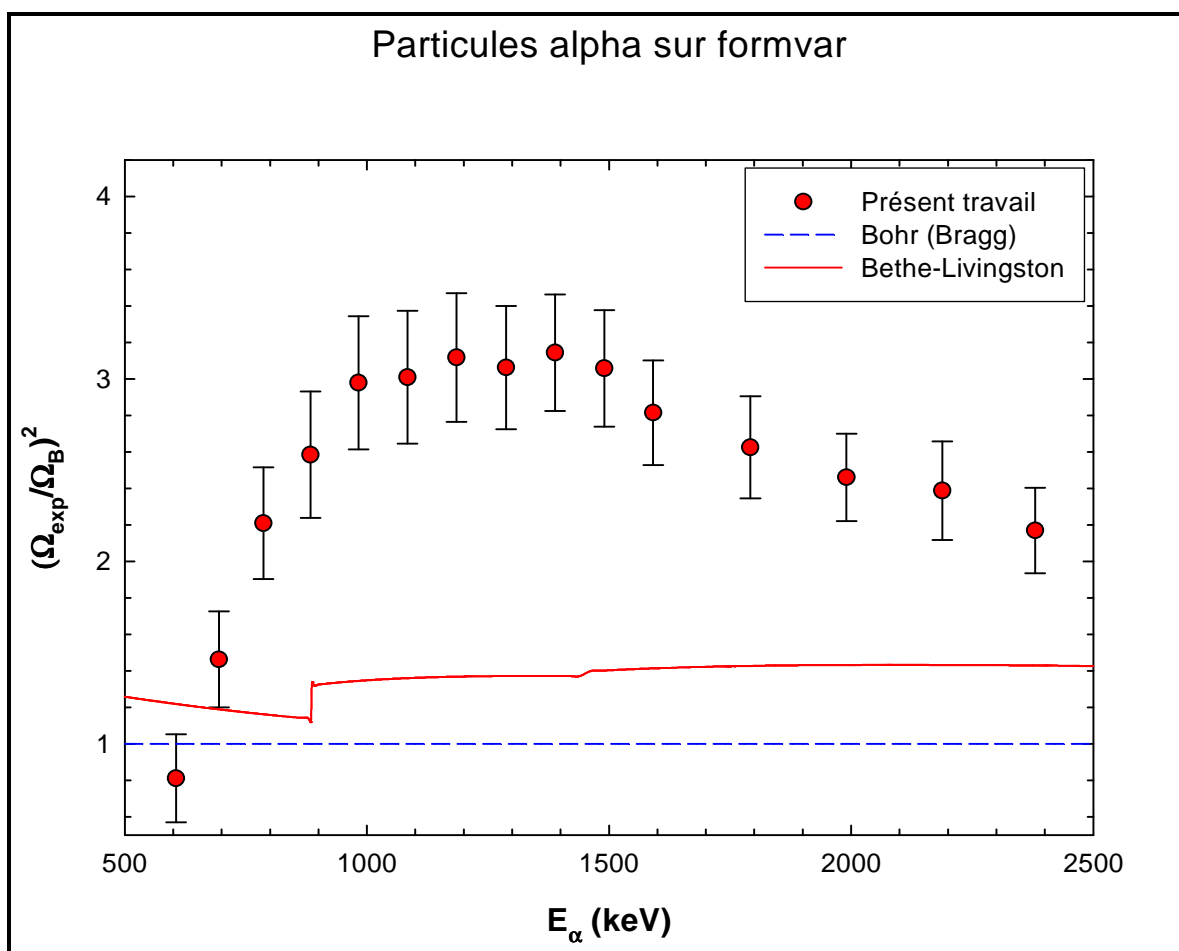


Fig. 3.14 Idem que pour Fig. 3.12 pour le cas des particules alpha dans le film de formvar.

La figure (Fig. 3. 15) montre les stragglings expérimentaux réduits des protons et des particules alpha traversant la même cible de formvar en fonction de l'énergie E du projectile sur l'intervalle commun exploré ($280 < E < 600$) keV/u. Comme attendu, les données alpha sont supérieures à celles des protons sur toute la région d'énergie considérée. En effet, les contributions du stragglings d'échange de charges et de la correction des corrélations électroniques (corrélations spatiales) [74] sont certainement plus accentuées pour les alpha que pour les protons. La contribution d'échange de charges résulte des fluctuations de l'état de charge du projectile (suite aux processus d'ionisation et de capture électronique) lors de son passage dans le milieu ralentisseur.

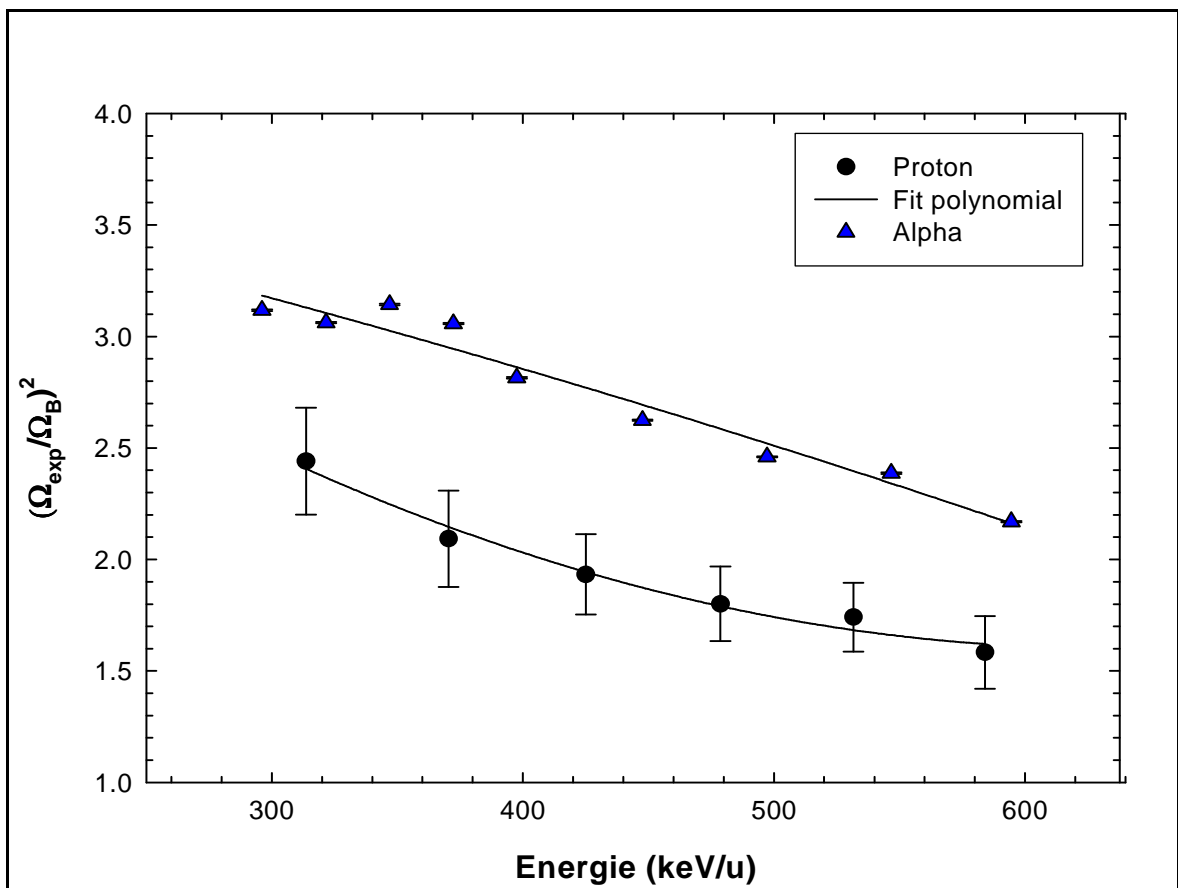


Fig. 3.15 Stragglings expérimental réduit des protons et des particules alpha traversant la même cible de formvar de $284 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ d'épaisseur en fonction de l'énergie du projectile en keV/u. Les courbes en trait plein sont obtenues par des ajustements polynomiaux d'ordre 2.

Si on suppose que la contribution de l'élargissement non stochastique est identique pour les deux types de projectiles à la même énergie, on peut alors tenter d'explorer les données de la figure (Fig. 3. 15) pour déterminer la contribution totale ($\Omega_{\text{EC}}^2 + \Delta\Omega_{\text{C}}^2$) du stragglings d'échange de charges des particules alpha (Ω_{EC}^2) et de la différence entre les corrections des corrélations électroniques ($\Delta\Omega_{\text{C}}^2$) pour les deux types de projectiles utilisés. En effet, cette

contribution peut alors être déduite approximativement de la différence entre des valeurs $\left(\frac{\Omega_{\text{exp}}}{\Omega_B}\right)^2$ des particules alpha et des protons. Cette différence a pu être reportée sur la figure (Fig. 3.16) en fonction de l'énergie E du projectile en exploitant les ajustements polynomiaux de la Fig. 3.14 ci-dessus.

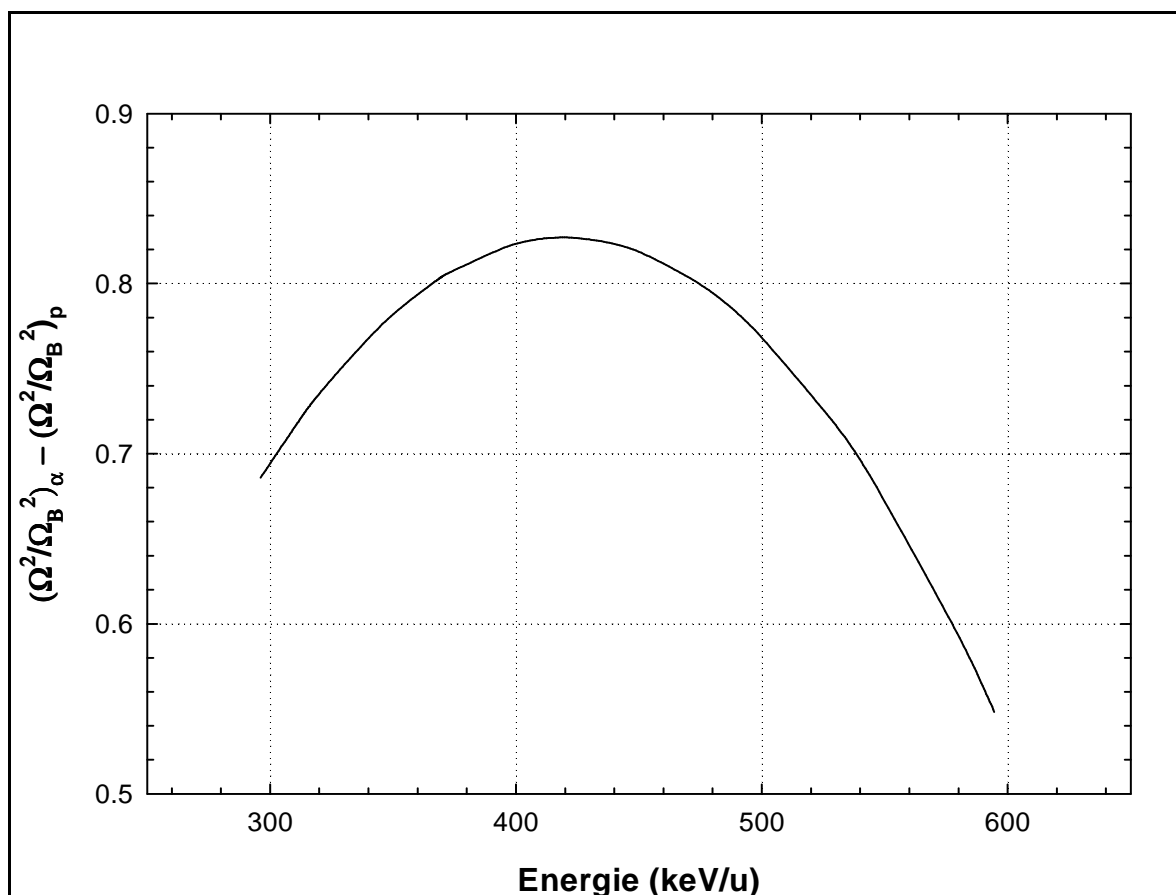


Fig. 3.16 Contribution du stragglng d'échange de charge des particules alpha et de correction de corrélations (différence entre proton et alpha) pour le film de formvar de $284 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ d'épaisseur dans la région d'énergie $E \cong (300 - 600) \text{ keV/u}$.

On peut constater que cette contribution $(\Omega_{\text{EC}}^2 + \Delta\Omega_C^2)$ dépend de l'énergie et elle est inférieure à la valeur classique de Bohr sur la gamme d'énergie $E \cong (300 - 600) \text{ keV/u}$. Enfin, Il est important de signaler que cette tentative d'extraction de $(\Omega_{\text{EC}}^2 + \Delta\Omega_C^2)$ est conditionnée par l'hypothèse que l'élargissement non stochastique est de même amplitude pour les deux ensembles de données. Par conséquent, Il est souhaitable de réduire à un niveau négligeable ces contraintes en exploitant cette région d'énergie avec des épaisseurs de cible pour lesquelles la perte d'énergie doit être de l'ordre de 10 à 15 %.

Conclusion

Dans ce travail, nous avons étudié expérimentalement le pouvoir d'arrêt et le straggling des protons et des particules alpha dans deux polymères (formvar et kapton) pour les énergies $E \cong (150 - 3300)$ keV/u. Les mesures (faites par la méthode de transmission) ont été effectuées auprès de l'accélérateur V.d.G-3.75 MV du CRNA. La calibration de ce dernier a été testée en exploitant les réactions nucléaires $^{19}\text{F}(p, \alpha\gamma)^{16}\text{O}$ et $^{27}\text{Al}(p, \gamma)^{28}\text{Si}$. Les épaisseurs des cibles utilisées ont été sondées par deux méthodes : la méthode de "pesée par surface" et celle basée sur l'utilisation des sources radioactives fines. La précision des épaisseurs déterminées par la première méthode et adoptées dans ce travail sont de $\sim 1.4\%$ et de $\sim 1.2\%$ pour le formvar et le kapton, respectivement. Les incertitudes relatives sur les mesures du pouvoir d'arrêt des protons et des particules alpha obtenues sont meilleures que 1.5% pour les deux polymères considérés alors qu'elles sont au plus égales à 15% pour les mesures du straggling. En vue d'une caractérisation qualitative, le film de formvar a été sondé par la technique NRA en utilisant un faisceau de deutons de 900 keV. Cependant, pour des analyses quantitatives, il est primordial de disposer d'un standard, d'optimiser les conditions expérimentales et surtout de tenir compte de la désorption des constituants du polymère suite aux effets d'irradiation.

Les résultats du pouvoir d'arrêt obtenus ont d'abord été comparés aux données expérimentales disponibles dans la littérature puis confrontés aux valeurs compilées dans le rapport ICRU-49 et celles générées par le code SRIM-2008 sous l'hypothèse que la relation de Bragg-Kleeman est valide. Nos données pour le kapton sont en très bon accord avec les valeurs de ICRU-49 et ce sur toute la gamme d'énergie explorée. Par rapport aux valeurs de SRIM, les données "formvar" sont globalement bien reproduites dans la région des énergies intermédiaires et élevées alors que, pour les données "kapton", l'accord n'est observé que sur une étroite région d'énergie autour de 920 keV. Pour les faibles énergies, nos données se situent légèrement au dessus des valeurs de SRIM à l'exception d'une petite région d'énergie alpha autour du maximum du pouvoir d'arrêt où elles sont, au contraire, surestimées par ce code. Cependant, les pertes d'énergie relatives des points de cette région sont très élevées ($\frac{\Delta E}{E} > 60\%$) et par conséquent la fiabilité de ces points est incertaine d'autant plus que cette région d'énergie est celle où s'opère un nombre

important de processus très complexes tels que l'échange de charge, les corrections de couches, l'effet Barkas, la structure de valence pour les composées etc....

La relation d'additivité de Bragg-Kleeman, appliquée aux deux polymères, cesse d'être valide dans la région des vitesses faibles du projectile où des écarts moyens de l'ordre 3 à 4.5% ont été observés. Cette déviation est principalement due à l'effet de la structure de valence des composés considérés dont les liaisons $C - H$ ont vraisemblablement un effet dominant. Pour le kapton, un effet supplémentaire lié aux corrélations électroniques des liaisons doubles $C = C$ et $C = O$ ne peut certainement pas être négligé.

Les données expérimentales du stragglings obtenues sont, à notre connaissance, uniques dans les régions des énergies explorées. Par conséquent, elles ont seulement été confrontées aux prédictions des modèles théoriques de Bohr, de Bethe-Livingston et Sigmund-Schinner. Les données protons montrent un comportement global identique pour les deux types de polymères étudiés. Elles sont en bon accord avec la valeur classique de Bohr dans la région des énergies élevées où l'hypothèse des électrons libres est valide alors qu'elles commencent à s'écarter de cette valeur au fur et à mesure que l'énergie des protons décroît. Elles sont aussi bien reproduites par le modèle de Bethe-Livingston dans la région des énergies intermédiaires ($700 \lesssim E_p \lesssim 1200$ keV pour le kapton et $500 < E_p < 1200$ keV pour le formvar). Pour les énergies $E_p > 1200$ keV, elles se situent en moyenne à 12% et à 15% au dessous des valeurs de Bethe-Livingston pour le kapton et le formvar, respectivement. Par ailleurs et aux erreurs expérimentales près, nos données du stragglings des protons dans le formvar sont globalement bien reproduites par la récente théorie "BCAS" de Sigmund-Schinner pour les énergies $E_p > 1000$ keV et que l'épaule du type Bethe-Livingston observé dans la région d'énergie $600 < E_p < 1500$ keV est d'environ 20% plus prononcé que celui prédit par la théorie BCAS. Cet écart peut probablement être attribué à des effets de corrélations entre les électrons de la molécule $C_5H_8O_2$ (bunching effects). Enfin, pour les pertes d'énergie élevées, les dispersions en énergie mesurées ne peuvent pas être exploitées pour la détermination de stragglings collisionnel vu que celui-ci est vraisemblablement noyé par des élargissements d'origine non stochastique. Nous avons seulement tenté de déterminer l'amplitude de la contribution du stragglings d'échange de charge des particules alpha dans le formvar augmenté de la différence entre les termes de corrélations électroniques des deux types de

projectiles en exploitant les données protons et alpha dans la région des énergies communes $E \cong (300 - 600) \text{ keV/u}$.

En perspective, la ré-investigation de la région des basses énergies par l'utilisation des cibles plus minces (perte d'énergie de l'ordre de 10 à 15 %) permettra certainement de lever quelques contraintes rencontrées dans ce travail. En particulier, la réduction, à un niveau négligeable, de l'élargissement d'origine non stochastique va nous permettre d'extraire les contributions du stragglings collisionnel et du stragglings d'échange de charge. Par ailleurs, nous préconiserons d'effectuer des mesures de pertes d'énergie en cibles fixes en vue de réduire, entre autres, l'effet de rugosité des surfaces de ces dernières.

Références bibliographiques

- [1] N. Bohr, *Philos. Mag.* 25 (1913) 10.
- [2] N. Bohr, *Philos. Mag.* 30 (1915) 581.
- [3] N. Bohr, *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk* 18, No. 8 (1948); N. Bohr, *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk* 24, No. 19 (1948).
- [4] H. Bethe, *Ann. Physik.* 5 (1930) 324.
- [5] H. Bethe, *Z. F. Physik* 76 (1932) 293.
- [6] H. Bethe and W. Heitler, *Proc. Roy. Soc.* A146 (1934) 83.
- [7] F. Bloch, *Ann. Physik.* 16 (1933) 285
- [8] J. Lindhard, M. Scharff, *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk*, 27(1953).
- [9] J. Lindhard, *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk*, 28 N°8(1954).
- [10] J. Lindhard, M. Scharff and H.E. Schiott, *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk*, 33, N°14(1963).
- [11] J. Lindhard and A. Winter, *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk*, 34, N°14(1964).
- [12] O.B. Firsov, *Zh. Eksp.Teor. Fiz.* 36, 1517-1523 (1959) [English Translation: *Sov.Phys. JETP* 9 (1959) 1076-1080
- [13] W. Born, *Z. Phys.*, 38(1926) 803.
- [14] Cohen-Tannoudji , *Mécanique Quantique* , Tome 2, Ed. Hermann (1977).
- [15] ICRU report 49, *Stopping Powers and Ranges for Protons and Alpha Particles*, International Commission on Radiation Units and Measurements, (1993).
- [16] J.F. Ziegler, *J. Appl. Phys.* 85 (1999) 1249.
- [17] H. Bichsel, *Phys. Rev. A* 65 (2002) 52709
- [18] P. Sigmund and A. Schinner, *Euro. Phys. J. D* 12, (2000) 425-431.
- [19] P. Sigmund, A. Schinner, *Nucl. Instr. and Meth. B* 195 (2002) 64.
- [20] P. Sigmund, "Particle Penetration and Radiation Effects" *Springer Series in Solid-State Sciences* (2006).
- [21] F.J. Ziegler, J.P. Biersack, U. Littmark, "The stopping and range of ions insolids". in: *The Stopping and Ranges of Ions in Matter*, edited by J.F. Ziegler, Pergamon press, New York, vol. 1 (1985) 1.
- [22] F. Hubert, R. Bimbot and H. Gauvin, "Range and stopping-power tables for 2.5-500 MeV/nucleon heavy ions in solids" *At. Data Nucl. Data Tables* 46 (1990) 1.

- [23] J.F. Ziegler, J.P. Biersack, SRIM-2003 computer code, version SRIM-2003.17, (2003).
- [24] H. Paul, "Stopping power for light ions" www.exphys.uni-linz.ac.at/stopping.
- [25] M. S. Livingston, H.A. Bethe, Rev. Mod. Phys. 9 (1937) 245.
- [26] S. Titeica, Bull. Soc. Rou. Phys. 38(1939) 81.
- [27] C. Tschalar, Nucl. Instr. and Meth. 61 (1968) 1; C. Tschalar, Nucl. Instr. and Meth. 64, (1968) 237.
- [28] Q. Yang, D. J. O'Connor and Zhonglie Wang, Nucl. Instr. And Meth. B61 (1991) 149.
- [29] N. Bohr, Phys. Rev. 58, 654 (1940); N. Bohr, Phys. Rev. 59 (1941) 270.
- [30] W.H. Bragg, R. Kleeman, Philos. Mag. 10 (1905) 318.
- [31] S. Damache, D. Moussa, S. Ouichaoui, Nucl. Instr. and Meth. B 268 (2010) 1759.
- [32] F. Ajzenberg-Selove, Nucl. Phys. A 475 (1987) 1.
- [33] M. L. Roush, L. A. West and J. B. Marion, Nucl. Phys. A147 (1970) 235.
- [34] D. Moussa, S. Damache, S. Ouichaoui, L. Amari, 4ième Conférence Nationale sur les Rayonnements et leurs Applications (CNRA'2011), USTHB – Alger - (2011).
- [35] C. Pascual-Izarra, N.P. Barradas, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B 266 (2008) 1866.
- [36] N.P. Barradas, A.R. Ramos, E. Alves, Nucl. Instr. Methods Phys. Res., Sect. B 266 (2008) 1180.
- [37] W.K. Chu, "Backscattering Spectrometry", Academic Press Inc, New York (1978).
- [38] SIMNRA program version 6.05, 30 days evaluation copy, by M. Mayer (1997-2009).
- [39] Gerhard Lutz, Semiconductor Radiation Detectors: Device Physics, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York (1999).
- [40] <http://www.ortec-online.com/detectors/chargedparticule/ultra.htm>.
- [41] MCB card: TRUMP-PCI-8K, TRUMP-PCI-2K Multichannel Buffer Card, Hardware Manual, ORTEC Part N°783530.
- [42] MAESTRO-32 MCA Emulator for Microsoft Windows 95, Windows 98, and Windows NT, A65-B32 Software User's Manual (Version 5), ORTEC Part N°777800.
- [43] SRIM-2008.04, www.SRIM.org.
- [44] S. Damache, Thèse de Doctorat d'Etat, USTHB (2007).
- [45] S. Damache, S. Ouichaoui, A. Belhout, A. Midouni, I. Toumert, Nucl. Instr. and Meth. B 225 (2004) 449.
- [46] S. Ouichaoui, L. Rosier, E. Hourany, R. Bimbot, N. Redjidal, H. Beaumevieille, Nucl. Instr. and Meth. B 95, 463 (1995).

- [47] S. Ouichaoui, E. Hourany, L. Rosier, H. Beaumevieille, B. Bouzid, S. Mammeri, Nucl. Instr. and Meth. B 164-165, 259 (2000).
- [48] R. Bimbot, S. Della Negra, D. Gardes, H. Gauvin, A. Fleury and F. Hubert, Nucl. Instr. and Meth. 153, 161(1978).
- [49] D. Moussa, S. Damache, S. Ouichaoui, 19th Int. Conf. on Ion Beam Analysis (IBA 2009), Cambridge (UK), September 07-11 (2009).
- [50] D. Moussa, S. Damache, S. Ouichaoui, Nucl. Instr. and Meth. B 268 (2010) 1754.
- [51] S. Damache, S. Ouichaoui, D. Moussa, A. Dib, Nucl. Instr. and Meth. B 249 (2006)22-25
- [52] H.H. Andersen, A.F. Garfinkel, C.C. Hanke, H. Sorensen, Mat. Fys. Medd. Dan. Vidensk. Selsk. 35 (4) (1966).
- [53] W. Jiang et al. , Nucl. Instr. and Meth. B 227 (2005) 450.
- [54] W. Jiang et al. , Nucl. Instr. and Meth. B 207 (2003) 453.
- [55] A. Gurbich, S. Molodtsov, Nucl. Instr. and Meth. B 226 (2004) 637.
- [56] J.F. Ziegler, J.P. Biersack, and U. Litmark. The Stopping and Range of Ions in Solide, Vol. 1 of The Stopping and Range of Ions in Mater. Pergamon Press, New Work, 1985.
- [57] M. Abdesselam, J. P. Stockert, S. Chami, M. Djebara, A. C. Chami, M. Siad, Nucl. Instr. and Meth. B 267 (2009)108-112.
- [58] J. R. Comfort, J. F. Decker, E. T. Lynk, M. O. Scully, and A. R. Quinton, Phys. Rev. 150(1966) 1.
- [59] J. J. Ramirez, R. M. Prior, J. B. Swint, A. R. Quinton, and R. A. Blue, Phys. Rev. 179(1969) 2.
- [60] D. G. Arbo, M. S. Grvielle, and J. E. Miraglia, Phys. Rev. A 65(2002) 042901.
- [61] J.H.R. dos Santos, P.L. Grande, M. Behar, J.F. Dias, N.R. Arista, J.C. Eckardt, G.H. Lantschner, Phys. Rev. A 68 (2003) 042903.
- [62] V. Sharma, Pratibha, T. Sharma, P.K. Diwan, S. Kumar , S.A. Khan, D.K. Avasthi, Nucl. Instr. and Meth. B 266 (2008) 1933–1937.
- [63] Pratibha , V. Sharma , P.K. Diwan, Shyam Kumar, S.A. Khan, D.K. Avasthi , Nucl. Instr. and Meth. B 266 (2008) 2556–2563.
- [64] G. Sun , M. Dobeli , A.M. Muller , M. Stocker , M. Suter, L. Wacker, Nucl. Instr. and Meth. B 256 (2007) 586–590.
- [65] N. Bohr. Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 18, 8 (1948) 1.

- [66] J.W. Mayer and E.Rimini. Ion Handbook for Material Analysis. Academic Press, New York, San Francisco, London, (1977). 91- 93, 100
- [67] P. Sigmund, K.B. Winterbon, Nucl. Instr. and Meth. B.12 (1985) 1-16
- [68] LeV.Glazov, P. Sigmund, Nucl. Instr. and Meth. B.170 (2000) 39-45
- [69] LeV.Glazov, Nucl. Instr. and Meth. B.161-163 (2000) 1; Lev.G. Glazov, Nucl. Instr. and Meth. B.192 (2002) 239.
- [70] P. Sigmund, K.B. Winterbon, Nucl. Instr. and Meth. B.12 (1985) 1.
- [71] C. Tschalar, Nucl. Instr. and Meth. 61 (1968) 141; C. Tschalar, Nucl. Instr. and Meth. 64 (1968) 237.
- [72] R. Ishiwari, N. Shiomi-Tsuda, N. Sakamoto, H. Ogawa, Nucl. Instr. and Meth. B 47, (1990)111.
- [73] H.A. Bethe and J. Ashkin, Passage of Radiations through Matter, in: E. Segre (ed.), Experimental Nuclear Physics, Vol. 1, Wiley, New York (1953).
- [74] F. Besenbacher, J.U. Andersen, E. Bonderup, Nuc. Instrum. Methods 168, (1980) 1.
- [75] A.J.M. Plompen, F. Munnik, J. Räsänen, U. Wätjen, J. Appl. Phys. 80 (1996) 3147.
- [76] W.E Wallace, J.B. Rothman, R.J. Composto, J. Appl. Phys. 75 (1994) 2312.
- [77] E. Rauhala, J. Räsänen, Nucl. Instr. and Meth Phys. Res. B 35 (1988) 130.
- [78] P. Sigmund, Communication privée.
- [79] F. Munnik, A.J.M. Plompen, J. Räsänen, U. Wätjen, AIP Conf. Proc. 392 (1997) 1385.
- [80] D. Boutard, W. Möller and B.M.U. Scherzer, Phys. Rev. B38 (1988) 2988.
- [81] ICRU report 73, Stopping of Ions Heavier Than Helium, International Commission on Radiation Units and Measurements, (2005).
- [82] P. Sigmund and A. Schinner, Euro. Phys. J. D 15, 165 (2001).