

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediène
Faculté de Physique



THESE

Présentée pour l'obtention du diplôme de Doctorat
En : Sciences Nucléaires

Par : **OUZIANE TOUMERT Souhila**

Sujet

***Mesures expérimentales et détermination théorique des sections efficaces
d'émission X induite par des protons de 1 à 2.5 MeV sur les couches L de Sm,
Yb, Au et Pb.***

Soutenue publiquement le **12 / 01 / 2008**, devant la commission d'examen :

A. C. CHAMI	Professeur USTHB	Président
A. AMOKRANE	Professeur USTHB	Directeur de thèse
Z. MELIANI	Professeur USTHB	Examineur
M. NEKKAB	Professeur, U. Sétif	Examineur
A. NOURREDDINE	Professeur, l'IPHC, Strasbourg	Examineur
S. TOBBECHE	Maître de Conférences U. Batna	Examineur

A la mémoire de mon père,
à ma mère,
je dédie ce travail.

Remerciements

Ce travail a été réalisé au sein du groupe radioprotection et mesures environnementales (Ramses) de l'institut pluridisciplinaire Hubert Curien (IPHC ex IReS) de Strasbourg, France.

J'adresse mes remerciements à monsieur, A. Nourreddine, professeur à l'institut pluridisciplinaire Hubert Curien (ex IRES) de Strasbourg, pour m'avoir réservée le meilleur accueil dans son laboratoire et d'avoir réuni les conditions nécessaires à l'aboutissement de ce travail. Je le remercie également d'avoir accepté d'examiner ce travail.

Je remercie Monsieur A. Chami, Professeur à l'USTHB d'Alger d'avoir bien voulu me faire l'honneur de présider ce jury.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude à Monsieur A. Amokrane, Professeur à l'USTHB d'Alger, qui a assuré la direction de ce travail et son aide constante qui m'ont permis de mener à terme ce travail.

J'exprime mes sincères remerciements à Madame Z. Meliani, Professeur à l'USTHB d'Alger, pour son soutien et d'avoir accepté d'examiner ce travail.

Mes remerciements vont aussi à Messieurs M. Nekkab, professeur à l'université de Sétif et S. Tobbèche, Maître de Conférences à l'université de Batna, pour l'attention particulière qu'ils m'ont fait en participant au jury.

Ma reconnaissance particulière et profonde va à monsieur Arture Pape, Membre du groupe Rameses, pour m'avoir fait bénéficier de sa grande expérience et sa constante disponibilité durant la réalisation de la partie expérimentale de ce travail.

J'associe à mes remerciements, l'ensemble du groupe Ramses de Strasbourg pour leur contribution d'une manière ou d'une autre à la partie expérimentale de ce travail.

Je ne peux clore ces remerciements sans en adresser à mon époux Idir qui a été très compréhensif et co-opératif tout au long de ce travail. Je lui en suis fortement reconnaissante.

SOMMAIRE

INTRODUCTION GENERALE	1
-----------------------	---

CHAPITRE I

THEORIE DE L'EMISSION X

I. 1. Principe de production de rayons X	4
I. 2. Section efficaces d'ionisation et section efficace d'émission X	8
I. 2. 1. Rendement de fluorescence	8
I. 2. 2. Section efficace d'ionisation	10
I. 2. 2. 1. Modèle PWBA	10
I. 2. 2. 2. Modèle ECPSSR	13
I. 2. 2. 2. 1. Correction de l'énergie de liaison	13
I. 2. 2. 2. 2. Déviation coulombienne	14
I. 2. 2. 2. 3. Correction relativiste	15
I. 2. 2. 2. 4. Correction de perte d'énergie	15
I. 2. 3. Section efficace d'émission X	16

CHAPITRE II

METHODE ET TECHNIQUE EXPERIMENTALES

II. 1. Introduction	18
II. 2. Préparation des cibles	18
II. 3. Dispositif expérimental	19
II. 3. 1. Faisceau	19
II. 3. 2. Chambre à réaction	19

II. 4. Détecteurs utilisés et électronique associée	22
II. 4. 1. Détection de rayons X	22
II. 4. 2. Détection des particules rétrodiffusées	24
II. 5. Analyse des spectres	24
II. 5. 1. Spectre de rayons X	24
II. 5. 1. 1. Forme analytique d'une raie caractéristique	25
II. 5. 1. 2. Forme analytique d'un groupe de raies caractéristiques	25
II. 5. 1. 3. Soustraction du bruit de fond	26
II. 5. 2. Spectres de rétrodiffusion (RBS)	28
II. 6. Calcul des sections efficaces expérimentales d'émission X	28
II. 6. 1. Détermination de l'angle solide	30
II. 6. 2. Détermination du coefficient d'absorption	31
II. 6. 3. Détermination expérimentale de l'efficacité du détecteur	31

CHAPITRE III:

ANALYSE ET DISCUSSION DES RESULTATS

III. 1. Présentation des Spectres expérimentaux	34
III. 2. Calcul du nombre de rayons X des raies caractéristiques	34
III. 3. Présentation des résultats expérimentaux	35
III. 4. Précision sur la mesure expérimentale de la section efficace	40
III. 5. Discussion des résultats expérimentaux	41
III. 6. Rapport des intensités	49
III. 7. Présentation et discussion des rapports des intensités	50
III. 7. 1. Présentation des rapports des intensités	50
III. 7. 2. Discussion des résultats	52
CONCLUSION GENERALE	55
ANNEXE	57

INTRODUCTION GENERALE

Dans les dernières décennies, l'étude de l'ionisation des couches atomiques internes a été l'objet d'une grande attention dans le but de mieux comprendre les aspects théorique et expérimental de la collision ion-atome. Les informations obtenues sont très utiles d'une part pour le développement de différents domaines de la physique expérimentale telles que : la physique des plasma, l'implantation ionique et notamment dans le développement de la technique d'analyse PIXE (Particules Induced X-ray Emission), d'autre part pour le développement des modèles théoriques. Initialement, la plupart des données expérimentales ont été obtenues avec des ions légers (principalement des protons) et uniquement pour l'ionisation de la couche K [Pau-80], [Pau-86] et [Pau-89]. Le développement des détecteurs à semi-conducteur et l'utilisation des ions lourds, a permis d'élargir les mesures aux ionisations des couches L et M par des ions légers et lourds. Alors que la situation des données expérimentales concernant les sections efficaces d'émission X de la couche K est satisfaisante [Pau-93], elle est loin de l'être pour la couche L.

Les travaux expérimentaux concernant les sections efficaces d'ionisation et de production des rayons X des couches L par des protons ou des particules α dépendent de l'énergie de l'élément utilisés ainsi que des conditions expérimentales.

En 1976, Hardt et Watson [Har-76] publient la première tabulation des sections efficaces d'émission X (principalement la section efficace totale) pour des protons et des ions lourds. Ce travail est suivi par la suite en 1982 par la compilation de Heitz et al [Hei-82] dont les données sont restées incomplètes.

La plus complète et récente compilation contenant les sections efficaces individuelles (L_1 , L_2 et L_3) des couches L et les sections efficaces d'ionisation était publiée en 1984 par Sokhi et Crumpton [Sok-84] pour les éléments de $18 \leq Z \leq 92$. Elle est suivie par la table d'Orlic et al [Orl-94] qui est une continuité de celle de Sokhi. Elle regroupe les données reprises dans la littérature entre 1982 à 1992 concernant à peu près 534 valeurs pour L_α , 484 pour L_β et L_γ .

Cependant d'autres travaux individuels sont réalisés et continuent de l'être jusqu'à ce jour afin de mieux comprendre l'ionisation de la couche L. Nous citons ceux relatifs aux éléments nouveaux de Sm, Yb, Au et Pb :

- (i) Singh et al [Sin-03] présentent les sections efficaces Ir, Pt, Pb et Bi avec des rayons γ de 5.9 MeV.
- (ii) Goudarzi et al [Gou-06] les ont mesurées pour Ta, W, Pt, Au, Pb et Bi avec des protons d'énergie comprise entre 0.7 et 2.4 MeV en donnant pour la première fois la section efficace individuelle L_ℓ .
- (iii) Fazinic et al [Faz-94] ont donné les sections efficaces pour Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Sm et Yb avec des protons de 2 à 6 MeV.
- (iv) Hajivaliei et al [Haj-00] ont effectué des mesures pour les éléments de terres rares en utilisant des protons de 20 MeV à 25 MeV.

Plusieurs modèles théoriques ont été élaborés et développés pour décrire le processus d'ionisation des couches atomiques. Le premier modèle PWBA (Plane Wave Born Approximation) qui est le plus utilisé a été formulé par Merzbacher et Lewis en 1958 [Mer-58]. Dans ce modèle on utilise la théorie des perturbations pour décrire l'ionisation d'un atome par une particule chargée. Les prédictions théoriques de ce modèle ont vite montré un écart important par rapport à l'expérience en particulier aux basses énergies ($E < 1$ MeV). Il a été amélioré après par Brandt et Lapicki [Bra – 74], qui ont apporté une série de corrections pour obtenir finalement le modèle ECPSSR. Ces corrections consistent à prendre en compte : la déviation du projectile par le champ coulombien dû au noyau (C), la perturbation des états stationnaires atomiques par le projectile (PSS), les effets relativistes (R) et la perte d'énergie (E) durant la collision, effets qui ont été négligés au départ dans l'approximation de l'onde plane de Born. Nous trouvons également le modèle RPWBA-BC qui diffère du modèle ECPSSR dans le traitement relativiste.

Enrichir d'avantage ces compilations est l'objectif de notre travail et ce à travers l'étude de l'émission X résultant de l'ionisation des couches L. L'émission X quantifiée en section efficace de production X est un paramètre caractéristique d'une couche d'un élément donné. Notre travail consiste essentiellement en la détermination des sections efficaces expérimentales des raies L, constitués de trois groupes principaux: L_α , L_β et L_γ et de la raie

secondaire L_ℓ . Nous comparerons par la suite les résultats expérimentaux aux valeurs théoriques déterminées dans le cadre du modèle ECPSSR.

Les sections efficaces d'émission X auxquelles nous nous sommes intéressés dans ce travail correspondent aux éléments suivants: Sm, Yb, Au et Pb irradiés avec un faisceau de protons d'énergie entre 1 MeV et 2.5 MeV.

Dans ce travail, nous nous sommes également intéressés au rapport des intensités qui est aussi un paramètre d'importance considérable dans l'analyse quantitative et en particulier dans la résolution du problème d'interférences des pics d'éléments différents dans un spectre de rayons X. Il est important de noter que la détermination des rapports des intensités peut-être effectuée avec plus de précision que la section efficace absolue. Plusieurs travaux ont été effectués dans ce sens [Coh 86], [Xu-91], [haj-00].

La deuxième partie de ce travail sera consacrée à la détermination expérimentale des rapports des intensités L_α/L_ℓ , L_α/L_β et L_α/L_γ des éléments analysés (Sm, Yb, Au, Pb).

Dans le premier chapitre, nous décrirons les modèles théoriques d'ionisation des couches atomiques par des particules chargées que nous avons utilisé. Le deuxième chapitre sera consacré à la description du dispositif expérimental utilisé où en particulier nous présenterons des exemples de spectres d'émission X et de rétrodiffusion afin d'illustrer les techniques utilisées.

Les résultats expérimentaux de sections efficaces de production X et la comparaison avec les prédictions théoriques du modèle, ECPSSR seront présentés dans le chapitre 3. Nous y discuterons également les résultats obtenus sur les rapports des intensités.

Chapitre I: Théorie de l'émission X

I. 1. Principe de production de rayons X:

Le bombardement d'un échantillon constitué d'un élément pur par un rayonnement électromagnétique (X ou γ) ou par un faisceau de particules chargées (protons ou ions lourds) engendre l'excitation des atomes de la cible induisant l'éjection d'électrons d'une couche interne i. Ceux - ci sont remplacés en un temps très court (entre 10^{-14} à 10^{-17} s) par un électron d'une couche externe j, donnant lieu à :

(i) l'émission directe d'un photon X caractéristique de l'élément dont l'énergie est donnée par la relation suivante:

$$h\nu = E_i - E_j \quad (\text{I-1})$$

où: E_i et E_j sont respectivement les énergies de liaison de l'électron dans les couches atomiques i et j.

h est la constante de Planck,

ν étant la fréquence du rayonnement X émis.

Ce type d'émission est dite transition caractéristique et constitue le principe de base de l'émission X.

(ii) l'émission indirecte où la différence d'énergie entre les couches précédentes est transférée à un électron d'une couche plus externe qui sera éjecté avec une énergie cinétique égale à:

$$E_{\text{Auger}} = (E_i - E_j) - E_{j'} \quad (\text{I-2})$$

E_{Auger} est l'énergie de l'électron éjecté dit électron Auger.

Ce type de processus appelé "effet Auger". Il peut également se produire entre deux sous couches d'une même couche atomique et prend la dénomination de transition de Coster-Kronig.

Le mécanisme d'ionisation des couches atomiques est régi par les règles de sélection données par

$$\Delta \ell = \pm 1 \quad \Delta j = 0 \text{ ou } \pm 1$$

où: ℓ et j sont les nombres quantiques du moment cinétique orbital et du moment cinétique total, respectivement.

L'énergie E d'une raie caractéristique X d'un élément de numéro atomique Z est donnée par la loi de Moseley :

$$E = R h C (Z - \sigma)^2 \left[\frac{1}{n^2} - \frac{1}{p^2} \right] \quad (\text{I-3})$$

où: R étant la constante de Rydberg,

σ la constante d'écran,

n et p sont, respectivement, les niveaux d'énergie des couches atomiques (i et j) mis en jeu

$$R h C = 13.60 \text{ eV}$$

Les transitions sont dénommées par le nom de la couche où s'est créée la lacune, K, L, M, ...etc. Selon la couche de provenance de l'électron de remplacement la lettre est suivie d'une lettre grecque, elle même indexée d'un nombre. Par exemple les transitions vers le niveau K sont dénotées raies K. Si l'électron de remplacement vient du niveau L, on note la raie K_α et s'il vient du niveau M, K_β . A cause de la structure fine, les raies K_α et K_β sont des doublets mal résolus. Les transitions vers les niveaux L sont notées raies L. Ces dernières ont de nombreuses composantes, surtout pour les éléments lourds. Un spectre X est donc généralement très compliqué. Toutefois, certaines composantes dont la différence d'énergie est inférieure à la résolution du détecteur (raies L_{α_1} et L_{α_2}) apparaissent donc comme une seule raie. De plus, certaines transitions ont une faible intensité (raies $L_{\beta_{15}}$, $L_{\beta_{17}}$). En pratique, lors d'une analyse PIXE, les éléments légers et moyens sont détectés seulement par les deux raies K_α et K_β :

$$K_\alpha = K_{\alpha_1} (K - L_3) + K_{\alpha_2} (K + L_2)$$

$$K_\beta = K_{\beta_1} (K - M_3) + K_{\beta_2} (K - M_2)$$

Dans le spectre L des éléments lourds, on regroupe généralement les raies en trois groupes principaux:

$$L_{\alpha} = L_{\alpha_1} (L_3 - L_5) + L_{\alpha_2} (L_3 - M_4)$$

$$L_{\beta} = L_{\beta_1} (L_2 - M_3) + L_{\beta_2} (L_3 - N_5) + L_{\beta_3} (L_1 - M_3) + \dots$$

$$L_{\gamma} = L_{\gamma_1} (L_2 - N_4) + L_{\gamma_2} (L_1 - N_2) + L_{\gamma_3} (L_1 - N_3) + \dots$$

Nous résumons dans le tableau (I-1) les principales transitions atomiques permises relatives à l'ionisation de la couche L. elle sont représentées schématiquement sur la figure (I-1).

Tableau (I-1): Principales transitions atomiques permises relatives à l'ionisation de la couche L et correspondance entre la notation quantique et celle de Seigbahn.

Transition	Notation Quantique	Notation de Seigbahn
L_3-M_5	$2p_{3/2} - 3d_{5/2}$	L_{α_1}
L_3-M_4	$2p_{3/2} - 3d_{3/2}$	L_{α_2}
L_2-M_4	$2p_{1/2} - 3d_{3/2}$	L_{β_1}
L_3-N_5	$2p_{3/2} - 4d_{5/2}$	L_{β_2}
L_1-M_3	$2s_{1/2} - 3p_{3/2}$	L_{β_3}
L_1-M_2	$2sp_{1/2} - 3p_{1/2}$	L_{β_4}
L_3-N_4	$2p_{3/2} - 4d_{3/2}$	$L_{\beta_{15}}$
L_2-M_3	$2p_{1/2} - 3p_{3/2}$	$L_{\beta_{17}}$
L_1-N_4	$2s_{1/2} - 4d_{3/2}$	L_{γ_1}
L_1-N_2	$2s_{1/2} - 4p_{1/2}$	L_{γ_2}
L_1-N_3	$2s_{1/2} - 4p_{3/2}$	L_{γ_3}
L_1-O_3	$2s_{1/2} - 5p_{3/2}$	L_{γ_4}
L_1-O_2	$2s_{1/2} - 5p_{1/2}$	$L_{\gamma'_4}$
L_3-M_1	$2p_{3/2} - 3s_{1/2}$	L_{ℓ}

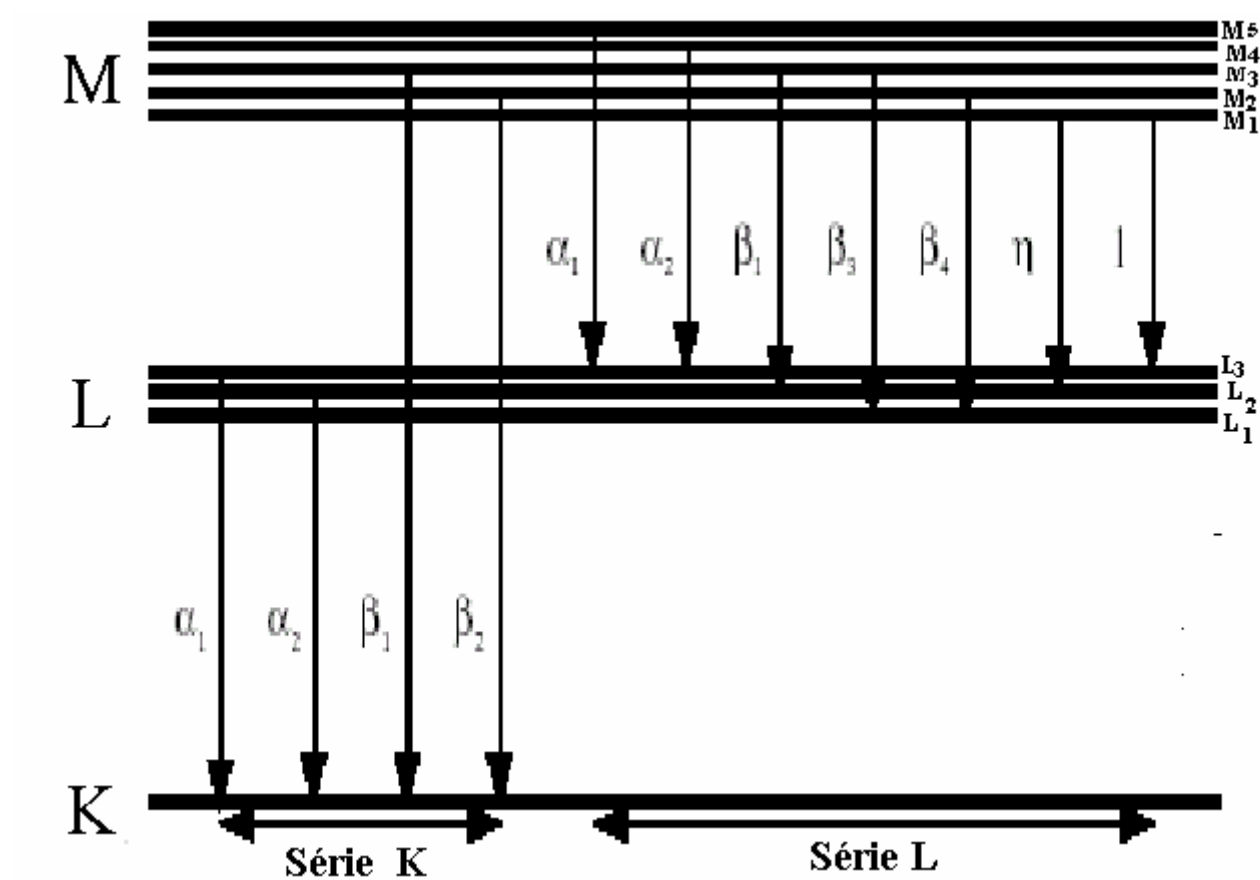


Figure (I-1) : Diagramme des transitions X entre les couches et sous-couches atomiques et
Les notations correspondantes

1. 2. Section efficace d'ionisation et section efficace d'émission X :

L'excitation des couches profondes est liée à l'interaction coulombienne des particules chargées incidentes avec les électrons des couches internes. Ce phénomène est régi par la section efficace, σ_X , de production de rayons X liée à la section efficace d'ionisation, σ_i , et au rendement de fluorescence, ω , par la relation suivante:

$$\sigma_X = \omega \sigma_i \quad (\text{I-4})$$

I. 2. 1. Rendement de fluorescence:

Il exprime la probabilité pour qu'une lacune produite dans une couche atomique soit comblée par une transition caractéristique (figure (I-2)). Il est défini par le rapport du nombre de rayons X émis au nombre de lacunes créées dans une couche atomique donnée et s'écrit:

$$\omega = \frac{N_X}{N_\ell} = \frac{N_X}{N_X + N_a} \quad (\text{I-5})$$

N_X et N_a sont le nombre de rayons X et d'électrons Auger- émis, tels que $N_X + N_e = N_\ell$, N_ℓ est le nombre de lacune.

L'expression (I-5) est valable uniquement pour la couche K. Pour les autres couches atomiques (L, M, N...) le calcul du rendement de fluorescence est plus compliqué, car il dépend des transitions de Coster-Kronig, où le rayonnement X caractéristique est absorbé par un électron d'une sous couche de la même couche où l'ionisation s'est produite. Ce type de transition conduit donc à l'altération de la distribution initiale de la lacune qu'il faut considérer pour le calcul du rendement de fluorescence. De ce fait chaque sous couche a son propre rendement de fluorescence ω_{L_i} . Nous donnons ci-dessous l'expression du rendement de fluorescence pour la couche L:

$$\omega_L = F_{L_1} \omega_{L_1} + F_{L_2} \omega_{L_2} + F_{L_3} \omega_{L_3} \quad (\text{I-6})$$

où F_{L_i} représentent les coefficients tenant compte des transitions de Coster-Kronig pour les sous couches L_i ($i = 1, 2, 3$) [Fin-66], [Bam-72]. Sur la figure (I-2), nous présentons les rendements de fluorescences des sous couches L_1 , L_2 , L_3 de la couche L d'après la tabulation de Krause [Kra-79].

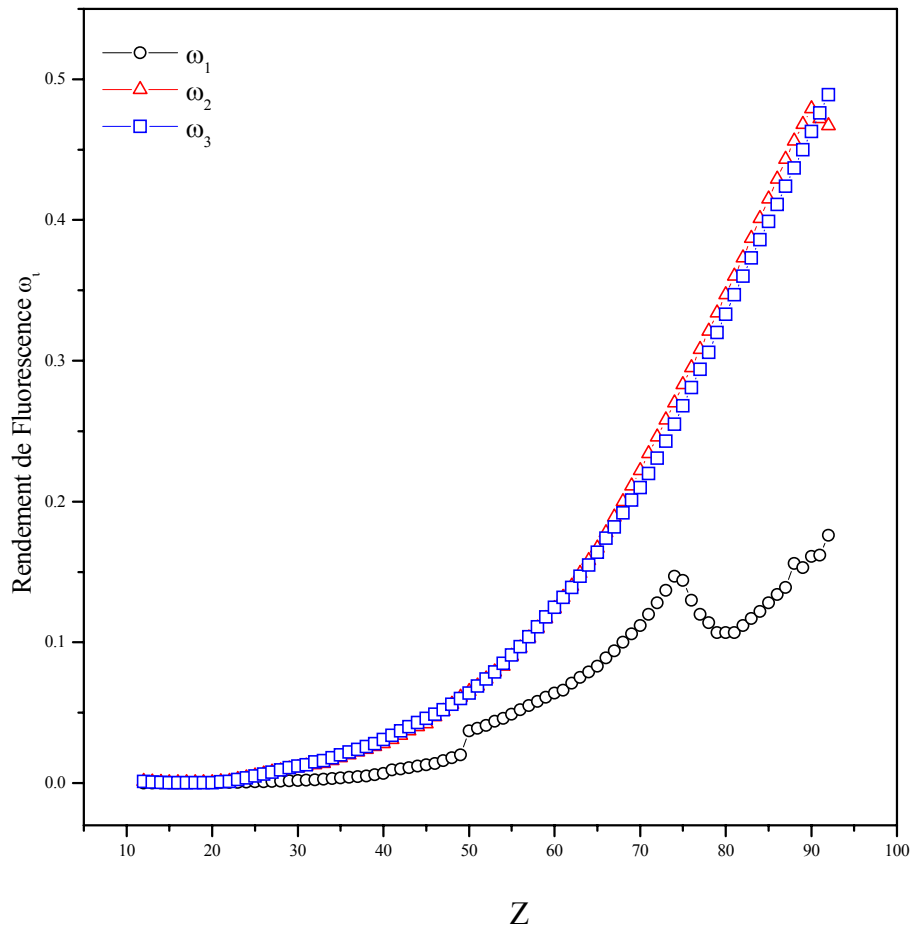


Figure (I-2): Rendements de fluorescence des sous-couches L_1 L_2 L_3 en fonction du numéro atomique Z .

I. 2. 2. Section efficace d'ionisation:

I. 2. 2. 1. Modèle PWBA:

Le premier modèle théorique utilisé pour décrire l'ionisation d'un atome par une particule chargée est le modèle de l'Approximation d'Onde Plane de Born PWBA (Plane Wave Born Approximation) élaboré pour la première fois par Merzbacher et Lewis en 1958 [Mer – 58]. Dans ce modèle on considère que l'ionisation d'une couche atomique après passage d'un ion dans la cible est résultat de l'interaction coulombienne inélastique entre le projectile et un électron lié de l'atome. On utilise la théorie des perturbations au premier ordre pour décrire cette interaction et il est basé sur les hypothèses suivantes:

- (i) L'ion incident est une charge ponctuelle de longueur d'onde inférieure à l'unité atomique et de vitesse inférieure à la vitesse de l'électron atomique. Il est décrit par des fonctions d'ondes planes avant et après la collision.
- (ii) L'électron atomique est décrit par des fonctions d'onde des hydrogénoides.

En utilisant ces deux hypothèses la section efficace d'ionisation d'une couche atomique obtenue est donnée par la relation suivante:

$$\sigma_s^{\text{PWBA}} = \sigma_{0s} \frac{1}{\eta_s} f(\eta_s, \theta_s) \quad (\text{I-7})$$

avec

$$\sigma_{0s} = \frac{(2j_{2s} + 1) 4\pi a_0^2 Z_1^2}{Z_{2s}^4} \quad (\text{I-8})$$

et

$$f(\eta_s, \theta_s) = \int_{W_{\min}}^{W_{\max}} dW \int \frac{dQ}{Q^2} |F_{Ws}(Q)|^2 \quad (\text{I-9})$$

où

$$\theta_s = n_{2s}^2 \frac{I_{2s}}{R Z_{2s}^2}, \quad \eta_s = \frac{1}{Z_{2s}^2} \left(4\pi \epsilon_0 \frac{\hbar v}{e^2} \right) = \frac{m_e E_1}{M_1 Z_{2s}^2 R}.$$

$f(\eta_s, \theta_s)$ est l'amplitude de diffusion. $F_{Ws}(Q)$ est le facteur de forme de la transition.

Q est la variable du moment transféré définie en équation 27 de l'annexe.

Z_1, Z_{2s} représentent, respectivement, le numéro atomique du projectile et la charge effective du noyau de l'atome cible $Z_{2s} = (Z_2 - 0.3)$ pour la sous couche L_1 et $Z_{2s} = (Z_2 - 1.45)$ pour les sous couches L_2 et L_3 . a_0 est le rayon de Bohr.

E_1 et M_1 sont, respectivement, l'énergie et la masse du projectile,

$Rhc = 13.6$ eV, R est la constante de Rydberg,

I_{2s} est l'énergie d'ionisation de la couche indexée s .

En introduisant la notion du temps caractéristique de la collision ion-atome (éq. 38 de l'annexe) à travers la variable ξ qui permet de séparer le régime de collisions lente ($\xi_s < 1$) et rapide ($\xi_s > 1$) (Fig. I-3), avec

$$\xi_s = \frac{2 n_{2s} \sqrt{\eta_s}}{\theta_s} \quad (\text{I-10})$$

On obtient alors la forme suivante pour la section efficace d'ionisation:

$$\sigma_s^{\text{PWBA}} = \sigma_{0s} \frac{1}{\theta_s} F_s(\xi_s, \theta_s). \quad (\text{I-11})$$

Le détail du développement du calcul de la section efficace d'ionisation dans le cadre de ce modèle est donné en annexe.

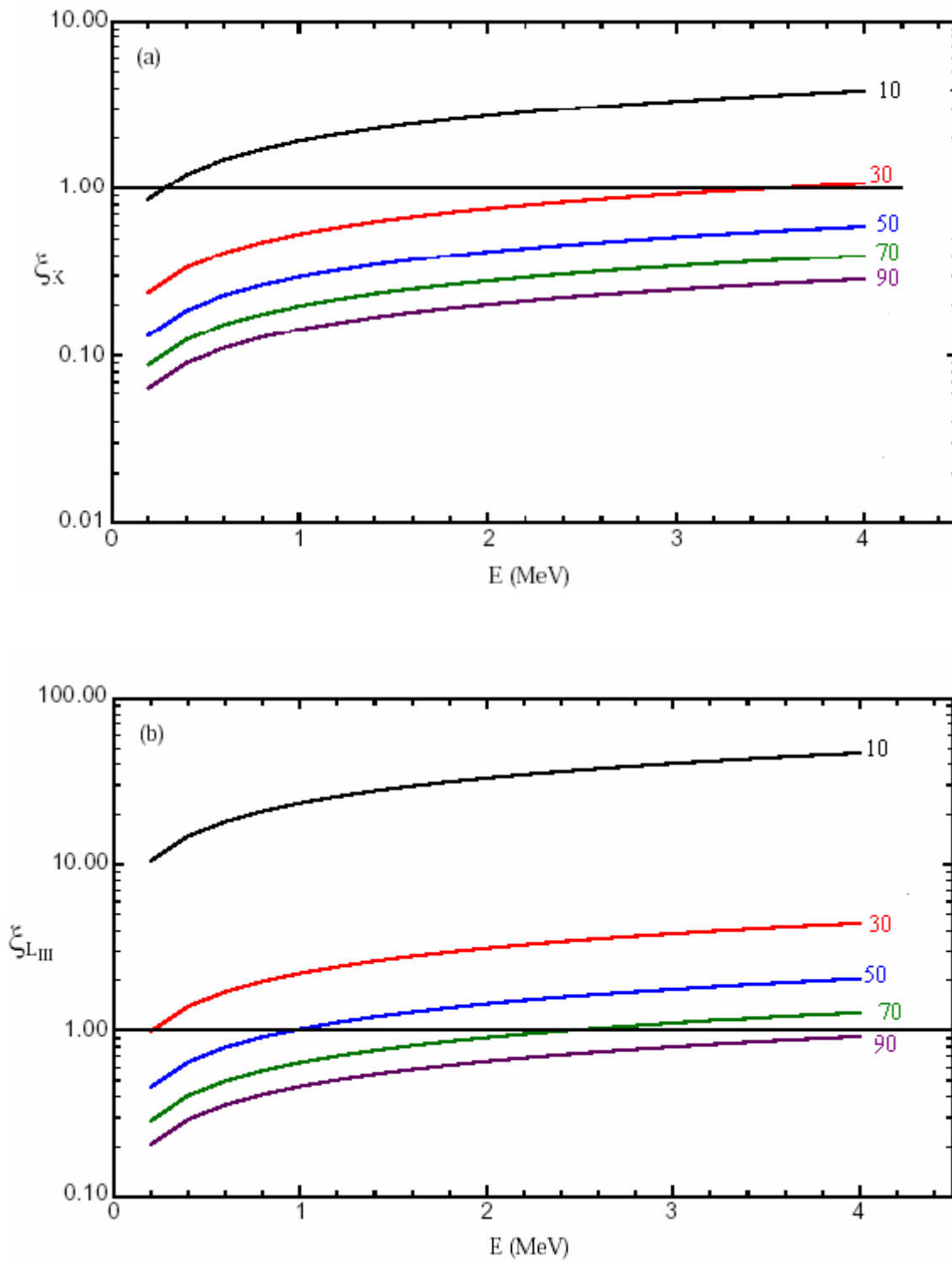


Figure (I-3). Correspondance entre l'énergie des protons incidents (en MeV) et la variable ξ_s pour différents atomes cibles ($Z_2 = 10, 30, 50, 70, 90$) (a) la couche K, (b) sous-couche LIII.

I. 2. 2. 2. Modèle ECPSSR (modèle PWBA modifié):

Ce modèle a été proposé par Brandt et Lapicki [Bra – 74], dans le but d'améliorer l'accord entre l'expérience et les calculs du modèle PWBA. Il consiste à tenir compte de certains effets qui n'étaient pas considérés directement dans l'approximation de Born. Un des effets les plus importants qui a été négligé est la déviation coulombienne de la particule incidente par le noyau cible. En effet, cette interaction empêche toute pénétration profonde de la particule dans les orbites internes, ce qui réduit la section efficace d'ionisation d'autant plus que la particule incidente est lente. De plus, dans l'approximation de Born, deux isotopes produisent la même section efficace. Or, l'isotope le plus massif pénètre plus profondément dans les orbites internes et devrait donc produire une plus grande section efficace. Toutefois, l'interaction coulombienne avec le noyau cible ne peut pas expliquer, à elle seule une si grande différence. En effet, on doit aussi tenir compte notamment des corrections venant de la perturbation des orbites électroniques provoquée par le passage de la particule chargée incidente qui entraîne une augmentation de l'énergie de liaison des électrons. Ces corrections successives ont mené à la formulation du modèle ECPSSR, qui corrige la section efficace d'ionisation calculée dans le cadre de l'approximation de Born. Outre les corrections d'énergie de liaison des électrons (PSS - Perturbed Stationnary-States) et de déviation coulombienne par le noyau (C), les effets dus au caractère relativiste des électrons (R) et à la perte d'énergie de la particule incidente lors de l'ionisation (E) sont intégrés dans la formulation de la section efficace d'ionisation.

I. 2. 2. 2. 1. Correction de l'énergie de liaison

Lors des processus d'ionisation, les états atomiques sont perturbés par le passage des particules chargées incidentes. Dans le régime de faible vitesse, c'est-à-dire pour $\xi_s \ll 1$ (eq 38 de l'annexe), les états stationnaires perturbés de l'électron de l'atome cible deviennent ceux d'une molécule diatomique avec une distance internucléaire changeante. Quand $Z_1 \ll Z_2$, les états électroniques se rapprochent de ceux d'un atome de numéro atomique $Z_1 + Z_2$ qui peut être décrit par l'approximation de Born. L'énergie de liaison des électrons atomiques augmente alors, ce qui a pour conséquence une diminution de la section efficace d'ionisation. Toutefois, pour les régimes de vitesse intermédiaire ($\xi_s \approx 1$) et élevé ($\xi_s \gg 1$), la contribution principale pour la section efficace d'une orbite s provient de la particule se trouvant dans des

zones extérieures à cette orbite. Cette particule chargée va perturber l'état stationnaire et entraîner un effet dit de polarisation qui aura comme conséquence une augmentation de la section efficace. On peut prendre en considération ces deux effets en corrigeant la section efficace de Born comme suit [Bas-73] et [Bra-74] :

$$\sigma^{\text{PSS}} = \sigma_s^{\text{PWBA}} ((\xi_s / \zeta_s), \zeta_s \theta_s) \quad (\text{I-12})$$

$$\text{où } \zeta = 1 + \frac{2 Z_1}{Z_{2s} \theta_s} (g_s(\xi_s) - h_s(\xi_s))$$

les fonctions. $g_s(\xi_s)$ et $h_s(\xi_s)$ sont définies dans les équations (42, 43 et 44) en annexe . Elles traduisent l'augmentation ou la diminution de l'énergie de liaison suivant la nature de la collision (lente, intermédiaire ou rapide).

I. 2. 2. 2. Déviation coulombienne

Pour des particules lentes, l'approximation de Born donne des valeurs de sections efficaces qui peuvent différer de plusieurs ordres de grandeur par rapport aux valeurs expérimentales. Cette différence à basse énergie provient du fait que l'approximation de Born néglige l'influence de la répulsion entre les noyaux de la particule incidente et de l'atome cible. Cette répulsion a pour conséquences un ralentissement de la particule incidente et une modification de sa trajectoire. On ne peut donc pas considérer la trajectoire des particules incidentes comme étant une ligne droite mais plutôt hyperbolique. On définit alors le coefficient $C(dq_{\min})$ qui représente la correction coulombienne [Ban – 59], [Bra-79] et [Lap-80] :

$$C_s(dq_{\min}) = (9 + 2L_2) E_{10+2L_2} (\pi dq_{\min}) \quad (\text{I-13})$$

$$\sigma_s^{\text{CPSS}} = C_s(dq_{\min} \zeta_s) \sigma_s^{\text{PWBA}} (\xi_s / \zeta_s, \zeta_s \theta_s). \quad (\text{I-14})$$

E_{10+2L} est défini dans l'équation 49 en annexe.

où $q_{\min}$ est donné par la relation (25) de l'annexe, d est la moitié de la distance d'approche dans une collision frontale (voir annexe)

I. 2. 2. 3. Correction relativiste

Cette correction tient compte du caractère relativiste des électrons des orbites internes. Ce facteur est particulièrement important pour les électrons des atomes de Z_2 élevé. On définit le facteur de correction de la masse relativiste m_s^R de l'électron comme étant [Car-77], [Bra-79] et [Lap-81]:

$$m_s^R(\xi_s) = \sqrt{1 + 1.1 y_s^2} + y_s \quad (\text{I-15})$$

$$y_{K,L_1} = \frac{0.40(Z_{2s}/c)^2}{n_s \xi_{K,L_1}} \quad y_{L_2,L_3} = \frac{0.15(Z_{2L}/c)^2}{n_s \xi_{L_2,L_3}}$$

La section efficace d'ionisation devient alors:

$$\sigma_s^{\text{CPSSR}} = C_s (d q_{\min} \zeta_s) \sigma_s^{\text{PWBA}} (\sqrt{m_s^R \xi_s / \zeta_s}, \zeta_s \theta_s). \quad (\text{I-16})$$

I. 2. 2. 4. Correction de la perte d'énergie

La dernière correction de la section efficace d'ionisation apportée à l'approximation de Born tient compte de la perte d'énergie de la particule incidente lors du processus d'ionisation. Celui-ci est intégré dans la correction coulombienne par la formulation suivante [Lap-81], [Bra-81] et [Coh-85]:

$$C_s^E(d q_{\min}) = (9 + 2L_2) E_{10+2L_2} \left(\frac{2\pi d q_{\min}}{Z_s (Z_s + 1)} \right). \quad (\text{I-17})$$

$$Z_s = \sqrt{1 - \frac{4}{M_1 \zeta_s \theta_s} \left(\frac{\zeta_s}{\xi_s} \right)^2} \quad (\text{I-18})$$

M_1 est la masse de l'ion incident

Le terme soustrait dans la relation (I-18) représente le rapport de la perte d'énergie de la particule incidente lors de l'ionisation et de son énergie cinétique. On obtient finalement la section efficace d'ionisation dans le modèle ECPSSR:

$$\sigma_s^{\text{ECPSSR}} = C_s^E(d q_{\min} \zeta_s) \sigma_s^{\text{PWBA}} (\sqrt{m_s^R (\xi_s / \zeta_s)} \xi_s / \zeta_s, \zeta_s \theta_s). \quad (\text{I-19})$$

I. 2. 3. Section efficace d'émission X:

Les sections efficaces théoriques d'émission X de la couche L sont calculées à partir des sections efficaces d'ionisation au moyen des relations suivantes [Taw-74]:

$$\sigma_{L_\alpha} = [\sigma_{L_1} (f_{13} + f_{12} f_{23}) + \sigma_{L_2} f_{23} + \sigma_{L_3}] \omega_3 S_{3\alpha} \quad (I-20)$$

$$\sigma_{L_\ell} = [\sigma_{L_1} (f_{13} + f_{12} f_{23}) + \sigma_{L_2} f_{23} + \sigma_{L_3}] \omega_3 S_{3\ell} \quad (I-21)$$

$$\sigma_{L_\beta} = \sigma_{L_1} \omega_1 S_{1\beta} + (f_{12} \sigma_{L_1} + \sigma_{L_2}) \omega_2 S_{2\beta} + [\sigma_{L_1} (f_{13} + f_{12} f_{23}) + \sigma_{L_2} f_{23} + \sigma_{L_3}] \omega_3 S_{3\beta} \quad (I-22)$$

$$\sigma_{L_\gamma} = \sigma_{L_1} \omega_1 S_{1\gamma} + (f_{12} \sigma_{L_1} + \sigma_{L_2}) \omega_2 S_{2\gamma} \quad (I-23)$$

$$\sigma_{L_{tot}} = v_1 \sigma_{L_1} + v_2 \sigma_{L_2} + v_3 \sigma_{L_3} \quad (I-24)$$

où $v_1 = \omega_1 + f_{12} \omega_2 + (f_{13} + f_{12} f_{23}) \omega_3$, $v_2 = \omega_2 + f_{23} \omega_3$, $v_3 = \omega_3$

σ_{L_i} sont les sections efficaces de la sous-couche L_i ($i = 1, 2, 3$). Elles sont tabulées par Cohen et al [Coh-85],

ω_i et f_{ij} sont, respectivement, les rendements de fluorescence de la sous-couche L_i et les coefficients de Coster-Kronig tabulés par Krause [Kra-74],

S_{ij} représente la fraction de la largeur radiative de la sous-couche L_i (L_1, L_2 et L_3) incluse dans la raie spectrale i ($i = \alpha, \beta, \gamma$, ou ℓ) [Sco-74].

Les rendements ω_i et les coefficients de Coster-Kronig des éléments analysés sont portés dans le tableau (I-2).

Nous avons calculé, à partir de la tabulation de Scofield [Sco-74], les fractions des largeurs radiatives, S_{ij} , pour les différents éléments cibles (Tableau (I-3)).

Tableau (I- 2): Rendements de fluorescences et coefficients de Coster-Kronig des éléments analysés [Kra-74]

Elément	ω_1	ω_2	ω_3	f_{12}	f_{13}	f_{23}
Sm	0.071	0.140	0.139	0.19	0.3	0.15
Yb	0.112	0.222	0.210	0.19	0.29	0.138
Au	0.107	0.334	0.32	0.14	0.53	0.122
Pb	0.112	0.373	0.36	0.12	0.58	0.116

Tableau (I-3): Fractions des largeurs radiatives des cibles analysées [Sco-74].

Elément	$S_{3\alpha}$	$S_{1\beta}$	$S_{2\beta}$	$S_{3\beta}$	$S_{1\gamma}$	$S_{2\gamma}$	$S_{3\ell}$
Sm	0.82	0.78	0.83	0.14	0.19	0.15	0.03
Yb	0.81	0.77	0.82	0.13	0.2	0.15	0.03
Au	0.79	0.74	0.79	0.14	0.19	0.16	0.04
Pb	0.78	0.73	0.15	0.79	0.21	0.18	0.04

Chapitre II: Méthode et technique expérimentales

II.1. INTRODUCTION :

Les sections efficaces expérimentales de production des rayonnements X sont déterminées à partir de la mesure du nombre de photons émis après l'irradiation des cibles par des particules chargées (protons dans notre cas). Les sections efficaces sont calculées par l'utilisation simultanée de deux techniques d'analyse PIXE et RBS. Ceci afin d'éviter la mesure de l'épaisseur de la cible et de l'intensité du faisceau incident et donc de réduire les sources d'erreurs.

Les mesures expérimentales ont été réalisées pour les éléments Sm, Yb, Au, Pb, en utilisant un faisceau de protons d'énergie comprise entre 1 et 2.5 MeV fourni par l'accélérateur VAN de GRAAFF du Centre National de Recherche Subatomique de Strasbourg, dans le cadre d'une collaboration avec l'équipe du Professeur Nourredine (laboratoire Radioprotection et mesures environnementales, Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien (IPHC ex IReS), Strasbourg, France)

II. 2. Préparation des cibles:

Nous avons d'abord entrepris l'étude des éléments samarium et l'ytterbium car il existe peu de données concernant les sections efficaces d'émission X, dans la littérature notamment aux énergies au dessus de 1.8 MeV pour les raies L_α , L_β et L_γ et leur indisponibilité pour la raie L_ℓ .

Vu le degré de toxicité des éléments lourds tels que Au et le Pb dans les milieux pollués, il est intéressant d'avoir des données aussi complètes que possible. C'est pourquoi nous nous sommes intéressé à la mesure des sections efficaces de production X de l'Au et le Pb.

Les échantillons analysés ont été mis sous forme de cibles minces préparées à partir des éléments purs (99.8 %) déposés sur des films de carbone de $30 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. Les cibles ont été réalisées par évaporation par chauffage direct dans un creuset en tantale. La vérification de l'épaisseur du dépôt est effectuée par un quartz piézo électrique calibré (figure (II-2)). Celle-ci est de $150 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ pour Sm et de $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ pour Yb, Au et Pb.

Des cibles minces ont été utilisées afin d'éviter les effets secondaires suivants:

- Auto absorption des rayons X dans la cible.
- Un bruit de fond élevé dans les spectres de rayons X pouvant rendre le dépouillement difficile.

Il est à noter que les cibles analysées ont été déposées, en plus du film de carbone, sur un support en graphite de 2 mm d'épaisseur afin de faciliter leur manipulation.

II. 3. Dispositif expérimental:

Le dispositif expérimental utilisé est représenté schématiquement sur la figure (II-1). Il est constitué, outre l'accélérateur, d'une chambre à réaction munie d'un système de détection.

II. 3. 1. Faisceau :

Le faisceau est délivré par l'accélérateur muni d'une source d'ion de haute fréquence. Les ions H^+ sont accélérés par le tube accélérateur à une énergie comprise entre 1.0 et 2.5 MeV. Le faisceau passe d'abord à travers un aimant d'analyse qui le défléchit vers la chambre à réaction d'un angle de 90° (voir figure (II-1)) afin de déterminer de façon précise son énergie.

La focalisation du faisceau est assurée à l'aide d'un aimant quadrupolaire et des collimateurs de 1mm de diamètre, dont l'un est placé à l'entrée de la chambre à réaction permettant aussi d'ajuster la section du faisceau à 1 mm^2 sur la cible.

La résolution en énergie du faisceau incident est de 1%. La gamme d'énergie utilisée se situe entre 1.0 à 2.5 MeV en raison d'un temps mort trop élevé et d'un bruit de fond important rendant les spectres inexploitable. L'intensité du faisceau incident est pratiquement stable, choisie de 5 à 7 nA de manière à ne pas endommager l'échantillon.

II. 3. 2. Chambre à réaction

La chambre à réaction est une enceinte de forme cylindrique en dural. Elle est munie :

- d'un système de pompage assurant un vide de 10^{-6} Torr à l'intérieur de la chambre,
- d'un plateau porte cible circulaire permettant de loger 36 échantillons, de façon à les analyser successivement sans rompre le vide dans l'enceinte,
- un orifice pour l'entrée du faisceau incident, où se trouve un collimateur en graphite de 1 mm^2 de section.
- un orifice fermé par une fenêtre de mylar de $50\text{ }\mu\text{m}$ d'épaisseur placée à 90° par rapport à la direction du faisceau incident pour la sortie des rayons X vers le détecteur placé à l'extérieur.
- un orifice pour une cage de Faraday reliée à un intégrateur de courant permettant la lecture de la charge collectée.

La chambre à réaction est représentée sur la figure (II-3).



Figure (II-1): Dispositif expérimental utilisé.

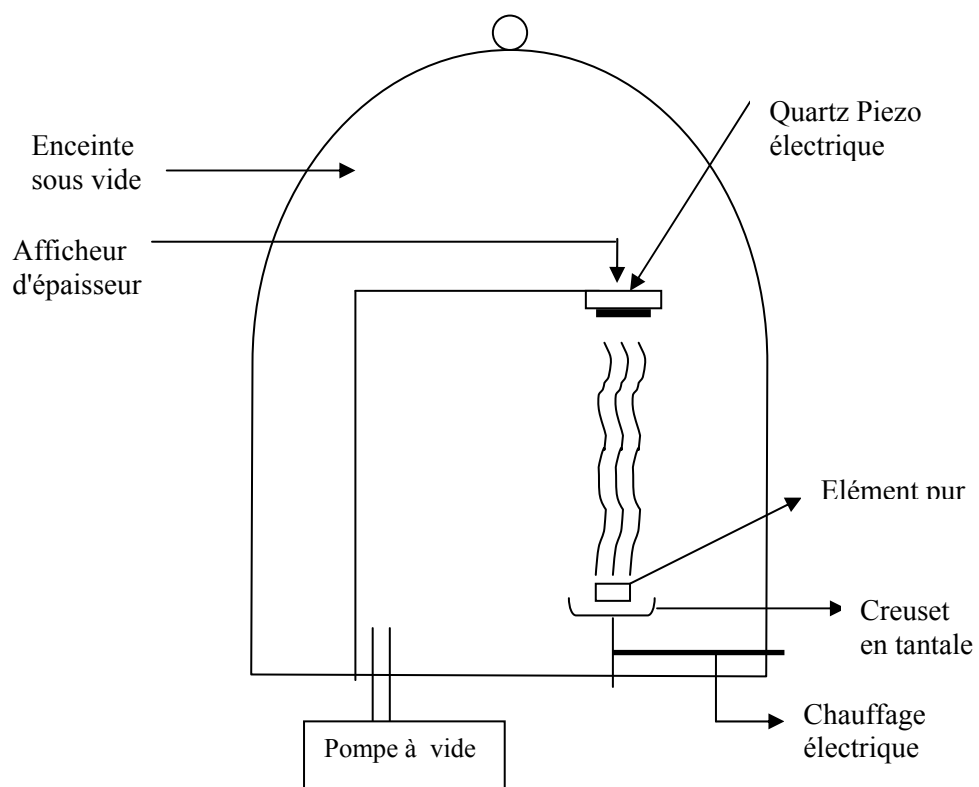


Figure (II-2): Schéma représentant l'évaporateur utilisé pour la préparation des cibles

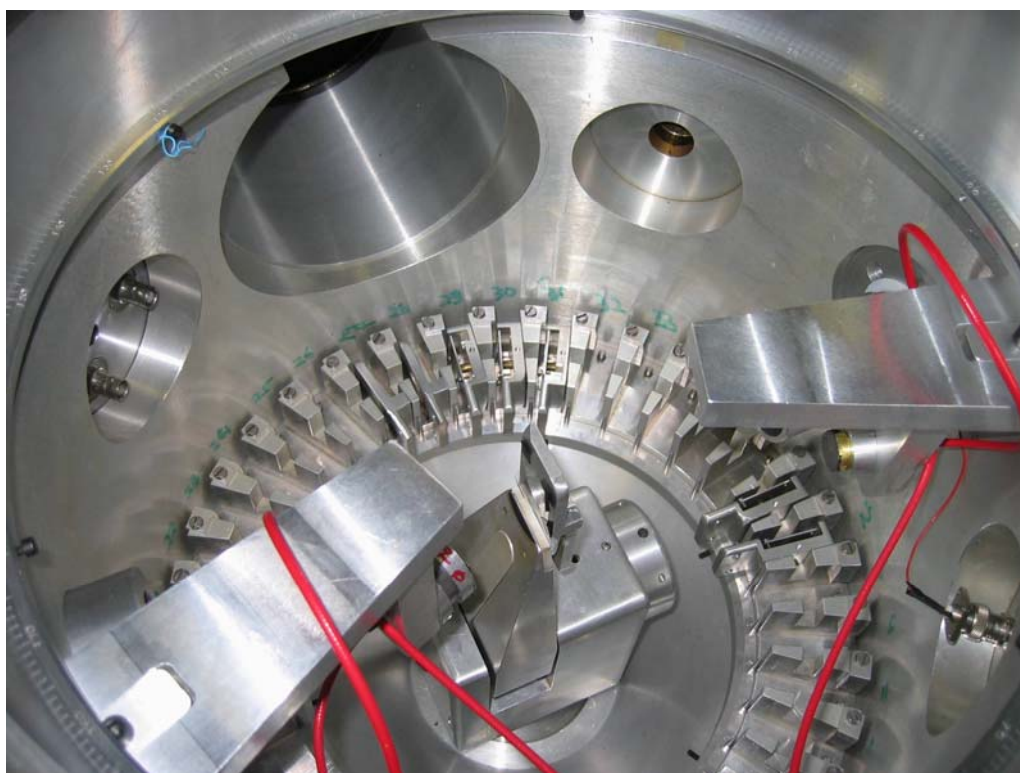


Figure (II-3): Schéma représentant la chambre à réaction utilisée

II. 4. Détection et l'électronique associée:

II. 4. 1. Détection des rayons X:

Un détecteur Si (Li) est utilisé pour la détection des rayons X. Le principe de détection est basé sur la création de paires (e^- -trou) par le photon incident. La charge est proportionnelle à l'énergie du photon incident (voir figure II-4). Le détecteur est disposé à l'extérieur, tout contre la chambre d'irradiation dans une direction faisant un angle de 95° avec la direction du faisceau incident. Il est polarisé par une tension négative de -1200 V et est relié à un amplificateur.

Les rayons X émis atteignent la zone sensible du détecteur après avoir traversé respectivement les écrans suivants:

- une fenêtre de mylar de 50 μm située à la sortie de la chambre d'irradiation,
- une zone d'air de 13.5 cm de longueur,
- une couche de béryllium d'épaisseur 25 μm , constituant l'entrée du détecteur,
- une couche très fine d'or de 0.2 μm d'épaisseur, servant à protéger la zone morte du détecteur.
- une couche de silicium constituant la zone morte du détecteur et dont l'épaisseur est négligeable. L'absorption des rayons X dans cette zone se traduit par un palier précédant le pic caractéristique,
- enfin, les rayons X arrivent dans la zone sensible du détecteur ayant une surface active de 300 mm^2 et une épaisseur de 400 μm où ils sont absorbés par effet photoélectrique. Les charges produites sont collectées et le détecteur donne un signal proportionnel à l'énergie du rayonnement incident.

Sur la figure (II-5) nous représentons une coupe latérale effectuée dans un détecteur Si (Li) typique.

Les signaux obtenus sont ensuite amplifiés, codés et stockés dans la mémoire d'un ordinateur sous forme de spectres pour être traités avec un code approprié. La résolution en énergie du système de détection pour la raie à 5.9 KeV, est de 122 eV.

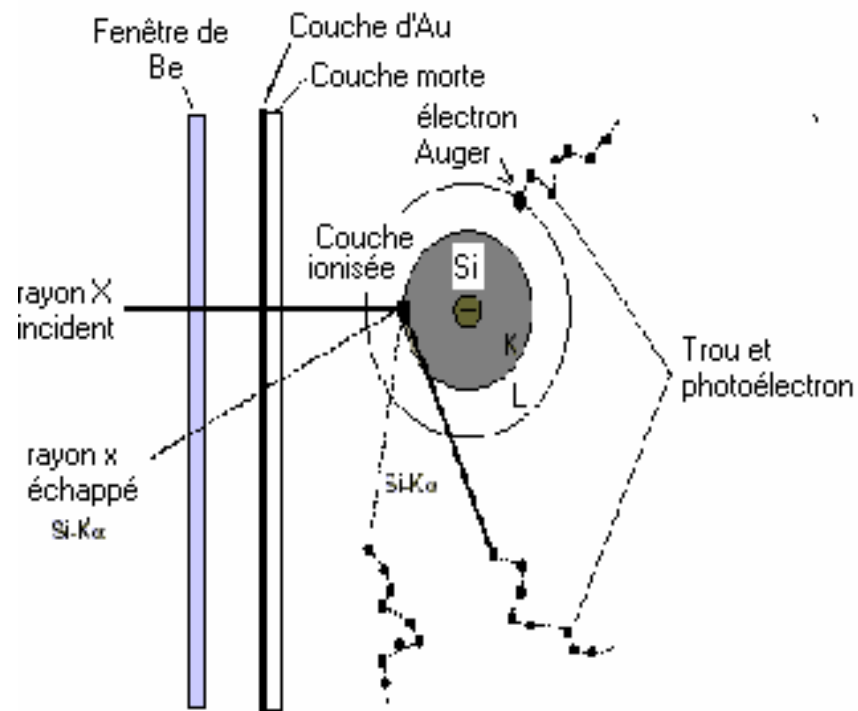


Figure (II-4): Schéma montrant le processus de détection de rayons X dans un Si(Li)

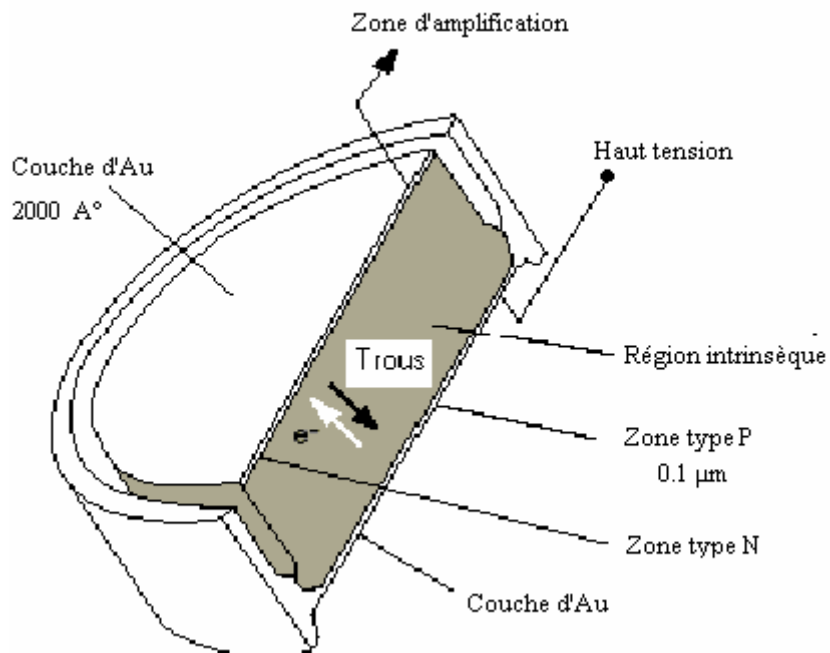


Figure (II-5): Coupe latérale d'un détecteur Si (Li) typique.

II. 4. 2. Détection des particules rétrodiffusées:

Dans le but d'effectuer des mesures avec le moins d'erreurs possibles, nous avons pensé à normaliser le nombre de photons émis par rapport au nombre de particules rétrodiffusées afin d'éviter deux sources d'erreurs importantes: l'épaisseur de la cible et la charge incidente.

Pour la détection des protons rétrodiffusés par la cible, un détecteur au silicium à barrière de surface a été utilisé. Le détecteur est placé sous vide à l'intérieur de la chambre à réaction et dans une direction faisant un angle de 170° avec la direction du faisceau incident. Il est polarisé par une tension positive de 80 V et est relié à la chaîne électronique d'acquisition composée d'un préamplificateur, d'un amplificateur linéaire, d'un convertisseur ADC, d'un analyseur multicanaux et d'un ordinateur permettant de stocker les informations. Le logiciel d'analyse utilisé est principalement constitué d'une interface graphique et d'un module d'acquisition. La fenêtre de visualisation simule un analyseur multicanaux et permet de visualiser jusqu'à quatre spectres simultanément sur la même fenêtre. De plus, une calibration, des régions d'intérêt peut être définie et des informations comme: la position des pics, leurs surfaces et leur largeur à mi-hauteur sont facilement obtenues. Le module d'acquisition de ce logiciel contrôle l'enregistrement des spectres par une connexion directe à un convertisseur ADC avec affichage en temps réel. Les spectres obtenus sont stockés dans la mémoire d'un ordinateur. La résolution du système de détection, est de 13 keV pour le pic alpha d'énergie 5.5 MeV de la source Am^{241} .

II. 5. Analyse des spectres:

II. 5. 1. Spectre de rayons X:

Le traitement des spectres consiste à déterminer le nombre de photons émis par chaque raie. Ce qui correspond à la détermination des surfaces de chaque pic apparaissant dans le spectre (figure (II-6)). L'opération est effectuée par un programme informatique de déconvolution appelé AXIL (Analysis of X-ray Spectra by Iterative Least Squares). Ce programme permet d'ajuster les spectres en utilisant une fonction qui reproduit le mieux possible le spectre obtenu. Cette fonction est déterminée en utilisant la méthode des moindres carrés non linéaire.

II. 5. 1. 1. Forme analytique d'une raie caractéristique:

La réponse du détecteur est proche d'une Gaussienne décrite par l'expression

$$G(E_i, E) = \frac{C}{S\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{(E - E_i)^2}{2S^2}\right] \quad (\text{II-1})$$

où E est l'énergie de la raie caractéristique en eV,

E_i est l'énergie correspondant au canal i , déterminée à partir de la droite de calibration :

$$E_i = E_0 + C \times i \quad (\text{II-2})$$

E_0 est l'énergie au canal 0 égale 0 eV,

C est la pente de conversion

S est la largeur du pic donnée par

$$S^2 = \left(\frac{\text{Bruit}}{2.3548}\right)^2 + 3.85 \times \text{FANO} \times E \quad (\text{II-3})$$

Bruit est la contribution électronique à la largeur du pic. FANO est le facteur de Fano égal 0.114,

La valeur 3.85 représente l'énergie moyenne nécessaire pour produire une paire électron-trou dans le silicium.

Le pic est normalisé de sorte que la somme sur tous les canaux soit égale à 1.

II. 5. 1. 2. Forme analytique d'un groupe des raies caractéristiques:

Un spectre composé d'un ensemble de pics d'un élément donné est décrit par une fonction de la forme suivante:

$$F(E_i) = A \sum_j R_j G(E_i, E) \quad (\text{II-4})$$

où A est le nombre total de coups dans toutes les raies du groupe et R_j sont les facteurs tenant compte des absorptions des rayons X, dans la cible, l'air entre le détecteur et la cible et dans le détecteur. $G(E_i, E)$ est la fonction définie dans équation (II-1) [Van-85].

II. 5. 1. 3. Soustraction du bruit de fond:

L'analyse des spectres par le programme AXIL permet également de soustraire le bruit de fond. Ce dernier est décrit par une fonction de l'ajustement qui peut avoir plusieurs formes analytiques parmi lesquelles la fonction Smooth filter qui décrit le mieux l'allure du bruit de fond dans les spectres PIXE. La méthode de lissage (Smooth filter) des spectres est très bénéfique dans l'analyse qualitative particulièrement dans l'identification des pics au voisinage de la limite de détection. Dans son développement, elle utilise les mesures des nombres de coups des canaux adjacents. Par exemple: la valeur du nombre de coups " y' " correspondant au canal (x), est obtenue à partir du nombre de coups du canal voisin ($x + i$) à partir de la relation:

$$y'(x) = \frac{1}{2n+1} \sum_{i=-n}^{+n} y(x+i) \quad (\text{II-5})$$

Cette méthode présente un déficit au sommet du pic car à ce niveau, la valeur du nombre des coups varie rapidement avec x. Par conséquent, le nombre de coups au canal $x + i$ doit recevoir moins de coups et la fonction de l'ajustement devient alors

$$y'(x) = \sum_{i=-n}^{+n} h(i) y(x+i) \quad (\text{II-6})$$

où $h(i)$ est une fonction telle que: $\sum_{i=-n}^{+n} h(i) = 1$.

A la fin de l'ajustement des spectres, la qualité de l'ajustement est donnée par la valeur du paramètre χ^2

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^n \frac{[y_i - F(E_i)]^2}{\sigma_i^2} \quad (\text{II-7})$$

σ_i^2 est la déviation standard par rapport à la valeur moyenne.

L'ajustement est considéré comme bon pour une valeur minimale de χ^2 .

Un spectre X ajusté est montré sur la figure (II-7).

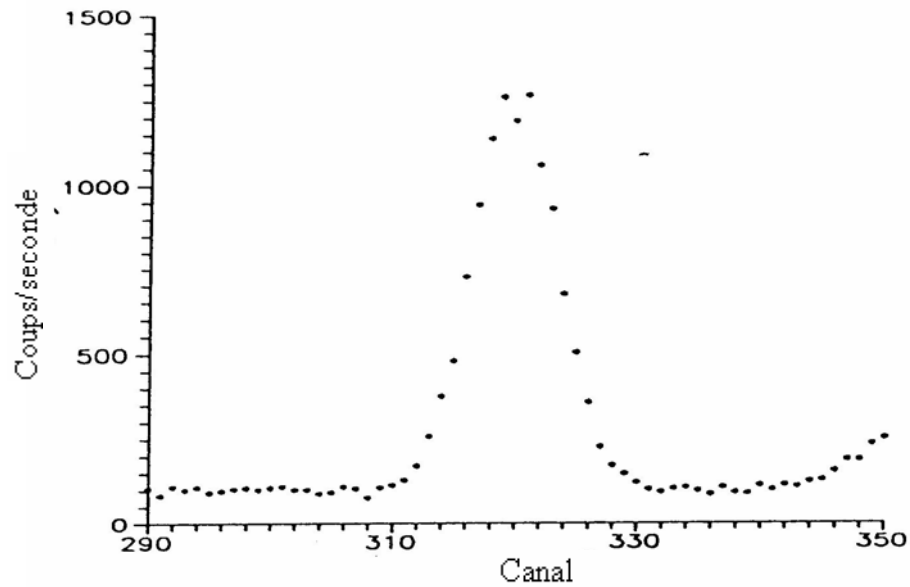


Figure (II-6): Forme typique d'un pic de rayon X caractéristique.

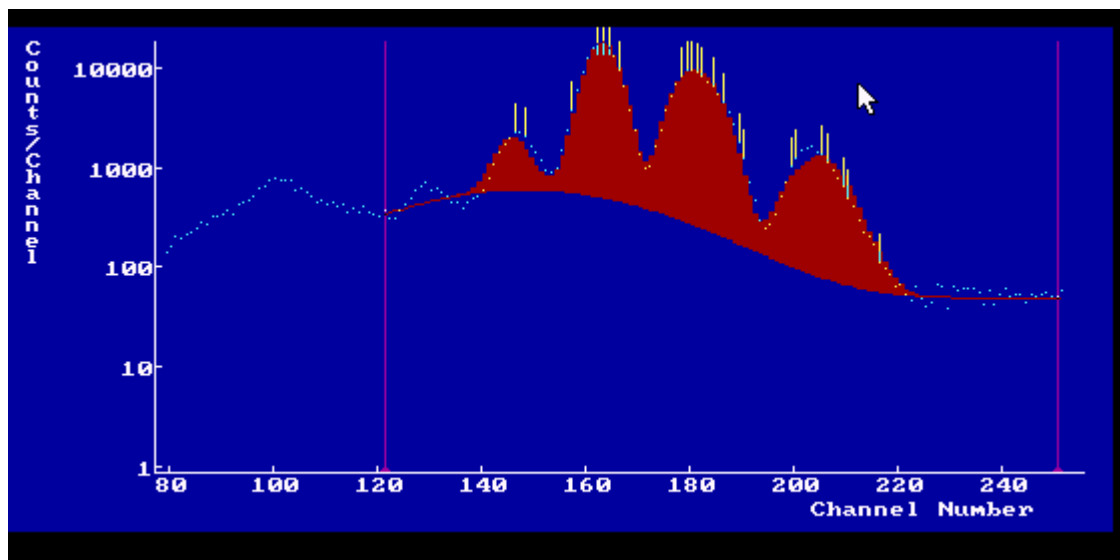


Figure (II-7): Exemple de lissage en utilisant le logiciel AXIL d'une partie d'un spectre expérimental d'Yb avec des protons de 2.2 MeV

II. 5. 2. Spectre de rétrodiffusion (RBS)

Le nombre de particules rétrodiffusées est déduit de l'aire des spectres RBS en utilisant un logiciel graphique. Une vérification des résultats a été effectuée en utilisant un logiciel approprié qui a donné pratiquement le même résultat. Nous présentons sur la figure (II-8) un spectre RBS obtenu en envoyant un faisceau de proton d'énergie de 2.2 MeV sur une cible d'ytterbium. Nous y observons bien le pic de rétrodiffusion, un plateau repérant le substrat et le support en graphite utilisé et un pic d'oxygène résultant de l'oxydation de l'Yb.

II. 6. Calcul des sections efficaces expérimentales d'émission X:

La section efficace d'émission X induite par un faisceau de protons est donnée par l'expression

$$\sigma_{L_i}^X = 4 \pi \frac{N_x^i}{N_0 n \Omega_x \epsilon_x F} \quad (II-8)$$

La section efficace de Rutherford pour un faisceau de protons est donnée par :

$$\sigma_R = \frac{N_R^i}{N_0 n \Omega_R} \quad (II-9)$$

En faisant le rapport des deux expressions on obtient :

$$\sigma_{L_i}^X = 4 \pi \sigma_R \frac{N_x^i \Omega_R}{N_R^i \Omega_x \epsilon_x F} \quad (II-10)$$

où : N_x^i et N_R^i sont le nombre de coups total sous le pic caractéristique i et le nombre de protons rétrodiffusés par la cible, respectivement,

N_0 est le nombre de particules incidentes,

n est le nombre d'atomes présents dans la cible par unité de surface,

ϵ_x est l'efficacité du détecteur de rayons X à l'énergie donnée. σ_R est la section efficace de Rutherford,

Ω_x et Ω_R sont les angles solides sous tendus par le détecteur Si (Li) et le détecteur à barrière de surface, respectivement,

F est le facteur d'absorption des rayons X dans l'air et les différentes couches situées entre la cible et le détecteur Si (Li),

N_x^i est déterminé à l'aide du programme d'analyse AXIL et N_R^i par la sommation du nombre de coups sous le pic de rétrodiffusion.

Les sections efficaces de rétrodiffusion sont calculées numériquement à l'aide d'un programme utilisant la relation suivante dans le système du laboratoire:

$$\sigma_R = \left(\frac{Z_1 Z_2 e^2}{4 E} \right)^2 \frac{4}{\sin^4 \theta} \frac{\left\{ \left[1 - ((m/M_2) \sin \theta)^2 \right]^{1/2} + \cos \theta \right\}^2}{\left[1 - ((m/M_2) \sin \theta)^2 \right]^{1/2}} \quad (\text{II-11})$$

où m , Z_1 et E sont respectivement la masse, le numéro atomique et l'énergie du projectile,

θ est l'angle de diffusion du projectile,

M_2 et Z_2 sont la masse et le numéro atomique de l'atome cible respectivement.

Les résultats sont portés dans le tableau (II-1).

Tableau (II-1): Sections efficaces de rétrodiffusion (en barns) des protons incidents dans les différentes cibles analysées.

Cibles	Energie des protons (MeV)						
	1.0	1.5	1.8	2.0	2.2	2.4	2.5
Sm	5.05	2.24	1.56	1.26	1.04	0.87	0.80
Yb	6.44	2.84	1.98	1.61	1.31	1.11	1.03
Au	8.81	3.64	2.53	2.05	1.69	1.52	1.31
Pb	8.84	3.93	2.73	2.21	1.82	1.53	1.40

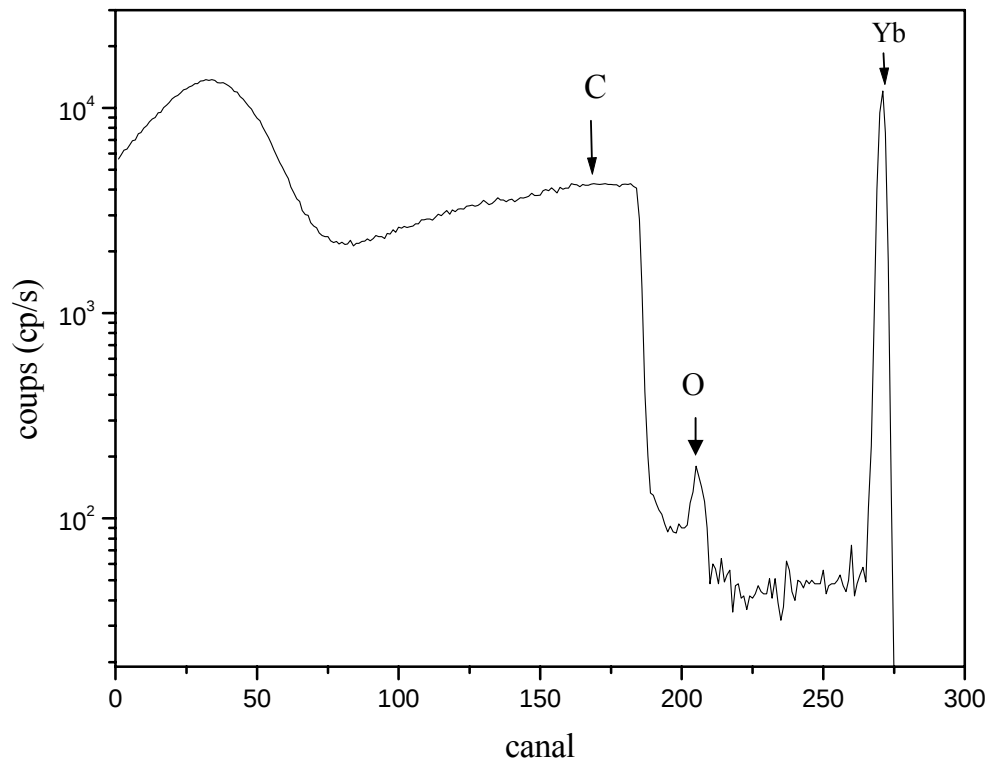


Figure (II-8) : Spectre RBS obtenu avec une cible d'ytterbium irradiée par un faisceau de protons de 2.2 MeV (C est le substrat et le support en carbone utilisé, O oxygène issu de l'oxydation de l'Yb).

II. 6. 1. Détermination de l'angle solide:

Dans le cas de cibles ponctuelles l'angle solide est défini par le rapport de la surface utile S_d , du détecteur au carré de la distance D séparant le centre de la cible du détecteur.

$$\Omega = \frac{S_d}{D^2} \quad (\text{II-12})$$

Dans le calcul de l'angle solide du détecteur de rayons X, S_d est la surface du diaphragme placé entre la cible et le détecteur, constitué d'une feuille de mylar de 50 μm . L'angle solide Ω_x pour le détecteur de rayons X est:

$$\Omega_X = 5.45 \cdot 10^{-3} \text{ stéradian}$$

Le calcul de l'angle solide pour la jonction à barrière de surface, Ω_R , est effectué à partir de la surface de la jonction. Il est donné par:

$$\Omega_R = 4.15 \cdot 10^{-3} \text{ stéradian}$$

II. 6. 2. Détermination du coefficient d'absorption:

En négligeant l'absorption dans la cible car elle est très mince (de l'ordre de 0.97 pour la raie $L\alpha$ du Sm), les rayons X émis par la cible n'atteignent le détecteur qu'après avoir traversé une feuille de mylar de 50 μm d'épaisseur, puis une zone d'air séparant la feuille du mylar du détecteur. Cette absorption des rayonnements X dans les matériaux est traduite par le facteur F donné par la relation :

$$F = \frac{I}{I_0} = \sum_i e^{-\mu_i X_i} \quad (\text{II-13})$$

Où μ_i et X_i sont le coefficient d'absorption linéaire et l'épaisseur de l'absorbant de l'élément i . I_0 et I sont respectivement l'intensité initiale des rayons X, et l'intensité transmise à travers l'absorbant.

II. 6. 3. Détermination expérimentale de l'efficacité du détecteur:

L'efficacité donne la fraction de rayons X collectés par le détecteur. Elle tient compte de tous les absorbants placés entre la cible et la zone de détection et de la transmission à travers le détecteur et considérant que l'émission X est isotrope on a :

$$\varepsilon = \Omega \exp(\mu_{\text{Be}} x_{\text{Be}} + \mu_{\text{Au}} x_{\text{Au}} + \mu_{\text{Si}} x_d)(1 - \exp(-\mu_{\text{Si}} x_a)) \quad (\text{II-14})$$

où μ_{Be} , μ_{Au} , μ_{Si} sont les coefficients d'absorption linéaire du béryllium, de la couche d'or et du silicium et x_{Be} , x_{Au} , sont leurs épaisseurs respectives; x_d , x_a étant celles de la zone morte et la zone active du détecteur. x_d est généralement très mal connue et très faible. De ce fait nous avons préféré utiliser également des sources étalons émettrices X (source d' Am^{241} à cibles variables) afin de trouver l'allure de la courbe d'efficacité. Celle-ci est déterminée expérimentalement par la relation suivante:

$$\varepsilon = \frac{N_d}{N_e \frac{\Omega}{4\pi}} \quad (\text{II-15})$$

N_d est le nombre de rayons X détectés. $N_e = A_0 R e^{-\frac{\Delta t}{\tau}}$, est le nombre de rayons X émis par la source par unité du temps,

A_0 et τ étant respectivement, l'activité initiale et la durée de vie moyenne de la source utilisée,

Δt l'âge de la source.

Ω l'angle solide sous-tendu par le détecteur et R le rapport d'embranchement de la raie, $\frac{\Delta t}{\tau} = 0.069$.

Les valeurs de l'efficacité sont reportées sur le tableau (II-2) et représentées sur la figure (II-9) pour une source d' Am^{241} à cibles variables. Nous nous intéressons à la région entre 4.5 keV et 16 keV. L'efficacité théorique du détecteur est déterminée par le programme de simulation de Monte Carlo en utilisant la formule (II-14).

Elément (raie)	Energie (en keV)	Efficacité en %
Cu ($K\alpha$)	8.047	96.5
Mo ($K\alpha$)	17.478	91.1
Ag ($K\alpha$)	22.162	85.3
Ba ($K\alpha$)	32.191	55.5

Tableau (II-2): Efficacité mesurée en fonction de l'énergie des pics caractéristiques d'une source Am^{241} à cibles variables

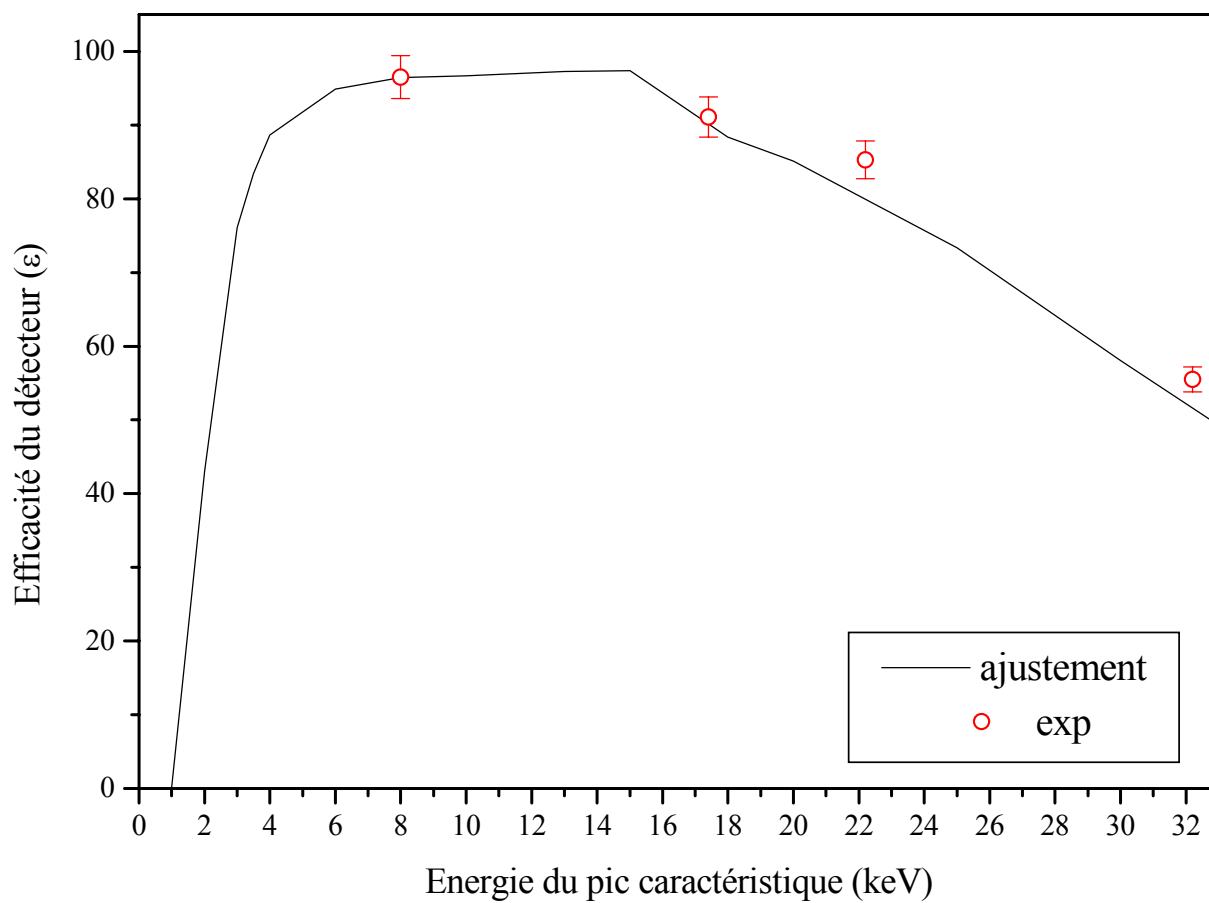


Figure (II-9): Efficacité du détecteur Si (Li) en fonction de l'énergie du pic caractéristique.

Chapitre III: Analyse et discussion des résultats

III. 1. Présentation des Spectres expérimentaux:

Le dispositif destiné à l'acquisition a été étalonné par une source d'Am²⁴¹ permettant l'identification des raies caractéristiques observées sur les spectres de rayons X. Nous avons également réalisé l'étalonnage à l'aide de cibles pures d'Ag, de Cu et d'Al. Des cibles pures de Sm, Yb, Au et Pb ont été irradiées par des protons d'énergie variant entre 1.0 MeV et 2.5 MeV avec un pas variable. Nous montrons sur la figure (III-1) un spectre PIXE obtenu pour une cible d'ytterbium irradiée par un faisceau de protons d'énergie 2.2 MeV. Sur le spectre PIXE, nous observons les principales raies caractéristiques L_{α} , L_{β} , L_{γ} , L_{ℓ} .

III. 2. Calcul du nombre de rayons X des raies caractéristiques:

Le nombre de rayons X émis lors d'une transition d'une raie caractéristique est la surface du pic correspondant. Il est calculé à l'aide du programme de déconvolution AXIL (figure III-1). Pour la raie L_{α} , le pic composé des transitions L_{α_1} et L_{α_2} a été ajusté par deux gaussiennes. Quant au nombre de rayons X de la raie L_{β} , il est calculé à partir de l'ajustement du pic composé des pics des transitions: $L_{\beta_{1,4,6}}$ et $L_{\beta_{2,3}}$. Finalement, le nombre de rayons X de la raie L_{γ} est obtenu par l'analyse du pic composé des transitions $L_{\gamma_{1,5}}$, $L_{\gamma_{2,3}}$ et L_{γ_4} . Les résultats ainsi obtenus sont introduits dans l'expression donnant les sections efficaces.

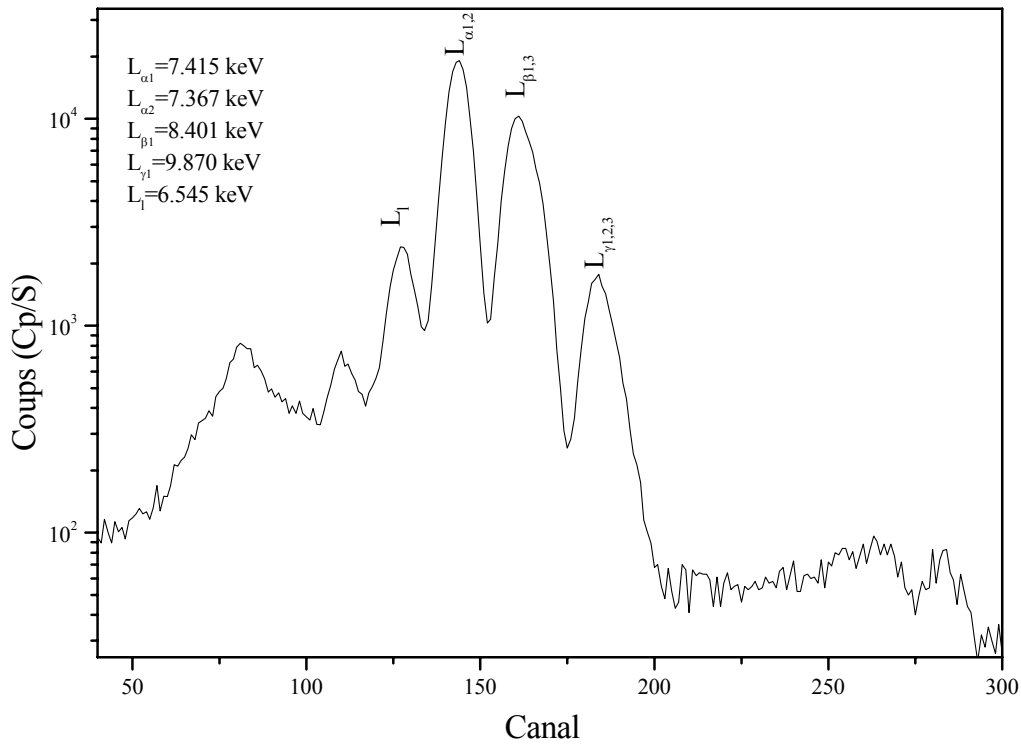


Figure (III-1) : Spectre PIXE obtenu avec une cible d'ytterbium bombardée par un faisceau de protons de 2.2 MeV d'énergie.

III. 3. Présentation des résultats expérimentaux:

Les sections efficaces de production des rayons X des raies L_{α} , L_{β} , L_{γ} , L_{ℓ} et la section efficace totale L_{tot} de la couche L des éléments analysés Sm, Yb, Au et Pb ont été mesurées et reportées sur les tableaux (III-2) à (III-5) pour des énergies de protons incidents comprises entre 1.0 et 2.5 MeV. Nous rappelons que les sections efficaces théoriques sont obtenues par le modèle ECPSSR à partir des relations (I-20) à (I-24) en utilisant les sections efficaces d'ionisations tabulées dans [Coh-85], les fractions des largeurs radiatives de Scofield et les rendements de fluorescence et les probabilités des transitions de Coster-Kronig de Krause [Kra-74].

Les sections efficaces théoriques sont entachées d'incertitudes associées aux rendements de fluorescence (3 % à 15%), aux coefficients de Coster-Kronig (5% à 20%) [Kra-79] et aux fractions radiatives (2% à 8%.) [Sco-74]. Ceci donne une incertitude de l'ordre de 6 % à 26 % pour la section efficace calculée par le modèle ECPDDR.

E (MeV)	$L_\ell \pm (\Delta\sigma_\ell/\sigma_\ell)\%$	$L_\alpha \pm (\Delta\sigma_\alpha/\sigma_\alpha)\%$	$L_\beta \pm (\Delta\sigma_\beta/\sigma_\beta)\%$	$L_\gamma \pm (\Delta\sigma_\gamma/\sigma_\gamma)\%$	$L_{\text{tot}} \pm (\Delta\sigma_{\text{tot}}/\sigma_{\text{tot}})\%$
1.0	0.9 ± 7	22.9 ± 6	14.6 ± 6	1.9 ± 7	40.3 ± 13
1.5	1.8 ± 6	46.4 ± 6	31.6 ± 6	4.2 ± 7	84.1 ± 12
1.8	2.4 ± 6	70.2 ± 6	46.1 ± 6	7.4 ± 7	126.1 ± 12
2.0	3.2 ± 6	80.7 ± 6	55.9 ± 6	8.2 ± 7	148.0 ± 12
2.2	3.8 ± 7	90.1 ± 6	65.3 ± 6	9.5 ± 6	168.7 ± 12
2.4	-	-	-	--	--
2.5	4.1 ± 8	121.6 ± 6	84.4 ± 7	12.4 ± 7	222.5 ± 15

Tableau (III-1) : Sections efficaces de production X (en barns) des raies L_α , L_β , L_γ , L_ℓ et L_{tot} obtenues pour une cible de samarium irradiée par un faisceau de protons d'énergie comprise entre 1 et 2.5 MeV.

E (MeV)	$L_\ell \pm (\Delta\sigma_\ell/\sigma_\ell)\%$	$L_\alpha \pm (\Delta\sigma_\alpha/\sigma_\alpha)\%$	$L_\beta \pm (\Delta\sigma_\beta/\sigma_\beta)\%$	$L_\gamma \pm (\Delta\sigma_\gamma/\sigma_\gamma)\%$	$L_{\text{tot}} \pm (\Delta\sigma_{\text{tot}}/\sigma_{\text{tot}})\%$
1.0	0.3 ± 7	7.7 ± 6	5.7 ± 6	0.6 ± 10	14.4 ± 14
1.5	0.9 ± 7	21.2 ± 6	14.0 ± 6	1.7 ± 11	37.8 ± 15
1.8	1.4 ± 7	33.1 ± 6	22.2 ± 6	2.7 ± 11	59.5 ± 15
2.0	1.8 ± 6	41.0 ± 6	25.9 ± 6	3.8 ± 11	72.5 ± 15
2.2	2.1 ± 7	48.2 ± 6	32.5 ± 6	4.3 ± 10	87.1 ± 14
2.4	2.3 ± 6	52.7 ± 6	34.8 ± 6	4.7 ± 10	94.5 ± 14
2.5	2.6 ± 9	61.1 ± 6	42.1 ± 6	6 ± 10	111.9 ± 15

Tableau (III-2): Sections efficaces de production X (en barns) des raies L_α , L_β , L_γ , L_ℓ et L_{tot} obtenues pour une cible d'ytterbium irradiée par un faisceau de protons d'énergie comprise entre 1 et 2.5 MeV.

E (MeV)	$L_\ell \pm (\Delta\sigma_\ell/\sigma_\ell)\%$	$L_\alpha \pm (\Delta\sigma_\alpha/\sigma_\alpha)\%$	$L_\beta \pm (\Delta\sigma_\beta/\sigma_\beta)\%$	$L_\gamma \pm (\Delta\sigma_\gamma/\sigma_\gamma)\%$	$L_{\text{tot}} \pm (\Delta\sigma_{\text{tot}}/\sigma_{\text{tot}})\%$
1.0	0.18 ± 8	3.87 ± 6	2.05 ± 6	0.2 ± 7	6.3 ± 13
1.5	0.48 ± 8	9.42 ± 6	5.94 ± 6	0.63 ± 7	16.48 ± 14
1.8	0.76 ± 8	16.24 ± 6	9.64 ± 6	0.97 ± 6	27.62 ± 13
2.0	0.98 ± 8	20.44 ± 6	12.05 ± 6	1.32 ± 7	34.80 ± 14
2.2	1.24 ± 8	25.94 ± 6	15.46 ± 6	1.65 ± 6	44.29 ± 13
2.4	1.45 ± 8	28.52 ± 6	17.11 ± 6	2.0 ± 7	49.08 ± 13
2.5	1.67 ± 8	30.88 ± 6	18.60 ± 6	2.35 ± 7	53.5 ± 14

Tableau (III-3): Sections efficaces de production X (en barns) des raies L_α , L_β , L_γ , L_ℓ et L_{tot} obtenues pour une cible d'or irradiée par un faisceau de protons d'énergie comprise entre 1 et 2.5 MeV.

E (MeV)	$L_\ell \pm (\Delta\sigma_\ell/\sigma_\ell)\%$	$L_\alpha \pm (\Delta\sigma_\alpha/\sigma_\alpha)\%$	$L_\beta \pm (\Delta\sigma_\beta/\sigma_\beta)\%$	$L_\gamma \pm (\Delta\sigma_\gamma/\sigma_\gamma)\%$	$L_{\text{tot}} \pm (\Delta\sigma_{\text{tot}}/\sigma_{\text{tot}})\%$
1.0	0.14 ± 9	2.68 ± 6	1.40 ± 6	0.19 ± 8	4.42 ± 14
1.5	0.43 ± 8	7.92 ± 6	4.37 ± 6	0.51 ± 8	13.25 ± 14
1.8	0.62 ± 8	12.21 ± 6	6.80 ± 6	0.82 ± 8	20.46 ± 14
2.0	0.82 ± 7	15.40 ± 6	8.59 ± 6	1.09 ± 8	25.92 ± 13
2.2	1.05 ± 7	19.69 ± 6	11 ± 6	1.67 ± 7	33.41 ± 13
2.4	1.19 ± 7	23.30 ± 6	12.48 ± 6	1.83 ± 8	38.82 ± 13
2.5	1.25 ± 9	25.57 ± 6	14.25 ± 6	2.12 ± 8	43.20 ± 14

Tableau (III-4): Sections efficaces de production X (en barns) des raies L_α , L_β , L_γ , L_ℓ et L_{tot} obtenues pour une cible de plomb irradiée par un faisceau de protons d'énergie comprise entre 1 et 2.5 MeV.

III. 4. Précision sur la mesure expérimentale de la section efficace

La section efficace de production de rayon X est donnée par:

$$\sigma_{L_i}^X = 4 \pi \sigma_R \frac{N_x^i \Omega_R}{N_R^i \Omega_x \varepsilon_x F} \quad (\text{III-1})$$

L'incertitude sur la mesure expérimentale des sections efficaces d'émission X est déterminée à partir de la relation suivante:

$$\frac{\Delta \sigma}{\sigma} = \frac{\Delta N_x}{N_x} + \frac{\Delta N_R}{N_R} + \frac{\Delta \Omega}{\Omega} + \frac{\Delta \varepsilon}{\varepsilon} + \frac{\Delta \sigma_R}{\sigma_R} \quad (\text{III-2})$$

Les estimations trouvées pour les différents paramètres sont données dans le tableau ci-dessous:

Tableau (III-5): Estimation des précisions de mesure des paramètres utilisés dans la détermination expérimentale des sections efficaces d'émission X.

Paramètre	Type d'erreur	Précision relative (%)
Efficacité	Statistique et Systématique	< 4 %
Calcul de l'aire du pic caractéristique	Statistique	≤ 1% pour L_α et L_β 1% à 1.7% pour L_γ 1% à 5% pour L_ℓ .
Calcul de l'aire du pic de rétrodiffusion	Statistique	Entre 0.1 % et 0.4 %
Section efficace de Rutherford	Systématique	< 1 %
Angle solide	Systématique	< 3 %
Coefficient d'absorption	Systématique	négligeable
Section efficace de production X de Sm et Yb		6 % à 11 % pour L_α , L_β , L_γ et L_ℓ 14 % pour L_{tot}
Section efficace de production X de Au et Pb		6 % pour les raies L_α , L_β , ≤ 9 %. Pour les raies L_γ et L_ℓ 13 % pour L_{tot}

III. 5. Discussion des résultats expérimentaux

Les mesures expérimentales de sections efficaces des raies L_α , L_β , L_γ et L_ℓ des cibles analysées sont représentées respectivement sur les figures (III-2), (III-3), (III-4) et (III-5).

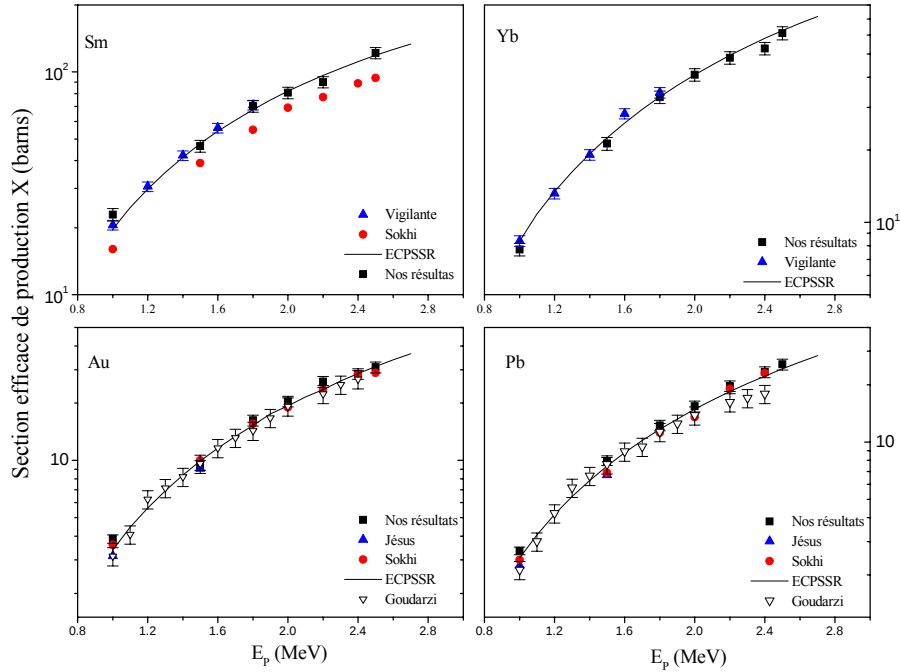
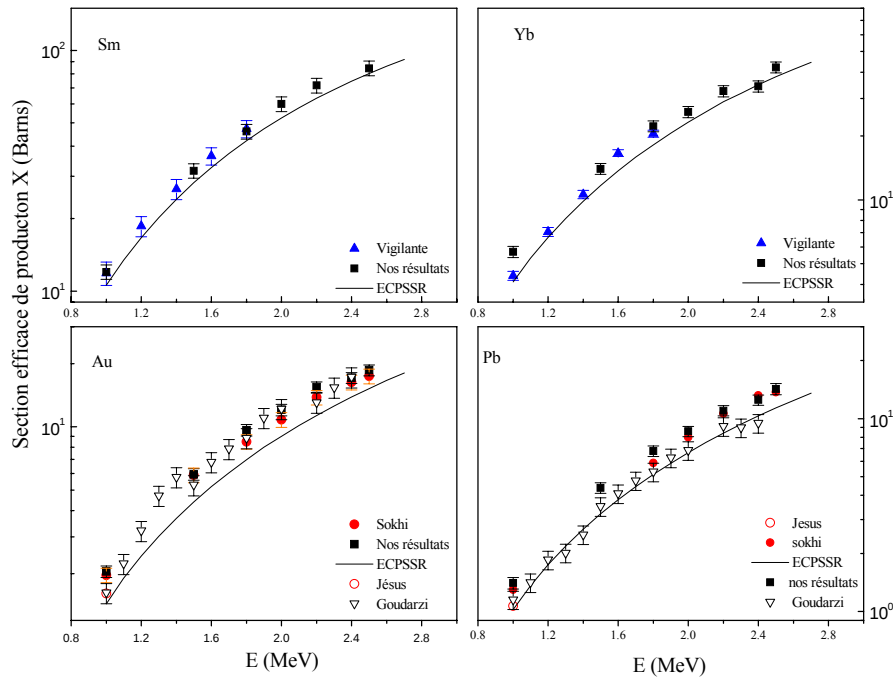


Figure (III-2): Sections efficaces de production des rayons X de la raie L_α de Sm, Yb, Au et du Pb en fonction de l'énergie des protons incidents



Figure(III-3): Sections efficaces de production des rayons X de la raie L_β de Sm, Yb, Au et du Pb en fonction de l'énergie des protons incidents.

Pour la raie L_α , La figure (III-2) montre un très bon accord entre nos résultats expérimentaux et les données de Vigilante et al [Vig-91] pour le samarium et l'ytterbium et ceux de Jésus et al [Jés-86], Goudarzi et al pour l'or et le plomb. Nous y observons aussi que les valeurs de Sokhi et al [Sok-82] pour la raie L_α du samarium sont inférieures aux nôtres et à celles de Vigilante et al d'environ 30 %.

La figure (III-2) indique un accord satisfaisant entre les calculs théoriques du modèle ECPSSR et les résultats expérimentaux des sections efficaces d'émission X de la raie L_α .

En ce qui concerne les résultats des sections efficaces de la raie L_β , la figure (III-3) montre un bon accord entre nos résultats et ceux de Vigilante et al [Vig-91] pour Sm et Yb et entre ceux de Sokhi et Crumpton [Sok-84], Jésus et al [Jés-86] et Goudarzi et al. [Gou-06] pour l'or. Nos résultats pour le plomb sont en bon accord avec ceux de Sokhi et Crumpton et sont légèrement supérieurs à ceux de Goudarzi et al.

La figure (III-3) montre que les sections efficaces d'émission X de la raie L_β calculées par le modèle ECPSSR sont légèrement inférieures aux valeurs expérimentales pour Sm et Yb. Pour l'or et le plomb le désaccord entre l'expérience et la théorie est manifestement plus important notamment pour l'or de l'ordre de 26% environ. Cette sous-estimation ne peut être expliqué selon Lapicki [Lap-02] que par les effets suivants:

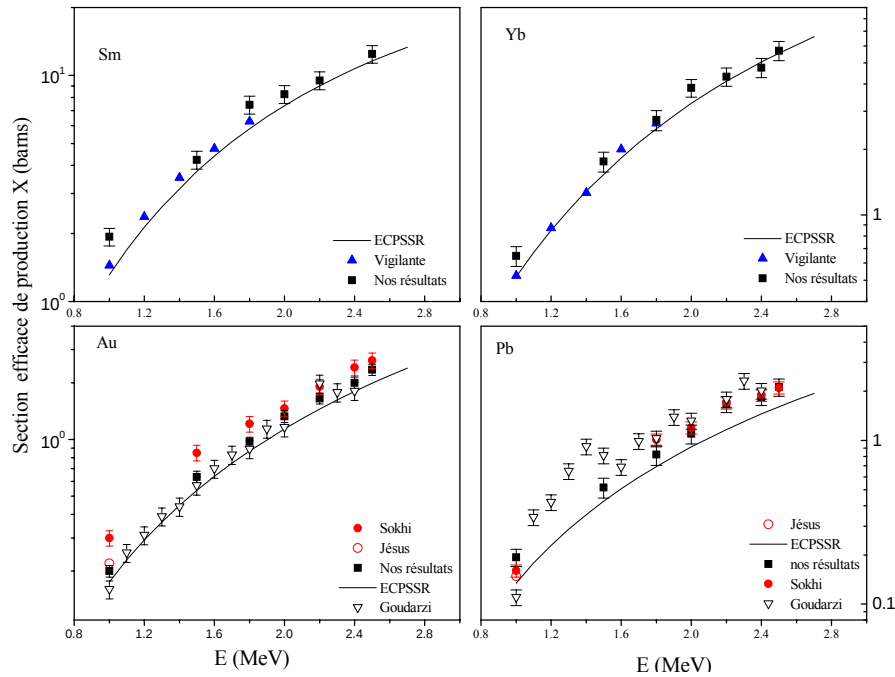
- Effet de la fonction d'onde modifiée [Che-89]. Il consiste à utiliser les fonctions d'onde relativistes de Dirac Salter Fock au lieu des fonctions d'onde hydrogénoïdes pour l'électron atomique.

- Effet de déflexion coulombienne quantique [Lap-79],

- Effet de correction de l'atome unitaire [Jak-84], [Vig-90] et l'effet du couplage entre les sous-couches [Sar-91] qui sont des phénomènes physiques propres liés aux couches complexes.

La différence observée entre l'expérience et la théorie peut aussi être attribuée aux calculs théoriques avec des incertitudes associées aux rendements de fluorescence qui est de 3 % à 15%, aux coefficients de Coster-Kronig (5% à 20%) [Kra-79] et aux fractions radiatives entre 2% à 8% [Sco-74].

Les mesures expérimentales des sections efficaces de la raie L_γ mesurées pour des échantillons de Sm, Yb, Au et de Pb sont portées sur la figure (III-4).



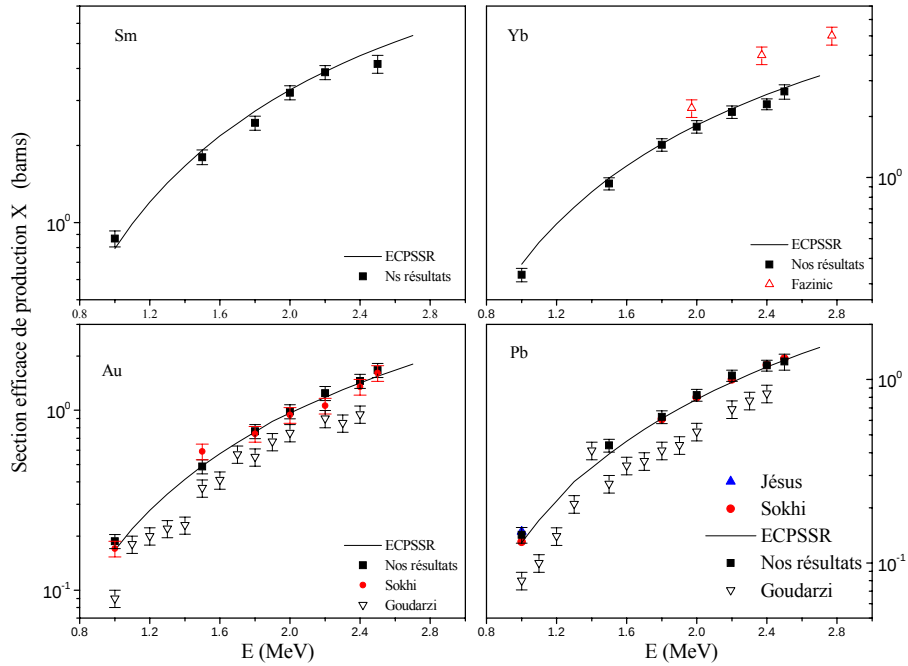
Figure(III-4): Sections efficaces de production des rayons X de la raie L_{γ} de Sm, Yb, Au et du Pb en fonction de l'énergie des protons incidents.

Nos résultats pour le Sm et l'Yb sont en très bon accord avec ceux de Vigilante et al. Pour l'or, nos résultats présentent un bon accord avec ceux des références [Jes-86] et [Gou-06]. Comme nous pouvons le voir sur la figure (III-4), les valeurs de Sokhi et Crumpton pour l'or sont supérieures aux nôtres, à celles de Jésus et al et à celles de Goudarzi et al d'environ 30 %. Pour le plomb, nos valeurs sont visiblement inférieures à celles de Goudarzi avec environ 30 %. Elles sont globalement en bon accord avec celles de Sokhi et Crumpton et avec celles de Jésus et al.

La comparaison des sections efficaces mesurées de la raie L_{γ} avec les calculs du modèle ECPSSR montre un léger écart entre la théorie et l'expérience pour Sm, Yb et Au. Pour le plomb l'écart est plus prononcé. Cet écart s'estompe avec l'augmentation de l'énergie incidente (à partir de $E = 1.8$ MeV) pour Sm et Yb et se rétrécit pour le Au et le Pb. Il est à noter que le même type de désaccord était observé entre l'expérience et la théorie pour la raie L_{β} des mêmes éléments. Ceci ne peut que confirmer encore une fois l'importance des effets correctifs suggérés pour une bonne reproductibilité des données expérimentales.

L'analyse des figures (III-2) à (III-4) a permis de compléter les résultats des références [Vig-91], [Sok-84], [Jés-86] et [Gou-06] à des d'énergies bien déterminées. De plus il y apparaît que des sections efficaces des raies L_{α} , L_{β} et L_{γ} ont été mesurées pour la première

fois dans ce travail, en particulier pour les éléments Sm et Yb à des énergies supérieures à 1.8 MeV.



Figure(III-5): Sections efficaces de production des rayons X de la raie L_ℓ de Sm, Yb, Au, et du Pb en fonction de l'énergie des protons incidents.

Pour la raie secondaire L_ℓ , les mesures effectuées sont représentées sur la figure (III-5) avec celles de Sokhi et Crumpton [Sok-84], Jésus et al [Jes-85], Fazinic [Faz-94] et al et Goudarzi et al [Gou-06]. Sur cette figure les valeurs des sections efficaces d'émission X de la raie L_ℓ de Sm et Yb sont déterminées pour la première fois. Ces nouvelles données de sections efficaces pourront être une source de données complémentaire des compilations. Pour l'ytterbium et comme nous pouvons le constater, nos résultats sont très loin de ceux de Fazinic et al qui commencent de 2 MeV. Pour l'or et le plomb, nos résultats sont en très bon accord avec ceux de Sokhi et Crumpton. Les données de Goudarzi et al sont visiblement inférieures à nos mesures et à celles de Sokhi environ de 30%.

La comparaison des sections efficaces de production X pour la raie L_ℓ , montre un très bon accord entre les prédictions du modèle ECPSSR et les données expérimentales.

Les mesures des sections efficaces totales d'émission X des cibles analysées sont données sur les figures (III-6) à (III-9), ci-dessous.

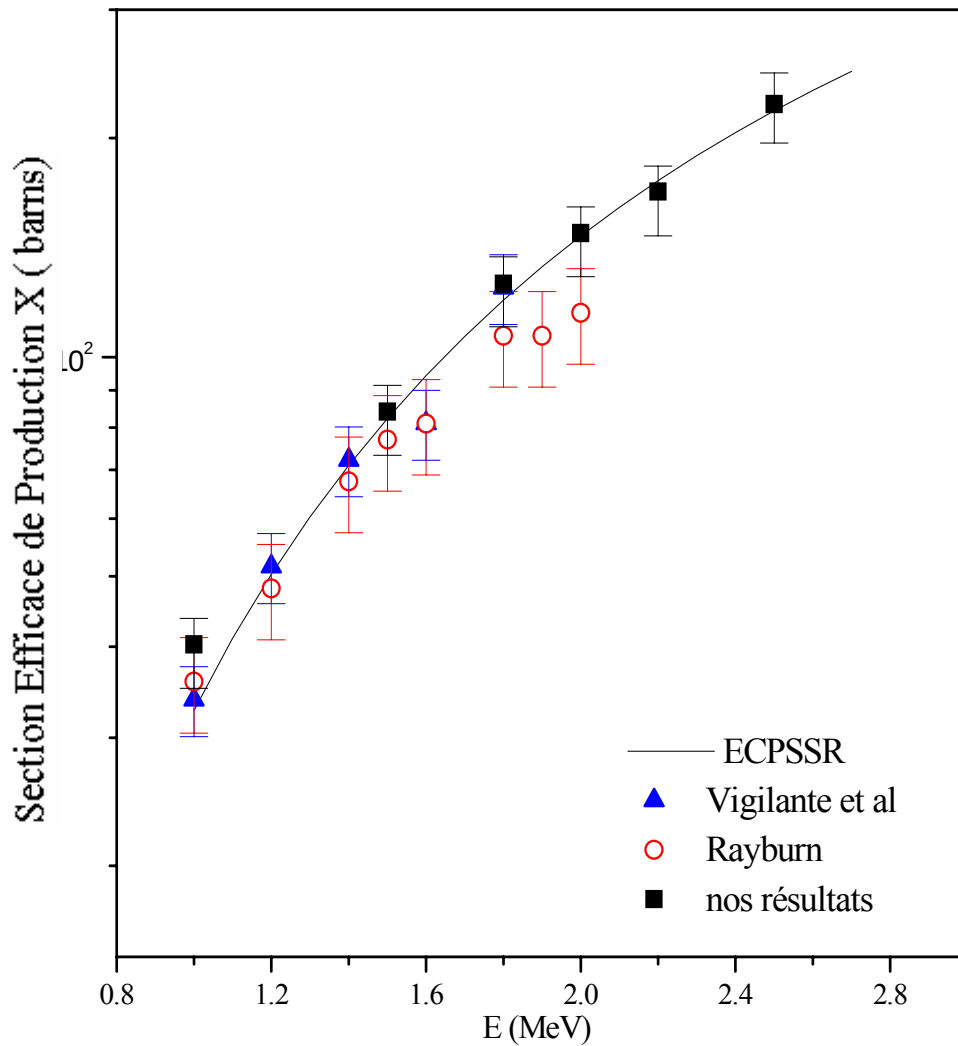


Figure (III-6): Sections efficaces totales de production X de samarium en fonction de l'énergie des protons incidents

La figure (III-6) concernant le samarium montre un bon accord entre nos résultats et ceux de Vigilante et al [Vig-91]. Les résultats de Rayburn et al [Ray-85] sont aussi en bon accord sauf aux énergies 1.8 MeV, 1.9 MeV et 2.0 MeV où ils présentent un écart de 25% environs par rapport aux nôtres.

Nos résultats sont aussi comparés avec les calculs théoriques effectués dans le cadre du modèle ECPSSR. Comme nous pouvons le remarquer (figure (III-6)) un accord satisfaisant est obtenu entre l'expérience et les calculs théoriques.

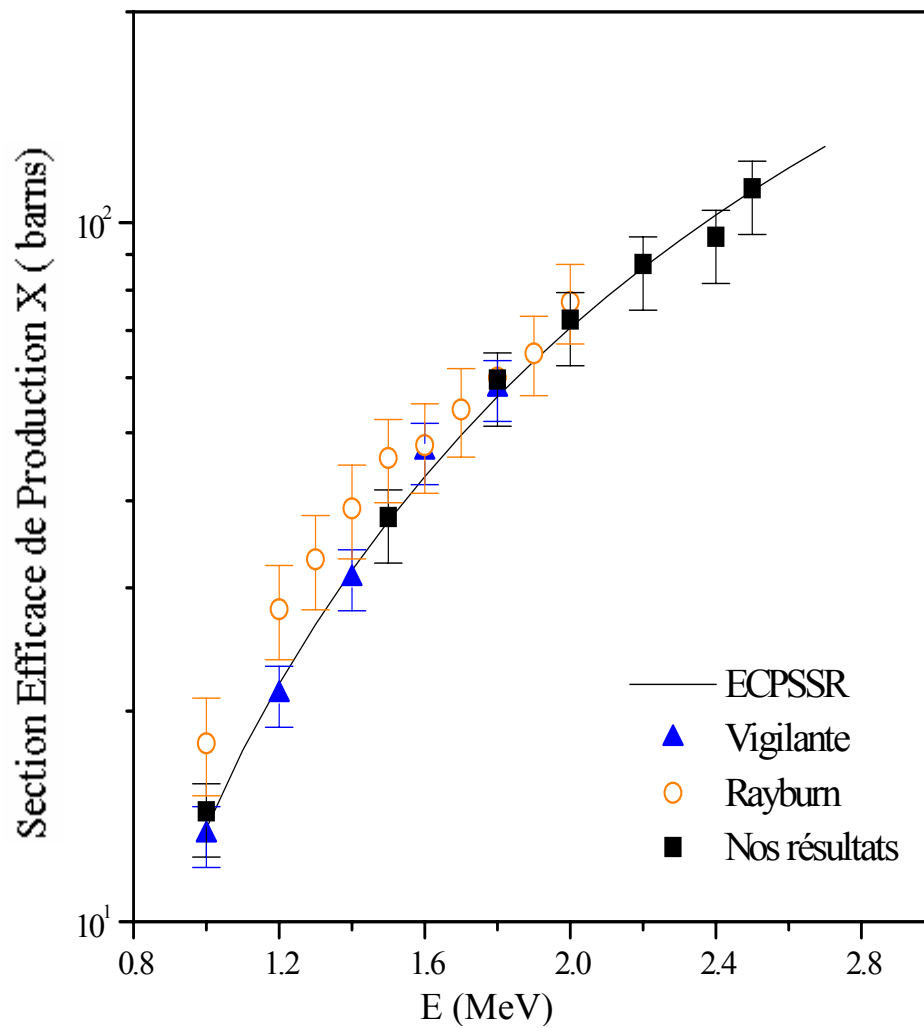


Figure (III-7): Sections efficaces totales de production X d'ytterbium en fonction de l'énergie des protons incidents.

Les sections efficaces totales obtenues pour l'ytterbium (Figure (III-7)) sont comparées à celles de Vigilante et al [Vig-91] et à celles de Rayburn et al [Ray-83]. Nos valeurs sont en très bon accord avec celles de Vigilante et al. Celles de Rayburn sont supérieures aux nôtres et à celles de Vigilante et al d'environ 45 % pour les énergies comprises entre 1 MeV et 1.5 MeV. Un accord général est observé entre les calculs du modèle ECPSSR et nos résultats expérimentaux et ceux de Vigilante et al [Vig-91].

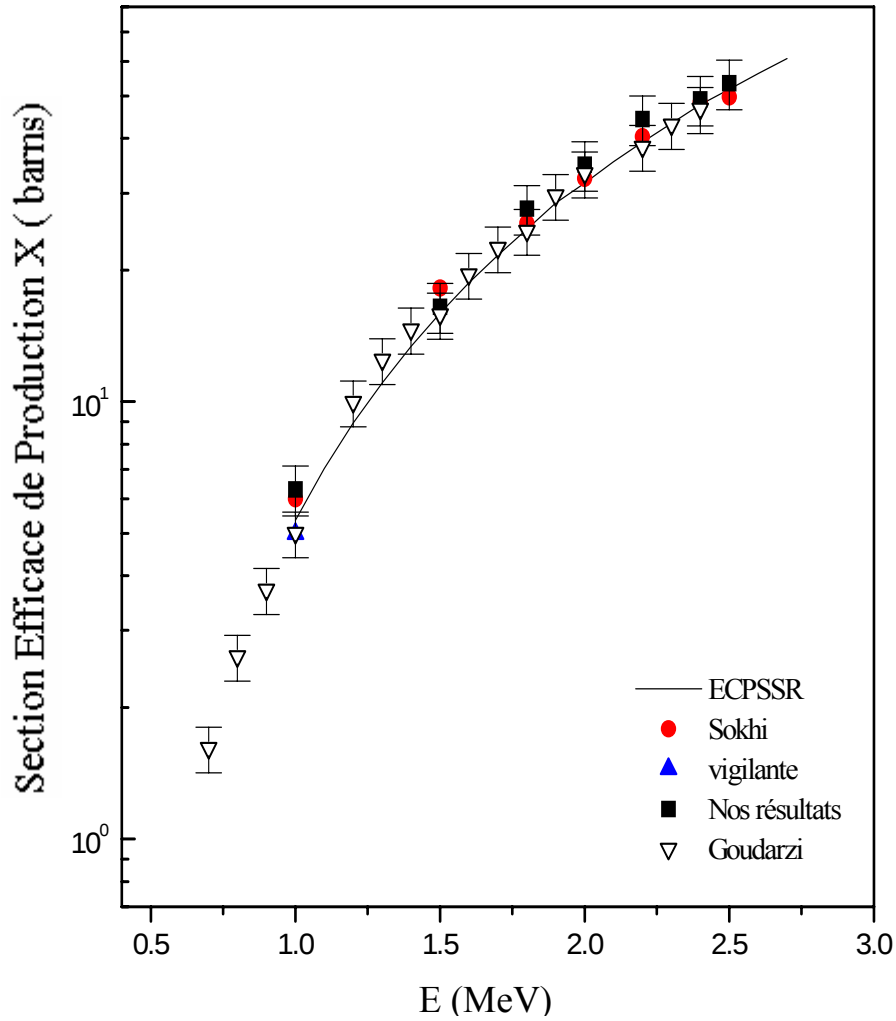


Figure (III-8): Sections efficaces totales de production des rayons X d'or en fonction de l'énergie des protons incidents.

Sur la figure (III-8), nos valeurs de sections efficaces totales pour l'or sont comparées avec celles des références [Sok-84], [Jes-86], [Gou-06] ainsi qu'avec la théorie. Un très bon accord est trouvé entre nos résultats expérimentaux, celles des différentes références utilisées et celles calculées par le modèle ECPSSR.

Nous remarquons que l'écart observé entre les calculs du modèle ECPSSR et l'expérience (figure (III-3)) n'a pas affecté l'accord entre la théorie et l'expérience pour la section efficace totale. Pourtant cette dernière est la somme directe des sections efficaces des raies L_α , L_β , L_γ et L_ℓ .

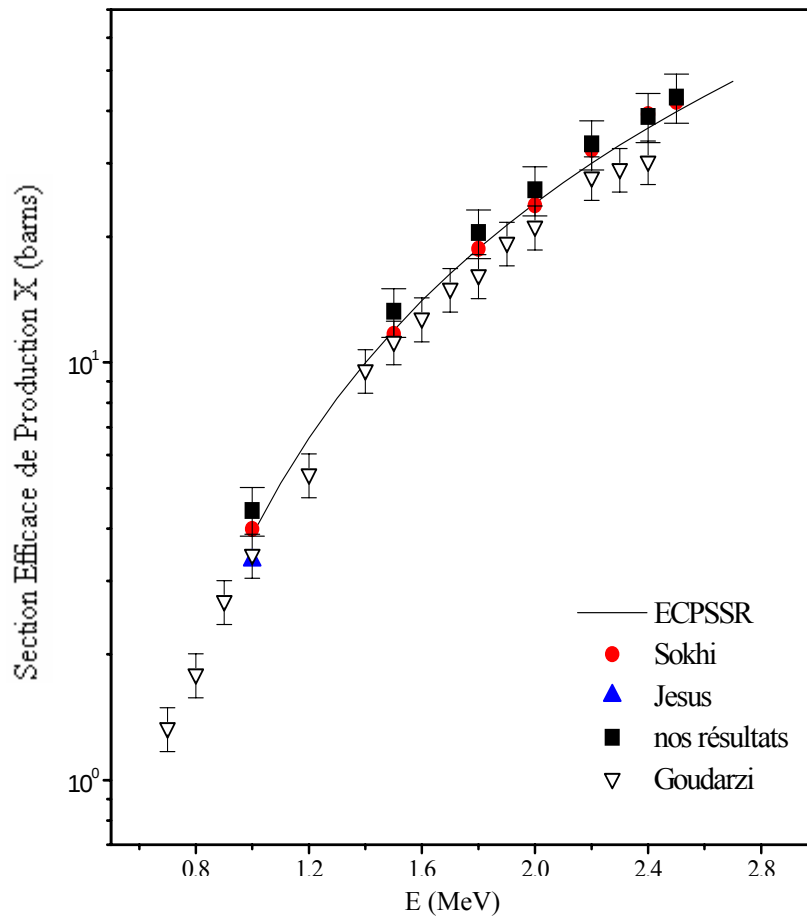


Figure (III-9): Sections efficaces totales de production X de plomb en fonction de l'énergie des protons incidents.

Pour la cible de plomb, nos mesures de sections efficaces totales sont représentées sur la figure (III-9). Un très bon accord est obtenu entre nos résultats, ceux de Sokhi et Crumpton et ceux de Jésus et al. Les Valeurs de Goudarzi et al sont légèrement inférieures à nos valeurs et à celles de Sokhi et Crumpton.

La comparaison des résultats expérimentaux avec les calculs théoriques du modèle ECPSSR montre un accord acceptable sur toute la gamme d'énergie.

L'analyse des figures précédentes des sections efficaces totales permet de constater que l'écart observé entre la théorie et l'expérience pour les sections efficaces des raies L_β et L_γ (figures (III-3) et (III-4)) des éléments analysés n'influe pas sur la section efficace totale. Ceci provient du fait que les transitions les plus probables de type β et γ affectent les sections efficaces des sous-couches L_1 et L_2 dont la contribution à la section efficace totale, L_{tot} , reste relativement faible.

III. 6. Rapport des intensités

Comme déjà dit préalablement, le rapport des intensités constitue aussi une très grande importance dans l'analyse élémentaire. Dans les raies L nous pouvons recenser plus de 30 raies dont un tiers ont une intensité relative supérieure à 1%. Nous présentons ici les rapports des intensités, L_α/L_ℓ , L_α/L_β et L_α/L_γ pour Sm, Yb, Au, et Pb. Dans le cas des cibles minces l'intensité d'une raie, L_i est proportionnelle à la section efficace, σ_{L_i} ($i = \alpha, \beta, \gamma, \ell$) de la raie i . L'intensité relative (ou le rapport des intensités) entre la raie L_α et la raie L_i est donnée par:

$$\frac{I_\alpha}{I_i} = \frac{\sigma_{L_\alpha}}{\sigma_{L_i}} \quad (\text{III-3})$$

où $i = \beta, \gamma, \ell$.

Les rapports des intensités calculés à partir de la relation (III-3) en utilisant les valeurs des sections efficaces expérimentales et théoriques obtenues préalablement sont donnés dans les tableaux (III-6) à (III-9). Nous portons également dans les mêmes tableaux les rapports des intensités L_α/L_ℓ calculés expérimentalement à partir de l'expression :

$$\frac{I_\alpha}{I_\ell} = \frac{N_\alpha \varepsilon_\alpha}{N_\ell \varepsilon_\ell} \quad (\text{III-4})$$

où N_α et N_ℓ sont respectivement le nombre de coups total sous le pic caractéristique L_α et L_ℓ , ε_α et ε_ℓ sont l'efficacité du détecteur pour les énergies des pics caractéristiques L_α et L_ℓ .

Les rapports des intensités L_α/L_ℓ calculés à partir de cette relation sont mesurés avec une meilleure précision que ceux calculés à partir des rapports des sections efficaces absolues (la relation (III-3)). L'erreur sur la mesure des rapports des intensités obtenus par l'expression (III-4) est estimée entre 5% à 8%.

III. 7. Présentation et discussion des rapports des intensités:**III.7.1. Présentation des résultats.**

E (MeV)	L_{α}/L_{ℓ}			L_{α}/L_{β}		L_{α}/L_{γ}	
	Exp2	Exp1	ECPSSR	Exp1	ECPSSR	Exp1	ECPSSR
1.0	25.98 ± 5	26.45 ± 12	24.87	1.68 ± 11	1.86	11.85 ± 11	15.05
1.5	25.62 ± 6	25.82 ± 11	24.84	1.46 ± 11	1.68	10.97 ± 11	12.66
1.8	29.3 ± 5	28.63 ± 11	24.85	1.52 ± 12	1.60	9.45 ± 12	11.65
2.0	25.62 ± 6	25.08 ± 12	24.85	1.44 ± 12	1.56	9.75 ± 11	11.15
2.2	25.62 ± 6	$23.91 \pm$	24.86	1.37 ± 11	1.52	9.47 ± 11	10.72
2.4	--	--	24.84	--	1.49	--	10.39
2.5	25.87 ± 8	29.54 ± 14	24.84	1.39 ± 12	1.47	9.81 ± 12	10.25

Tableau (III-6): Rapports des intensités mesurés et ceux obtenus à partir des sections efficaces expérimentales et théoriques pour une cible de samarium.

EXP1 : rapports calculés à partir des sections efficaces

EXP2 : rapports calculés à partir des intensités des pics

E (MeV)	L_{α}/L_{ℓ}			L_{α}/L_{β}		L_{α}/L_{γ}	
	Exp2	Exp1	ECPSSR	Exp1	ECPSSR	Exp1	ECPSSR
1.0	23.02 ± 8	25.66 ± 11	22.72	1.45 ± 11	2.02	11.92 ± 12	16.02
1.5	22.86 ± 7	23.55 ± 11	22.62	1.51 ± 12	1.91	12.05 ± 11	14.66
1.8	22.86 ± 7	23.64 ± 11	22.61	1.48 ± 12	1.82	12.12 ± 11	13.31
2.0	22.86 ± 6	22.77 ± 11	22.61	1.57 ± 11	1.76	10.69 ± 10	12.58
2.2	22.86 ± 7	22.95 ± 11	22.61	1.48 ± 11	1.70	11.14 ± 10	11.99
2.4	22.86 ± 6	22.91 ± 11	22.61	1.53 ± 11	1.66	9.64 ± 11	11.49
2.5	23.03 ± 8	22.62 ± 11	22.61	1.45 ± 12	1.64	10.35 ± 12	11.27

Tableau (III-7): Rapports des intensités mesurés et ceux obtenus à partir des sections efficaces expérimentales et théoriques pour une cible d'ytterbium .

E (MeV)	L_{α}/L_{ℓ}			L_{α}/L_{β}		L_{α}/L_{γ}	
	Exp2	Exp1	ECPSSR	Exp1	ECPSSR	Exp1	ECPSSR
1.0	20.67± 8	21.5± 14	20.23	1.46± 13	2.34	15.05± 12	19.31
1.5	20.67± 6	19.62± 12	20.19	1.44± 12	2.25	13.50± 13	18.50
1.8	20.67± 7	21.36± 14	20.19	1.68± 13	2.19	16.70± 13	17.61
2.0	20.67± 7	20.85± 14	20.06	1.69± 13	2.14	15.41± 13	17.00
2.2	20.67± 8	20.91± 14	19.96	1.67± 12	2.08	15.69± 13	16.24
2.4	20.67± 8	19.66± 14	20.18	1.66± 12	2.06	14.26± 13	15.89
2.5	20.66± 8	18.49± 14	20.18	1.66± 14	2.05	13.14± 13	15.64

Tableau (III-8): Rapports des intensités mesurés et ceux obtenus à partir des sections efficaces expérimentales et théoriques pour une cible d'or.

E (MeV)	L_{α}/L_{ℓ}			L_{α}/L_{β}		L_{α}/L_{γ}	
	Exp2	Exp1	ECPSSR	Exp1	ECPSSR	Exp1	ECPSSR
1.0	19.11± 8	18.90± 13	19.04	1.90± 12	2.39	13.89± 12	18.33
1.5	19.12± 7	18.11± 14	19.03	1.81± 13	2.32	15.34± 13	17.56
1.8	19.95± 7	19.50± 12	19.01	1.79± 13	2.26	14.89± 13	16.82
2.0	19.62± 6	18.69± 12	19.01	1.79± 12	2.22	14.01± 13	16.29
2.2	19.62± 6	18.71± 12	19.01	1.79± 12	2.19	11.79± 14	15.78
2.4	19.61± 6	19.52± 12	19.0	1.86± 12	2.15	12.67± 14	15.30
2.5	19.13± 6	20.41± 12	19.0	1.79± 12	2.13	12.04± 14	15.07

Tableau (III-9): Rapport des intensités mesurés et ceux obtenus à partir des sections efficaces expérimentales et théoriques pour une cible de plomb.

III. 7.2. Discussion des résultats:

Les différentes valeurs de rapports des intensités, L_α/L_ℓ , L_α/L_β et L_α/L_γ sont tracées en fonction de l'énergie des protons incidents sur les figures (III-10) à (III-13).

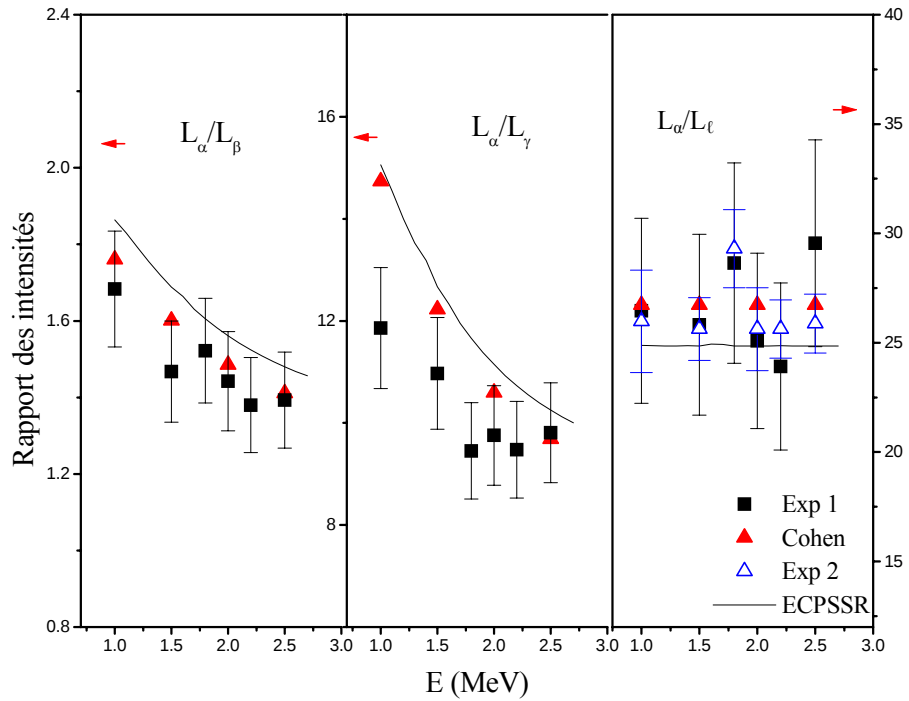


Figure (III-10): Rapport des intensités, L_α/L_β , L_α/L_γ et L_α/L_ℓ de samarium en fonction de l'énergie des protons incidents.

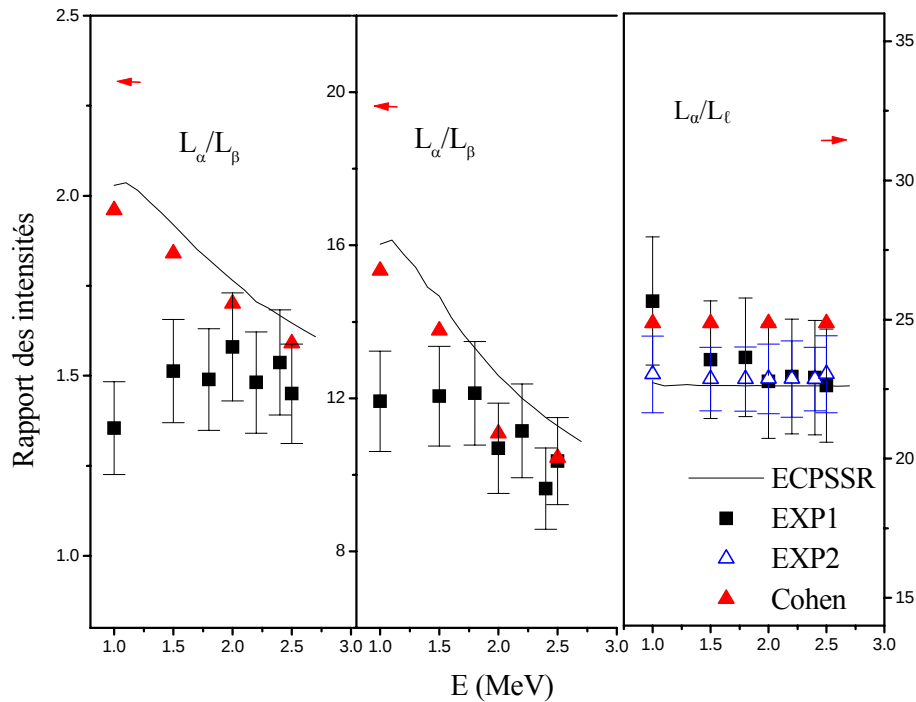


Figure (III-11): Rapport des intensités, L_α/L_β , L_α/L_γ et L_α/L_ℓ d'ytterbium en fonction de l'énergie des protons incidents.

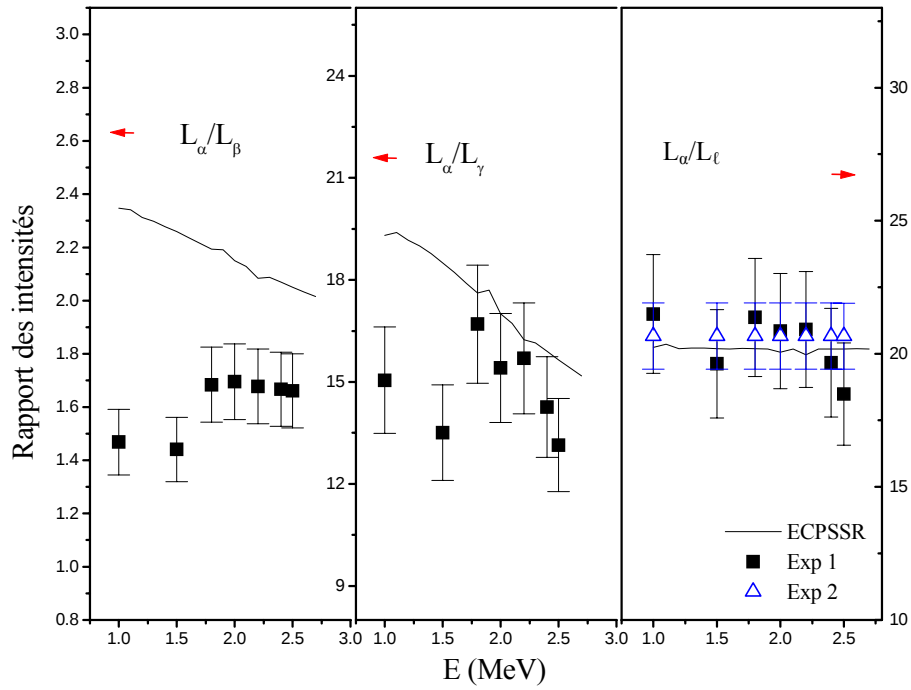


Figure (III-12): Rapport des intensités, L_α/L_β , L_α/L_γ et L_α/L_ℓ d'or en fonction de l'énergie des protons incidents.

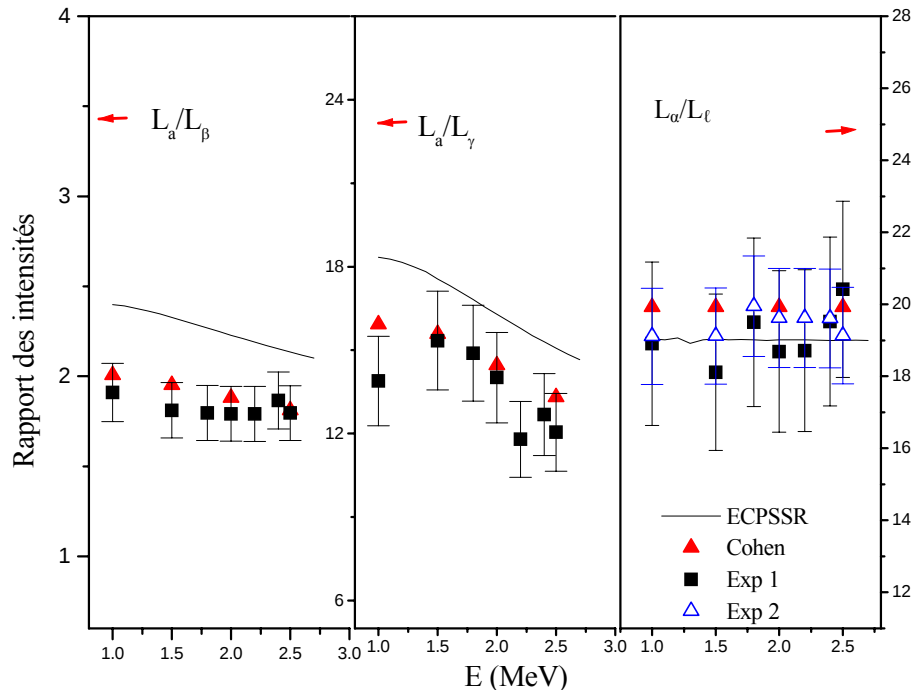


Figure (III-13): Rapport des intensités, L_α/L_β , L_α/L_γ et L_α/L_ℓ du plomb en fonction de l'énergie des protons incidents.

Il ressort des figures (III-10) à (III-13) que les valeurs théoriques des rapports des intensités L_α/L_β et L_α/L_γ sont au-dessus des valeurs expérimentales notamment aux faibles énergies. Ceci s'explique toujours par la sous-estimation des sections efficaces des raies L_β , L_γ par le modèle ECPSSR. Les valeurs théoriques de Cohen [Coh-86] sont en dessous de nos valeurs théoriques d'environ 5% pour L_β et 4% pour L_γ . Cette différence provient essentiellement des coefficients de Coster-Kronig et des largeurs radiatives utilisés dans la conversion des sections efficaces d'ionisation en sections efficaces d'émission X (expression (I-20) à (I-24)). Par contre, ces valeurs sont proches de nos valeurs expérimentales.

Pour le rapport L_α/L_ℓ , les figures (III-11) et (III-12) montrent un bon accord entre les valeurs théoriques et expérimentales de l'ytterbium et de l'or aux énergies supérieures à 1.8 MeV. L'écart observé au dessous de cette énergie ($E \leq 1.8$ MeV) provient d'une mauvaise statistique de comptage à ces énergies. On peut noter également que sur ces figures un bon accord entre les rapports mesurés (relation (III-4)) et ceux obtenus par la théorie sur toute la gamme d'énergie étudiée. Un accord est aussi observé entre les rapports mesurés et les rapports calculés expérimentalement (relation (III-3)).

Pour le rapport L_α/L_ℓ de Sm et du Pb, les figures (III-10) et (III-13) montrent que nos valeurs obtenues par le modèle ECPSSR sont loin d'être en accord avec l'expérience ainsi qu'avec celles de Cohen [Coh-86]. Ceci peut être dû à une différence dans les paramètres utilisés dans la conversion des sections efficaces d'ionisation en sections efficaces de production X. Quant à la comparaison entre les deux résultats expérimentaux, un accord acceptable est obtenu notamment pour le samarium.

Du point de vue incertitude, le calcul des rapports à partir des intensités pour Sm, Yb, Au et le Pb a permis de réduire l'erreur de 12% à 8%. Une amélioration de l'incertitude de 5% en moyenne est alors obtenue entre les rapports des intensités mesurés et ceux déterminés à partir des sections efficaces.

CONCLUSION GENERALE

Nous avons présenté dans le présent travail de nouvelles déterminations de sections efficaces d'émission X des raies L_α , L_β , L_γ , L_ℓ et la section efficace totale L_{tot} de Sm, Yb, Au et de Pb pour des protons d'énergie comprise entre 1.0 et 2.5 MeV. Ces résultats ont été discutés et comparés avec les données existantes dans la littérature et avec les prédictions du modèle théorique ECPSSR.

(i) Les résultats obtenus pour les raies L_α , L_β et L_γ ont permis de compléter les données des références [Vig-91], [Sok-84], [Jés-86] et [Gou-06]. En particulier, les sections efficaces d'émission X pour le samarium et l'ytterbium à des énergies supérieures à 1.8 MeV ont été déterminées pour la première fois

(ii) Par ailleurs, les sections efficaces d'émission X de la raie secondaire L_ℓ du samarium et d'ytterbium ont été mesurées pour la première fois pour une énergie comprise entre 1 MeV et 2.5 MeV.

(iii) Nous avons vu que le modèle théorique ECPSSR de Brandt [Bra – 74] reproduit bien les valeurs des sections efficaces de production X des raies L_α , L_ℓ et la section efficace totale L_{tot} . Tandis qu'il ne donne pas satisfaction pour une bonne détermination de celles des raies L_β et L_γ notamment aux faibles énergies pour les éléments lourds [Ouz-06]. Cette mauvaise estimation des sections efficaces pour les transitions β et γ est due, selon Lapicki [Lap-02], à une description incomplète du processus d'ionisation des couches atomiques L. Ceci permet de conclure que les sections efficaces d'émission X données par ce modèle restent valables pour l'analyse quantitative des éléments légers où l'identification se fait à l'aide des pics caractéristiques K_α et K_β .

Dans notre étude nous avons également donné le rapport des intensités qui est souvent utilisé dans l'analyse élémentaire des cibles composées. Nous avons déterminé expérimentalement les rapports L_α/L_ℓ , L_α/L_β et L_α/L_γ par deux méthodes de calculs. En concluant que les résultats calculés à partir du nombre de rayons X détectés sont beaucoup plus

précis que ceux déduits à partir des sections efficaces. La différence en précision entre les résultats obtenus par les deux méthodes est estimée à 5% en moyenne.

Le calcul théorique du rapport des intensités était également déterminé par le modèle ECPSSR. Toutefois les valeurs sont loin d'être satisfaisantes pour les rapports L_α/L_β et L_α/L_γ . Le désaccord provient de la sous-estimation des sections efficaces des raies L_β et L_γ par le modèle ECPSSR. En revanche, les calculs théoriques du rapport L_α/L_ℓ sont acceptables notamment pour l'ytterbium. Malgré l'importance secondaire qu'occupe la raie L_ℓ dans l'analyse élémentaire elle reste utile à être connue pour une meilleure connaissance de la section efficace totale d'émission X.

Développement du modèle PWBA:

1. Théorie de la diffusion - Approximation de Born:

Un grand nombre d'expériences de physique, notamment en physique des hautes énergies, consiste à envoyer un faisceau de particules sur une cible et à étudier les collisions qui l'en résultent. Nous étudierons ici les diffusions élastiques, c'est-à-dire les cas où l'état final est composé des mêmes particules que l'état initial et où l'état interne des particules reste inchangé. De plus, certaines approximations sont faites pour simplifier le traitement analytique [Mer-58]

- (i) les particules sont supposées sans spin;
- (ii) on ne prend pas en compte de la structure interne des particules incidentes et de la cible;
- (iii) la cible est une cible mince, ce qui néglige les diffusions multiples;
- (iv) il n'y a pas de cohérence entre les ondes diffusées par les différentes particules de la cible. Ceci permet de considérer le flux de particules détectées comme la somme des flux diffusés par chacune des N particules de la cible ou comme N fois le flux diffusé par l'une des particules de la cible;
- (v) on considère que l'interaction entre la particule incidente et la particule cible se fait via un potentiel de la forme $V(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)$ où $\mathbf{r}_1$ et $\mathbf{r}_2$ sont respectivement les vecteurs positions des particules incidente et cible. De plus, on se place dans le système du centre de masse, c'est-à-dire que l'on considère la diffusion d'une particule unique par le potentiel $V(\mathbf{r})$ dont la masse est μ définie comme:

$$\frac{1}{\mu} = \frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2} \quad (1)$$

M_1 et M_2 sont respectivement les masses des particules incidente et cible. On définit alors la section efficace différentielle de diffusion $\sigma(\theta, \varphi)$ par la relation:

$$dn = F_i \sigma(\theta, \varphi) d\Omega \quad (2)$$

où dn est le nombre de particules émises, F_i le flux de particules incidentes et $d\Omega$, l'angle solide de détection.

Nous allons maintenant calculer la section efficace de diffusion en résolvant l'équation de Schrödinger. Hamiltonien du système s'écrit:

$$H = H_0 + V(r). \quad (3)$$

avec H_0 , l'énergie cinétique dans le système du centre de masse,

$$H_0 = \frac{P^2}{2\mu} \quad (4)$$

L'équation de Schrödinger décrivant l'évolution de la particule diffusée par le potentiel $V(r)$ admet des solutions:

$$\psi(r, t) = \varphi(r) e^{-iEt/\hbar} \quad (5)$$

où $\varphi(r)$ est solution de l'équation de Schrödinger indépendante du temps:

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu} \Delta + V(r) \right] \varphi(r) = E \varphi(r) \quad (6)$$

L'énergie E représente l'énergie cinétique de la particule incidente avant qu'elle n'ait abordé la zone d'action du potentiel. Donnée par :

$$E = \frac{\hbar^2 k^2}{2\mu} \quad (7)$$

$$V(r) = \frac{\hbar^2}{2\mu} U(r) \quad (8)$$

L'équation de Schrödinger se ramène alors à :

$$\left[\Delta + k^2 - U(r) \right] \varphi(r) = 0 \quad (9)$$

Cette équation admet une infinité de solutions pour tout k (c'est-à-dire pour tout E). On doit donc imposer certaines conditions pour limiter la gamme de solutions possibles. On définit alors les états stationnaires de diffusion comme étant les états propres de l'Hamiltonien qui vérifient ces conditions et on appelle $v_k^{\text{diff}}(r)$ les fonctions d'onde associées.

Nous allons maintenant déterminer la forme asymptotique des états stationnaires de diffusion. Si on considère des temps très négatifs (bien avant l'interaction), la particule peut être considérée comme libre car $V(r)$ est négligeable. L'état est donc formé d'un paquet d'ondes planes. Si on se place maintenant à des temps très grands, la particule est sortie de la zone d'action de $V(r)$ et le paquet d'onde décrivant le système est composé du paquet d'ondes transmises poursuivant leur propagation dans le même sens et du paquet d'ondes diffusées. La fonction d'onde $v_k^{\text{diff}}(r)$ représentant l'état stationnaire de diffusion associée à une énergie E est donc la superposition d'une onde plane et d'une onde diffusée:

$$v_k^{\text{diff}} = e^{ikz} + \text{onde diffusée} \quad (10)$$

L'onde diffusée doit présenter certaines caractéristiques pour des r élevés:

(i) dans une direction (θ, φ) donnée, sa dépendance radiale est en e^{ikr}/r . En effet, c'est une onde divergente de même énergie que l'onde incidente. Car on a

$$(\Delta + k^2) e^{ikr} \neq 0 \quad (11)$$

alors que

$$(\Delta + k^2) \frac{e^{ikr}}{r} = 0 \quad (12)$$

pour $r \geq r_0$ quelconque

(ii) la diffusion n'est généralement pas isotrope, ce qui entraîne que l'amplitude de diffusion est une fonction de (θ, φ)

Le comportement asymptotique de la fonction d'onde peut donc s'écrire:

$$V_k^{\text{diff}}(r)_{r \rightarrow \infty} = e^{ikz} + f_k(\theta, \varphi) \frac{e^{ikr}}{r} \quad (13)$$

où $f_k(\theta, \varphi)$ est l'amplitude de diffusion. La section efficace différentielle de diffusion est égale

$$\sigma(\theta, \varphi) = |f_k(\theta, \varphi)|^2 \quad (14)$$

L'amplitude de diffusion $f_k(\theta, \varphi)$ est donnée par

$$f_k(\theta, \varphi) = -\frac{1}{4\pi} \int d^3r e^{-ik_d \cdot r} U(r) V_k^{\text{diff}}(r) \quad (15)$$

où k_d est le vecteur d'onde diffusé. L'approximation de Born consiste à remplacer l'état propre exact dans l'intégrale par une onde plane, en négligeant l'onde diffusée. Dans cette approximation, nous avons;

$$f_k(\theta, \varphi) = -\frac{1}{4\pi} \int d^3r e^{-ik_d \cdot r} U(r) e^{ik_i \cdot r} \quad (16)$$

où k_i est le vecteur d'onde incident. La section efficace de diffusion peut alors s'écrire dans l'approximation de Born et en utilisant l'expression (8):

$$\sigma^{\text{PWBA}} = \frac{\mu^2}{4\pi^2 \hbar^4} \left| \int d^3r e^{iq \cdot r} V(r) \right|^2 \quad (17)$$

avec $q = k_i - k_d$ le vecteur d'onde transféré.

2. Ionisation d'un atome par une particule chargée

Dans le développement de la PWBA [Mer-58] et [Bas-73], l'approximation de Born est utilisée dans la théorie de la diffusion pour décrire l'interaction entre la particule chargée incidente (par exemple un proton) et l'atome cible. On considère que l'ionisation se fait par la seule interaction coulombienne entre le noyau de la particule incidente et les électrons de la cible. Pour pouvoir appliquer l'approximation de Born, nous devons faire certaines hypothèses:

- (i) le projectile peut être considéré comme charge ponctuelle;
- (ii) les états initial et final sont décrits par des ondes planes;
- (iii) les états des électrons de la cible sont ceux de l'atome non perturbé.

On obtient pour la section efficace différentielle d'ionisation:

$$d\sigma_n^{PWBA}(\theta, \varphi) = \frac{\mu^2}{4\pi^2 \hbar^4} \frac{v_d}{v_i} \left| \int d^3r d^3R \phi_n^*(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Z_1 e^2}{|\mathbf{R}-\mathbf{r}|} \phi_n(\mathbf{r}) \right|^2 d\Omega \quad (18)$$

où $\mathbf{R}$ est le vecteur position de la particule incidente par rapport à l'atome, v_d et v_i sont les vitesses relatives avant et après diffusion, $\mathbf{r}$ est la position de l'électron atomique par rapport au noyau, $\phi_n^*(\mathbf{r})$ et $\phi_n(\mathbf{r})$ sont les fonctions d'onde initiale et finale de l'électron et Z_1 le numéro atomique de la particule incidente. L'état initial de l'électron est caractérisé par les nombres quantiques (n_2, l_2, j_2) . Par la suite, les indices 1 et 2 se référeront toujours respectivement à la particule incidente et à la cible. Cette expression peut être réduite à une forme plus simple en intégrant sur les coordonnées de la particule et en introduisant à la place de l'angle de diffusion, le vecteur d'onde transférée:

$$d\sigma_n^{PWBA}(\theta, \varphi) = 4\pi (2j_2 + 1) \left(\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Z_1 e^2}{\hbar v} \right) \frac{dq}{q^3} \left| \int d^3r \phi_n^*(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \phi_n(\mathbf{r}) \right|^2 \quad (19)$$

En utilisant alors le facteur de forme $F_{nn}(q)$ défini par :

$$F_{nn}(q) = \int d^3r \phi_n^*(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \phi_n(\mathbf{r}). \quad (20)$$

On obtient finalement :

$$d\sigma_n^{PWBA}(q) = 4\pi (2j_2 + 1) \left(\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Z_1 e^2}{\hbar v} \right) \frac{dq}{q^3} |F_{nn}(q)|^2. \quad (21)$$

Le but est de calculer la section efficace d'ionisation d'un électron d'une orbite s ($s = K, LI, LII, \dots$) d'énergie d'ionisation I_{s2} vers l'état libre d'énergie ϵ par une particule chargée avec

$$\epsilon = I_{2s} + T \quad (22)$$

où T est l'énergie cinétique de l'électron et est égale à:

$$T = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e} \quad (23)$$

où K est le vecteur d'onde de la fonction d'onde de l'électron éjecté. On obtient la formule suivante pour la section efficace d'ionisation pour des énergies des électrons entre ε et $\varepsilon + d\varepsilon$:

$$d^2\sigma_{\varepsilon}^{PWBA}(q) = 8\pi(2j_2 + 1) \left(\frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \frac{Z_1 e^2}{\hbar v} \right)^2 \frac{dq}{q^3} |F_{\varepsilon}(q)|^2 d\varepsilon. \quad (24)$$

La conservation de l'énergie limite les valeurs du vecteur d'onde transféré q , telles que:

$$\hbar^2 q_{\min}^2 = 2\mu (\sqrt{E} - \sqrt{E - \varepsilon})^2 \approx \frac{1}{2} \mu \frac{\varepsilon^2}{E} \approx \frac{1}{2} M_1 \frac{I_{2s}^2}{E_1}, \quad (25)$$

$$\hbar^2 q_{\max}^2 = 2\mu (\sqrt{E} + \sqrt{E - \varepsilon})^2 \approx 8\mu E. \quad (26)$$

$q_{\min}$ et $q_{\max}$ étant les valeurs minimale et maximale du moment transféré q .

Introduisons maintenant les quantités sans dimensions W , k et Q par les relations:

$$W = \frac{\varepsilon}{Z_{2s}^2 R}, \quad k = a_{2s} K, \quad Q = a_{2s}^2 q^2 \quad (27)$$

avec R , constante de Rydberg (13.6 eV),

$$a_{2s} = a_0 / Z_{2s} \text{ où: } a_0 \text{ est le rayon de Bohr,}$$

Z_{2s} est la charge électrique effective du noyau de l'atome cible vue par un électron de l'orbite s ($Z_{2K} = Z_2 - 0.3$ et $Z_{2Li} = Z_2 - 4.15$).

La section efficace d'ionisation peut donc être réécrite sous la forme:

$$\sigma_s = 4\pi(2j_2 + 1) \left(\frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \frac{Z_1 e^2}{\hbar v} \right)^2 \frac{a_0^2}{Z_{2s}^2} \int_{W_{\min}}^{W_{\max}} dW \int \frac{dQ}{Q^2} |F_{Ws}(Q)|^2 \quad (28)$$

On introduit alors les quantités sans dimension θ_s et η_s qui sont respectivement l'énergie de liaison réduite atome-électron et l'énergie réduite de l'ion données par

$$\theta_s = n_{2s}^2 \frac{I_{2s}}{R Z_{2s}^2} \quad (29)$$

$$\eta_s = \frac{1}{Z_{2s}^2} \left(4 \pi \epsilon_0 \frac{\hbar v}{e^2} \right) = \frac{m_e E_1}{M_1 Z_{2s}^2 R} . \quad (30)$$

On obtient finalement l'expression finale de la section efficace d'ionisation d'un électron de la couche s par une particule chargée dans l'approximation de Born:

$$\sigma_s^{PWBA} = \sigma_{0s} \frac{1}{\eta_s} f_s(\eta_s, \theta_s) \quad (31)$$

avec

$$\sigma_{0s} = \frac{(2j_{2s} + 1) 4\pi a_0^2 Z_1^2}{Z_{2s}^4} \quad (32)$$

$$f_s(\eta_s, \theta_s) = \int_{W_{\min}}^{W_{\max}} dW \int_{Q_{\min}}^{Q_{\max}} \frac{dQ}{Q^2} |F_{Ws}(Q)|^2 . \quad (33)$$

$F_{Ws}(Q)$ est le facteur de forme pour la transition entre les états électroniques pour l'électron de l'atome-cible initialement dans l'état s et éjecté avec un transfert d'énergie ϵ . Les facteurs de forme $F_{Ws}(Q)$ pour S=K, LI, LII et LIII ont été calculés par Benka et Kropf [Ben-78] en utilisant des fonctions d'onde hydrogénoïdes.

Les limites d'intégration sont alors en première approximation:

$$Q_{\min} = \frac{\mu^2 \eta_s}{m_e^2} \left(1 - \sqrt{1 - \frac{m_e W}{\mu \eta_s}} \right)^2 . \quad (34)$$

$$Q_{\max} = \frac{\mu^2 \eta_s}{m_e^2} \left(1 + \sqrt{1 - \frac{m_e W}{\mu \eta_s}} \right)^2 . \quad (35)$$

$$W_{\min} = \frac{\theta_s}{\eta_{2s}^2} . \quad (36)$$

$$W_{\max} = \frac{\mu}{m_e} \eta_s \quad (37)$$

Toutefois, on réécrit la relation (31) en utilisant la variable ξ qui mesure le temps caractéristique de la collision ion-atome, et qui permet de séparer le régime de collisions lente ($\xi_s < 1$) et rapide ($\xi_s > 1$) (Fig. I-3):

$$\xi_s = \frac{2 n_{2s} \sqrt{\eta_s}}{\theta_s} \quad (38)$$

On obtient la forme finale suivante pour la section efficace d'ionisation:

$$\sigma_s^{\text{PWBA}} = \sigma_{0s} \frac{1}{\theta_s} F_s(\xi_s, \theta_s). \quad (39)$$

Modèle ECPSSR (modèle PWBA modifié):

Ce modèle a été proposé par Brandt et Lapicki [Bra – 74], dans le but d'améliorer l'accord entre l'expérience et les calculs du modèle PWBA. Il consiste à tenir compte de quelques effets qui n'étaient pas considérés directement dans l'approximation de Born. Un des effets les plus importants qui a été négligé est la déviation coulombienne de la particule incidente par le noyau cible. En effet, cette interaction empêche toute pénétration profonde de la particule dans les orbites internes, ce qui réduit la section efficace d'ionisation d'autant plus que la particule incidente est lente. De plus, dans l'approximation de Born, deux isotopes produisent la même section efficace. Or, l'isotope le plus massif pénètre plus profondément dans les orbites internes et devrait donc produire une plus grande section efficace. Toutefois, l'interaction coulombienne avec le noyau cible ne peut pas expliquer une si grande différence. En effet, on doit aussi tenir compte notamment des corrections venant de la perturbation des orbites électroniques provoquée par le passage de la particule chargée incidente qui entraîne une augmentation de l'énergie de liaison des électrons. Ces corrections successives ont mené à formulation du modèle ECPSSR, qui corrige la section efficace d'ionisation calculée dans le cadre de l'approximation de Born. Outre les corrections d'énergie de liaison des électrons (PSS - Perturbed Stationary-States) et de déviation coulombienne par le noyau (C), les effets dus au caractère relativiste des électrons (R) et à la perte d'énergie de la particule incidente lors de l'ionisation (E) sont intégrés dans la formulation de la section efficace d'ionisation

1. Correction de l'énergie de liaison

Lors des processus d'ionisation, les états atomiques sont perturbés par le passage des particules chargées incidentes. Dans le régime de basse vitesse, c'est-à-dire pour $\xi_s \ll 1$, les états stationnaires perturbés de l'électron de l'atome cible deviennent ceux d'une molécule diatomique avec une distance inter-nucléaire changeante. Quand $Z_1 \ll Z_2$, les états électroniques se rapprochent de ceux d'un atome de numéro atomique $Z_1 + Z_2$ qui peut être décrit par l'approximation de Borns. L'énergie de liaison des électrons atomiques augmente alors, ce qui a pour conséquence une diminution de la section efficace d'ionisation. Toutefois, pour les régimes de vitesse intermédiaire ($\xi_s \approx 1$) et élevé ($\xi_s \gg 1$), la contribution principale pour la section efficace d'une orbite s provient de particules se trouvant dans des zones extérieures à cette orbite. Cette particule chargée va perturber l'état stationnaire et entraîner un effet dit de polarisation qui aura comme conséquence une augmentation de la section efficace. On peut prendre en considération ces deux effets en corrigeant la section efficace de Born comme suit [Bas-73] et [Bra-74]:

$$\sigma^{\text{PSS}} = \sigma_s^{\text{PWBA}}((\xi_s / \zeta_s), (\zeta_s \theta_s)) \quad (40)$$

où le facteur ζ_s est défini comme étant:

$$\zeta_s = 1 + \frac{2 Z_1}{Z_{2s} \theta_s} (g_s(\xi_s) - h_s(\xi_s)) \quad (41)$$

Pour la couche K:

$$g_k(\xi_k) = \frac{(1 + 9\xi_k + 31\xi_k^2 + 98\xi_k^3 + 12\xi_k^4 + 25\xi_k^5 + 4.2\xi_k^6 + 0.515\xi_k^7)}{(1 + \xi_k)^9} \quad (42)$$

Pour la sous-couche L_1 :

$$g_{L_1}(\xi_{L_1}) = \frac{(1 + 9\xi_{L_1} + 31\xi_{L_1}^2 + 49\xi_{L_1}^3 + 162\xi_{L_1}^4 + 63\xi_{L_1}^5 + 18\xi_{L_1}^6 + 1.97\xi_{L_1}^7)}{(1 + \xi_{L_1})^9} \quad (43)$$

Pour la sous-couche L_2 et L_3

$$g_{L_{2,3}}(\xi_{L_{2,3}}) = \frac{(1 + 10\xi_{L_{2,3}} + 45\xi_{L_{2,3}}^2 + 102\xi_{L_{2,3}}^3 + 331\xi_{L_{2,3}}^4 + 6.7\xi_{L_{2,3}}^5 + 58\xi_{L_{2,3}}^6 + 7.8\xi_{L_{2,3}}^7)}{(1 + \xi_{L_{2,3}})^9} \quad (44)$$

$$h_s = \frac{2S}{\theta_s \xi_s^3} I\left(\frac{S c_s}{\xi_s}\right) \quad (45)$$

avec $c_K = c_{L_1} = 1.5$ et $c_{L_2} = c_{L_3} = 1.25$. La fonction $I(x_s)$ est donnée par la relation :

$$I(x) = \begin{cases} 2 \frac{e^{-2x_s}}{x_s^{1.6}} & \text{pour } 3 \leq x_s < 11. \\ e^{-2x_s} (0.031 + 0.210 x_s^{1/2})^{-1} & \text{pour } 0.035 < x_s < 3. \\ 0.75 \pi \left[\ln\left(\frac{1}{x_s^2}\right) - 1 \right] & \text{pour } 0 < x_s < 0.035. \end{cases} \quad (46)$$

$$\text{avec } x = \frac{S c_s}{\xi_s}$$

3.4.2. Déviation coulombienne

Pour des particules lentes, l'approximation de Born donne des valeurs de sections efficaces qui peuvent différer de plusieurs ordres de grandeur par rapport aux valeurs expérimentales. Cette différence énorme à basse énergie provient du fait que l'approximation de Born néglige l'influence de la répulsion entre les noyaux de la particule incidente et de l'atome cible. Cette répulsion a pour conséquences un ralentissement de la particule incidente et une modification de sa trajectoire. On ne peut donc pas considérer la trajectoire des particules incidentes comme étant une ligne droite mais plutôt hyperbolique. On définit alors le coefficient $C(dq_{\min})$ qui représente la correction coulombienne [Ban-59], [Bra-79] et [Lap-80] :

$$C_S(dq_{\min}) = (9 + 2L_2) E_{10+2L_2} (\pi dq_{\min}) \quad (47)$$

où $q_{\min}$ est donné par la relation (I- 41), d est la mi-distance d'approche dans une collision frontale,

$$d = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{4\pi\epsilon_0} \bigg/ \mu v_1^2 \quad (48)$$

et $E_m(y)$ représente l'intégrale exponentielle d'ordre m qui est évaluée par la relation

$$E_m(y) = \frac{e^{-y}}{y+m} \left[1 + \frac{m}{(y+m)^2} + \frac{m(m-2y)}{(y+m)^4} + \dots \right] \quad (49)$$

La quantité $(d q_{\min})$ peut être interprétée comme étant le rapport entre le temps caractéristique de diffusion coulombienne d/v_1 et le temps de transition électronique $1/\omega_{2s}$. La section efficace d'ionisation σ_S^{CPSS} s'écrit alors:

$$\sigma_S^{\text{CPSS}} = C_s (d q_{\min} \zeta_s) \sigma_S^{\text{PWBA}}((\xi_s/\zeta_s), (\zeta_s \theta_s)). \quad (50)$$

ω_{2s} est fréquence de transition

3.4.3. Correction relativiste

Cette correction tient compte du caractère relativiste des électrons des orbitales internes. Ce facteur est particulièrement important pour les électrons des atomes de Z_2 élevé. On définit le facteur de correction de la masse relativiste de l'électron [Car-77], [Bra-79] et [Lap-81] comme:

$$m_s^R(\xi_s) = \sqrt{1 + 1.1 y_s^2} + y_s \quad (51)$$

$$\text{où} \quad y_{K,L_1} = \frac{0.40(Z_{2s}/c)^2}{n_s \xi_{K,L_1}} \quad y_{L_2,L_3} = \frac{0.15(Z_{2L}/c)^2}{n_s \xi_{L_2,L_3}} \quad (52)$$

La section efficace d'ionisation devient alors:

$$\sigma_S^{\text{CPSSR}} = C_s (d q_{\min} \zeta_s) \sigma_S^{\text{PWBA}}\left(\left(\sqrt{m_s^R} \xi_s / \zeta_s\right), (\zeta_s \theta_s)\right). \quad (53)$$

3.4.4. Correction de la perte d'énergie

La dernière correction de la section efficace d'ionisation à l'approximation de Born tient compte de la perte d'énergie de la particule incidente lors du processus d'ionisation. Celui-ci est intégré dans la correction coulombienne par la formulation suivante [Lap-81] et [Bra-81]:

$$C_s^E(dq_{\min}) = (9 + 2L_2) E_{10+2L_2} \left(\frac{2\pi dq_{\min}}{Z_s(Z_s + 1)} \right). \quad (54)$$

$$Z_s = \sqrt{1 - \frac{4}{M_1 \zeta_s \theta_s} \left(\frac{\zeta_s}{\xi_s} \right)^2} \quad (55)$$

Le terme soustrait dans la relation (55) représente le rapport de la perte d'énergie de la particule incidente lors de l'ionisation et de son énergie cinétique. On obtient finalement la section efficace d'ionisation dans la théorie ECPSSR:

$$\sigma_s^{\text{CPSSR}} = C_s(dq_{\min} \zeta_s) \sigma_s^{\text{PWBA}} \left(\left(\sqrt{m_s^R (\xi_s / \zeta_s)} \xi_s / \zeta_s \right) (\zeta_s \theta_s) \right). \quad (56)$$

REFERENCES

- [Bam-72]. W. Bambynek, B. C. Rasemann, R. W. Fink and H. U. Freud, H. Mark and C. D. Swift, R. E. Price and P. Venugopal Rao, Rev of modern Physics 44-4 (1972) 717
- [Ban – 59] J. Bang and J. M. Hansteen, K Dan Vidensk- selck. Mat. Fys. Medd. 31 N°13 (1959)
- [Bas-73] G. Basbas, W. Brandt, R. Laubert, Physical Review A 7 (1973) 983
- [Bas-73] G. Basbas, W. Brandt, R.H. Ritchie, Physical Review. A 7 (1973) 1971
- [Bra-74] W. Brandt, G. Lapicki, Physical Review A 10 (1974) 474
- [Bra-79] W. Brandt, G. Lapicki, Physical Review A 20 (1979) 465
- [Bra-81] W. Brandt, G. Lapicki, Physical Review A 23 (1981) 1717
- [Ben-78] O. Benka and Kropf, Atomic data and Nuclear Data Tables 22 (1978) 219.
- [Coh-85] D.D. Cohen, M. Harrigan, Atomic Data Nuclear Data Tables 33 (1985) 255
- [Coh-86] D.D. Cohen, M. Harrigan, Atomic Data Nuclear Data Tables 34 (1986) 393.
- [Che-85] M. H. Chen and B. Crasemann, Atomic Data Nuclear Data Tables 33 (1985) 217.
- [Che-89] M. H. Chen and B. Crasemann, Atomic Data Nuclear Data Tables 41 (1989) 257.
- [Dav-01] D. Strivay, Thèse de Doctorat " Nouvelles applications des techniques d'analyse par faisceau d'ions" Université de Liège 2001.
- [Faz-94] S. Fazinic, I. Bogdanovic, M. Jaksic, I. Orlic, V. Valkovic, Nucl. Inst. Meth. B 94 (1994)
- [Fin-66] R. W. Fink, R. C. Jopson, Hans Mark and C. D. Swift, Rev of Modern Physics 38-3 (1966) 513.
- [Gou-06] M. Goudarzi, F. Shokouhi, M. Laméhi-Rachti and P. Oliaiy, Nucl. Inst. Meth. B 247 (2006) 218.

- [Haj-00] M. Hajivaliei, S. Puri, M. L. Garg, D. Mehta, A. Kumar, S. K. Chamoli, D. K. Avasthi, A. Mandal, T. K. Nanddi, K. P. Singh, N. Singh, I. M. Govil, Nucl. Inst. Meth. B 160 (2000) 203.
- [Har-76] T. L. Hardt and R. L. Watson, Atomic Data Nuclear Data Tables 17 (1976) 107.
- [Hei-82] C. Heitz, G. J. Costa, J. Cailleret and G. Lagarde, rapport CRN/PN 82-24
- [Jak-84] A. Jakob, D. Trautmann, F. Rösel, G. Baur, Nucl. Inst. Meth. B 4 (1984) 218.
- [Jes-85] A. P. Jesus, J.S. Lopes and J.P. Ribeiro, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 18 (1985) 2456.
- [Jes-86] A. P. Jesus, T.M. Pinheiro, I.A. Nisa, J.P. Ribeiro and J.S. Lopes, Nucl. Inst. Meth. B 15 (1986) 595.
- [Kra-74] M. O. Krause, J. Phys. Chem. Ref. Data 8 (1974) 307.
- [Lap-79] G. Lapicki and W. Losonsky, Physical Review A 20 (1979) 481.
- [Lap-80] G. Lapicki, L. Laudert and W. Brandt, Physical Review A 22 (1980) 1889
- [Lap-81] G. Lapicki, A. Zander, Physical Review. A 23 (1981) 2072
- [Lap-02] G. Lapicki, Nucl. Inst. Meth. B 189 (2002) 8.
- [Mer-58] E. Merzbacher, H. Lewis, Hand. Phys. 34 (1958) 166
- [Orl-94] I.Orlic, C.H. Sow, S.M. Tang, Atomic Data and Nuclear Data Tables 56 (1994) 159
- [Ouz-00] S. Ouziane, A. Amokrane, M. Zilabdi, Nucl. Inst. Meth. B 161-163 (2000)141
- [Ouz-02]] S. Ouziane, A. Amokrane, Mikrochimica Acta, 139 (2002) 131
- [Ouz-06] S. Ouziane, A. Amokrane, I. Toumert, A. Nourreddine and A. Pape, Nucl. Inst. Meth. B 249 (2006) 73.
- [Pau-80] H. Paul, Nucl. Inst. Meth. 169 (1980) 249
- [Pau-82] H. Paul, Nucl. Inst. Meth. 192 (1982) 11
- [Pau-89] H. Paul and J. Sacher, Atomic Data and Nuclear Data Tables 42 (1989) 105
- [Pau-93] H. Paul and O. Bolik, , Atomic Data and Nuclear Data Tables 54 (1993) 75

- [Ray-81] L.A. Rayburn, IEEE Trans. Nuclear Science NS-28 (1981) 1109.
- [Ray-83] L.A. Rayburn, IEEE Trans. Nuclear Science NS-30 (1983) 964.
- [Sal-74] S.I. Salem, S.L. Panossian, R.A. Krause, Atomic Data and Nuclear Data Tables 14 (1974) 91
- [Sar-91] L. Sarkadi, T. Mukoyamma, Nucl. Inst. Meth. B 61 (1991) 167
- [Sco-74] J. H. Scofield, Atomic Data Nuclear Data Tables 14 (1974) 121.
- [Sok-84] R.S. Sokhi, D. Crumpton, Atomic Data Nuclear Data Tables 30 (1984) 1
- [Sow-94] C.H. Sow, I. Orlic, T. Osipowicz, S.M. Tang, Nucl. Inst. Meth. B 85 (1994) 133
- [Sin-03] P. Singh, M. Sharma, J. S. Shahi, D. Mehta, N. singh, Nucl. Inst. Meth. B 211 (2003) 33.
- [Taw-74] H. Tawara, K. Ishii, S. Morita, H.Kaji, C. N. Shu and T. Shiokawa, Physical Review A 9 (1974) 1917.
- [Van-85] P. Van Aspen, K. Janssens, J. Nobles. Chemometrics and Intell. Labour. System 1 (1985) 109.
- [Vig-90] M. Vigilante, P. Cuzzorcea, N. De Cesare, F. Murolo, E. Perillo, G. Spadaccini, Nucl. Inst. Meth. B 51 (1990) 232.
- [Vig-91] M. Vigilante, P. Cuzzocrea, N. De Cesare, F. Murolo, E. Perillo, G. Spadaccini, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 24 (1991) 2521.
- [Xu-91] J. Q. Xu, Physical Review A 44-1 (1991) 373.