

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE
SCIENTIFIQUE
UNIVERSITE DES SCIENCES & DE LA TECHNOLOGIE
« HOUARI BOUMEDIENE »
FACULTE DE PHYSIQUE



THÈSE

Présentée pour l'obtention du diplôme de Doctorat d'État

En : Physique

Spécialité : Sciences Nucléaires

Par : AMMI Hakim

Thème :

**Contribution à l'étude du pouvoir d'arrêt et du straggling de
particules chargées légères dans des cibles minces polymériques
à basse énergie**

Soutenue publiquement le 24/10/2007, devant le jury composé de :

M. AMOKRANE A.	Professeur (USTHB)	Président
Mme ALLAB M.	Professeur (USTHB)	Directrice de thèse
M. OUICHAOUI S.	Professeur (USTHB)	Examineur
M. TOBBECHE S.	Maître de Conférences (Univ. de Batna)	Examineur
M. RAMDHANE M.	Professeur (Univ. de Constantine)	Examineur
M. ABDESSELAM M.	Maître de Conférences (USTHB)	Examineur

A la mémoire de mon père, a ma mère, à laquelle je suis très redevable.

A mes beaux-parents, que j'estime et respecte beaucoup.

A mes intimes, Lyes mon frère et Souad ma belle sœur

A mes deux enfants Abdelhadi et Ahlem, mes meilleurs amis

A ma femme, Lila, qui a vécue avec moi tous les moments difficiles avec une patience exemplaire et représenta pour moi un véritable soutien lors de l'élaboration de cette thèse.

REMERCIEMENTS

Je remercierai toutes les personnes sans qui cette thèse ne serait pas ce qu'elle est (aussi bien par les discussions que j'ai eu la chance d'avoir avec eux, leurs suggestions ou contributions). Si j'oublie une personne dans cet exercice, et je le ferai sans doute, je m'en excuse d'avance.

*Je tiens à remercier en tout premier lieu **Madame Malika Allab** Professeur à l'USTHB qui a dirigée cette thèse. Son encadrement, ses conseils concernant l'écriture de ce manuscrit, ses relectures acharnées de mes travaux m'ont été d'une aide précieuse. Pour tout cela, sa confiance et sa disponibilité du début à la fin de thèse, je la remercie vivement.*

*Je tiens à exprimer, d'une façon particulière, ma profonde gratitude à **Messieurs Mamoun Chekirine**, Enseignant Chercheur à l'université Saad Dahleb de Blida, **Reda Zemih**, Enseignant Chercheur à l'USTHB et **Monsieur Ster Mammeri**, Chargé de Recherche au CRNA, pour la conception, le suivi et l'analyse des différentes expériences effectuées auprès de l'accélérateur V.d.G. du C.R.N.A. Leurs compétences scientifiques m'ont été d'un grand apport pour l'aboutissement de ce travail.*

*Mes vifs remerciements s'adressent à **Monsieur Arezki Amokrane**, Professeur à l'USTHB, qui m'a fait l'honneur de présider le jury de cette thèse.*

*Merci également aux membres du jury qui ont accepté de juger ce travail: **M. Said Tobbeche** Directeur de Recherche et Maître de Conférences à l'université Hadj Lakhdar de Batna, **M. Mourad Ramdhane** Professeur à l'université Saïd Mentouri de Constantine, **M. Saad Ouichaoui** Professeur à l'USTHB et **M. Mehana Abdesselam** Maître de Conférences à l'USTHB.*

*Un grand merci aux membres du staff technique de l'accélérateur, pour leur constante disponibilité lors des différentes expériences menées auprès de l'accélérateur V.d.G. du CRNA. A leur tête **Monsieur Amrane Medouni** que je remercie particulièrement, **M. Sid Ali Boukandoura**, **M. Abdelhakim Hammoudi** et **M. Lahçen Bacha**, qu'ils trouvent ici toute ma reconnaissance.*

*Je ne saurais oublier de remercier mes amis Chercheurs, **Zahir Idiri**, **Siad Menouar**, **Nadjah Zenine** et **Salim Rekab** pour leur soutien et les encouragements qu'ils n'ont cessé de me prodiguer tout au long de ce travail.*

*Je n'omettrai pas de remercier nos chimistes **Mesdemoiselles Lila Omari** et **Chafika Lakhdar-Chaouch**, pour la réalisation des différentes cibles solides auprès de l'évaporateur du CRNA.*

*En fin, un grand merci à toute l'équipe de la **Division des Techniques Nucléaires** : Chercheurs, Ingénieurs et Techniciens.*

TABLE DES MATIÈRES

INTRODUCTION GÉNÉRALE.....	1
I. INTERACTION DES PARTICULES CHARGÉES AVEC LA MATIÈRE.....	4
I-1 INTRODUCTION.....	4
I-2 GRANDEURS DE L'INTERACTION ION MATIÈRE.....	4
I-3 THÉORIES DU POUVOIR D'ARRÊT.....	5
1 : INTRODUCTION.....	5
2 : POUVOIR D'ARRÊT ELECTRONIQUE.....	6
2-1 : INTRODUCTION.....	6
a. RÉGIME A BASSE VITESSES $\left(v \ll Z_1^{2/3} v_0 \right)$	7
b. RÉGIME DE VITESSES INTERMÉDIAIRES $\left(v \approx Z_1^{2/3} v_0 \right)$..	8
c. RÉGIME DE VITESSES ÉLEVÉES $\left(v \gg Z_1^{2/3} v_0 \right)$	8
2-2. L'APPROCHE CLASSIQUE DE BOHR DU POUVOIR D'ARRÊT	9
2-3. L'APPROCHE QUANTIQUE DE BETHE.....	12
2-4.THEORIE DE BETHE- BLOCH DU POUVOIR D'ARRÊT.....	13
2-5. EXTRACTION DU POTENTIEL D'EXCITATION ET D'IONISATION MOYEN ET DU PARAMETRE DE CORRECTION DE COUCHES A PARTIR DE LA FORMULE DE BETHE-BLOCH.....	17
a- LE TERME DE CORRECTIONS DE COUCHES $\frac{C}{Z_2}$	17

b- LE POTENTIEL D'IONISATION MOYEN $\langle I \rangle$	18
2-6 : POUVOIR D'ARRÊT DANS UN MATÉRIAU COMPOSÉ.....	18
1. MODÈLE DE BRAGG.....	19
2. MODÈLE DE CAB.....	19
2-7 : LE LOGICIEL SRIM.....	21
I-4. THÉORIES DU STRAGGLING EN ENERGIE.....	23
1.INTRODUCTION.....	23
2. THÉORIE DE BOHR.....	24
3. THÉORIE DE BETHE-LIVINGSTON.....	27
4. THÉORIE DE LINDHARD ET SCHARFF.....	28
II. MÉTHODE EXPÉRIMENTALE.....	30
II-1. INTRODUCTION.....	30
II-2. SPECTROSCOPIE DE RÉTRODIFFUSION DE RUTHERFORD : RBS.....	30
1. GÉNÉRALITES.....	30
2. CARACTÉRISATION DE LA DIFFUSION.....	31
3. PERTE D'ÉNERGIE EN CIBLE MINCE.....	32
II-3. PERTE D'ÉNERGIE EN TRANSMISSION.....	34
II-4.TÉCHNIQUE NUCLÉAIRE DE TRANSMISSION INDIRECTE.....	35
II-5. DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL.....	37
1. LE FAISCEAU DE PARTICULES.....	37
2. LA CHAMBRE A RÉACTION.....	40
3. CARACTÉRISTIQUES DES CIBLES.....	41
a. LES CIBLES Au/Si.....	42
b. LES FILMS PLASTIQUES.....	43

II-6. DETERMINATION EXPERIMENTALE DE LA PERTE D'ÉNERGIE ET DU STRAGGLING EN ÉNERGIE DES PARTICULES INCIDENTES.....	44
1. LES CONDITIONS EXPÉRIMENTALES.....	44
2. LA PERTE D'ÉNERGIE.....	46
a. MESURE DE LA PERTE D'ÉNERGIE.....	46
b. INCERTITUDES SUR LE POUVOIR D'ARRÊT.....	47
3. LE STRAGGLING.....	48
a. MESURE DU STRAGGLING.....	48
b. INCERTITUDES SUR LE STRAGGLING.....	49
II-7. CONCLUSION.....	50
III. PRESENTATION ET ANALYSE DES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX.....	51
III-1. INTRODUCTION.....	51
III-2. PRÉSENTATIONS DES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX.....	51
1- LES PARAMETRES EXPERIMENTAUX.....	51
2-.RÉSULTATS DU POUVOIR D'ARRÊT.....	52
3-. RÉSULTATS DU STRAGGLING EN ÉNERGIE.....	54
III-3. ANALYSE ET DISCUSSION.....	55
1- LE POUVOIR D'ARRÊT DES IONS ${}^1_1H^+$, ${}^2_1H^+$ ET ${}^4_2He^+$	55
2- LE POTENTIEL D'EXCITATION ET D'IONISATION MOYEN $\langle I \rangle$	60
3- LE STRAGGLING EN ÉNERGIE DES IONS ${}^1_1H^+$, ${}^2_1H^+$ ET ${}^4_2He^+$	67

a- STRAGGLING EN ÉNERGIE DES PROTONS ET DEUTONS.....	67
b- STRAGGLING EN ÉNERGIE DES PARTICULES ALPHA.....	70
c- EFFET DE L'INHOMOGENÉITÉ DE L'ÉPAISSEUR DE LA CIBLE SUR LA MESURE DU STRAGGLING.....	72
III-5. CONCLUSION.....	78
CONCLUSION GÉNÉRALE.....	80
RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....	82
PUBLICATIONS AFFÉRENTES À CE TRAVAIL.....	87

Liste des figures

Liste des tableaux

INTRODUCTION GÉNÉRALE

INTRODUCTION

Depuis plus d'un siècle, le pouvoir d'arrêt des ions énergétiques dans la matière fait l'objet d'un grand intérêt scientifique. En effet, la détermination de la perte d'énergie et du parcours des ions dans la matière est très importante dans de nombreux domaines scientifiques, notamment dans l'analyse des dommages créés par les rayonnements (radiation damage), en dosimétrie, dans l'analyse des matériaux avec des faisceaux d'ions, en physique nucléaire, dans le processus d'implantation ionique, en médecine notamment en radiologie etc...

Le pouvoir d'arrêt des matériaux a constitué l'un des principaux domaines d'intérêt de la physique atomique, dès le début du siècle dernier, après que Marie Curie eut déclaré en 1900 que « les rayons alpha sont des projectiles matériels susceptibles de perdre leur vitesse en traversant la matière ». Les premiers traitements théoriques effectués par Bohr [BOH15], Bethe [BET30] et Bloch [BLO33] ont été au départ motivés par la nécessité d'obtenir une bonne compréhension du processus de ralentissement, afin d'extraire des informations sur la nature des particules étudiées. L'analyse du phénomène de pénétration des ions dans la matière a permis le développement de différentes approches théoriques, d'abord par des méthodes classiques, puis par des méthodes quantiques et enfin par des codes de simulation sur ordinateurs, qui demeurent toujours un bon outil dans le dialogue interactif entre la théorie et l'expérience.

La perte d'énergie des ions légers dans la matière a été largement étudiée expérimentalement et théoriquement notamment dans les matériaux monoatomiques, par différents groupes de recherche [AND78] et [SAN80] à travers le monde. Durant la dernière décennie plusieurs travaux ont été publiés sur l'interaction des ions énergétiques avec des cibles composées, où différentes techniques nucléaires expérimentales ont été mises au point pour mieux décrire le processus de ralentissement des ions notamment à travers des cibles de polymères de faibles épaisseurs [LEB95], [RAI96], [RAI03] et [POR04].

Les résultats obtenus ont été comparés aux modèles théoriques du pouvoir d'arrêt (théorie de Bethe-Bloch [BLO33]) ou au code TRIM élaboré par Ziegler *et al.* [ZIE85] et à la compilation des données expérimentales publiées dans le rapport ICRU49 [ICRU93], où

l'application de la règle de Bragg et Kleeman [BRA05] donne une description satisfaisante du pouvoir d'arrêt des matériaux composés à partir de la combinaison des pouvoirs d'arrêt des éléments simples constituants. La règle d'additivité de Bragg, vérifiée avec succès dans le cas de la détermination de la perte d'énergie, n'a jusqu'à présent pas été testée, pour l'estimation de la fluctuation de la perte d'énergie ou « straggling » à cause de la faible disponibilité des résultats expérimentaux correspondants.

L'objet de ce travail concerne l'étude du ralentissement des ions légers dans des films plastiques minces, dans un domaine d'énergie s'étalant de 340 keV à 3600 keV. L'accélérateur Van de Graaff du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger est bien adapté pour couvrir ce domaine d'énergie, délivrant des faisceaux d'ions légers ($^1_1H^+$, H_2^+ , H_3^+ , $^2_1H^+$ et $^4_2He^+$) d'intensité et d'énergie variables. Les films plastiques utilisés dans nos expériences sont des polymères de type $(C_xH_yO_zN_t)_n$ {mylar($C_{10}H_8O_4$)_n, makrofol($C_{16}H_{14}O_3$)_n, Lr-115 ($C_6H_9O_9N_2$)_n et polypropylène (C_3H_6)_n}, qui couvrent un large champ d'application dans différents domaines: industrie électronique, radioprotection et physique nucléaire etc...

Nous utiliserons dans ce travail la technique nucléaire expérimentale dite « de transmission indirecte » basée sur la combinaison de deux techniques couramment utilisées dans le domaine de la mesure du ralentissement des ions dans la matière : la rétrodiffusion de Rutherford (RBS) et la transmission. Cette technique nucléaire, nous permet de mesurer simultanément la perte d'énergie et la dispersion de cette perte d'énergie d'un faisceau d'ions d'énergie donnée traversant un film de polymère très mince.

Nous déterminerons les grandeurs physiques suivantes : pouvoir d'arrêt (perte d'énergie moyenne par unité de parcours), potentiel d'ionisation et d'excitation moyen $\langle I \rangle$ du milieu ralentisseur et straggling en énergie (fluctuation de la perte d'énergie). Les mesures obtenues nous permettront d'enrichir la base de données expérimentales (très peu de données sont disponibles dans la littérature pour le cas du straggling dans les composés) et de tester la validité de la règle de sommation de Bragg dans le cas des composés étudiés tant en ce qui concerne leur pouvoir d'arrêt que le straggling en énergie des particules incidentes. Pour répondre à ces objectifs, ce travail est divisé en trois parties :

La première partie résume les principes fondamentaux de l'interaction ions-matière en rappelant les différentes théories et tabulations semi empiriques appropriées au domaine d'énergie couvert dans cette étude, notamment la théorie de Bethe-Bloch pour le pouvoir d'arrêt et les théories de Bohr et de Bethe-Livingston pour le straggling.

Nous donnons une description de l'approche théorique que nous avons adoptée pour l'extraction de paramètres tels que le potentiel d'ionisation et d'excitation moyen $\langle I \rangle$ et le terme de correction de couches $\left(\frac{c}{z_2} \right)$. Ces grandeurs sont déduites à partir de la formule de Bethe-Bloch utilisée, dans le cas d'une cible composée, en appliquant la règle d'additivité de Bragg.

La seconde partie décrit les principales techniques nucléaires expérimentales utilisées dans les expériences du ralentissement des ions dans la matière (la technique de transmission et la technique d'analyse par rétrodiffusion élastique : RBS) ; les limitations physiques imposées par chacune de ces techniques seront discutées.

Nous présenterons la technique nucléaire de transmission indirecte que nous avons adoptée permettant de mesurer quasi simultanément la perte d'énergie et la dispersion de cette perte d'énergie, dans un film polymérique de très faible épaisseur en réduisant les sources d'erreurs expérimentales.

Les résultats expérimentaux seront présentés, analysés et discutés au troisième chapitre. Nous présenterons les résultats obtenus du pouvoir d'arrêt et du straggling en énergie des protons, deutons et des particules alpha dans les divers matériaux étudiés. Les résultats relatifs aux pouvoirs d'arrêt seront comparés aux données déduites du calcul semi empirique de Ziegler générées par le code SRIM [SRIM03], à celles rapportées dans la dernière compilation de Helmut Paul [HEL06]. Les valeurs du potentiel d'ionisation et d'excitation moyen $\langle I \rangle$ des cibles composées étudiées, seront déterminées à partir du pouvoir d'arrêt expérimental des protons.

Dans la dernière partie de ce chapitre, nous analyserons nos données du straggling à l'aide des théories de Bohr [BOH48] et de Bethe-Livingston [LIV37] auxquelles nous appliquerons la règle d'additivité de Bragg. Nous étudierons l'effet de l'uniformité de l'épaisseur des cibles utilisées, effet qui devrait affecter sensiblement la détermination de la dispersion de la perte d'énergie [BES80].

CHAPITRE I

INTERACTION DES PARTICULES CHARGÉES AVEC LA MATIÈRE

I-1 Introduction

La méthode de bombardement par faisceaux d'ions est un outil courant et indispensable pour l'étude et la compréhension des mécanismes régissant l'interaction ion-matière. Avec l'avènement des accélérateurs, le phénomène du ralentissement des particules chargées dans la matière a fait l'objet de recherches intensives, motivées par la nécessité de caractériser les différents processus mis en jeu lors de cette interaction dans leurs nombreuses et diverses applications dans plusieurs domaines. Le pouvoir d'arrêt (la perte d'énergie par unité de parcours) et le straggling en énergie (fluctuation de la perte d'énergie moyenne) sont deux grandeurs physiques fondamentales qui caractérisent ce phénomène.

Une évaluation précise de ces grandeurs est nécessaire dans toute étude ou application ayant comme outil de base un faisceau d'ions et une cible, comme dans le cas de l'implantation ionique largement utilisée dans le domaine de la modification des caractéristiques des matériaux et dans les applications médicales où l'exigence d'administrer des doses de rayonnement de plus en plus précises et de plus en plus ciblées est de plus en plus pressante.

Dans ce chapitre, nous nous proposons de faire un rappel des principales théories [BOH15], [BLO33], [LIV37] et [LIN52] et modèles semi-empiriques [SRIM2003] s'appliquant au domaine d'énergie couvert par cette étude. Nous introduirons notamment les notions de pouvoir d'arrêt électronique et de straggling en énergie d'un ion projectile traversant un matériau composé nous permettant d'extraire à partir des données expérimentales certaines paramètres physiques telles que le potentiel d'ionisation et d'excitation moyen et les corrections de couches.

I-2 : Grandeurs de l'interaction ion-matière

Les grandeurs pertinentes de l'interaction ion-matière permettant de caractériser le phénomène du ralentissement de particules chargées d'énergie E dans un matériau d'épaisseur X , sont :

- Le pouvoir d'arrêt $\left(-\frac{dE}{dX}\right)$, qui dépend notamment des sections efficaces de collisions élastiques et inélastiques.

- La fluctuation de la perte d'énergie $\delta E = 2.355 \Omega$ (straggling en énergie) où Ω est la déviation standard, qui dépend de la nature et de l'épaisseur du milieu traversé, du type d'ion incident et de son énergie.
- Le potentiel d'ionisation et d'excitation moyen $\langle I \rangle$, qui caractérise le milieu traversé.
- Le parcours projeté (R_p) de l'ion dans la matière traversée, qui dépend de la vitesse de l'ion, peut être évalué en intégrant l'inverse du pouvoir d'arrêt:

$$R_p = \int_0^{E_0} \left(-\frac{dE}{dX} \right)^{-1} dE \quad (\text{I-1})$$

E_0 représente l'énergie cinétique de la particule à son entrée dans le milieu ralentisseur

I-3 : Théories du pouvoir d'arrêt

1 : Introduction

Le pouvoir d'arrêt ou la perte d'énergie par unité de parcours est une grandeur physique fondamentale qui caractérise la pénétration des particules chargées énergétiques dans la matière. De nombreuses théories et des modèles semi-empiriques ont été proposés de longue date pour l'évaluation du pouvoir d'arrêt, et qui demeurent toujours d'actualité [MAS06], [POR04].

On retrouve les théories de Bohr [BOH13, BOH15], de Bethe [BET30, BET32], de Bethe-Bloch [BLO33], la théorie diélectrique [LIN52], la théorie des collisions binaires (BCAS : Binary Collision Approximation Scheme) développée récemment par Sigmund et Schinner [SIG02], ainsi que l'approche semi-empirique ZBL développée par Ziegler et al. en 1985 [ZIE85], présentée sous forme d'un code de calcul en 1985, révisé depuis à plusieurs reprises (versions TRIM85 ou SRIM2003).

Le choix et l'utilisation de la théorie appropriée dépendent du type d'interaction mis en jeu lors du ralentissement de l'ion dans la matière traversée. Effectivement, quand un ion chargé rapide pénètre dans un matériau, il cède progressivement son énergie au milieu

traversé via deux mécanismes d'interaction distincts avec les constituants de la cible. Ces mécanismes de perte d'énergie dépendent notamment de la vitesse de la particule incidente et de la nature de la matière traversée (gaz, solide, etc.). Le ralentissement résulte des deux processus suivants :

- a- collisions « élastiques » ou interactions coulombiennes directes entre les particules incidentes et les noyaux des atomes cible ; la perte d'énergie correspondante est dite « nucléaire ».
- b- collisions « inélastiques » ou interactions avec les électrons de la cible se traduisant par une excitation et/ou une ionisation des atomes cibles ; la perte d'énergie correspondante est dite « électronique ».

A basse énergie (\sim keV/uma) la perte d'énergie nucléaire est prépondérante ; en revanche aux énergies plus élevées la perte d'énergie est essentiellement de nature électronique. Compte tenu de la gamme d'énergie dans laquelle ont été effectuées nos mesures ($>$ 300 keV/uma), nous nous intéresserons uniquement aux collisions d'origine « inélastiques ».

2 : Pouvoir d'arrêt électronique

2-1 : Introduction

La description du mécanisme de la perte d'énergie électronique est beaucoup plus complexe que celle de la perte d'énergie nucléaire, car l'interaction entre l'ion incident et les électrons du milieu ralentisseur ne peut pas être considérée comme une collision binaire entre deux corps. L'ion incident passe par divers états de charge: lors de son parcours dans le matériau l'ion est partiellement épluché (perte de ses électrons); tout en capturant des électrons des atomes cibles, avant d'atteindre sa charge d'équilibre. Ces différents états de l'ion ont lieu au cours de son ralentissement dans le matériau. Cela dépend de l'énergie de l'ion.

Deux modèles rendent compte des mécanismes de perte d'énergie, valables respectivement à grande et faible vitesse. La frontière relativement large entre ces deux régimes est régie par le rapport de la vitesse du projectile à la vitesse de Bohr v_0 moyenne des électrons des atomes-cibles.

La vitesse du projectile réduite v_r est donnée d'après le modèle de Thomas-Fermi [LIN68], par la relation $v_r = \frac{v}{v_0} Z_1^{2/3}$, où v_0 est la vitesse de Bohr ($v_0 = \frac{e^2}{\hbar} = \frac{c}{137}$, correspondant à des particules d'énergies de 25 keV/uma, c étant la vitesse de la lumière). On peut alors, distinguer le pouvoir d'arrêt des ions dans trois régimes de vitesses différents (figure I-1).

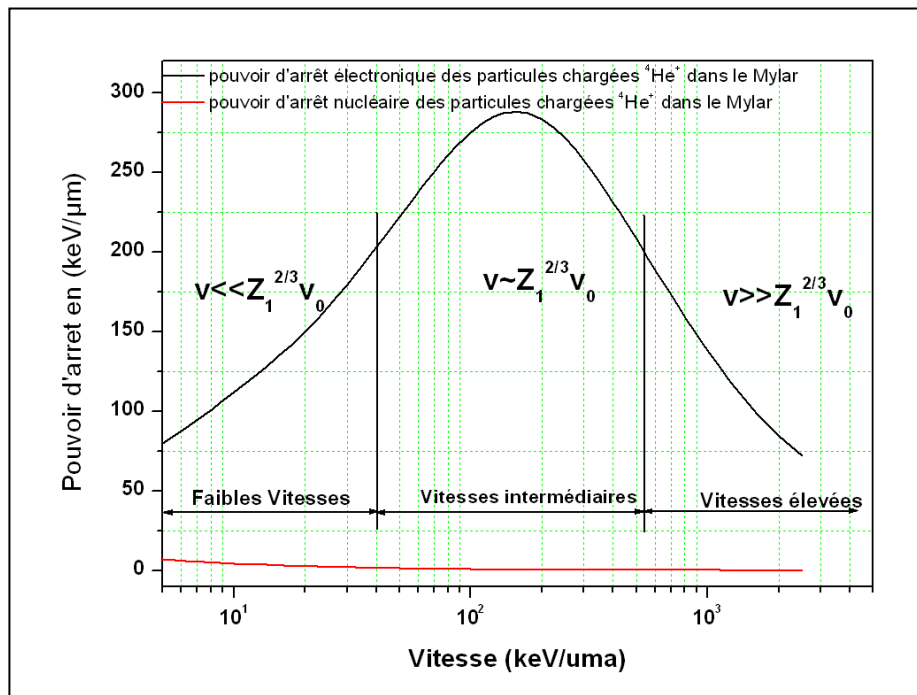


Figure I-1 : évolution du pouvoir d'arrêt électronique des particules alpha dans le Mylar en fonction de la vitesse des ions incidents (keV/uma), calculée par le code de simulation SRIM [SRIM03].

a : Le régime dit de basses vitesses $\left(v \ll Z_1^{2/3} v_0 \right)$.

A faible vitesse, la majorité des électrons de la cible a une vitesse orbitale plus grande que celle de l'ion incident. La durée de collision entre l'ion et un atome cible devient alors très grande comparée à la période de révolution de l'électron autour de l'atome, ainsi donc l'électron ne peut plus être considéré comme libre. Seuls les électrons faiblement liés de la cible contribueront à la perte d'énergie de l'ion.

Lindhard et Scharff [LIN63] ont montré, que le pouvoir d'arrêt électronique est alors proportionnel à la vitesse v du projectile ; ce résultat est conforme aux prédictions du modèle de Firsov [FIR57].

b : Le régime dit des vitesses intermédiaires $\left(v \approx Z_1^{2/3} v_0 \right)$.

Dans cette gamme d'énergie, les sections efficaces d'interaction des différents processus atomiques sont proches de leurs valeurs maximales et le pouvoir d'arrêt électronique atteint son maximum; il n'existe aucune formulation simple et précise pour prédire ce pouvoir d'arrêt. Ce régime est généralement décrit par la théorie diélectrique de Lindhard [LIN63] en liaison avec la charge effective.

c : Le régime dit de hautes vitesses $\left(v \gg Z_1^{2/3} v_0 \right)$.

Ce régime est atteint pour de grandes vitesses de collisions ou pour des grandes asymétries de collisions de type $Z_1 \gg Z_2$ (Z_1 et Z_2 représentent respectivement les numéros atomiques du projectile et de la cible) ; c'est la limite haute énergie pour laquelle les ions incidents sont complètement épluchés et l'interaction est bien décrite par un potentiel purement coulombien.

Deux approches de base ont été présentées pour évaluer la perte d'énergie électronique d'une particule en collision avec une cible : L'approche classique de Bohr [BOH15] qui dépend du paramètre d'impact et l'approche quantique de Bethe [BET30] qui dépend du moment de transfert d'énergie de la particule aux électrons de la cible.

Les ions que nous utilisons dans cette étude sont des ions rapides (p, d, helium) qui traversent des cibles composées de faibles épaisseurs (quelques microns) ; le ralentissement de l'ion projectile par interaction avec les électrons de la cible correspond à un pouvoir d'arrêt électronique. Nous allons décrire la théorie de Bohr correspondant aux faibles vitesses du projectile et la théorie de Bethe-Bloch qui caractérise le régime dit de hautes vitesses.

2-2 : L'approche classique de Bohr du pouvoir d'arrêt

Soit une particule incidente de masse M_1 , de charge Z_1e et d'énergie cinétique E_1 se dirigeant avec un paramètre d'impact b vers un atome cible au repos de masse M_2 , de charge Z_2e , (figure I-2).

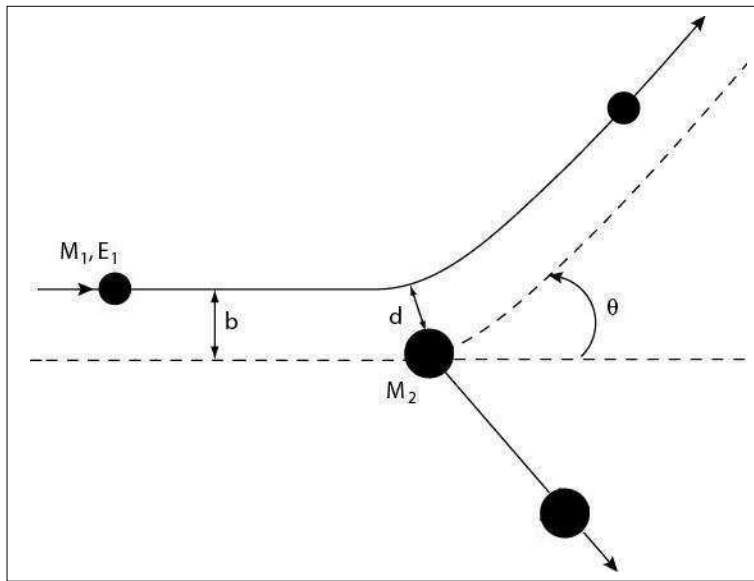


Figure I-2 : schéma de principe d'une collision dans le système du laboratoire.

Pour une interaction coulombienne, l'angle de diffusion θ dans le référentiel du laboratoire est relié au paramètre d'impact b et à la distance minimale d'approche d par la relation :

$$\operatorname{tg}\left(\frac{\theta}{2}\right) = \frac{d}{2b} \quad (\text{I-2})$$

où $d = \frac{2Z_1Z_2e^2}{\mu v^2}$ et $\mu = \frac{M_1M_2}{(M_1 + M_2)}$, μ étant la masse réduite.

Au cours du ralentissement de la particule chargée, à travers une cible d'épaisseur ΔX , plusieurs types de collisions peuvent avoir lieu induisant des pertes d'énergie comprises dans l'intervalle d'énergie $(T, T + dT)$, où T est la quantité d'énergie cinétique transférée lors de l'interaction entre l'ion incident et un électron de l'atome cible.

La section efficace d'un tel transfert a été calculée par Rutherford [RUT11] et elle s'écrit :

$$d\sigma(T) = 2\pi b db = \pi \left(\frac{d}{2}\right)^2 T_{\max} \frac{dT}{T^2} \quad (\text{I-3})$$

où ,

$$T = \frac{4M_1 M_2}{(M_1 + M_2)^2} \cdot E_1 \cdot \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right) = T_{\max} \cdot \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right) \quad (\text{I-4})$$

A cause du caractère statistique de ces collisions, l'énergie E_1 du faisceau incident prend une distribution finale centrée autour de l'énergie sortante $E_1 - \Delta E$, où ΔE est l'énergie moyenne globale perdue dans la cible (figure I-3). Cette perte d'énergie est définie comme suit :

$$\langle \Delta E \rangle = N \Delta X \int T d\sigma(T) \quad (\text{I-5})$$

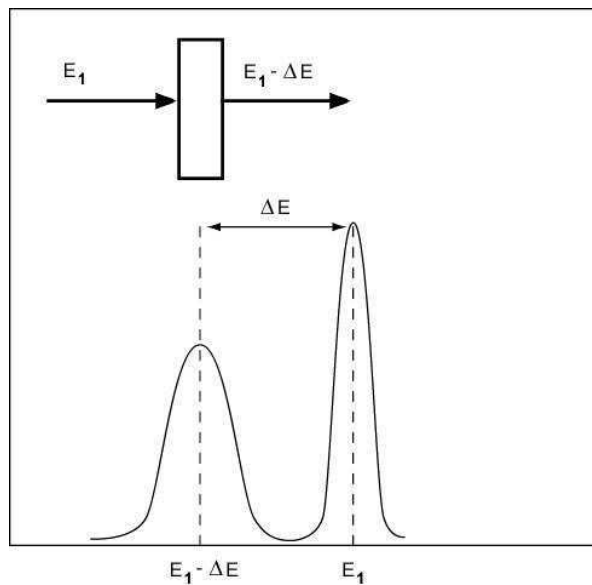


Figure I-3 : Distributions d'énergie sans et avec la cible en place ; définition de la perte d'énergie et du straggling

L'énergie transférée par unité de parcours au cours de la collision avec la cible ou pouvoir d'arrêt de cette dernière est :

$$-\left(\frac{dE}{dX}\right) = N \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} T d\sigma(T) \quad (\text{I-6})$$

où N est le nombre d'atomes cibles par cm^3 et le signe moins représente la diminution d'énergie.

T_{\min} et T_{\max} sont, respectivement, l'énergie minimum et l'énergie maximum transférées à l'atome cible ; T_{\max} représente l'énergie maximale transférée lors d'un choc frontal ($b=0$, $\theta = 180^\circ$).

$$T_{\max} = \frac{4M_1M_2}{(M_1 + M_2)^2} E_1 \quad (\text{I-7})$$

La borne inférieure T_{\min} est nécessaire pour éviter une divergence de l'intégrale et se justifie par l'existence d'un seuil de transfert d'énergie existant quel que soit le type d'interaction (critère de Bohr).

Dans le cas d'une diffusion sur un électron cible ($M_2 = m_e$) où $M_1 \gg m_e$, alors $T^{\max} = 2m_e v^2$, (m_e étant la masse de l'électron et v la vitesse du projectile) ; le pouvoir d'arrêt est alors donné par [ZIE99] :

$$\left(-\frac{dE}{dX} \right) = \frac{4\pi Z_2 e^4}{m_e v^2} Z_1^2 \ln \left(\frac{\gamma^2 m_e v^3}{Z_1 e^2 \omega} \right) \quad (\text{I-8})$$

où ω est la fréquence orbitale d'un électron et γ est le facteur de Lorentz. $\gamma = 1/(1 - \beta^2)^{1/2}$ avec $\beta = v/c$.

Pour une cible polyatomique comportant n types d'atomes, l'approche généralement retenue dans le calcul de son pouvoir d'arrêt $\left(-\frac{dE}{dX} \right)_{\text{Total}}$ consiste à pondérer les pertes d'énergies induites pour chaque type d'atomes i selon leurs densités atomiques N_i et leurs masses atomiques A_i respectives, suivant la relation de Bragg [BRA05].

$$\left(-\frac{dE}{dX} \right)_{\text{Total}} = \frac{1}{M} \sum_{i=1}^n N_i A_i \left(-\frac{dE}{dX} \right)_i \quad \text{I-9}$$

Avec $M = \sum_{i=1}^n N_i A_i$, la masse molaire

2-3 : L'approche quantique de Bethe.

Une quinzaine d'années après Bohr, Bethe [BET30] a élaboré une théorie quantique du pouvoir d'arrêt pour des particules rapides, basée sur l'approximation de Born au premier ordre (PWBA) [BOR26]. Selon cette approche, la perte d'énergie électronique est prédominante pour des vitesses de l'ion incident supérieures à la vitesse de Bohr ($v \gg v_0, v_0 = e^2/\hbar$) et l'interaction peut être considérée comme une perturbation.

Selon Bethe, le pouvoir d'arrêt $S(E)$ peut être écrit sous la forme suivante :

$$S(E) = \frac{4\pi Z_1^2 Z_2 e^4}{m_e v^2} \ln\left(\frac{2m_e v^2}{\langle I \rangle}\right), \quad (\text{I-10})$$

où $\langle I \rangle$ est le potentiel moyen d'excitation et d'ionisation du milieu ralentisseur.

Plusieurs travaux ont été effectués pour évaluer ce paramètre [FAN64], [ZIE80], [AHL80] et [ICRU93], qui dépend de la densité de charge électronique ρ . Dans l'approximation de densité locale (LDA), la valeur de $\langle I \rangle$ peut être calculée à partir de la relation [ZIE99] :

$$\ln\langle I \rangle = \frac{1}{Z_2} \int_0^v \ln(\chi \hbar \omega_0) \rho dv \quad (\text{I-11})$$

où $\omega_0^2 = 4\pi\rho e^2/m_e$ et χ est une constante de l'ordre de 1.

Les divers travaux s'accordent sur le fait que le potentiel d'excitation et d'ionisation moyen $\langle I \rangle$ est proportionnel à Z_2 . Bonderup [BON67] a alors introduit une formule empirique permettant d'estimer ce paramètre suivant l'expression :

$$\langle I \rangle = 11,4 Z_2 \text{ (eV)} \quad (\text{I-12})$$

Lorsque la vitesse du projectile diminue et devient du même ordre de grandeur que celle des électrons de la cible, l'ion incident échange des charges avec les atomes de la cible. Le nombre atomique du projectile, Z_1 n'est alors plus adapté et doit être remplacé par un nombre atomique effectif $Z_1^* = \gamma Z_1$, $\gamma Z_1 \leq 1$ dépendant de la vitesse, telle celle donnée par Northcliffe & Schilling [NOR70] :

ou γ est le paramètre de charge effective, donnée, selon [NOR70], par

$$\gamma = \left(1 - \exp \left(- \frac{v}{v_0 Z_1^{2/3}} \right) \right) \quad (\text{I-13})$$

où v_0 est la vitesse de Bohr ($v_0 = 2.2 \times 10^6 \text{ m/s}$). Aux énergies élevées $\gamma = 1$.

L'introduction de la charge effective dans le calcul du pouvoir d'arrêt électronique donné par Bethe (éq. I-10) permet de raccorder les domaines des hautes et basses vitesses (Lindhard et Scharff, fig. I-1) de part et d'autre du maximum du pouvoir d'arrêt électronique. Cependant, la signification physique de la charge effective n'est pas évidente et ne doit pas être interprétée directement comme la charge moyenne réelle de l'ion, à une vitesse donnée, dans le solide. Il se produit en effet une succession de captures et pertes d'électrons du milieu par la particule. En fin de ralentissement, lorsque la vitesse tend vers zéro, la particule n'étant plus ionisante, achève de perdre son énergie par interactions élastiques avec les atomes du milieu.

2-4 : Calcul du pouvoir d'arrêt par la théorie de Bethe-Bloch

Bloch [BLO33] a développé une autre formulation du pouvoir d'arrêt en 1933, reliant le calcul quantique de Bethe au traitement classique de Bohr. Cette formulation consiste à remplacer l'onde plane de l'électron atomique (approximation de Born) par une fonction d'onde coulombienne due au champ électromagnétique créé par le projectile. Il a montré que le traitement classique de Bohr est valable lorsque le paramètre sans dimension

$$\eta = \frac{Z_1 e^2}{\hbar v} = Z_1 \frac{v_0}{v} \text{ est sensiblement supérieur à l'unité } (\eta \gg 1).$$

Pour $\eta \ll 1$ correspondant aux vitesses du projectile nettement supérieures à celle de Bohr ($v \gg Z_1 v_0$), le traitement par la théorie des perturbations de Bethe peut être appliqué. Cependant, Bloch a commis une très petite erreur dans l'estimation de la section efficace de diffusion, et la formule finale du pouvoir d'arrêt a été présentée en tenant compte de cette erreur.

A l'origine, le pouvoir d'arrêt a été décrit par Bethe-Bloch [BLO33] suivant la relation relativiste suivante :

$$S(E) = \frac{4\pi Z_1^2 Z_2 e^4}{m_e v^2} \left\{ \ln \left(\frac{2m_e v^2}{\langle I \rangle} \right) - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 + \Psi(Z_1) \right\} \quad (\text{I-14})$$

La fonction $\Psi(Z_1)$, introduite pour corriger la formule du pouvoir d'arrêt de Bethe, dépend de la section efficace de diffusion. L'expression de cette correction a été reprise ultérieurement du fait de la divergence existante entre la valeur de $S(E)$ calculée aux limites de la formule de Bloch et celle déduite de la formule de Bethe.

Fano [FAN47] a décrit la version relativiste de la formule de la perte d'énergie établie par Bethe-Bloch en incluant d'autres termes correctifs : le terme de corrections de couches C/Z_2 et le terme de correction due à l'effet de densité $\delta/2$, donnant :

$$S(E) = \frac{4\pi e^4 Z_1^2 Z_2}{m_e v^2} \left\{ \ln \left(\frac{2m_e v^2}{\langle I \rangle} \right) - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 - \frac{C}{Z_2} - \frac{\delta}{2} \right\} \quad (\text{I-15})$$

La correction C/Z_2 a été introduite par Barkas et Berger [BAR64] pour tenir compte des effets de couches à basse énergie c.à.d. de la non participation des couches internes au ralentissement quand la vitesse de l'ion incident est comparable à celle des électrons atomiques. $\delta/2$ a été introduite par Fermi [FER40], effet qui n'est valable qu'aux énergies relativistes ($\beta \geq 0.88$). Les corrections dues à cet effet ont été traitées théoriquement par différents auteurs, notamment par Sternheimer [STE82].

Plusieurs corrections ont été proposées pour améliorer l'expression théorique de Fano, en reformulant l'équation (I-15) en puissances de Z_1 . La formule du pouvoir d'arrêt de Bethe-Bloch est communément exprimée comme suit [ZIE99] :

$$S(E) = \frac{\kappa Z_1^2 Z_2}{\beta^2} L(\beta) \quad (\text{I-16})$$

où κ est une constante donnée par : $\kappa \equiv 4\pi r_0^2 m_e c^2$ où $r_0 = e^2 / m_e c^2$ est le rayon classique de l'électron, $\kappa = 5.099 \cdot 10^{-4}$ quand $S(E)$ est exprimé en $\text{eV}/(10^{-15} \text{atomes}/\text{cm}^2)$,

ou: $\kappa = 0.3071/M_2$, (M_2 la masse de l'atome cible) quand $S(E)$ est exprimé en keV/(mg/cm²).

$L(\beta)$ est le nombre d'arrêt s'exprimant suivant une combinaison linéaire de puissances de Z_1 .

$$L(\beta) = \{L_0(\beta) + Z_1 L_1(\beta) + Z_1^2 L_2(\beta)\} \quad (I-17)$$

avec,
$$L_0(\beta) = \left\{ \ln \left(\frac{2m_e v^2}{\langle I \rangle} \right) - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 - \frac{C}{Z_2} - \frac{\delta}{2} \right\} \quad (I-18)$$

- L_0 est le nombre d'arrêt principal qui contient toutes les corrections proposées par Fano [FAN56], à savoir ; les termes de corrections de couches C/Z_2 et l'effet de densité $\delta/2$.
- L_1 et L_2 sont les corrections du pouvoir d'arrêt d'ordre supérieur à Z_1^2 .
 - $Z_1 L_1(\beta)$: Correction de Barkas [BAR67] due à la charge des atomes cibles.
 - $Z_1^2 L_2(\beta)$: Correction de Bloch.

Le terme en L_1 représente la correction due à l'effet Barkas [BAR67] qui rend compte de la différence observée entre les parcours de particules présentant des charges opposées (π^+, π^-), (proton, antiproton). Cet effet est dû à la réponse des électrons de la cible à l'approche de l'ion et au changement orbital des électrons avant toute interaction entre l'ion incident et la cible (appelé polarisation de la cible).

Aux vitesses élevées ($\approx 10 \text{ MeV/uma}$), l'ion incident se déplace très rapidement et ne peut causer aucun changement aux électrons de la cible ; l'effet Barkas devient alors insignifiant. A faible vitesse ($\approx 0.6 \text{ MeV/uma}$), l'ion incident commence à arracher des électrons à la cible et devient partiellement neutre, ce qui ne peut causer aucun effet de polarisation à la cible. Pour des ions incidents dont la vitesse est comprise entre 0.6 MeV/uma et 10 MeV/uma , l'effet Barkas n'est plus négligeable.

Une évaluation empirique de ce terme à été proposée récemment par Ziegler [ZIE99], donnant :

$$Z_1 L_1 = \frac{L_{low} L_{high}}{L_{low} + L_{high}} \quad (\text{I-19})$$

avec $L_{low} = 0.001 E$ et $L_{high} = (1.5 / E^{0.4}) + 45000 / Z_2 E^{1.6}$, où E est l'énergie de l'ion incident, évaluée en keV/uma.

Le terme $L_2(\beta)$ représente la correction que Bloch a introduite pour corrélérer la théorie classique de Bohr à la description quantique de Bethe en remplaçant l'onde plane de l'électron atomique (approximation de Born) par une fonction d'onde coulombienne due au champ créé par le projectile.

Diverses évaluations ont été proposées pour l'estimation de ce terme, dont la simple paramétrisation développée par Bichsel [BIC90] rend bien compte d'une large gamme de données du pouvoir d'arrêt à vitesses élevées. Le terme de correction de Bloch L_2 , est alors donné par l'expression suivante [ZIE99] :

$$Z_1^2 L_2 = -y^2 [1.202 - y^2 (1.042 - 0.855 y^2 + 0.343 y^4)] \quad (\text{I-20})$$

avec $y = Z_1 \alpha / \beta$ où $\alpha = 1/137$. Dans le régime dit des hautes vitesses ($v \gg v_0$) correspondant à ($y \rightarrow 0$), le terme de Bloch $Z_1^2 L_2$ tend vers $-1.2 y^2$.

La formule finale du pouvoir d'arrêt de Bethe-Bloch est alors donnée par :

$$S(E) = \frac{K Z_1^2 Z_2}{\beta^2} \left\{ \ln \left(\frac{2 m_e v^2}{1 - \beta^2} \right) - \beta^2 - \ln \langle I \rangle - \frac{C}{Z_2} - \frac{\delta}{2} + Z_1 L_1 + Z_1^2 L_2 \right\} \quad (\text{I-21})$$

2-5 : Extraction du potentiel d'excitation et d'ionisation moyen et du paramètre de correction de couches à partir de la formule de Bethe-Bloch.

Fano [FAN63] avait suggéré que le potentiel d'ionisation et d'excitation moyen $\langle I \rangle$ et le terme de correction de couches $\left(\frac{C}{Z_2} \right)$ peuvent être déduits à partir des données expérimentales du pouvoir d'arrêt, S_{exp} , en réarrangeant l'équation I-21 :

$$\ln\langle I \rangle + \frac{C}{Z_2} + \frac{\delta}{2} - Z_1 L_1 - Z_1^2 L_2 = f(\beta) - \left(\frac{\beta^2 S_{\text{exp}}}{k Z_1^2 Z_2} \right) \quad (\text{I-22})$$

avec,

$$f(\beta) = \ln\left(\frac{2m_e v_1^2}{1 - \beta^2} \right) - \beta^2 \quad (\text{I-23})$$

Bichsel [BIC64] a introduit des variables X, permettant d'écrire le pouvoir d'arrêt réduit (éq. I-22), sous forme de variables X_{exp} et X_{th} comme suit :

$$X_{\text{exp}} = f(\beta) - \left(\frac{\beta^2 S_{\text{exp}}}{k Z_1^2 Z_2} \right) \quad (\text{I-24})$$

$$X_{\text{th}} = \ln\langle I \rangle + \frac{C}{Z_2} + \frac{\delta}{2} - Z_1 L_1 - Z_1^2 L_2 \quad (\text{I-25})$$

a) Le terme de corrections des couches $\frac{C}{Z_2}$.

En déterminant les différents grandeurs ($\langle I \rangle, S, \delta, Z_1 L_1 \text{ et } Z_1^2 L_2$) définissant le terme $\left(\frac{C}{Z_2} \right)$ dans l'équation I-22, l'extraction du terme de correction de couches est alors obtenue en inversant l'équation (I-22) et en calculant le pouvoir d'arrêt S , soit:

$$\frac{C}{Z_2} = f(\beta) - \ln\langle I \rangle_{\text{th}} - \frac{\beta^2 S_{\text{cal}}(E)}{k Z_1^2 Z_2} - \frac{\delta}{2} + Z_1 L_1 + Z_1^2 L_2. \quad (\text{I-26})$$

L'on remarque que l'équation I-26 nécessite la connaissance du potentiel d'excitation et d'ionisation de la cible utilisée $\langle I \rangle_{th}$; ce potentiel d'ionisation est déterminé théoriquement en utilisant la relation empirique de Bonderup (équ.I-12), $S_{cal}(E)$ est le pouvoir d'arrêt généré par le code de simulation SRIM.

b) Le potentiel d'excitation et d'ionisation moyen $\langle I \rangle$

Ayant déterminé le terme de correction de couches $\left(\frac{C}{Z_2} \right)$, le potentiel d'excitation et d'ionisation moyen $\langle I \rangle$ est alors déterminé moyennant le calcul des autres termes dans l'équation I-25, comme étant le paramètre d'ajustement entre la variable théorique X_{th} et la variable expérimentale X_{exp} . Le meilleur ajustement entre ces deux variables déterminera ainsi la valeur du potentiel d'ionisation et d'excitation moyen pour un composé donné.

2-6 : Pouvoir d'arrêt dans un matériau composé.

A partir de l'analyse des données expérimentales du ralentissement des particules alpha dans les gaz hydrocarbures effectuée par Bragg et Kleeman en 1905 [BRA05], la relation communément appelée relation de Bragg a été élaborée et a permis d'estimer le pouvoir d'arrêt dans un matériau composé comme étant la combinaison linéaire des pouvoirs d'arrêt de chaque élément composant ce matériau.

L'étude expérimentale menée en 1974 par Lodhi *et al.* [LOD74] dans différents gaz de type (C-H-F, et C-H) sur la relation de Bragg, a montré qu'il existe une différence appréciable entre le pouvoir d'arrêt du composé et la somme des pouvoirs d'arrêt des constituants du composé. En réalité, Bragg dans son approche a omis de prendre en compte l'effet des liaisons chimiques dans l'évaluation du pouvoir d'arrêt.

En 1988, Ziegler et Manoyan [ZIE88] ont élaboré une approche théorique, appelée modèle CAB, pour « cores and bonds », où les liaisons chimiques entre les atomes sont pris en compte dans l'estimation du pouvoir d'arrêt.

1-Modèle de Bragg

Concernant les matériaux composés, nous adoptons les expressions proposées par Fano [FAN63] et Barkas [BAR67] pour les divers grandeurs de la formule de Bethe-Bloch (éq.I-21) tels que proposés

$$\langle F \rangle \equiv \langle Z_2/A \rangle_C^{-1} \sum_i \frac{w_i Z_{2i}}{A_i} F_i \quad (\text{I-27})$$

$$\langle Z_2/A \rangle_C = \sum_i w_i \frac{Z_{2i}}{A_i} \quad (\text{I-28})$$

où Z_{2i} , A_i et w_i sont, respectivement, le numéro atomique, la masse atomique et la concentration de chaque élément i de la matrice cible. F_i et $\langle F \rangle$ sont les paramètres considéré (potentiel d'ionisation I_i ou la correction de couches $(C/Z_2)_i$) respectivement, pour le i eme composant et le matériau composé.

Le test de linéarité de la relation additive de Bragg est généralement validé par la comparaison entre la valeur mesurée du potentiel d'ionisation et d'excitation moyen d'un composé donné, $\langle I \rangle_C$ et de celle calculée en utilisant la relation (I-27).

Le pouvoir d'arrêt S_C d'un matériau composé est alors estimé à partir de la combinaison linéaire des pouvoirs d'arrêt de l'ensemble des atomes de chaque élément. A titre d'exemple, pour le cas du Makrofol ($C_{16}H_{14}O_3$)_n le pouvoir d'arrêt est :

$$S_{Bragg} = \frac{1}{33} [14S_H + 16S_C + 3S_O] \quad (\text{I-29})$$

La précision de la règle de Bragg est limitée du fait que la perte d'énergie due aux électrons d'un milieu ralentisseur donné, dépend de sa structure électronique. Tout changement de liaison chimique entre les éléments constituant la matrice du matériau composé affectera la charge moyenne de la particule incidente, modifiant ainsi la force d'interaction avec le matériau.

2-Modèle CAB

En 1988, Ziegler et Manoyan [ZIE88] proposent un nouveau formalisme spécialement dédié aux matériaux composés ; il s'agit du modèle [CAB, pour Cores And Bonds]. Dans cette approche, l'estimation du pouvoir d'arrêt prend en compte les effets dûs aux liaisons

chimiques. Dans la version SRIM96 du programme de simulation initialement élaboré (TRIM85) par Ziegler *et al.* en 1985, un sous programme a été introduit permettant de calculer les pouvoirs d'arrêt dans les matériaux composés en utilisant le modèle CAB.

Le pouvoir d'arrêt d'un matériau composé pour une particule chargée d'énergie donnée s'écrit alors :

$$S(Z_1) = (\gamma Z_1)^2 \sum (N_e^C S_C + N_e^B S_B) \text{ avec } C \equiv \text{cores et } B \equiv \text{bonds} \quad (\text{I-30})$$

où γ est le paramètre de charge effective de l'ion incident permettant notamment d'estimer le pouvoir d'arrêt S_{Z_1} d'un ion de charge Z_1 à partir d'un pouvoir d'arrêt d'un proton S_p à la même vitesse dans le même milieu par la relation :

$$S_{Z_1} = (\gamma Z_1)^2 S_p \quad (\text{I-31})$$

En plus des évaluations de γ à partir des mesures expérimentales de S_{Z_1} et S_p , diverses formulations théoriques de ce paramètre ont été proposées notamment par Brandt et Kitagawa [ZIE88].

Ainsi, par exemple, le pouvoir d'arrêt du Makrofol $(C_{16}H_{14}O_3)_n$ pour les particules alpha est donnée par :

$$S_{CAB} = (\gamma Z_{He})^2 \{ 16S_{C(core)} + 14S_{H(core)} + 3S_{O(core)} + 10S_{C-C} + 6S_{C=C} + 14S_{C-H} + 4S_{C-O} + 1S_{C=O} \} \quad (\text{I-32})$$

Les valeurs du pouvoir d'arrêt associées aux « cores ($S_{i(cores)}$) et bonds ($S_{i(bonds)}$) » pour divers atomes dans différentes liaisons chimiques, sont tabulées dans l'article [ZIE88].

Une formule empirique décrivant le pouvoir d'arrêt dans le cas d'un ion de vitesse v , selon le formalisme CAB en fonction du pouvoir d'arrêt selon Bragg a été suggérée par Ziegler et Manoyan:

$$S_{CAB}(v) = (\gamma Z_1)^2 S_{Bragg}(v) \left[f(v) \frac{S_{CAB}(125keV)}{S_{Bragg}(125keV)} \right] \quad (\text{I-33})$$

Où $S_{Bragg}(125keV)$ et $S_{Bragg}(v)$ représentent respectivement les pouvoirs d'arrêt des protons de 125 keV et à une vitesse v , calculés en utilisant la relation de Bragg. La référence aux protons de 125 keV a été retenue du fait du maximum observé pour la majeure partie des pouvoirs d'arrêt pour des protons dans les composés autour de cette énergie.

La fonction $f(v)$ est définie comme suit :

$$f(v) = \frac{1}{\left[1 + \exp A \left(\frac{v}{v_0} - B \right) \right]} \quad (I-34)$$

où $A=1.48$, $B=7.0$.

Ces deux modèles sont utilisés par le code de simulation TRIM élaboré par Ziegler *et al.* [ZIE85]. L'analyse comparative des résultats obtenus en appliquant la règle de Bragg ou le formalisme CAB, effectuée par Ziegler *et al.* [ZIE88] pour les composés hydrocarbures, montre que la différence entre ces 2 types de résultats est constante dans l'intervalle d'énergie compris entre v_0 et $3 v_0$, s'atténue progressivement quand la vitesse augmente et disparaît au dessus de $10 v_0$, soit 250 keV/uma. Ces conclusions justifient l'utilisation de la simple règle de Bragg au dessus de 250 keV/uma.

2-7- Le logiciel SRIM

Des évaluations du pouvoir d'arrêt ont été élaborées sous formes de tables ou de programmes informatiques. Elles consistent en une extrapolation en énergie et pour divers matériaux cible, simples ou composés, des résultats des ajustements des données expérimentales existantes sur la base des modèles présentés précédemment.

Le modèle semi-empirique ZBL, développé par Ziegler *et al.* en 1985 [ZIE85] dans le code TRIM pour le calcul du pouvoir d'arrêt consiste en la compilation des valeurs numériques [CHU72], [CHU76], [CHU77] et des données expérimentales [ZIE80] obtenues pour le pouvoir d'arrêt électronique des solides pour des protons et des particules alpha, en utilisant la formule semi empirique suivante :

$$S_e = \frac{S_{High} S_{Low}}{S_{High} + S_{Low}}, \quad (I-35a)$$

avec $S_{Low} = a.E^b + c.E^d, \quad (I-35b)$

$$S_{High} = e.\ln(g/E + h.E)/E^f, \quad (I-35c)$$

S_{Low} et S_{High} désignant, respectivement, la paramétrisation du pouvoir d'arrêt électronique à faible vitesses et à vitesses élevées (région de Bethe), les coefficients a, b, c, d, e, f, g et h sont les paramètres d'ajustement aux données expérimentales. Ces paramètres ont été déterminés donnant une précision de l'ordre de 5 % pour tous les éléments cibles du tableau périodique. L'énergie E est en keV et le pouvoir d'arrêt S est en eV/10¹⁵atomes/cm².

Le code TRIM est applicable généralement pour des systèmes (projectiles-cibles) bien déterminés (ions légers) et dans des régions d'énergie riches en données expérimentales. Le désaccord existe généralement pour les ions lourds où différents auteurs [ZHE98], [BIT99], [ALA00] et [HOS00] ont signalé le désaccord existant entre les valeurs du pouvoir d'arrêt généré par ce code dans ses différentes versions et leurs données expérimentales.

Le programme TRIM, dans sa dernière version (SRIM 2003) [SRIM03] « Stopping and Range of ions in Matter », intègre la quasi totalité des pouvoirs d'arrêt expérimentaux mesurés jusqu'à ce jour ; il utilise des méthodes stochastiques (type Monte Carlo) pour déterminer la position des atomes cibles, sélectionner des paramètres d'impact ou des angles de diffusion.

Cette compilation peut générer les valeurs numériques du pouvoir d'arrêt ainsi que du parcours pour n'importe quel ion incident avec des énergies comprises entre 10 eV et 10 GeV/uma dans divers milieux solides et gazeux ; le code de simulation SRIM2003 nous accompagnera durant toute cette étude comme élément de comparaison et d'analyse.

A titre d'exemple, la figure I-4 montre l'évolution du pouvoir d'arrêt du Mylar pour des protons obtenu dans ce travail en comparaison avec le pouvoir d'arrêt calculé par le code de simulation SRIM et la compilation de données expérimentales existantes de Helmut-Paul [HEL06] dans la gamme d'énergie s'étalant de 500 à 4500 keV.

On remarque que le programme SRIM donne pour cette plage d'énergie, une très bonne estimation du pouvoir d'arrêt électronique.

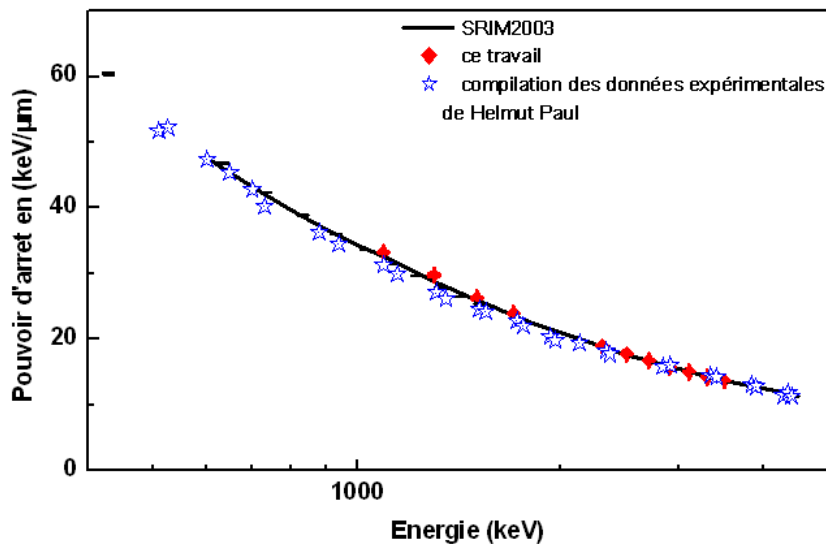


Figure I-4 : Pouvoir d'arrêt du Mylar pour des protons en fonction de l'énergie.

I-4 : Théories du straggling en énergie

1 : Introduction

Lorsqu'un faisceau de particules chargées d'énergie E traverse la matière, son ralentissement s'accompagne d'un élargissement de sa dispersion en énergie, à cause du caractère statistique des collisions. La distribution en énergie finale est généralement proche d'une gaussienne, avec une déviation standard (Ω) liée au straggling en énergie (δE).

Parmi les phénomènes physiques qui concourent à élargir la distribution des pertes d'énergie, deux types d'effets statistiques prédominent. Le premier provient des fluctuations sur le nombre de collisions électroniques et au transfert d'énergie différent pour chaque particule du faisceau (dispersion en énergie). Cet effet a été analysé par Bohr [BOH48] ; d'autres modèles ont également été élaborés [LIV37, TIT39, LIN53, SIG85], tous asymptotes à la théorie de Bohr dans la limite des hautes énergies. Le second effet est dû aux échanges de charges (dispersion d'échange de charges) qui se produisent lorsque l'ion incident est partiellement épluché.

Ces processus introduisent des fluctuations statistiques sur les trajets parcourus par le projectile dans chacun des états de charge possible, induisant une dispersion supplémentaire sur les pertes d'énergies.

Cet effet a été décrit par Vollmer [VOL74] qui a développé un calcul de type Monte Carlo pour en apprécier l'importance. Cet élargissement dû aux échanges de charges disparaît lorsque le projectile devient complètement épluché. Dans notre cas, cet effet est négligeable compte tenu du type d'ions utilisé et de la gamme d'énergie où l'on a effectué nos mesures.

A ces élargissements d'origine stochastique s'ajoutent d'autres effets qui concourent à l'augmentation de la dispersion des pertes d'énergie ; il s'agit de l'effet de propagation de la dispersion de l'énergie [TSC68] et de l'effet de l'inhomogénéité de l'épaisseur des cibles utilisées ; une compilation détaillée de l'ensemble de ces phénomènes a été effectuée par Besenbacher *et al.* [BES80].

Dans ce paragraphe nous rappelons les différentes théories du straggling appropriées au domaine d'énergie où l'on a effectué nos mesures. Nous développerons les deux expressions définissant le straggling en énergie, la première formulée par Bohr [BOH48] à partir d'une approche classique et la deuxième plus complète, développée par Livingston et Bethe. [LIV37] à partir d'une approche quantique.

Enfin, dans la dernière partie de ce paragraphe nous discuterons l'approche faite par Lindhard et Scharff [LIN53] pour définir la variance Ω_{L-S}^2 , qui se confond avec celle définie par Bohr (Ω_B^2) dans la gamme d'énergie couverte par ce travail.

2 : Théorie de Bohr.

Lorsque la perte d'énergie relative $\frac{\Delta E}{E}$ d'une particule d'énergie E dans un matériau donné est de l'ordre de 5 à 20%, la distribution en énergie représentée par une gaussienne. La variance de la perte d'énergie moyenne, Ω^2 , liée au straggling en énergie δE , est donnée par la relation suivante :

$$\Omega^2 = \langle (\Delta E - \langle \Delta E \rangle)^2 \rangle \quad (\text{I-36a})$$

Pour une distribution continue, on définit la variance de la perte d'énergie Ω^2 , comme suit :

$$\Omega^2 = N\Delta X \int T^2 d\sigma(E, T) \quad (\text{I-36b})$$

où T est l'énergie cinétique transférée et $d\sigma(E, T)$ la section efficace de transfert d'énergie. L'écart type Ω fournit directement la fluctuation δE de la perte d'énergie, ou straggling, soit :

$$\delta E = 2(2 \ln 2)^{1/2} \Omega = 2.355 \Omega \quad (\text{I-37})$$

La dispersion en énergie due aux collisions électroniques, qui contribuent essentiellement au processus de ralentissement, se calcule d'une façon similaire à celle utilisée pour évaluer le pouvoir d'arrêt (voir paragraphe 2-2). Le straggling en énergie s'obtient par l'injection de la section efficace de diffusion de Rutherford [RUT11] dans l'équation (I-36b), soit en utilisant les notations du paragraphe 2-2:

$$\Omega^2 = N\Delta X \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} \pi \left(\frac{d}{2} \right)^2 T_{\max} dT = \frac{2\pi Z_1^2 Z_2 N \Delta X}{m_2 v^2} (T_{\max} - T_{\min}) \quad (\text{I-38})$$

Pour un choc frontal, $T_{\min} = 0$ et $T_{\max} = \frac{4M_1 M_2}{(M_1 + M_2)^2} E_1$, l'équation (I-38) devient alors :

$$\Omega^2 = \frac{2\pi Z_1^2 Z_2 e^4}{m_2 v^2} T_{\max} N \Delta X, \quad (\text{I-39})$$

Dans le cas d'une diffusion sur un électron cible ($M_2 = m_e$) où $M_1 \gg m_e$, l'éq. (I-39) s'écrit alors:

$$\Omega^2 = 4\pi Z_1^2 e^4 n \Delta X \quad (\text{I-40})$$

où $n = Z_2 N$ est la densité d'électrons de la cible.

Cette dernière relation représente la variance en énergie selon Bohr [BOH48] ; elle ne dépend que de la nature du milieu ralentisseur et de son épaisseur, elle est valable dans la

limite haute énergie $v \gg Z_1 v_0$, ($v_0 = e^2/\hbar$). Le straggling de Bohr (éq.I-39) peut être réécrit, dans un système d'unités usuelles, sous la forme suivante :

$$\Omega_B^2 = 15.694 \frac{Z_1^2 Z_2}{M_2} \rho \Delta X \quad (\text{I-41})$$

Il est exprimée en keV^2 , avec $\rho \Delta X$ en $mg.cm^{-2}$ et M_2 masse atomique de la cible, en unités/uma.

- Aux énergies élevées, une expression équivalente à (I-41) s'obtient en utilisant l'approximation au premier ordre de la section efficace différentielle de Mott [AHL80] dans la relation (I-36b), soit :

$$\Omega_B^2 = 4\pi Z_1^2 Z_2 e^4 N \Delta X \frac{1 - \beta^2/2}{\beta^2} \quad (\text{I-42})$$

où β est le rapport de la vitesse du projectile v à la vitesse de la lumière c .

- Aux faibles énergies, lorsque les vitesses des électrons internes des atomes de la cible ne sont pas négligeables devant celle du projectile et notamment lorsque $4Z_1 < \frac{2m}{v_0} < Z_2^{2/3}$, l'expression de Bohr (eq.I-40) s'écrit sous la forme [BES80] :

$$\Omega^2 = 4\pi Z_1^2 e^4 Z_2^{1/3} \frac{2v}{v_0} N \Delta X \quad (\text{I-43})$$

Dans un matériau composé en utilisant la règle de sommation de Bragg [BRA05] le straggling de Bohr $\Omega_{B,T}^2$ est défini sous la forme suivante :

$$\Omega_{B-T}^2 = \sum_{i=1}^n c_i \Omega_{B_i}^2 \quad (\text{I-44})$$

où c_i est la fraction atomique de l'élément i donnant un straggling $\Omega_{B_i}^2$. En se référant à la relation (eq.I-41), le straggling de Bohr dans un polymère (objet de ce travail) sera donné par :

$$\Omega_{B-T}^2 = 15.694 Z_1^2 \frac{\rho \Delta X}{A_T} \times \sum_{i=1}^n n_i Z_i \quad (\text{I-45})$$

Z_i et n_i sont respectivement, le numéro atomique et la densité électronique de chaque élément i dans le composé, A_T , et ΔX sont respectivement la masse moléculaire et l'épaisseur de la cible composée considérée.

3 : Théorie de Bethe-Livingston

En adoptant des hypothèses identiques à celles retenues par Bethe pour l'estimation du pouvoir d'arrêt (approximation de Born au premier ordre, PWBA), Bethe et Livingston [LIV37] ont élaboré une expression plus complète du straggling en énergie, qui prend notamment en compte l'énergie de liaison des électrons cibles dans le calcul de la probabilité d'un transfert d'énergie. L'expression du straggling selon Bethe-Livingston Ω_{B-L}^2 rapporté à celui de Bohr Ω_B^2 est donnée par :

$$\frac{\Omega_{B-L}^2}{\Omega_B^2} = \frac{Z_2'}{Z_2} + \frac{1}{Z_2} \sum_j \frac{4 I_j Z_j}{3 m_e v^2} \ln \frac{2 m_e v^2}{I_j} \quad (\text{I-46})$$

où Z_2' est le nombre effectif des électrons atomiques ($Z_2' = \sum_j Z_j$); I_j et Z_j sont, respectivement, le potentiel d'excitation et d'ionisation moyen et le nombre d'électrons pour chaque couche atomique j . La sommation intervenant dans l'éq. (I-46) porte sur toutes les orbites électroniques pour lesquelles la condition $2 m_e v^2 \geq I_j$ (m_e est la masse de l'électron et v la vitesse de la particule) est satisfaite. Une meilleure approximation du nombre effectif d'électrons Z_2' , a été proposée par Comfort *et al.* [COM66] :

$$Z_2' = \sum_j Z_j \left(1 - \left(\frac{I_j}{2 m_e v^2} \right)^2 \right) \quad (\text{I-47})$$

Se référant au traitement effectué par Comfort *et al.* [COM66], I_j est remplacé par $\rho^* h \nu_j$ où $h \nu_j$ représente l'énergie critique d'absorption de la raie X de la $j^{\text{ème}}$ couche et ρ^* est un facteur de correction, le même pour toutes les couches, introduit par Sternheimer [STE52] pour satisfaire la règle de somme de Bethe.

$$\ln I = \sum_j f_j \ln I_j \quad (\text{I-48})$$

où I est le potentiel d'excitation et d'ionisation moyen de l'atome cible et f_j la force d'oscillateur de la couche j dont la valeur est approximativement égale à $\frac{Z_j}{Z_2}$ et $\frac{Z_i}{Z_2}$. Elle doit satisfaire la condition de normalisation $\sum_j f_j = 1$.

On définit le straggling de Bethe-Livingston dans un matériau composé en appliquant la règle de sommation de Bragg :

$$\left[\frac{\Omega_{B-L}^2}{\Omega_B^2} \right]_T = \left(\frac{\sum_i c_i (\Omega_{B-L}^2)_i}{\sum_i c_i (\Omega_B^2)_i} \right) \quad (\text{I-49})$$

où $\sum_i c_i (\Omega_{B-L}^2)_i$, $\sum_i c_i (\Omega_B^2)_i$ sont respectivement, la somme des straggling de Bethe-Livingston et de Bohr pour chaque élément i du matériau composé considéré.

4 : Théorie de Lindhard et Scharff

Aux faibles vitesses du projectile, les vitesses orbitales des électrons de la cible et notamment celles des électrons des couches internes ne peuvent être négligées devant la vitesse de la particule incidente et l'hypothèse du gaz d'électrons libres de Bohr n'est plus valable. Considérant le milieu ralentisseur comme un diélectrique, avec des propriétés électromagnétiques déterminées, Lindhard et Scharff [LIN53] ont décomposé le nuage électronique du matériau cible suivant une zone d'électrons « internes » et d'électrons « externes », ces électrons étant ceux correspondant à une vitesse de Fermi plus faible que v . Supposant la contribution des deux groupes d'électrons au straggling donnée par les expressions asymptotiques obtenues pour un gaz d'électrons, dans le cas du simple modèle de Bohr, Lindhard et Scharff [LIN52] ont alors introduit un facteur de correction au straggling de Bohr Ω_B^2 aux basse et moyenne énergies permettant d'écrire le straggling Ω_{L-S}^2 suivant la forme :

$$\frac{\Omega_{L-S}^2}{\Omega_B^2} = \begin{cases} \frac{1}{2} L(\chi) & \text{pour } \chi \leq 3 \\ 1 & \text{pour } \chi \geq 3 \end{cases} \quad (\text{I-50})$$

où χ est la variable d'énergie réduite de l'ion incident donnée par :

$$\chi = \frac{v^2}{Z_2 v_0^2} = (137)^2 \frac{\beta^2}{Z_2} \quad (\text{I-51})$$

$L(\chi)$ est le nombre d'arrêt qui apparaît dans l'expression du pouvoir d'arrêt (eq. I-16), $L(\chi)$ est estimé à partir du modèle de Thomas Fermi [LIN68] de l'atome, soit:

$$L(\chi) = 1.36\chi^{1/2} - 0.016\chi^{3/2}. \quad (\text{I-52})$$

L'équation (éq.I-50) montre que le straggling en énergie de Lindhard et Scharff approche celui de Bohr pour des énergies $E \geq 75Z_2(\text{keV}/\text{uma})$.

Nous avons calculé les énergies des protons traversant des films plastiques minces (objet de ce travail) pour lesquelles $\chi \geq 3$; au delà de ces énergies (tableau I-1), la théorie de Lindhard et Scharff, valable à basses et moyennes énergies, tend vers la théorie de Bohr.

Pour un matériau composé, Z_2 est remplacé par $\langle Z \rangle$ qui est déterminé en utilisant la relation de sommation définie en I-28.

Tableau I-1 : valeurs des énergies pour lesquelles $\chi \geq 3$

Cible	${}^1_1\text{H}^+$
Mylar $\langle Z \rangle = 4.54$	341 keV
Makrofol $\langle Z \rangle = 4.28$	321 keV
Lr-115 $\langle Z \rangle = 5.03$	378 keV
Polypropylène $\langle Z \rangle = 2.66$	200 keV

Les valeurs des énergies obtenues pour le cas des protons incidents et répertoriées dans ce tableau, montrent que la théorie de Lindhard et Scharff rejoint celle de Bohr dans la gamme d'énergie (1000 à 3700keV), gamme où l'on a effectué les mesures expérimentales des différentes paramètres nécessaires à la détermination des grandeurs physiques étudiées ($S(E)$ et $\Omega(E)$).

CHAPITRE II

MÉTHODE EXPÉRIMENTALE

II-1- Introduction

Les techniques nucléaires usuelles (RBS, PIXE, NRA, ERDA, implantation ionique, etc....) exploitées au niveau du centre de recherche nucléaire d'Alger (Division des techniques nucléaires), sont bien adaptées à l'analyse des modifications des matériaux et à l'étude des différents grandeurs physiques caractérisant le processus du ralentissement des ions dans la matière (perte d'énergie, pouvoir d'arrêt, straggling en énergie, potentiel d'ionisation, parcours, sputtering, etc....).

Parmi ces techniques de microanalyse nucléaire par faisceaux d'ions, la technique utilisant la spectrométrie de rétrodiffusion de Rutherford (RBS) [STO82], [CLI98] et la technique de « perte d'énergie en transmission » [RAU88], [RAI96] basées sur l'analyse du pouvoir de pénétration des particules chargées traversant la matière sous forme de feuilles minces auto portées, trouvent un large champ d'application dans les expériences de ralentissement des particules chargées dans la matière, en particulier pour la détermination du pouvoir d'arrêt et du straggling en énergie.

Les limitations physiques imposées par chacune de ces techniques expérimentales notamment dans le cas de cibles constituées de films plastiques, nous ont amenés à adopter la méthode expérimentale mise au point pour la mesure du pouvoir d'arrêt [RAU85] dans les cibles solides [ABD91] que nous développerons ci-après.

Cette méthode que nous qualifierons de technique nucléaire de transmission indirecte [LIG00], [AMM02] combine l'utilisation des deux techniques précédentes, en optimisant leurs performances respectives, non seulement pour la mesure de la perte d'énergie mais également pour la mesure du straggling correspondant dans les films plastiques très minces, objet de ce travail.

II-2-Spectrométrie de rétrodiffusion de Rutherford : RBS

1-Généralités.

Cette méthode, désignée le plus souvent par l'acronyme RBS (pour Rutherford Backscattering Spectrometry) est l'une des méthodes d'analyse par faisceau d'ions les plus utilisées en sciences des matériaux. Cette technique présente l'avantage d'être non destructive et permet une analyse qualitative et quantitative avec une bonne résolution en profondeur. La sensibilité de détection est excellente surtout pour les éléments lourds.

La RBS, est dans ce cas mise en œuvre avec des faisceaux d'ions monocinétiques légers, le plus souvent des protons ou des particules alpha, d'énergie comprise entre 300 keV et 10 MeV, envoyés sur les échantillons à analyser.

Les particules rétrodiffusées sont recueillies dans un détecteur de type barrière de surface. A partir du spectre en énergie des particules rétrodiffusées, on déduit les informations telles que la composition stœchiométrique, la concentration atomique du matériau et la distribution en profondeur d'impuretés. Elle permet de déterminer les profils de répartition d'éléments dans un solide sur des profondeurs allant d'une dizaine de nanomètres à quelques micromètres.

2- Caractérisation de la diffusion

La RBS est basée sur l'interaction coulombienne entre le projectile et le noyau cible ; elle est schématisée sur la figure II-1, où un ion incident de masse M_1 et de vitesse V_0 est dirigé sur un atome cible de masse M_2 au repos. Après le choc élastique, l'ion incident est rétrodiffusé suivant un angle θ % direction incidente avec une vitesse V_1 et l'atome cible est diffusé à angle φ avec une vitesse V_2 .

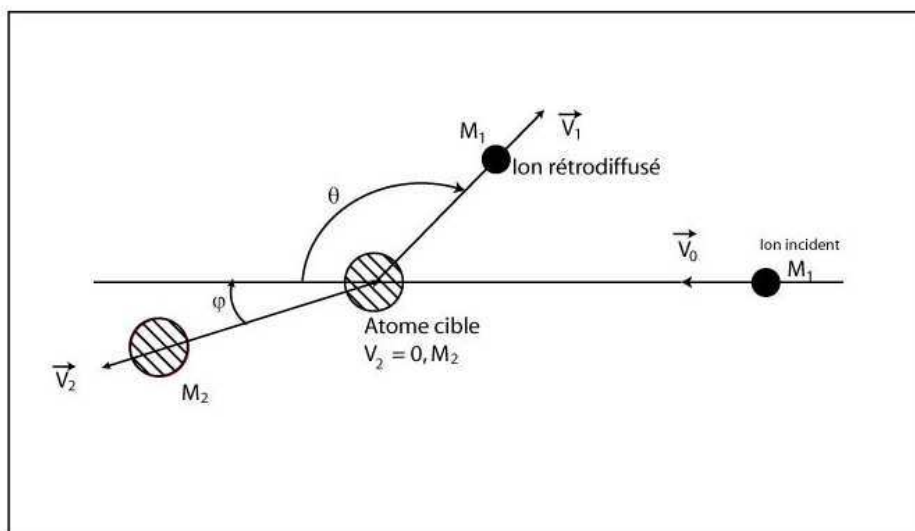


Figure II-1 : schéma d'une collision élastique dans le système du laboratoire.

L'expression analytique qui relie l'énergie de la particule rétrodiffusée E_r à celle de la particule incidente E_0 est donnée par :

$$E_r/E_0 = \left[\frac{\sqrt{M_2^2 - M_1^2 \sin^2 \theta} + M_1 \cos \theta}{M_1 + M_2} \right]^2 = K \quad (\text{II-1})$$

où K est le facteur cinématique déduit des lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement lors d'une collision à deux corps dans le système du laboratoire, il est compris entre 0 et 1.

Le nombre de particules rétrodiffusées par un atome cible donné est fonction de la probabilité d'interaction entre les ions incidents et les atomes cibles. Aux énergies E_0 fournies par l'accélérateur VDG du centre de recherche nucléaire d'Alger (entre 1 et 3.75 MeV), l'interaction entre l'ion incident et l'atome cible est d'origine essentiellement coulombienne avec une prépondérance notable de la diffusion élastique.

La section efficace différentielle de diffusion élastique est décrite par l'expression de Rutherford [RUT11] donnée dans le système du laboratoire:

$$d\sigma(\theta)/d\Omega = \left[\frac{Z_2 Z_1 e^2}{2E_0 \sin^2 \theta} \right]^2 \frac{\left\{ \cos \theta + \left[1 - \left(\frac{M_1}{M_2} \right)^2 \sin^2 \theta \right]^{\frac{1}{2}} \right\}}{\left[1 - \left(\frac{M_1}{M_2} \right)^2 \sin^2 \theta \right]^{\frac{1}{2}}} \quad (\text{II-2})$$

3- Perte d'énergie en cible mince

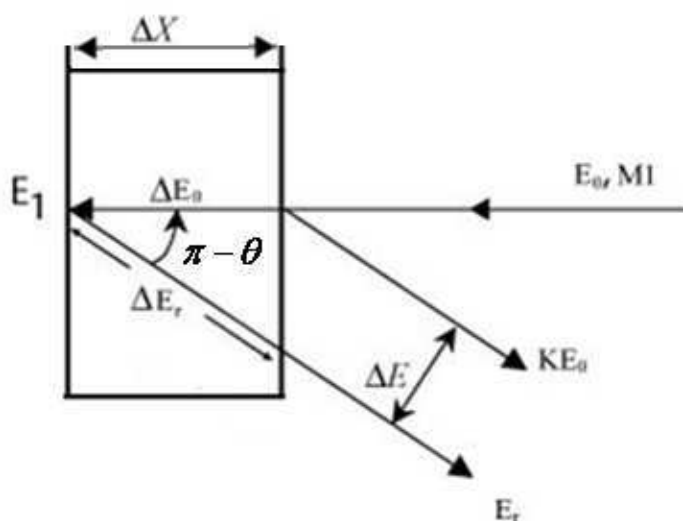


Figure II-2 : schéma de principe de l'analyse en profondeur par RBS.

Soit un faisceau de particules de masse M_1 , d'énergie E_0 arrivant sous incidence normale sur une cible mince d'épaisseur $e = \Delta X$, composée d'atomes de masse M_2 .

Les particules rétrodiffusées à l'angle θ par rapport à la normale correspondant à l'angle de rétrodiffusion $\pi - \theta$, auront une énergie KE_0 . où K est donné par l'expression II-1.

A la profondeur ΔX , les particules incidentes auront une énergie :

$$E_1 = E_0 - \Delta E_0 \quad (\text{II-3})$$

où ΔE_0 est la perte d'énergie subie pendant le trajet aller, donnée par

$$\Delta E_0 = \int_0^e \left(\frac{dE}{dx} \right) dx \quad (\text{II-4})$$

Après diffusion à l'arrière de la cible, les particules auront une énergie KE_1 et quitteront la cible avec l'énergie E_r , telle que :

$$E_r = KE_1 - \Delta E_r \quad (\text{II-5})$$

ΔE_r étant l'énergie perdue par les particules dans la cible après rétrodiffusion.

$$\Delta E_r = \int_0^{e/\cos\theta} \left(\frac{dE}{dx} \right) dx \quad (\text{II-6})$$

La perte d'énergie du faisceau incident rétrodiffusé à l'angle $\pi - \theta$ est donnée par $\Delta E = KE_0 - E_r$; elle s'écrit en tenant compte des relations (II-3) et (II-5) :

$$\Delta E = K\Delta E_0 + \Delta E_r \quad (\text{II-7})$$

La difficulté dans l'estimation de la perte d'énergie ΔE à partir de l'expression précédente ou du pouvoir d'arrêt du matériau $S(E) = \left. \frac{dE}{dx} \right|_E$, à l'origine de l'élargissement du pic de rétrodiffusion,

réside dans l'évaluation de ΔE_0 et ΔE_r , à partir des relations (II-4) et (II-6).

Certaines approximations sont alors utilisées en cible mince :

1. la perte d'énergie est constante au cours du trajet aller et du trajet retour, permettant d'écrire les relations (II-4) et (II-6) précédentes suivant :

$$\Delta E_0 = e \cdot \left. \frac{dE}{dx} \right|_{E_0} \quad \text{et} \quad \Delta E_r = \frac{e}{\cos\theta} \cdot \left. \frac{dE}{dx} \right|_{E_r}.$$

Le pouvoir d'arrêt $\left. \frac{dE}{dx} \right|_{E_i}$ ($i=0, r$) à l'énergie E_i est généralement déduit de la formule semi empirique de Ziegler [ZIE85].

2. les pertes d'énergies à l'aller et au retour sont calculées dans le cadre de l'approximation de l'énergie moyenne, permettant de définir les énergies moyennes du faisceau incident \overline{E}_0 et rétrodiffusé \overline{E}_r par les expressions :

$$\overline{E}_0 = E_0 - \frac{\Delta E_0}{2} \quad \text{et} \quad \overline{E}_r = E_r + \frac{\Delta E_r}{2} \quad (\text{II-8})$$

Il demeure ainsi difficile de donner avec précision la valeur expérimentale de la perte d'énergie ou du pouvoir d'arrêt $S(E_x)$ pour une énergie E_x comprise entre E_0 et E_r .

Cette précision peut de plus être altérée par l'état de surface de la cible, par des éventuelles impuretés et par le straggling.

Mais l'inconvénient majeur de l'utilisation de la RBS dans le cas des cibles composées de films plastiques, objet de ce travail, est la détérioration de ces films sous l'effet du flux direct des particules incidentes (brûlures), comme notifié dans [LAK04].

II-3-Perte d'énergie en Transmission

Le principe de cette technique est d'envoyer un faisceau de particules chargées directement sur une cible mince autoportée et de détecter les particules ayant traversé la cible à l'aide d'un détecteur de type barrière de surface placé à l'arrière de la cible (figure II-3).

La perte d'énergie est déterminée par la différence entre l'énergie initiale E_0 des particules incidentes mesurée directement, sans cible et l'énergie finale E_1 des particules transmises par la cible interposée sur le trajet du faisceau :

$$\Delta E = E_0 - E_1 \quad (\text{II-9})$$

Cependant, l'utilisation de cette technique dans le cas des matériaux plastiques pose problème :

- a- l'exposition du film plastique directement au flux des particules incidentes engendre sa détérioration du fait de l'échauffement de la cible sous l'impact de l'intensité du faisceau incident ($I \cong 30nA$), causant la modification de sa structure chimique (rupture de certaines liaisons chimiques essentiellement les liaisons C-H) [LAK04], pouvant conduire jusqu'à sa fusion.
- b- Le détecteur, disposé à l'arrière du film, est soumis au flux intense des particules chargées transmises. Il subit la dégradation de ses caractéristiques spectroscopiques: mauvaise résolution en énergie, augmentation du courant inverse.
- c- Les conditions expérimentales ne pouvant être totalement reproductibles lors des mesures avec et sans cible, entraînent des imprécisions liées à d'éventuelles dérives de

l'électronique de détection, à la variation de l'intensité du faisceau, à la variation du vide dans la chambre, etc.

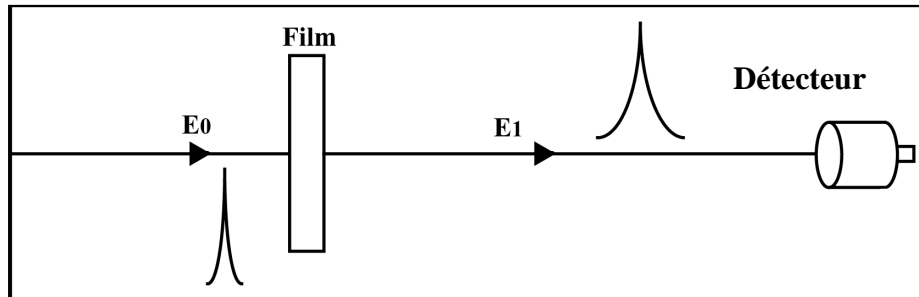


Figure II-3. Schéma d'une expérience de transmission

L'utilisation de la technique de transmission comme seul moyen d'investigation pour l'extraction des paramètres physiques (ΔE et $\Omega(E)$) décrivant le ralentissement des ions légers dans un film polymère donné, s'avère ainsi inadéquate, d'où la nécessité de trouver un compromis permettant de réduire l'intensité du faisceau d'ions arrivant sur le film à analyser et de mesurer les grandeurs expérimentales nécessaires à la détermination du pouvoir d'arrêt et du stragglng.

Dans le paragraphe II-4 suivant, nous décrivons la méthode expérimentale retenue pour répondre à ce compromis.

II-4-Technique nucléaire de transmission indirecte

La technique nucléaire de transmission indirecte consiste en la combinaison des deux techniques décrites précédemment : la RBS utilisée pour diminuer l'intensité du courant faisceau et éviter ainsi la dégradation du polymère et du détecteur, et la transmission qui permet d'extraire la perte d'énergie et le stragglng en énergie du faisceau secondaire produit après rétrodiffusion du faisceau primaire, (figure II-4).

Cette méthode dite de « transmission indirecte », déjà utilisée avec succès par divers groupes de recherche notamment au laboratoire de Strasbourg [ABD93] dans des expériences de ralentissement des ions dans des cibles solides (Al, Cu, Ag etetc.) et au laboratoire de Helsinki [RAU87] et [RAU88] pour la mesure de la perte d'énergie dans des films polymères (Mylar, Kapton, Harvar, ...etc), a été adoptée dans ce travail.

Ainsi, afin d'éviter la détérioration du film plastique à étudier, le faisceau incident est rétrodiffusé sur une cible Au/Si composée d'une fine couche d'or de l'ordre de 200Å d'épaisseur déposée sur un substrat bien poli de silicium, placée au centre de la chambre perpendiculairement au faisceau primaire (incident).

Le faisceau d'ions secondaires produit par la rétrodiffusion des particules incidentes sur la cible Au/Si, passe à travers le film plastique très mince à étudier accolé au détecteur de type barrière de surface en couvrant seulement la moitié de sa surface (figure II-4).

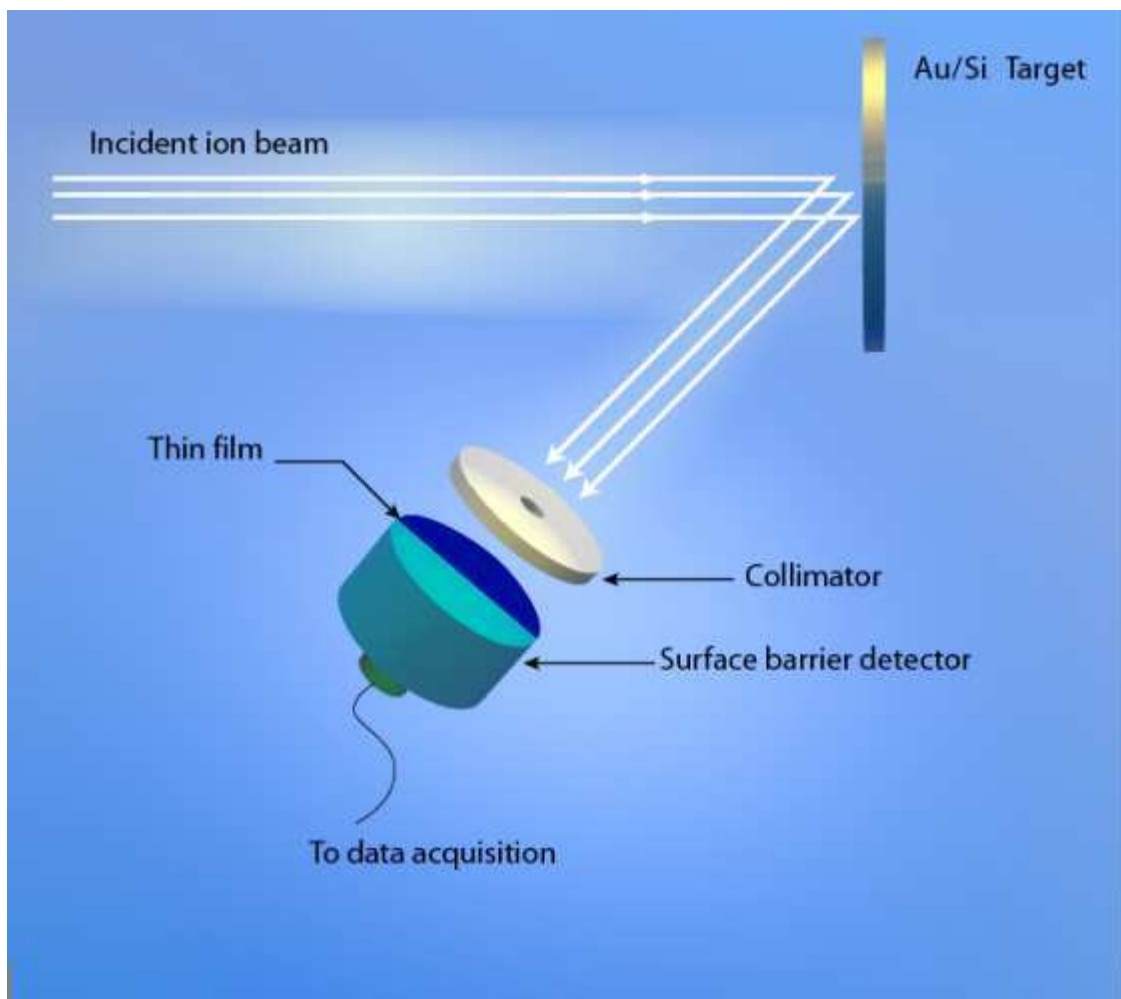


Figure II- 4 : schéma de la méthode expérimentale utilisée : transmission indirecte

Cette technique très simple dans sa mise en œuvre et son utilisation permet une mesure quasi directe et simultanée de la perte d'énergie et du straggling en énergie des particules incidentes dans les matériaux étudiés.

La technique de transmission indirecte a été mise au point au niveau de l'accélérateur 3.75 MV de type Van De Graaff du centre de recherche nucléaire d'Alger. Les détails du dispositif expérimental utilisé et de la méthode d'analyse adoptée sont décrits dans ce qui suit.

II-5- Dispositif expérimental :

Le faisceau primaire de particules est fourni par l'accélérateur Van de Graff 3.75 MV du CRNA. Il est véhiculé au sein de l'extension avant d'être focalisé au centre de la chambre à réaction où il donne naissance, après rétrodiffusion, au faisceau secondaire.

La perte d'énergie et le straggling en énergie des particules composant ce dernier faisceau sont mesurés dans différents matériaux de type polymère.

1-Le faisceau de particules :

L'accélérateur 3.75 MV, est équipé d'une source haute fréquence, délivrant trois types de faisceaux d'ions : des protons (${}^1_1H^+$), des deutons (${}^2_1H^+$) et des ions d'hélium (${}^4_2He^+$).

Il faut signaler que l'ionisation du gaz hydrogène peut produire trois types d'ions. Ces ions sont d'une part les protons, ${}^1_1H^+$ (atomes d'hydrogène ionisés), l'ion d'hydrogène de « masse 2 », H_2^+ (molécule d'hydrogène dont un atome est ionisé et l'autre neutre) et l'ion d'hydrogène de « masse 3 », H_3^+ (molécule d'hydrogène à laquelle se joint un proton).

L'utilisation des ions hydrogène de « masse 2 » et de « masse 3 », nous a permis d'effectuer des mesures dans la gamme d'énergie allant de 340 keV à 1000 keV.

Le faisceau d'ions produit au niveau de la source d'intensité réglable, dont l'énergie peut varier de façon continue entre 1000 et 3750 keV, est accéléré dans un tube accélérateur (figure II-5), il est par la suite dévié par un aimant d'analyse puis dirigé dans l'une des trois extensions disponibles où est maintenu un vide poussé de 10^{-6} Torr, avant d'être focalisé sur la cible au centre de la chambre par un quadripôle électromagnétique. La linéarité et la section du faisceau sont définies le long de l'extension par des diaphragmes à ouvertures variables.

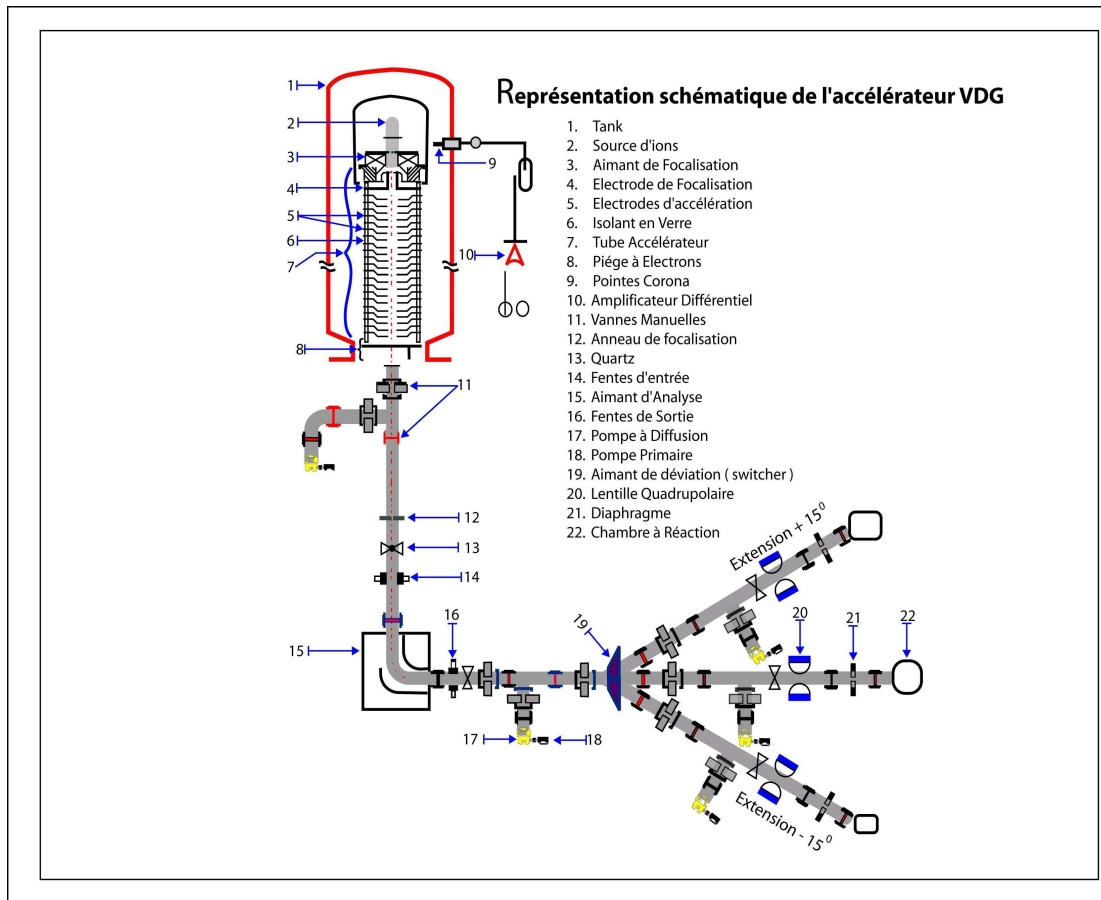


Figure II-5 : schéma de l'accélérateur VDG

La mesure précise de l'intensité B du champ magnétique se fait à l'aide d'un gaussmètre numérique basé sur le principe de la résonance magnétique nucléaire. A une résonance donnée, la fréquence f affichée sur cet appareil est proportionnelle à l'intensité du champ magnétique B , soit :

$$f = kB \tag{II-10}$$

où k est une constante liée à la géométrie de l'aimant d'analyse dont la valeur est de l'ordre de 4.25759 MHz/Tesla pour l'extension centrale en exploitation au niveau de l'accélérateur VDG.

L'énergie du faisceau de particules sortant de l'aimant d'analyse est proportionnelle au carré de l'intensité du champ magnétique, cette énergie est égale à :

$$E = \frac{(qr)^2}{2m} B^2, \tag{II-11}$$

où r , q et m sont, respectivement, le rayon de courbure, la charge et la masse de l'ion incident.

En substituant l'éq. (II-10) dans l'éq. (II-11), nous obtenons l'expression de l'énergie du faisceau en fonction de la fréquence, à laquelle nous avons joint des termes correctifs relatifs à

l'incertitude sur le rayon de courbure de l'aimant, à la mesure du champ et au champ rémanent existant:

$$E = af^2 + bf + c . \quad (\text{II-12})$$

Les constantes a, b et c sont déterminées en observant plusieurs résonances fines dont les énergies sont connues avec précision. Il suffit donc de connaître avec précision la fréquence f pour déterminer la valeur de l'énergie du faisceau sortant.

L'étalonnage et la stabilité en énergie de l'accélérateur ont été mesurés en étudiant les résonances fines de la réaction induite par la capture des protons dans le fluor $^{19}\text{F}(p,\alpha\gamma)^{16}\text{O}$ [HUN55], dans l'intervalle 1 et 2 MeV, situées aux énergies de protons $E_p=1348, 1375$ et 1694 keV.

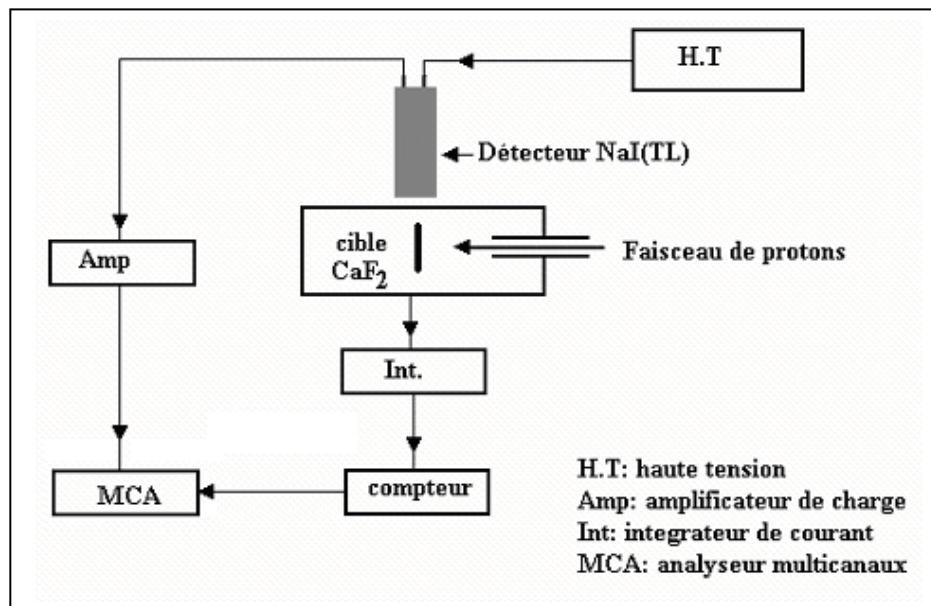


Figure II-6: Schéma du dispositif expérimental utilisé pour l'étalonnage en énergie de l'accélérateur Van de Graaff

Le faisceau de protons, d'une intensité moyenne de l'ordre de 100 nA, arrive sur une cible de fluor ^{19}F d'épaisseur de l'ordre de 300 \AA , obtenue par évaporation sous vide (10^{-5} Torr) du fluorure de calcium (CaF_2) sur un support de tantale (fig.II-6).

La réaction $^{19}\text{F}(p,\alpha\gamma)^{16}\text{O}$ se produit en libérant des particules alpha et des rayonnements gamma d'énergies 6.13, 6.92 et 7.12 MeV correspondant à la désexcitation des niveaux 3^- , 2^+ et 1^- de ^{16}O .

Ces rayons gamma sont détectés par un détecteur à scintillations de type NaI(TL) de dimension $3''\times 3''$, placé à une distance 10 cm de la cible et positionné à un angle de 90° par rapport

à la direction du faisceau incident. Les fluctuations en énergie du faisceau produit ne dépassent pas les ± 3 keV à 3000 keV (sa stabilité est de l'ordre de 1/1000).

Tableau II-1 : caractéristiques des faisceaux d'ions utilisés

Type	Accélérateur VDG
- Faisceau primaire	p, H_2^+ , H_3^+ , d, $^4He^+$
Etat de charge	1+
Energie	1000 keV à 3700 keV
Courant	30nA
- Faisceau secondaire	p, d, 4He
Angle de diffusion	$\theta = 165^\circ$
Energie	340 keV à 3600 keV

2- La chambre à réaction

La chambre à réaction est une enceinte cylindrique en acier inoxydable de 60cm de diamètre ; son fond contient deux plateaux mobiles qui peuvent supporter des détecteurs de type barrière de surface (figure II-7). Ces plateaux peuvent être actionnés de l'extérieur de la chambre afin de fixer l'angle de détection θ (figure II-8).

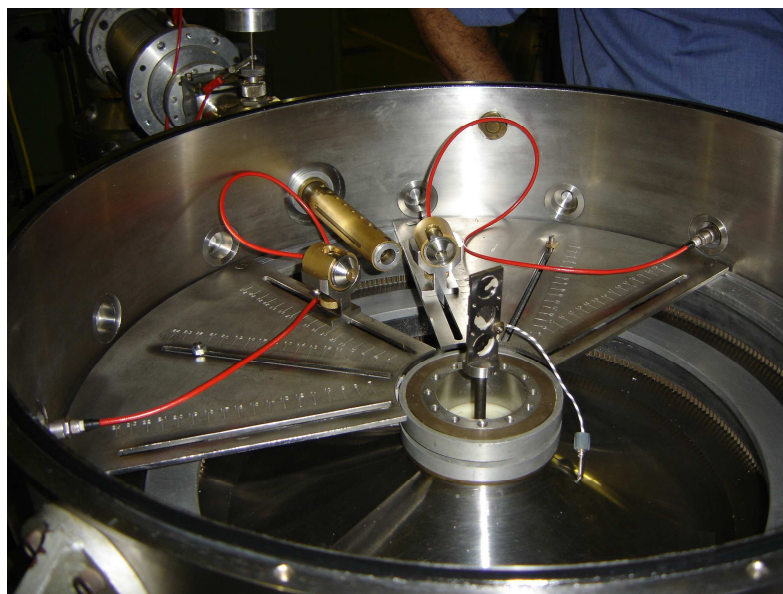


Figure II-7 : vue intérieure de la chambre à réaction.

Pendant la durée de l'expérience, la chambre est maintenue sous vide, à une pression d'environ 10^{-6} Torr. La cible Au/Si de production du faisceau secondaire est montée sur un support vertical, situé au centre de la chambre, coulissant suivant l'axe de la chambre ; ce support orientable permet le repérage précis de l'angle d'incidence de façon à minimiser la dispersion en énergie du faisceau secondaire.

Les opérations permettant de modifier la géométrie de détection (changement de l'angle de détection θ) ou le changement de la cible Au/Si ou encore le changement de son orientation par rapport à la direction du faisceau incident sont faites sans ouverture de la chambre grâce à des dispositifs extérieurs appropriés.

Le schéma de l'ensemble expérimental (chaîne de détection, échantillon, cibles) est représenté dans la figure II-8.

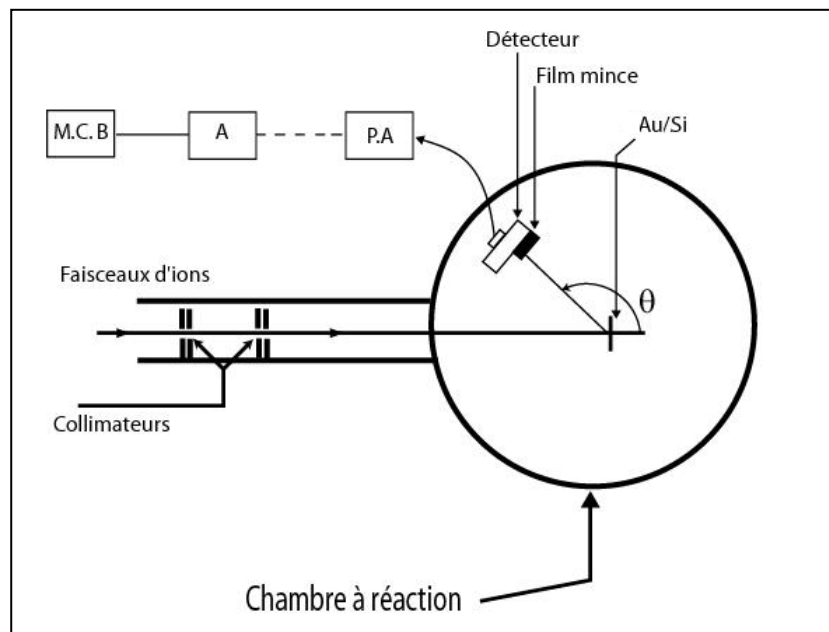


Figure II-8 : schéma de l'ensemble expérimental.

3-Caractéristiques des cibles :

Chaque expérience réalisée nécessite l'utilisation de deux cibles. La première constituée d'un dépôt d'or sur un substrat de silicium (Au/Si), est utilisée pour réduire l'intensité du faisceau primaire et produire le faisceau secondaire dont on étudiera le ralentissement dans divers matériaux. La seconde est composée de films plastiques dont on se propose de déterminer le

pouvoir d'arrêt et le straggling de la perte d'énergie des divers faisceaux incidents, dont les caractéristiques sont données dans le tableau II-2.

a) les cibles Au/Si

Afin d'optimiser la qualité du faisceau secondaire, nous avons choisi l'or ($^{197}_{79}\text{Au}$) pour effectuer la rétrodiffusion du faisceau primaire pour sa stabilité (pas d'interdiffusion dans le silicium) et son numéro atomique élevé ($Z=79$).

Nous avons réalisé plusieurs dépôts d'or sur des substrats en silicium par évaporation sous vide, l'épaisseur du dépôt d'or devant être la plus faible possible afin de minimiser la perte d'énergie du faisceau initial. Cette épaisseur a été mesurée à l'aide d'un mesureur d'épaisseur à quartz piézo-électrique (XTM de INFICON), préalablement étalonné et contrôlé par la technique RBS (figure II-9), utilisant le logiciel RUMP [DOO86].

RUMP est un logiciel de simulation des spectres RBS pour l'analyse des couches minces par des faisceaux d'ions d'énergies élevées (supérieures au MeV). Le calcul de l'épaisseur est effectué en divisant chaque couche en sous-couches ("infiniment" fines) et en sommant les contributions de toutes les sous-couches. Le spectre théorique est ajusté aux données expérimentales afin de déterminer l'épaisseur et la composition des couches à analyser.

L'épaisseur optimale obtenue, déterminée en ajustant le spectre expérimental RBS de particules alpha de 2 MeV (figure II-9) par le logiciel RUMP, est estimée à $200\text{\AA} \pm 10\text{\AA}$.

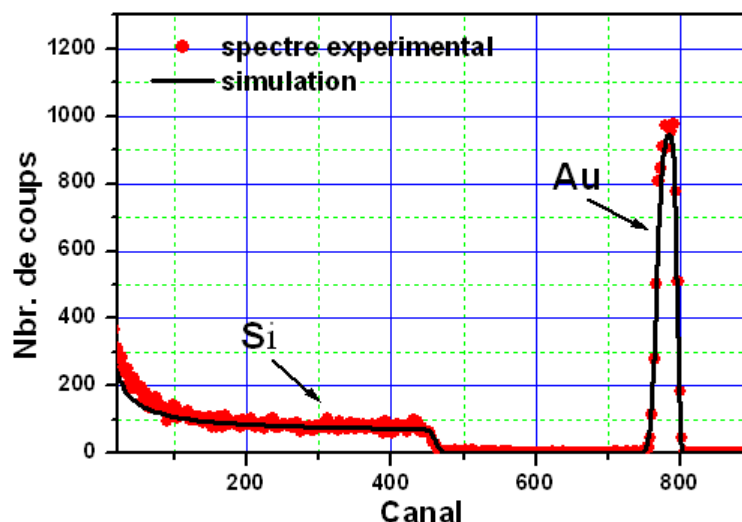


Figure II - 9 : Spectre de rétrodiffusion de Rutherford de particules α de 2 MeV sur une cible Au/Si.

b) les films plastiques

Différentes cibles plastiques ont été utilisées dans ce travail. Ces cibles sont constituées de feuilles minces de Mylar, de Makrofol, de Nitrate de cellulose (LR-115) et de Polypropylène, polymères de type $(C_xH_yO_zN_t)_n$, acquis dans le commerce, d'épaisseurs et de densités différentes (tableau II-2).

Tableau II-2 : caractéristiques des films plastiques utilisés

Echantillon	Composition	Epaisseur (μm)	Masse volumique (g/cm^3)
Mylar	$(C_{10}H_8O_4)_n$	$3,5 \pm 0,1$	1,39
	$\langle Z \rangle = 4.54$	$6,5 \pm 0,1$	
Makrofol	$(C_{16}H_{14}O_3)_n$	$10 \pm 0,2$	1,21
	$\langle Z \rangle = 4.28$		
Nitrate de cellulose (Lr-115)	$(C_6H_9O_9N_2)_n$	$12 \pm 0,25$	1,48
	$\langle Z \rangle = 5.03$		
Polypropylène	$(C_3H_6)_n$	$5,08 \pm 0,20$	0,9
	$\langle Z \rangle = 2.66$		

L'épaisseur et l'homogénéité des films plastiques ont été contrôlées par mesure directe [ANG00]. A cet effet, nous avons mesuré la perte d'énergie des particules alpha dans chaque film, en plusieurs points d'impact de ce film.

Le film plastique, couvert par un papier épais comportant un trou de 3mm de diamètre, est bombardé en diverses positions par les particules alpha (figure II-10) de 5.485 MeV, émises par une source d'américium 241. Les particules alpha passant par le trou traversent le film en y perdant de leur énergie et sont détectées par un détecteur à barrière de surface placé juste à l'arrière de ce film.

La corrélation entre la perte d'énergie mesurée en plusieurs points du film et le pouvoir d'arrêt calculé par le code SRIM (cf. I-3-3 du chapitre I) permet de déduire les épaisseurs des cibles en ces divers points et d'apprécier l'uniformité du film. Cette uniformité a été jugée satisfaisante dans les films plastiques utilisés dans nos expériences qui présentent pour chacun d'entre eux une différence entre les pertes d'énergie mesurées de l'ordre de 3keV.

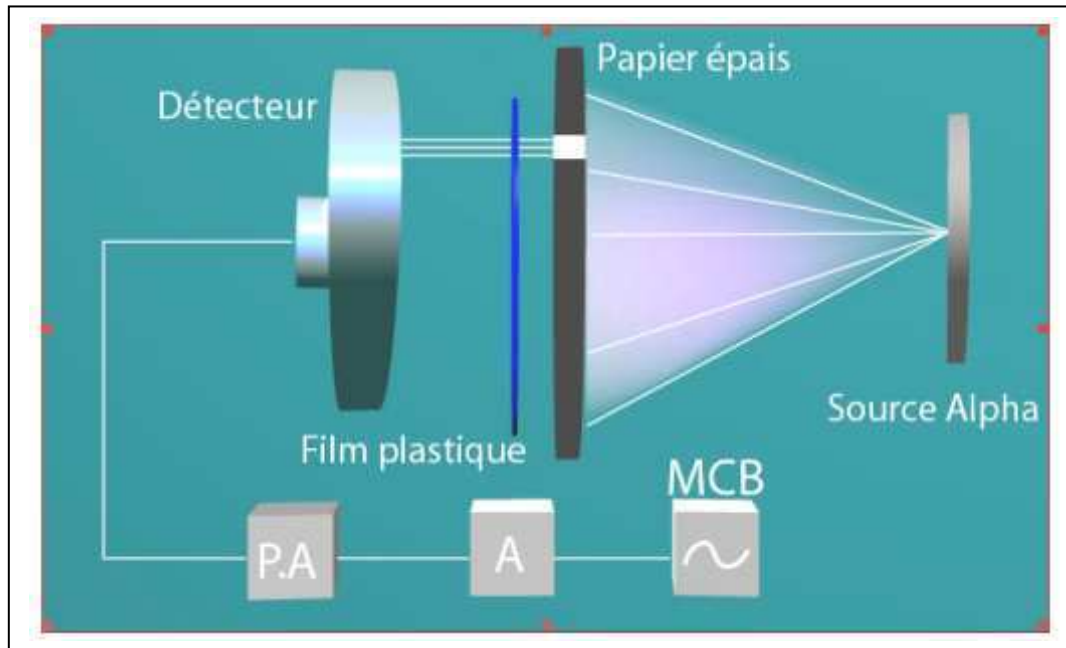


Figure II-10 : schéma du dispositif expérimental utilisé pour le contrôle de l'uniformité des épaisseurs des films plastiques.

II-6-Determination expérimentale de la perte d'énergie et du straggling en énergie des particules incidentes

1-les conditions expérimentales

L'ensemble expérimental utilisé pour la détermination expérimentale de la perte d'énergie et du straggling en énergie est schématisé sur la figure II-8. L'intensité du courant du faisceau d'ions primaires est maintenue constante ($\sim 30\text{nA}$) durant toutes nos expériences. Un générateur d'impulsions a été utilisé afin de contrôler toute dérive électronique qui pourrait surgir lors des expériences.

Le faisceau d'ions incidents est d'abord rétrodiffusé par la cible d'or sur un substrat de silicium (Au/Si). Une partie des particules incidentes rétrodiffusées sera transmise au détecteur après ralentissement par le film mince à étudier tandis que l'autre partie du faisceau rétrodiffusé sera directement enregistrée par le détecteur.

Le détecteur à barrière de surface de 20mm^2 de surface et de 12 keV (FWHM) de résolution pour les particules alpha de l'américium 241 de 5.485 MeV d'énergie, est placé à 165° par rapport à la direction du faisceau incident (figure II-9). Ce détecteur présente de nombreux avantages : encombrement réduit, bonne résolution en énergie, bonne linéarité, temps de réponse rapide et un domaine d'énergie s'étendant jusqu'à 12 MeV.

Le signal délivré par le détecteur est converti, amplifié et traité dans une chaîne de détection classique (préamplificateur, amplificateur et une carte d'acquisition MCB).

Les pics de protons d'énergie initiale de 2 MeV rétrodiffusés par la cible Au/Si, dans les conditions précisées ci-dessus, traversant un film de Mylar de $3.5\ \mu\text{m}$ et ceux enregistrés directement dans le détecteur, sont identifiés dans le spectre présenté dans la figure II-11, où l'on note également le plateau correspondant à la rétrodiffusion des protons dans le support de Silicium.

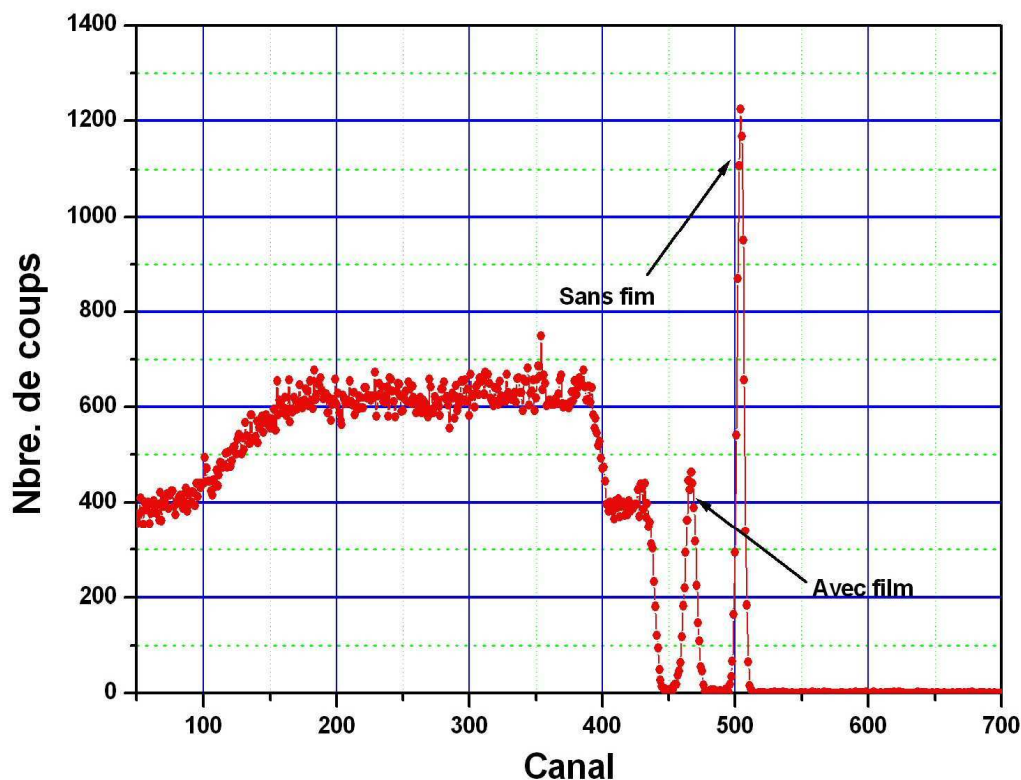


Figure II-11 : Spectre combinant la rétrodiffusion de Rutherford et la transmission des protons de 2 MeV à travers un film de Mylar de $3.5\ \mu\text{m}$.

Dans la figure II-12, sont représentés pour chacun des deux pics de protons les paramètres expérimentaux rentrant dans la détermination du pouvoir d'arrêt et du straggling en énergie. C_0 et C_1 sont les canaux des pics de protons rétrodiffusés par la cible d'or avec et sans film, E_1 et E_0 , sont les énergies correspondantes des particules détectées.

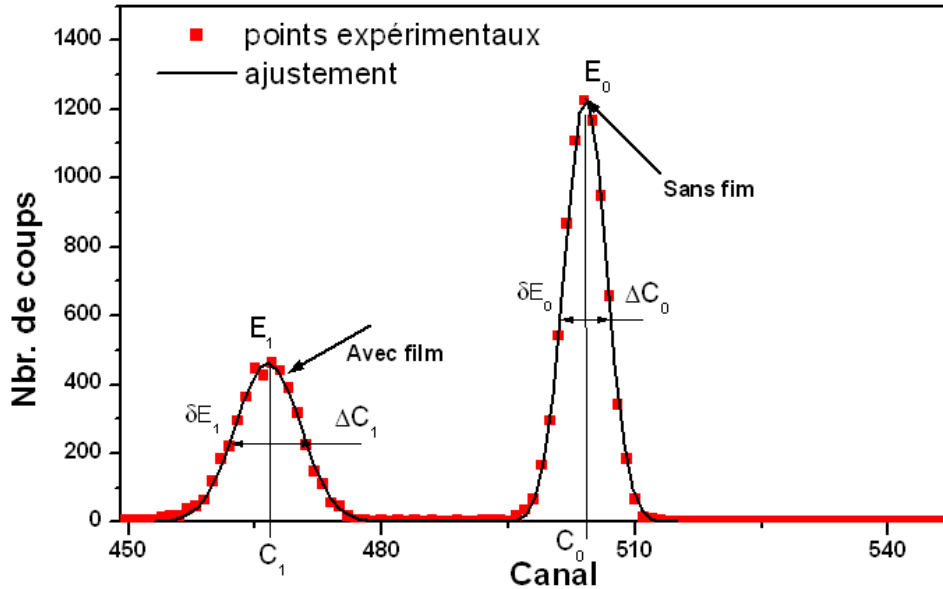


Figure II-12 : Spectre des protons rétrodiffusés pour la mesure de la perte d'énergie et du straggling, dans une cible de Mylar de $3.5 \mu\text{m}$ d'épaisseur, pour des protons d'énergie primaire de 2 MeV

2-La perte d'énergie

a) Evaluation de la perte d'énergie

La perte d'énergie ΔE est déterminée à partir de la différence entre les numéros des canaux C_0 et C_1 (fig. II-12) du pic de protons correspondant aux énergies E_0 et E_1 obtenus simultanément avec le même faisceau d'ions rétrodiffusés (par la cible Au/Si) et enregistrés dans le détecteur directement ou après traversée du film mince par la relation :

$$\Delta E = E_0 - E_1 = \alpha(C_0 - C_1) \quad (\text{II-13})$$

α est le paramètre d'étalonnage en énergie de la chaîne de détection.

Le pouvoir d'arrêt $S(E)$ d'un ion d'énergie E étant défini comme étant la perte d'énergie par unité de masse superficielle traversée (cf. formule I-8) :

$$S(E) = \frac{1}{\rho} \frac{dE}{dX} \quad (\text{II-14})$$

où ρ (g/cm^3) est la masse volumique de la matière traversée et X la profondeur (cm) sera déduit de la relation :

$$S = \frac{\Delta E}{\rho \Delta X} = \frac{\alpha(C_0 - C_1)}{\rho \Delta X} \quad (\text{II-15})$$

Les films plastiques utilisés étant très minces, la perte d'énergie ΔE du faisceau de particules chargées est très faible devant son énergie initiale E_0 ($\Delta E \ll E_0$) ; on définit alors dans le cadre de l'approximation de l'énergie moyenne, une énergie E_M associée au pouvoir d'arrêt S , (cf. expression II-8) :

$$E_M = \frac{E_0 + E_1}{2} = E_0 - \left(\frac{\Delta E}{2} \right) = E_0 - \alpha \frac{(C_0 - C_1)}{2} \quad (\text{II-16})$$

Le pouvoir d'arrêt mesuré pour les différents films plastiques sera exprimé en ($\text{keV}/\mu\text{m}$) ou en ($\text{keV} \cdot \text{cm}^2/\text{mg}$).

b) Incertitudes sur le pouvoir d'arrêt.

La méthode de mesure du pouvoir d'arrêt utilisée permet de réduire sensiblement les sources d'erreurs expérimentales qui s'annihilent pour certaines d'entre elles du fait des mesures simultanées des énergies du faisceau rétrodiffusées avec et sans film plastique.

Les incertitudes sur la mesure de la perte d'énergie sont ainsi dues en particulier, d'après l'expression II-15, aux incertitudes sur :

- la pente de la droite d'étalonnage en énergie de la chaîne de détection.
- le traitement des spectres pour la détermination des énergies E_0 et E_1 .
- l'épaisseur de la cible mince à analyser.

donnant :

$$\frac{\Delta S}{S} = \frac{\Delta(\Delta E)}{\Delta E} + \frac{\Delta(\Delta X)}{\Delta X} + \frac{\Delta \rho}{\rho} \quad (\text{II-17})$$

où,

$$\frac{\Delta(\Delta E)}{\Delta E} = \frac{\Delta \alpha}{\alpha} + \frac{\Delta C_0}{C_0 - C_1} + \frac{\Delta C_1}{C_0 - C_1} \quad (\text{II-18})$$

$\frac{\Delta\alpha}{\alpha}$ est l'erreur sur la pente de la droite d'étalonnage de la chaîne de détection. ΔC_1 et ΔC_0

, sont déterminés respectivement, en ajustant les deux pics de protons rétrodiffusés avec et sans film, par des gaussiennes. L'incertitude sur l'épaisseur de cible ΔX est donnée dans le tableau II-2. L'incertitude résultant de l'ensemble des diverses contributions est estimée à 4%.

3-Le straggling

a) Evaluation du straggling

Lorsque la perte d'énergie relative $\frac{\Delta E}{E}$ d'un faisceau d'ions traversant une cible mince est relativement faible de l'ordre de 5 à 20% (notre cas), la loi statistique décrivant la dispersion en énergie (straggling) est généralement gaussienne [CHU76] et la variance Ω^2 de la perte d'énergie moyenne, liée au straggling en énergie δE , peut alors être aisément évaluée.

L'écart type Ω fournit directement la dispersion en énergie de la perte d'énergie ΔE .

$$\delta E = 2(2 \ln 2)^{1/2} \Omega = 2,355 \Omega \quad (\text{II-19})$$

Expérimentalement, en se référant au spectre de la distribution en énergie des protons rétrodiffusés par la cible d'or transmis directement au détecteur après traversée du film plastique, et sans film, illustré dans la figure II-12, la fluctuation δE (straggling) de la perte d'énergie ΔE dans le film est déterminée en ajustant les pics obtenus par une gaussienne, donnant :

$$\delta E = \sqrt{(\delta E_1)^2 - (\delta E_0)^2} = \alpha \left(\sqrt{(\Delta C_1)^2 - (\Delta C_0)^2} \right) \quad (\text{II-20})$$

où δE_1 et δE_0 , sont respectivement les largeurs à mi-hauteurs (FWHM) des distributions en énergie correspondantes, s'étalant sur ΔC_0 et ΔC_1 canaux. α est le paramètre d'étalonnage en énergie de la chaîne de détection.

Le straggling en énergie Ω^2 exprimé en keV^2 , est généralement normalisé par rapport au straggling de Bohr Ω_B^2 afin d'éliminer la dépendance en épaisseur du straggling et de mettre en évidence la variation en énergie.

b) Incertitudes sur le straggling

Les incertitudes sur le straggling ont les mêmes origines que celles intervenant dans la mesure de la perte d'énergie. D'après l'expression II-20, elles sont dues aux incertitudes sur :

- la pente de la droite d'étalonnage en énergie de la chaîne de détection.
- le traitement des spectres pour la détermination des énergies (E_0, E_1) et des distributions en énergies ($\delta E_1, \delta E_0$).
- l'effet des irrégularités de l'épaisseur du film plastique, très sensible dans le cas des mesures de straggling, est implicitement intégré à l'estimation de ΔC_1 . L'analyse de cet effet sera effectuée au chapitre suivant.

L'incertitude sur la dispersion de la perte d'énergie, définie par la formule II-20, est égale à :

$$\frac{\Delta(\delta E)}{\delta E} = \Delta C_1 \frac{\Delta(\Delta C_1)}{\Delta C_1^2 - \Delta C_0^2} + \Delta C_0 \frac{\Delta(\Delta C_0)}{\Delta C_1^2 - \Delta C_0^2} + \frac{\Delta \alpha}{\alpha} \quad (\text{II-21})$$

L'estimation de $\Delta(\Delta C_1)$, $\Delta(\Delta C_0)$ et de $\frac{\Delta \alpha}{\alpha}$ représentant respectivement l'incertitude sur

la détermination de la largeur des deux pics de protons rétrodiffusés, avec et sans film et l'incertitude sur la pente de la droite d'étalonnage a été effectuée suivant la méthode décrite au paragraphe précédent. Les incertitudes ainsi obtenues, sur la détermination de la largeur à mi-hauteur de la distribution des pertes d'énergies pour les différents films polymères utilisés dans nos expériences, varient entre 6,5% et 15% dans le cas des protons, entre 3,5% et 18% dans le cas des deutons et de 4,26% et 9,5% dans le cas ions alpha.

II-7-Conclusion

Dans ce chapitre nous avons rappelé les principales techniques expérimentales utilisées dans le domaine du ralentissement des ions dans la matière. Notamment la RBS et la technique basée sur la transmission du faisceau.

Nous avons montré que ni la RBS, très utilisée en science des matériaux ni la technique de transmission, très utilisée dans les expériences de ralentissement des particules chargées dans la matière, ne peuvent être utilisés comme seul moyen expérimental pour effectuer des mesures de perte d'énergies et de straggling dans des films polymères très minces.

La mise au point et le choix de la technique dite de « transmission indirecte » conjuguant l'utilisation des deux techniques précédentes nous a permis d'optimiser les avantages de chacune d'entre elles en évitant leurs inconvénients majeurs notamment la détérioration des films minces et la dégradation des caractéristiques des détecteurs à barrière de surface. La méthode expérimentale que nous avons adoptée consistant de plus à accoler la cible à étudier sur la moitié de la surface utilisée du détecteur nous a permis de déterminer simultanément avec une bonne précision le pouvoir d'arrêt et le straggling en énergie des ions légers (p, d, et α) dans les films polymériques étudiés.

CHAPITRE III

PRÉSENTATION ET ANALYSE DES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

III-1 : Introduction.

Ce chapitre est dédié à la présentation des résultats expérimentaux et à l'analyse de ces résultats à la lumière des conclusions de travaux antérieurs existants dans la littérature. Après avoir précisé les paramètres qui ont contribué à la détermination du pouvoir d'arrêt et du straggling des ions légers traversant des polymères de faibles épaisseurs, nous rapporterons les valeurs expérimentales obtenues pour ces grandeurs physiques.

Ces valeurs seront ensuite comparées aux données expérimentales existant dans la littérature et dans le cas du pouvoir d'arrêt aux prévisions semi empiriques du code de simulation SRIM2003, présenté au paragraphe I-2 du chapitre I. Le pouvoir d'arrêt sera analysé dans le cadre de la théorie de Bethe-Bloch [BLO33] à travers la détermination du potentiel d'ionisation et d'excitation moyen pour les différents matériaux étudiés.

Les résultats du straggling en énergie Ω^2 seront, quant à eux, comparés aux prédictions théoriques de Bohr [BOH48] et de Bethe-Livingston [LIV37]. Ces derniers résultats seront discutés en tenant compte de l'effet de l'uniformité de l'épaisseur des films utilisés sur la mesure de la dispersion de la perte d'énergie (Ω).

III-2 : Présentation des résultats expérimentaux.

1- Les paramètres expérimentaux

Nous avons mesuré la perte d'énergie et sa dispersion des ions $^1_1H^+$, $^2_1H^+$ et $^4_2He^+$ traversant différents milieux ralentisseurs de type polymère (mylar, makrofol, nitrate de cellulose LR-115 et polypropylène), aux énergies comprises entre 340 et 3600 keV dans les conditions expérimentales développées au chapitre précédent. Pour rappel, ces mesures sont réalisées auprès de l'accélérateur Van de Graaff 3.75MV du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger, en utilisant la technique nucléaire de transmission indirecte décrite au paragraphe II-4. Grâce à l'utilisation d'un faisceau d'ions moléculaires (H_2^+ , H_3^+) et à la faible épaisseur des films de mylar (3.5 μ m) et de polypropylène (5.08 μ m), nous avons pu étendre pour ces matériaux les mesures du pouvoir d'arrêt des protons dans la gamme d'énergie s'étalant de 340 à 1000 keV.

Le pouvoir d'arrêt et le straggling en énergie des particules incidentes sont déterminés à partir de l'expression de ΔE donnée par la relation II-3 et l'expression de Ω^2 donnée par la relation II-20.

Dans le tableau III-1, nous donnons, à titre d'exemple les différents paramètres nécessaires pour extraire expérimentalement ces grandeurs pour des protons rétrodiffusés à $\theta=165^\circ$ traversant un film de polypropylène d'épaisseur 5.08 μm .

Tableau III-1 : paramètres expérimentaux

E_0 (keV)	C_0	ΔC_0	C_1	ΔC_1	ΔE (keV)	E_M (keV)
1000	410.6	6.67	349.1	8.89	147.1	909
1200	494.1	6.47	439.9	7.95	129.2	1114
1400	577.2	6.33	530.3	9.25	112.1	1319
1600	659.9	6.29	617.8	8.58	100.4	1520
1800	743.7	6.23	705.2	8.74	91.8	1721
2000	826.9	6.30	791.6	8.76	84.2	1921
2200	910.7	6.07	878.1	8.69	78.1	2120

Dans ce tableau, les paramètres ont été définis sur la figure II-12 et les expressions rappelées ci-dessus.

$$\Delta E = E_0 - E_1 = \alpha(C_0 - C_1) \quad (\text{III-1})$$

$$E_M = \frac{E_0 + E_1}{2} = E_0 - \left(\frac{\Delta E}{2}\right) = E_0 - \alpha \frac{(C_0 - C_1)}{2} \quad (\text{III-2})$$

Les valeurs décimales des numéros de canaux C_i sont dues à l'ajustement des pics de protons rétrodiffusés par des gaussiennes en utilisant la méthode des moindres carrés.

2- Résultats du pouvoir d'arrêt

Nous avons mesuré les pouvoirs d'arrêt pour les protons, les deutons et les particules α dans les quatre cibles polymériques, le mylar, le makrofol, le LR-115 et le polypropylène, dans les gammes d'énergie moyenne $\overline{E_p}$, $\overline{E_d}$ et $\overline{E_\alpha}$ listées dans le tableau III-2.

Tableau III-2 : gammes d'énergies pour les particules incidentes (p, d et α)

Matériau	\overline{E}_p (keV)	\overline{E}_d (keV)	\overline{E}_α (keV)
Mylar	356 → 3212	890 → 3154	952 → 3024
Makrofol	571 → 2722	1155 → 3494	938 → 3105
Polypropylène	346 → 2902	1051 → 2837	780 → 2492
LR-115	700 → 3519	1015 → 3441	

Les résultats du pouvoir d'arrêt sont listés dans le tableau III-3 pour les protons et illustrés dans les figures III-1, III-2, III-3 et III-4 pour les protons, III-5 pour les deutons et les figures III-6, III-7 et III-8 pour les particules α . Les données du pouvoir d'arrêt sont comparées aux résultats expérimentaux disponibles dans la littérature et à la compilation des données expérimentales disponibles dans le rapport ICRU [ICRU93].

En effet, de nombreux travaux relatifs à la détermination de la perte d'énergie des particules chargées traversant des polymères où différentes techniques nucléaires, ont été utilisées (RBS, transmission, RBS couplée à la transmission, temps de vol), ont déjà été publiés dans la littérature. Comme le montrent les figures présentées précédemment, nos résultats sont en bon accord avec ceux existants dans la gamme d'énergie étudiée dans ce travail [LEB95], [RAU92], [RAI96] [DAM04], [RAI03], [RAU92] et [TAK90].

Le bon accord observé entre nos valeurs expérimentales et celles de la littérature pour l'ensemble des matériaux étudiés confirme la validité de la technique expérimentale adoptée pour la mesure du pouvoir d'arrêt dans des cibles plastiques. Les résultats obtenus ainsi que les données publiées citées en référence ont été retenues dans la récente compilation de Helmut Paul [HEL06].

Tableau III-3: valeurs du pouvoir d'arrêt des protons

Mylar		Makrofol		Polypropylène		LR-115	
\bar{E} (keV)	S_{Exp} (keV/ μ m)	\bar{E} (keV)	S_{Exp} (keV/ μ m)	\bar{E} (keV)	S_{Exp} (keV/ μ m)	\bar{E} (keV)	S_{Exp} (keV/ μ m)
356	60,7±0,8	571	43,5±1,8	346	56,5±0,7	1624	23,6±2,3
466	50,9±0,6	679	38,8±1,5	473	45,4±0,8	1831	21,8±1,3
569	44,5±0,7	788	34,1±0,8	587	39,1±0,7	2038	20,1±1,6
619	42,1±0,6	884	30,3±0,7	641	36,8±0,9	2240	19,1±1,5
669	39,9±1,1	987	29,2±1,2	695	35,1±0,7	2445	17,7±1,2
768	36,5±1,4	1013	33,1±5,8	801	32,1±1,2	2647	16,7±0,5
864	34,1±0,6	1235	27,5±2,2	909	28,9±1,1	2850	15,5±0,4
912	33,2±1,5	1443	25,2±1,5	1114	25,4±0,6	3051	14,7±0,4
1057	29,5±1,6	1648	23,6±1,2	1319	22,1±1,3	3251	14,2±0,3
1201	26,5±0,7	2059	19,8±0,6	1520	19,7±0,9	3452	13,2±0,2
1343	24,4±0,5	2264	18,2±0,3	1721	18,1±0,5		
1626	21,3±0,6	2463	17,4±0,3	1921	16,5±0,8		
1908	18,9±0,6	2665	16,4±0,3	2120	15,3±0,8		
2188	17,2±0,6	2722	15,7±0,4	2319	10,7±0,6		
2468	15,5±0,4			2518	10,2±0,8		
2747	14,4±0,6			2715	9,5±0,5		
3212	13,7±0,5						

3- Résultats du straggling en énergie.

A partir des paramètres expérimentaux mesurés (tableau III-1) nous avons déterminé le straggling en énergie (voir éq. II-19 et éq.II-20, du chapitre II) des ions ($^1_1H^+$, $^2_1H^+$ et $^4_2He^+$) dans les différents polymères : mylar, makrofol, LR-115 et polypropylène aux énergies rapportées dans le tableau III-4. Le straggling expérimental a été normalisé par rapport au straggling de Bohr pour réduire sa dépendance en fonction de l'épaisseur de cible et faire valoir sa dépendance en fonction de l'énergie des particules.

Nous résumons dans le tableau III-4 les valeurs obtenues du straggling relatif (straggling mesuré rapporté au straggling de Bohr) pour le cas des protons en fonction de leur énergie moyenne. Les courbes illustrant la variation du straggling relatif pour les ions $^2_1H^+$ et $^4_2He^+$ sont données dans les figures III-11, III-12, III-13 et III-14.

Tableau III-4: valeurs du straggling relatif en énergie des protons en fonction de leur énergie moyenne.

Mylar		Makrofol		LR-115		Polypropylène	
\bar{E} (keV/uma)	$\frac{\Omega_{\text{exp}}^2}{\Omega_B^2}$	\bar{E} (keV/uma)	$\frac{\Omega_{\text{exp}}^2}{\Omega_B^2}$	\bar{E} (keV/uma)	$\frac{\Omega_{\text{exp}}^2}{\Omega_B^2}$	\bar{E} (keV/uma)	$\frac{\Omega_{\text{exp}}^2}{\Omega_B^2}$
356	2,15	1013	1,17	1624	1,01	909	0,84
466	1,29	1235	1,17	1831	1,06	1114	0,52
569	1,41	1443	1,24	2038	0,94	1319	1,11
619	1,25	1648	1,23	2240	1,19	1520	0,83
669	1,13	2059	1,16	2445	0,93	1721	0,91
768	1,37	2264	1,16	2647	0,89	1921	0,90
864	1,93	2463	1,18	2850	0,69	2120	0,94
912	0,95	2665	1,19	3051	0,74	2319	0,94
1057	0,82			3251	0,66	2518	0,87
1201	0,86			3452	0,66	2715	0,77
1343	0,85						
1626	0,86						
1908	0,88						
2188	0,60						
2468	0,90						
2747	1,16						

Dans la littérature très peu de données expérimentales sont disponibles, probablement à cause de la difficulté des expériences notamment aux basses énergies. En 2006 deux groupes de recherche [DIW06] et [YU06] ont publiés des résultats sur le straggling des ions $^3\text{H}_e$, ^6Li , C et O dans des films polymériques (mylar, polycarbonate, polypropylène et polyéthylène) dans la gamme d'énergie 1.1- 4.8 MeV et de 3.0 – 6.0 MeV/uma, en utilisant la technique nucléaire expérimentale de transmission directe.

III-3 : Analyse et discussion

1- Le pouvoir d'arrêt des ions ${}^1_1H^+$, ${}^2_1H^+$ et ${}^4_2He^+$

Les mesures expérimentales du pouvoir d'arrêt des particules ${}^1_1H^+$, ${}^2_1H^+$ et ${}^4_2He^+$ reportées en fonction de l'énergie pour chaque milieu ralentisseur ont été comparées aux prédictions semi empiriques de Ziegler *et al.* [SRIM03] obtenues par le logiciel SRIM (cf. paragraphe 2-7 du chapitre I) ainsi qu'aux données compilées dans le rapport ICRU [ICRU93].

Les résultats sont illustrés sur les figures III-1 à III-4 pour les protons, III-5 pour les deutons et III-6 à III-8 pour les particules alpha. Le bon accord observé entre les données expérimentales et les calculs semi empiriques du code de simulation SRIM basé sur l'utilisation de la règle d'additivité de Bragg dans les milieux composés confirme l'applicabilité de cette règle dans les matériaux polymériques étudiés. [AMM97], [CHE99], [AMM00] et [AMM05].

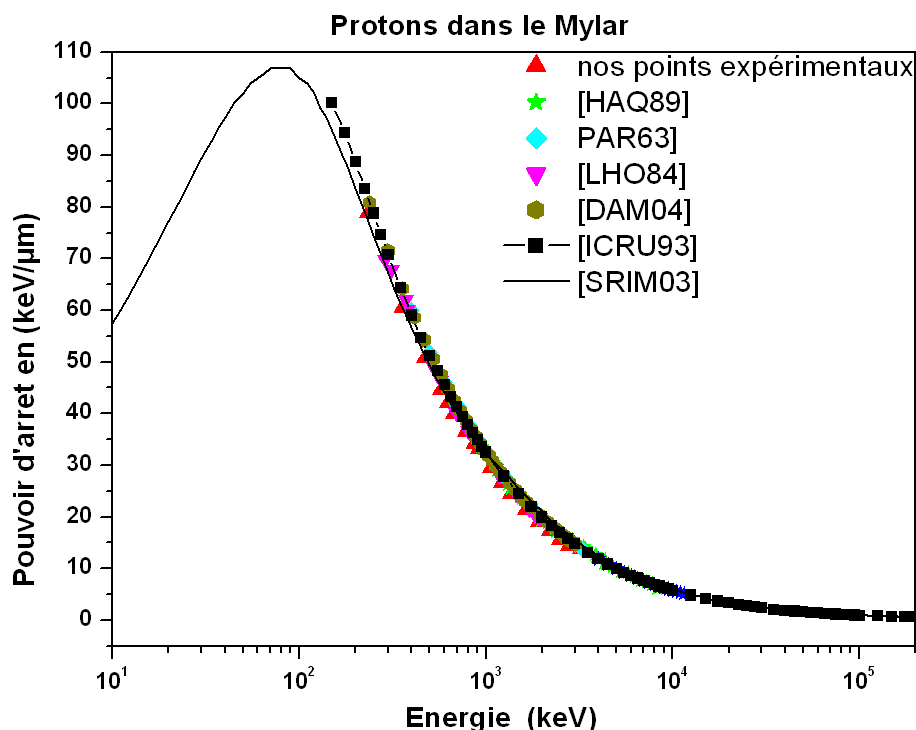


Figure III-1 : Pouvoir d'arrêt des protons dans le mylar en fonction de l'énergie.

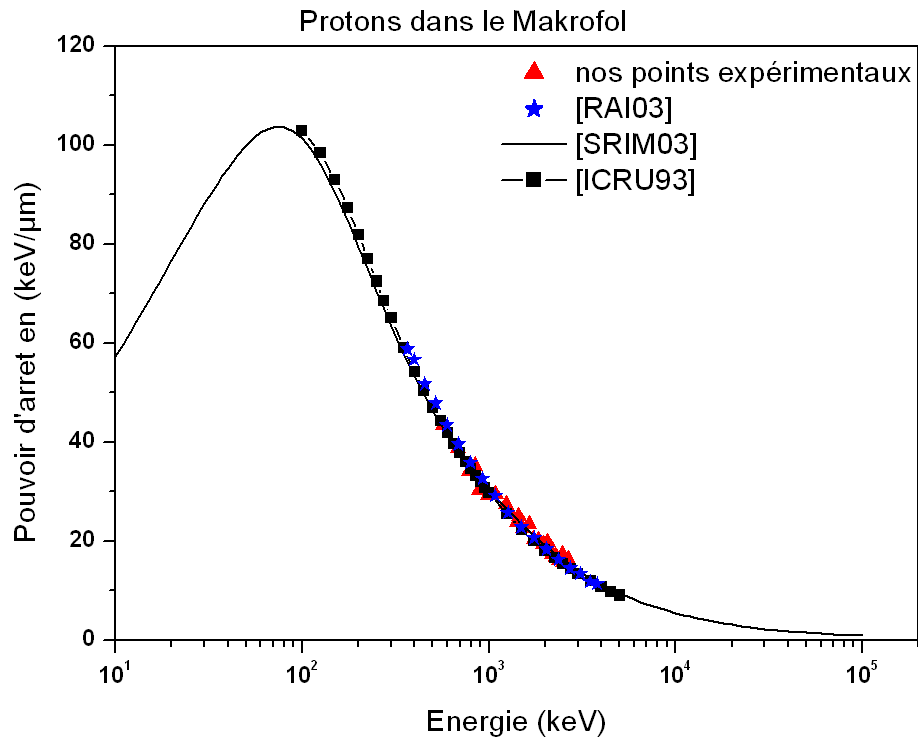


Figure III-2 : Pouvoir d'arrêt des protons dans le makrofol en fonction de l'énergie.

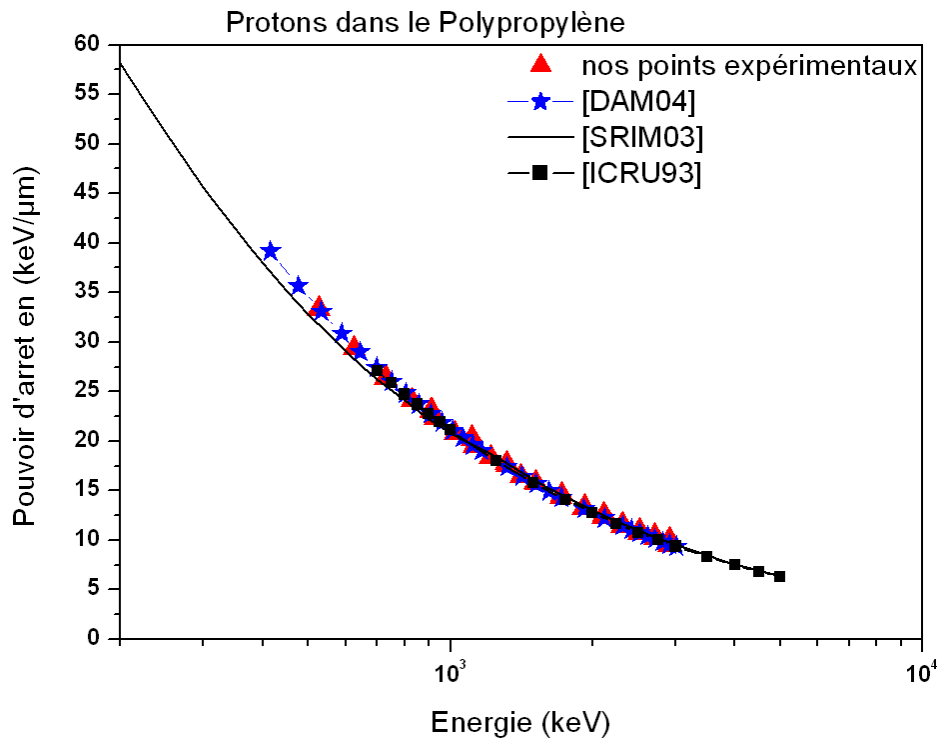


Figure III-3 : Pouvoir d'arrêt des protons dans le polypropylène en fonction de l'énergie.

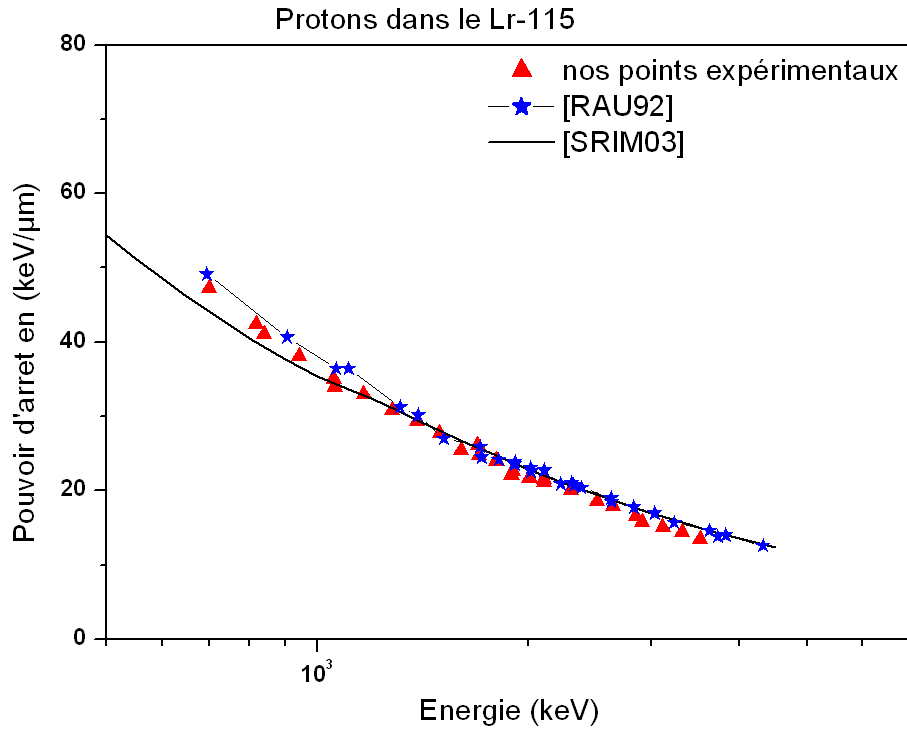


Figure III-4 : Pouvoir d'arrêt des protons dans le LR-115 en fonction de l'énergie.

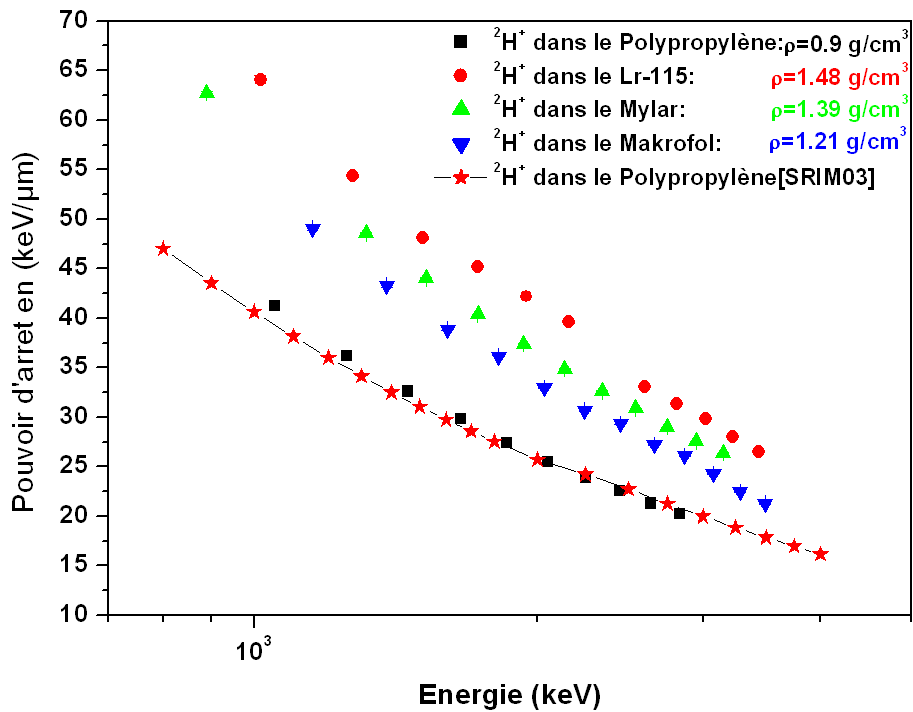


Figure III-5 : Pouvoir d'arrêt des deutons dans le polypropylène, nitrate de cellulose, mylar et makrofol en fonction de l'énergie.

Toutefois, sur les figures III-6, III-7 et III-8 reproduisant le pouvoir d'arrêt des particules alpha, un écart est observé aux basses énergies entre les différentes compilations (ICRU et SRIM2003) en particulier dans la région où le pouvoir d'arrêt est maximum (voir fig. I-1 du chapitre I). Le désaccord observé rend compte des difficultés rencontrées à décrire le mécanisme de perte d'énergie aux basses énergies où la caractérisation électromagnétique du milieu est généralement privilégiée (théorie diélectrique de Lindhard). Cette théorie a été largement utilisée pour expliquer la variation du pouvoir d'arrêt autour du maximum du pouvoir d'arrêt notamment dans les matériaux simples [ABD91].

Dans la gamme d'énergie étudiée dans ce travail où la théorie de Bethe-Bloch rend bien compte du comportement du pouvoir d'arrêt des particules légères dans les éléments simples [POR94] et [SH I96] nous nous sommes intéressés à l'applicabilité de cette théorie dans les matériaux composés, objet de ce travail, utilisée en tenant compte de la loi d'additivité de Bragg. A cette fin, nous avons déterminé pour les divers matériaux étudiés un des paramètres fondamentaux du processus de perte d'énergie, à savoir le potentiel d'ionisation et d'excitation moyen.

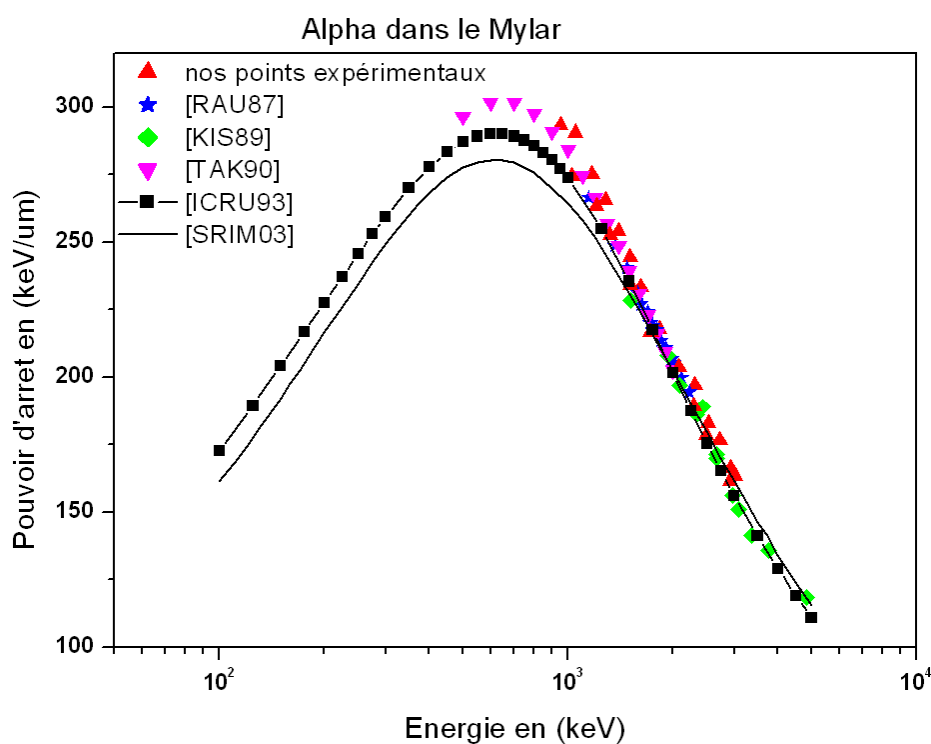


Figure III-6 : Pouvoir d'arrêt des particules alpha dans le mylar en fonction de l'énergie.

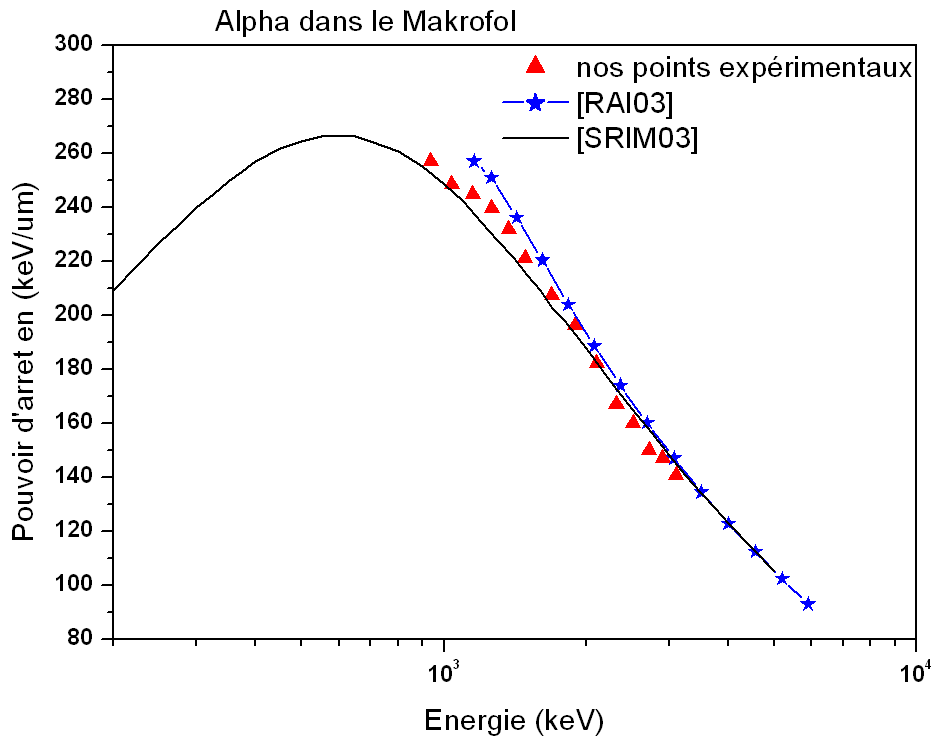


Figure III-7 : Pouvoir d'arrêt des particules alpha dans le makrofol en fonction de l'énergie.

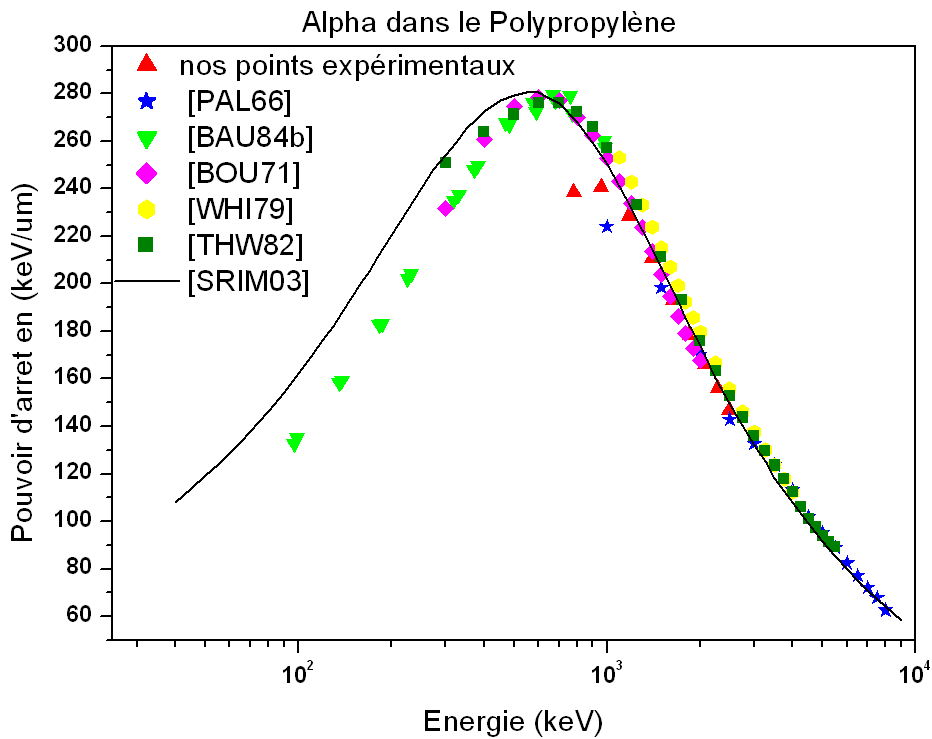


Figure III-8 : Pouvoir d'arrêt des particules alpha dans le polypropylène en fonction de l'énergie.

2- Le potentiel d'ionisation et d'excitation moyen $\langle I \rangle$

L'analyse des données expérimentales du pouvoir d'arrêt des protons traversant les films plastiques minces (mylar, makrofol, nitrate de cellulose (LR-115) et polypropylène), a été effectuée dans le cadre de la théorie de Bethe-Bloch à partir de la formule du pouvoir d'arrêt développée dans le paragraphe 2-4 du chapitre I.

$$S(E) = \frac{kZ_1^2 Z_2}{\beta^2} \left[\ln \left(\frac{2m_e v_1^2}{1 - \beta^2} \right) - \beta^2 - \ln \langle I \rangle - \frac{C}{Z_2} - \frac{\delta}{2} + Z_1 L_1 + Z_1^2 L_2 \right] \quad (\text{III-3})$$

Les valeurs des différents paramètres $\left(C/Z_2, Z_1 L_1, Z_1^2 L_2 \text{ et } \frac{\delta}{2} \right)$ ont été calculées à partir des expressions I-12, I-19, I-20 et I-26 du chapitre I, sont reportées dans les tableaux III-5, III-6, III-7 et III-8. Aux énergies étudiées, l'effet du paramètre densité $\frac{\delta}{2}$ est négligeable.

Tableau III-5: valeurs des paramètres de la formule du pouvoir d'arrêt de Bethe-Bloch pour les protons dans le Mylar

\bar{E} (keV)	$\langle I \rangle$ (eV)	(C/Z_2)	$Z_1 L_1$	$Z_1^2 L_2$
1057	75,74	3,58	0,18	-0,02
1201	75,73	3,74	0,16	-0,02
1343	75,76	3,87	0,14	-0,02
1626	75,76	3,98	0,13	-0,01
1908	75,77	4,26	0,10	-0,01
2188	75,78	4,34	0,10	-0,01
2468	75,78	4,41	0,09	-0,01
2747	75,79	4,47	0,09	-0,01
3212	75,79	4,54	0,08	-0,01
3300	75,80	4,59	0,08	-0,01
3497	75,79	4,65	0,08	-0,01

Tableau III-6 : valeurs des paramètres de la formule du pouvoir d'arrêt de Bethe-Bloch pour les protons dans le Makrofol

\bar{E} (keV)	$\langle I \rangle$ (eV)	(C/Z_2)	$Z_1 L_1$	$Z_1^2 L_2$
1013	70,81	7,85	0,21	-0,03
1235	70,84	8,03	0,17	-0,02
1443	70,82	8,17	0,16	-0,02
1648	70,78	8,29	0,14	-0,02
2059	70,81	8,49	0,12	-0,01
2264	70,81	8,58	0,11	-0,01
2463	70,78	8,66	0,10	-0,01
2665	70,78	8,73	0,10	-0,01

Tableau III-7 : valeurs des paramètres de la formule du pouvoir d'arrêt de Bethe-Bloch pour les protons dans le Polypropylène.

\bar{E} (keV)	$\langle I \rangle$ (eV)	(C/Z_2)	$Z_1 L_1$	$Z_1^2 L_2$
909	55,23	7,73	0,26	-0,03
1114	55,31	7,91	0,23	-0,03
1319	55,28	8,05	0,21	-0,02
1520	55,19	8,17	0,18	-0,02
1721	55,46	8,28	0,17	-0,02
1921	55,47	8,37	0,15	-0,01
2120	55,22	8,45	0,14	-0,01
2319	55,24	8,53	0,13	-0,01
2518	55,15	8,61	0,12	-0,01
2715	55,27	8,67	0,11	-0,01
2913	55,32	8,73	0,11	-0,01
3111	55,46	8,79	0,10	-0,01

Tableau III-8: valeurs des paramètres de la formule du pouvoir d'arrêt de Bethe-Bloch pour les protons dans Lr-115

\bar{E} (keV)	$\langle I \rangle$ (eV)	(C/Z_2)	$Z_1 L_1$	$Z_1^2 L_2$
1624	81,92	8,27	0,13	-0,02
1831	81,92	8,38	0,12	-0,02
2038	81,92	8,48	0,11	-0,01
2240	81,9	8,56	0,10	-0,01
2445	81,92	8,64	0,10	-0,01
2647	81,91	8,72	0,09	-0,01
2850	81,94	8,79	0,09	-0,01
3051	81,94	8,85	0,08	-0,01
3251	81,93	8,91	0,08	-0,01
3452	81,96	8,97	0,08	-0,09

Nous avons alors adopté la méthode des variables X de Bichsel [BIC90], telle que décrite dans le paragraphe (2-5) du chapitre I, pour déterminer le potentiel d'ionisation et d'excitation moyen d'un composé donné. Nous avons ajusté les valeurs de la variable expérimentale X_{exp} par les données numériques générées par la variable X_{th} , en considérant le potentiel d'ionisation et d'excitation moyen $\langle I \rangle$ comme étant le paramètre d'ajustement entre ces deux variables. On rappelle ci-après les expressions définissant ces deux variables déjà définie dans le chapitre I (éq. I-24 et éq. I-25) :

$$X_{\text{exp}} = f(\beta) - \frac{\beta^2 S_{\text{exp}}}{k Z_2 Z_1^2} \quad (\text{III-4})$$

$$X_{\text{th}} = \ln \langle I \rangle + \frac{C}{Z_2} + \frac{\delta}{2} - Z_1 L_1 - Z_1^2 L_2 \quad (\text{III-5})$$

$$\text{où } f(\beta) = \ln \left(\frac{2m_e v_1^2}{1 - \beta^2} \right) - \beta^2, \text{ avec } \beta = \left(\frac{v}{c} \right)$$

L'évolution des variables X définies précédemment, en fonction de l'énergie des protons est reportée sur la figure III-9 pour le ralentissement des protons dans le mylar et le makrofol et la figure III-10 pour celui des protons dans le Lr-115 et le polypropylène. L'ajustement des valeurs numériques calculées de la variable X_{th} aux données expérimentales

X_{exp} , nous permet de déduire la valeur du potentiel d'excitation et d'ionisation moyen pour chaque milieu ralentisseur considéré.

Pour le mylar et le makrofol, le meilleur ajustement des données expérimentales est obtenu pour $\langle I \rangle = 76$ eV et $\langle I \rangle = 70.8$ eV, respectivement. Dans le cas des deux autres films, le LR-115 et le polypropylène, le meilleur fit est obtenu pour respectivement $\langle I \rangle = 82.2$ eV et $\langle I \rangle = 55.4$ eV.

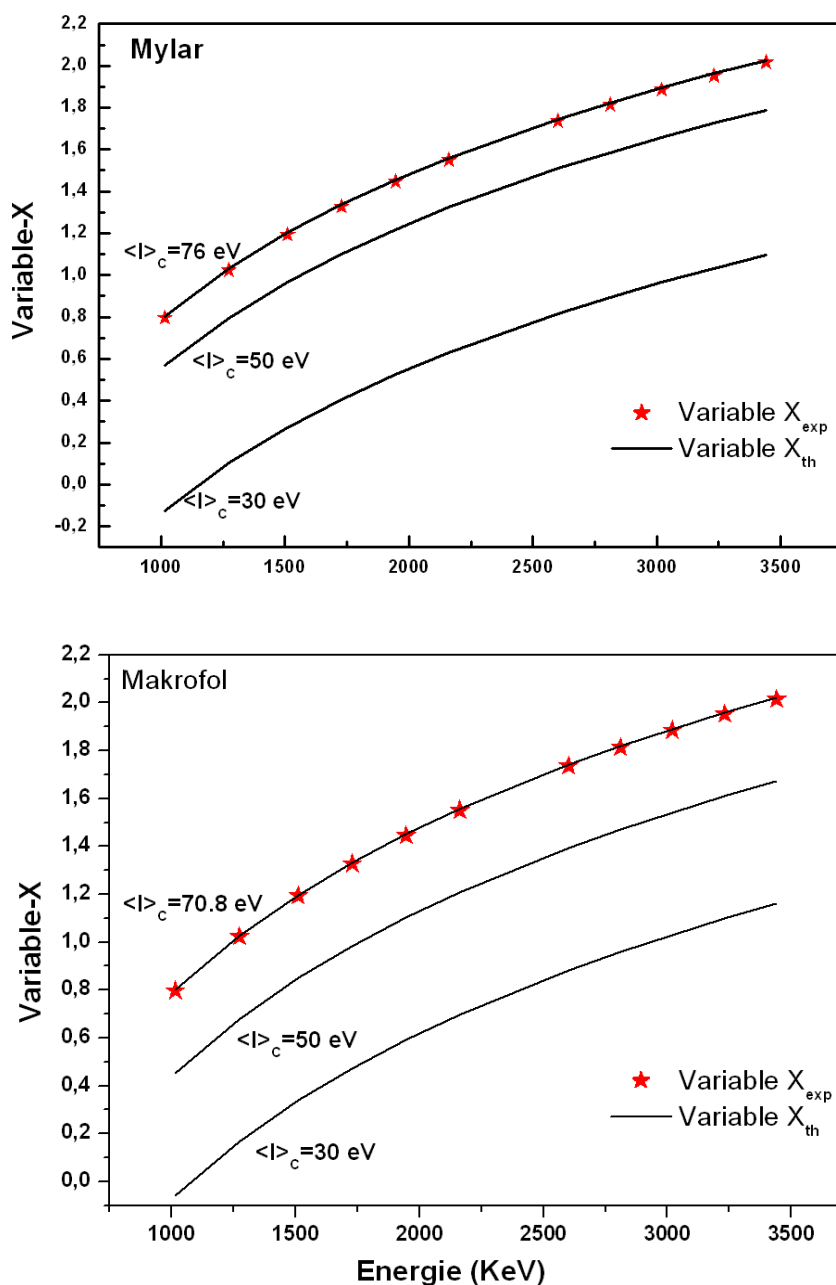


Figure III-9 : évolution des variables X_{exp} et X_{th} en fonction de l'énergie des protons et du potentiel d'ionisation et d'excitation moyen $\langle I \rangle$ dans le cas du mylar et du makrofol.

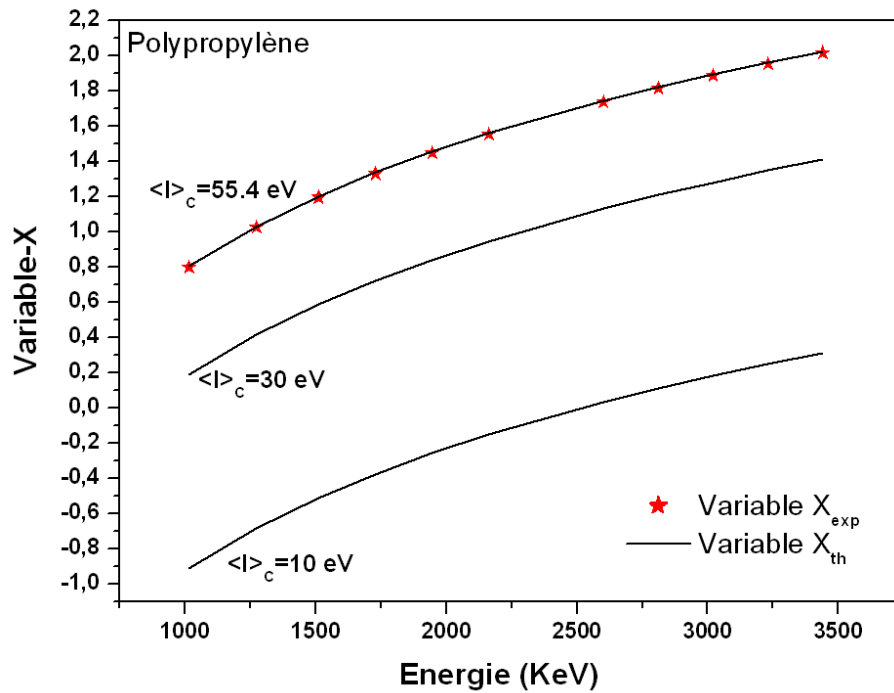
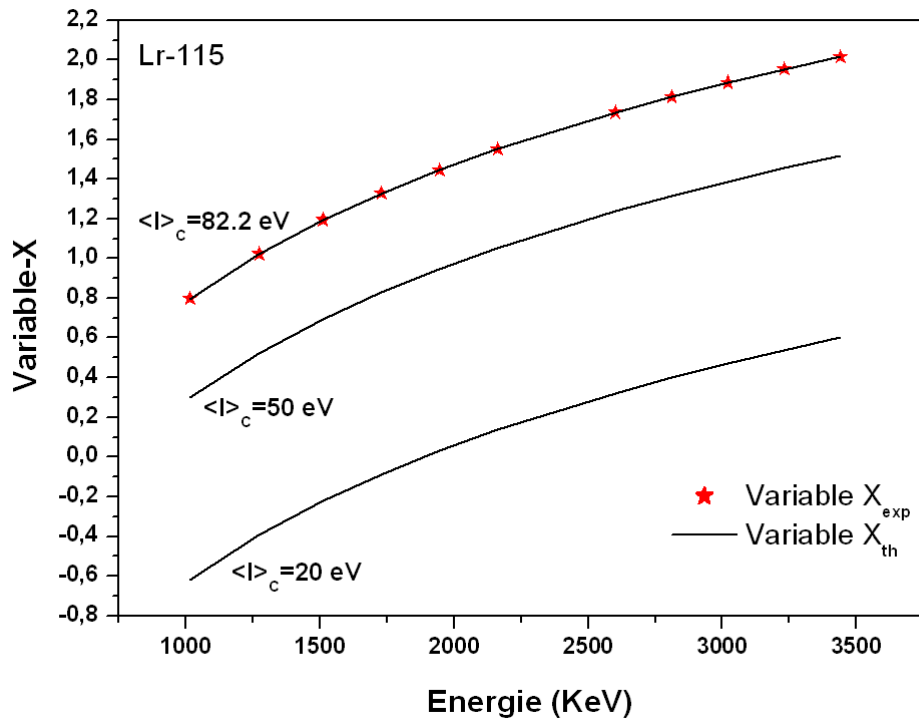


Figure III-10 : évolution des variables X_{exp} et X_{th} en fonction de l'énergie des protons et du potentiel d'ionisation et d'excitation moyen $\langle I \rangle$ dans le cas du LR-115 et du polypropylène.

Ces valeurs $\langle I \rangle_{\text{exp}}$ sont en très bon accord avec celles calculées $\langle I \rangle_B$ en appliquant la règle de sommation de Bragg (éq. I-27) en utilisant les potentiels d'ionisation $\langle I \rangle_i$ obtenus à partir de la relation de Bonderup ($\langle I \rangle_i = 11,4 \langle Z \rangle_i$) définie au chapitre I éq. I-12, pour chaque élément du composé étudié et avec celles compilées $\langle I \rangle_{\text{ICRU}}$ dans le rapport ICRU 49.

Pour le cas du mylar, du makrofol et du polypropylène nos données sont en bon accord avec celles obtenues par ailleurs par Hiraoka *et al.* [HIR93], Raisanen *et al.* [RAI03] et Damache *et al* [DAM04], avec toutefois une valeur légèrement inférieure pour le potentiel d'ionisation et d'excitation du Mylar comparée à celle obtenue par [SHI95] et [DAM04].

Aucune donnée du potentiel d'ionisation relative au film polymère Lr-115 n'est disponible dans la littérature pour être comparée avec les résultats obtenus ; néanmoins pour la comparaison avec les données calculées, nous constatons le bon accord entre ces différentes valeurs, validant le test d'applicabilité de la relation de Bragg dans les matériaux composés. Le tableau III-9 résume les potentiels d'excitation et d'ionisation moyen $\langle I \rangle$ obtenus [AMM05] dans les différents matériaux composés considérés,

Tableau III-9: potentiels d'excitation et d'ionisation moyen pour les différentes cibles polymériques utilisées dans ce travail.

Cible polymérique	$\langle I \rangle_{\text{exp}}$ (eV)	$\langle I \rangle_B$ (eV)	$\langle I \rangle_{\text{ICRU}}$ (eV)	[HIR93] (eV)	[SHI95] (eV)	[DAM04]] (eV)	[RAI03] (eV)
Mylar, $\langle Z \rangle = 4.54$	76±1.1	75.7	78.7	75.3±4.1	80.2±1.7	79.9±1.3	--
Makrofol, $\langle Z \rangle = 4.28$	70.8±1.1	70.9	73.1	--	--	--	71.0±1.4
Polypropylène, $\langle Z \rangle = 2.66$	55.4±1	55.3	56.5	--	--	56.9±0.7	--
LR- 115, $\langle Z \rangle = 5.03$	82.2±1.2	81.8	--	--	--	--	--

3- Le straggling en énergie des ions ${}^1_1H^+$, ${}^2_1H^+$ et ${}^4_2He^+$.

a- Straggling en énergie des protons et deutons

Les mesures du straggling des protons et des deutons effectuées indépendamment dans les divers matériaux étudiés (mylar, makrofol, LR-115 et polypropylène) illustrées sur les figures III-11 à III-14 présentent un accord satisfaisant dans la gamme d'énergie par nucléon où elles se recoupent ($500 \text{ keV} / \text{uma} \leq E / A \leq 700 \text{ keV} / \text{uma}$), conformément aux prévisions des divers théories du straggling. Cette observation atteste de la qualité de la technique expérimentale adoptée.

Les valeurs du straggling relatif à celui de Bohr des particules incidentes ont été calculées pour chaque milieu ralentisseur dans le cadre des théories de Lindhard et Scharff [LIN52] et de Bethe-Livingston [LIV37], en tenant compte du straggling dû à chacun des éléments de ce milieu conformément à la règle de sommation de Bragg donnée par l'équation I-44 :

$$\Omega_{B-T}^2 = \sum_{i=1}^n c_i \Omega_{B_i}^2 \quad (\text{III-6})$$

Aux énergies $E > 600 \text{ keV} / \text{uma}$, les valeurs mesurées du straggling sont indépendantes de l'énergie, en bon accord avec les prévisions de Bohr (équation I-41), notamment dans le cas des cibles minces de mylar et de polypropylène.

Les valeurs du straggling en énergie calculées dans le cadre de la théorie de Lindhard-Scharff [LIN52], étant identiques aux valeurs du straggling de Bohr [BOH48], (voir chapitre I, paragraphe 4), dans la gamme d'énergie étudiée, $\Omega_{L-S}^2 = \Omega_B^2$, on obtient, dans ce cas, le même ajustement des résultats expérimentaux.

Les prévisions d'un straggling constant aux énergies incidentes $E > 700 \text{ keV} / \text{uma}$ formulées dans le cadre de la théorie de Bethe-Livingston (équ. I-46 et I-49) sont, en valeur relative, en bon accord avec les valeurs expérimentales pour l'ensemble des matériaux étudiés (figures III-11 à III-14), mais présentent des écarts qui varient de 12 à 40 % en valeur absolue. Cependant, aux énergies $E < 700 \text{ keV} / \text{uma}$, Bethe et Livingston prévoient une diminution graduelle du straggling, contrairement aux résultats expérimentaux qui amorcent une augmentation sensible.

Dans le tableau III-10, nous donnons, à titre d'exemple, l'écart relatif obtenu entre le straggling calculé dans le cadre de la théorie de Bethe-Livingston et le straggling mesuré dans ce travail, en fonction de l'énergie moyenne, pour les protons et deutons traversant un film de polypropylène.

Tableau III-10: perte d'énergie relative et straggling en énergie relatif des protons (${}^1_1H^+$) et deutons (${}^2_1H^+$) dans le film de polypropylène dans la gamme d'énergie incidente comprise entre 900 keV et 3000 keV.

Type d'ion → cible	$E_{moy.}$ (keV/uma)	$\Delta E/E$ (%)	$\Omega_{exp}^2 / \Omega_B^2$	$\Omega_{B-L}^2 / \Omega_B^2$	$(\Omega_{B-L}^2 - \Omega_{exp}^2) / \Omega_{B-L}^2$.(%)
${}^1_1H^+ \rightarrow (C_3H_6)_n$	909	16.5	0,84	1.45	41.78
	1114	11.5	0,52	1.44	63.87
	1319	8.6	1,10	1.43	22.27
	1520	6.9	0,83	1.41	41.44
	1721	5.2	0,91	1.40	34.90
	1921	4.3	0,90	1.39	35.17
	2120	3.8	0,94	1.38	31.67
	2319	3.2	0,94	1.37	31.12
	2518	2.8	0,87	1.36	36.06
	2715	2.4	0,77	1.35	42.68
	2913	2.1	0,79	1.34	41.20
${}^2_1H^+ \rightarrow (C_3H_6)_n$	525	19.9	1.61	1.38	16.40
	628	14.6	1.25	1.42	11.95
	729	11.4	1.13	1.44	21.64
	829	9.1	0.84	1.44	41.78
	928	7.5	0.96	1.44	33.64
	1027	6.3	0.95	1.44	33.70
	1125	5.4	0.91	1.44	36.72
	1223	4.7	0.78	1.43	45.31
	1321	4.1	0.82	1.42	42.13
	1418	3.6	0.84	1.42	40.57

Le désaccord observé aux basses énergies pourrait être attribué à l'apparition des effets dûs au straggling lié aux collisions d'origine nucléaire qui n'est pas pris en compte dans les modèles théoriques utilisés.

Ce désaccord pourrait être aussi, en partie, dû à la description de la densité électronique de charge des atomes de la cible, assimilée à un gaz d'électrons dans les divers modèles utilisés. Une description plus réaliste de cette distribution électronique, telle celle tirée du modèle de Lenz-Jenser par Bonderup et Hvelplund [BON71] ou celle tirée du modèle de Hartree-Fock-Slater par Chu [CHU76] améliore sensiblement l'accord entre les résultats théoriques et les mesures expérimentales, notamment dans le cas du straggling de protons ou de particules alpha dans des cibles gazeuses. De même, la prise en compte des effets de corrélations atomiques et moléculaires liés à la distribution des électrons dans les cibles gazeuses atomiques ou diatomiques contribuent à augmenter le straggling estimé en considérant la cible comme un gaz d'électrons. L'effet dû aux fluctuations de l'état de charge de la particule incidente est également sensible dans l'estimation du straggling dans les cibles gazeuses [BES80].

Toutefois, ces divers effets de corrélation ne contribuent que faiblement au straggling en énergie dans les cibles solides, objet de ce travail, en particulier dans le cas de particules incidentes légères (protons et alpha) [BES80]. Lors de l'interaction de particules incidentes légères avec des cibles solides, les fluctuations statistiques de l'épaisseur de la cible sont prédominantes.

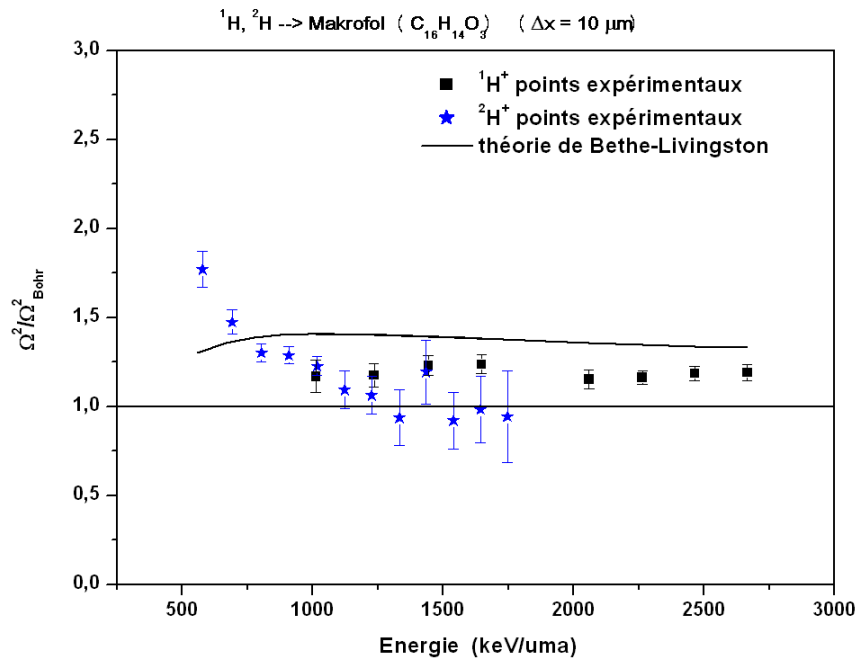


Figure III-11 : Evolution du straggling relatif (mesuré et calculé à partir de la théorie de Bethe-Livingston) en fonction de l'énergie moyenne des ions légers protons et deutons traversant le film makrofol.

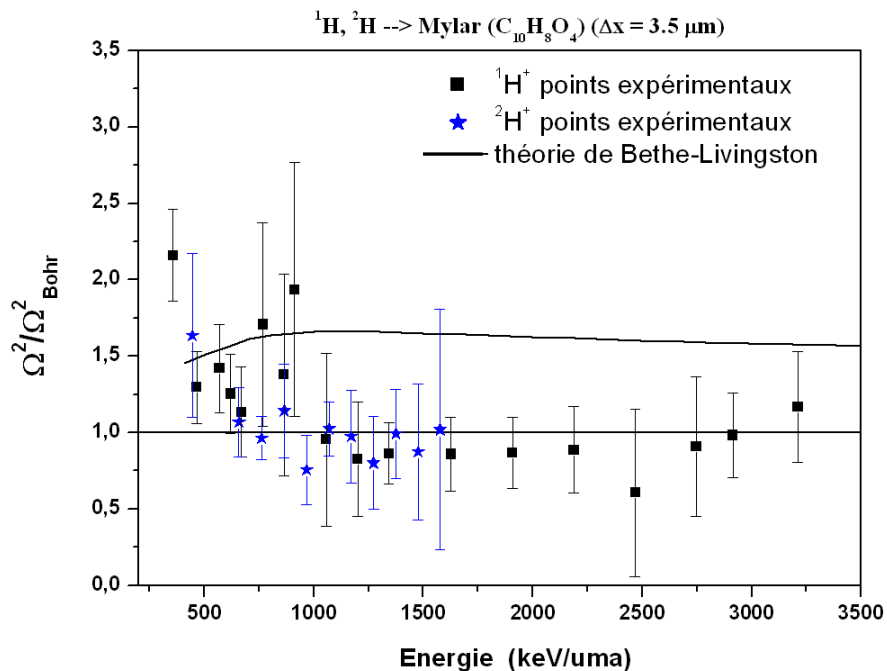


Figure III-12 : Evolution du straggling relatif (mesuré et calculé à partir de la théorie de Bethe-Livingston) en fonction de l'énergie moyenne des ions légers protons et deutons traversant le film mylar.

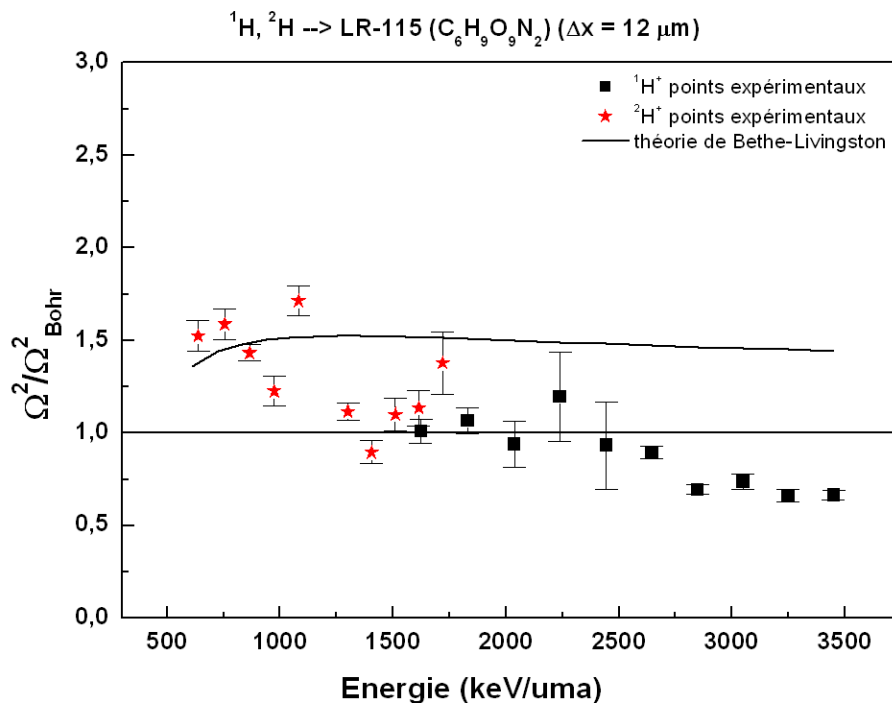


Figure III-13 : Evolution du straggling relatif (mesuré et calculé à partir de la théorie de Bethe-Livingston) en fonction de l'énergie moyenne des ions légers protons et deutons traversant le film LR-115.

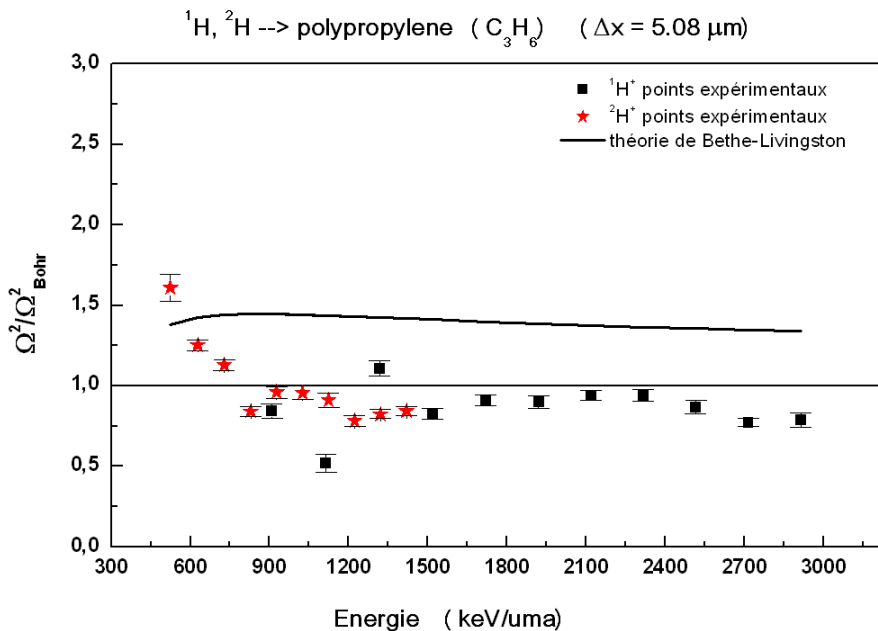


Figure III-14 : Evolution du straggling relatif (mesuré et calculé à partir de la théorie de Bethe-Livingston) en fonction de l'énergie moyenne des ions légers protons et deutons traversant le film de polypropylène.

b- Straggling en énergie des particules alpha

Les mesures expérimentales du straggling en énergie des particules alpha reportées en fonction de l'énergie moyenne (figures III-15 et III-16) ont été effectuées uniquement pour les films minces, de très faible épaisseur de mylar et de polypropylène (3.5 μ m pour le mylar et 5.08 μ m pour le polypropylène, tableau II-2). L'évolution de ce straggling mesuré dans le mylar et le polypropylène s'écarte notablement du straggling prédit par la théorie de Bohr notamment aux faibles énergies ($E < 500$ keV/uma) et présente un maximum autour de 400 keV/uma et de 290 keV/uma respectivement.

La différence observée à faible énergie peut être expliquée par la non applicabilité de l'hypothèse de Bohr, qui suppose une vitesse de l'ion projectile très grande devant la vitesse des électrons orbitaux de la cible traversée. Un tel écart a déjà été observé dans la mesure du straggling de particules dans les matériaux simples, notamment des particules alpha dans les gaz azote et néon par Besenbacher *et al.* [BES80], des ions oxygène dans une cible de silicium par Araujo *et al.* [ARA02] et des ions béryllium dans une cible de silicium par Araujo *et al.* [ARA04]. Cet écart peut être réduit dans le cas des cibles gazeuses en tenant compte des effets de corrélations moléculaires [BES80].

Aux énergies $E < 300$ keV/uma, le straggling de Bethe-Livingston tend vers celui de Bohr, marquant ainsi le même écart par rapport aux valeurs expérimentales ; aux énergies $E \geq 300$ keV/uma, le straggling de Bethe-Livingston augmente graduellement et se rapproche progressivement du straggling expérimental.

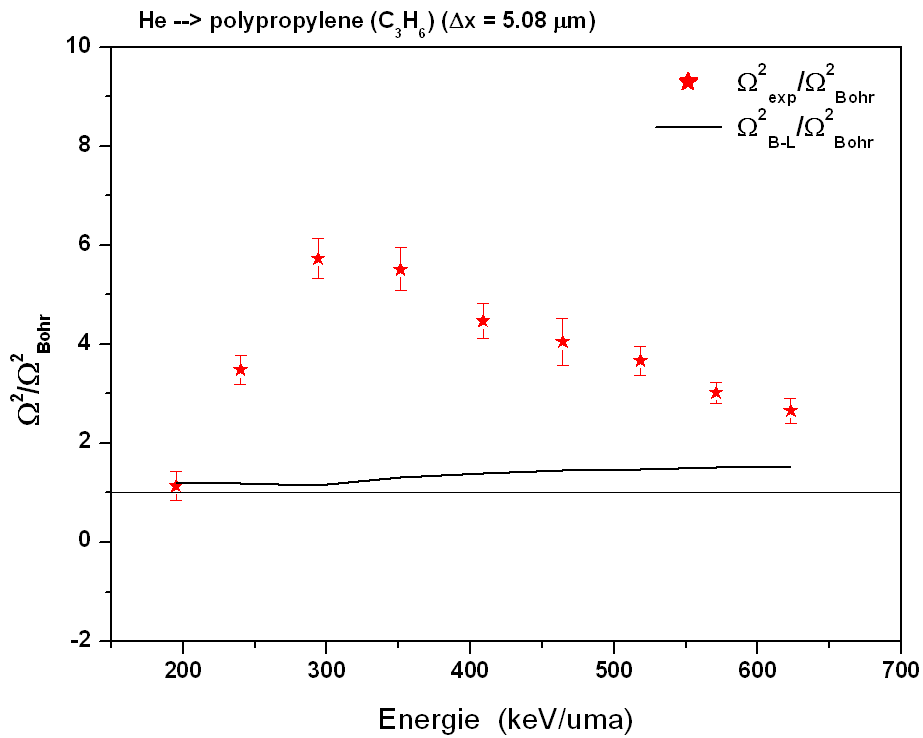


Figure III-15: Evolution du straggling relatif (mesuré et calculé à partir de la théorie de Bethe-Livingston) en fonction de l'énergie moyenne des ions alpha traversant le film de polypropylène.

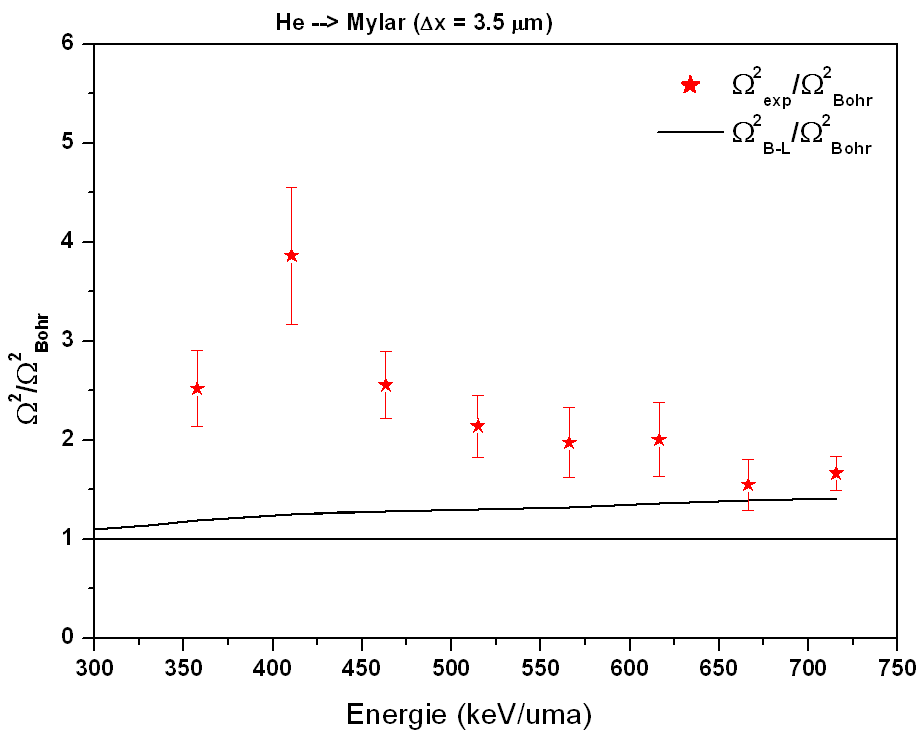


Figure III-16: Evolution du straggling relatif (mesuré et calculé à partir de la théorie de Bethe-Livingston) en fonction de l'énergie moyenne des ions alpha traversant le film de mylar.

Comme nous l'avons relevé dans le paragraphe b) précédent, l'inhomogénéité de l'épaisseur des films utilisés peut aussi altérer les mesures du straggling [BES80] accusant l'écart entre les données expérimentales et les prévisions théoriques, comme on peut le constater sur les figures III-15 et III-16. L'effet de cette inhomogénéité est estimé dans le paragraphe ci-après.

c- Effet de l'uniformité de l'épaisseur des films sur la mesure du straggling.

Dans les expériences de ralentissement des ions dans des cibles solides, la variation de l'épaisseur des films contribue sensiblement à l'évaluation de la dispersion de la perte d'énergie dans les cibles solides [BES80].

L'effet de la non- uniformité de la cible sur le straggling en énergie mesuré par la technique de transmission utilisée dans ce travail a été étudié par Besenbacher *et al.* [BES80], repris par Yang *et al.* [YAN91] et Arbo *et al.* [ARB02].

Pour évaluer cet effet, nous avons adopté l'approche proposée par Besenbacher [BES80], qui suppose une distribution de l'épaisseur de cible ΔX de type gaussien avec une déviation standard Δt .

Le straggling correctif induit par l' uniformité de l'épaisseur des cibles solides ($\Omega_{\Delta t}^2$) est alors donné par la relation :

$$\Omega_{\Delta t}^2 = \left(\frac{dE}{dX} \right)^2 \Delta t^2 \quad (\text{III-7})$$

où $\left(\frac{dE}{dX} \right)$ est le pouvoir d'arrêt expérimental des particules incidentes dans le matériau cible.

La déviation standard Δt de l'épaisseur du film est déduite par la méthode des moindres carrés, à partir de la relation suivante :

$$(\Delta t)^2 = \langle \Delta X_i - \langle \Delta X_i \rangle \rangle^2 \quad (\text{III-8})$$

où ΔX_i représente l'épaisseur déterminée à une énergie E_i du faisceau d'ions incidents et $\langle \Delta X_i \rangle$ la moyenne des épaisseurs déduites pour l'ensemble des énergies étudiées pour chaque cible dans ce travail.

ΔX_i est directement déterminé pour chaque film utilisé à partir de la relation :

$$\Delta X_i = \frac{\Delta E_i}{S(E_i)} \quad (\text{III-9})$$

où $S(E_i)$ a été estimé à partir de la fonction polynomiale [RAU94, PLO96] permettant d'ajuster les données expérimentales du pouvoir d'arrêt mesuré. Cette fonction est définie comme suit :

$$S(E_i) = \frac{a_0 E_i^{a_1} (1 + a_2 E_i)}{(1 + a_3 E_i) + a_4 E_i^2} \quad (\text{III-10})$$

où a_j ($j=0$ à 4) sont les paramètres déduits de l'ajustement et E_i l'énergie du faisceau d'ions incidents en keV.

Les données expérimentales du straggling en énergie Ω_{exp}^2 sont alors corrigées en utilisant la relation suivante :

$$\Omega^2 = \Omega_{\text{exp}}^2 - \Omega_{\Delta t}^2 \quad (\text{III-11})$$

où Ω_{exp}^2 est le straggling expérimental mesuré, déterminé en utilisant les expressions II-19 et éq.II-20 du chapitre II.

Le terme correctif du straggling $\Omega_{\Delta t}^2$, a été estimé pour les films de très faibles épaisseurs de mylar et de polypropylène [AMM06] ($5.08 \mu\text{m}$ pour le polypropylène et $3.5 \mu\text{m}$ pour le mylar), avec deux types de faisceaux d'ions différents (protons et alpha). La contribution de l'effet de l'uniformité de l'épaisseur, proportionnelle au pouvoir d'arrêt (éq. III-8), décroît quand l'énergie de l'ion incident augmente.

Cet effet, est beaucoup plus significatif pour les particules alpha (figure III-17) que pour les protons (figure III-18) du fait de la plus faible perte d'énergie de ces dernières particules aux mêmes énergies (figure III-19). Cet effet a été pris en compte dans les mesures du straggling en énergie des particules ^3He dans le polypropylène dans la gamme d'énergie comprise entre 300 et 1500 keV/uma, publié récemment par Y. C. Yu *et al.* [YU06].

Ces mesures reportées dans la figure III-17 présentent un bon accord avec nos résultats expérimentaux.

La prise en compte de l'effet de l'uniformité de l'épaisseur de cibles atténue l'écart observé entre les résultats expérimentaux et les prévisions théoriques relevé dans le paragraphe précédent. Notamment, celui observé aux énergies inférieures à 500keV/uma par rapport à la théorie de Bohr. Aux énergies supérieures les valeurs obtenues rejoignent celles de Bohr.

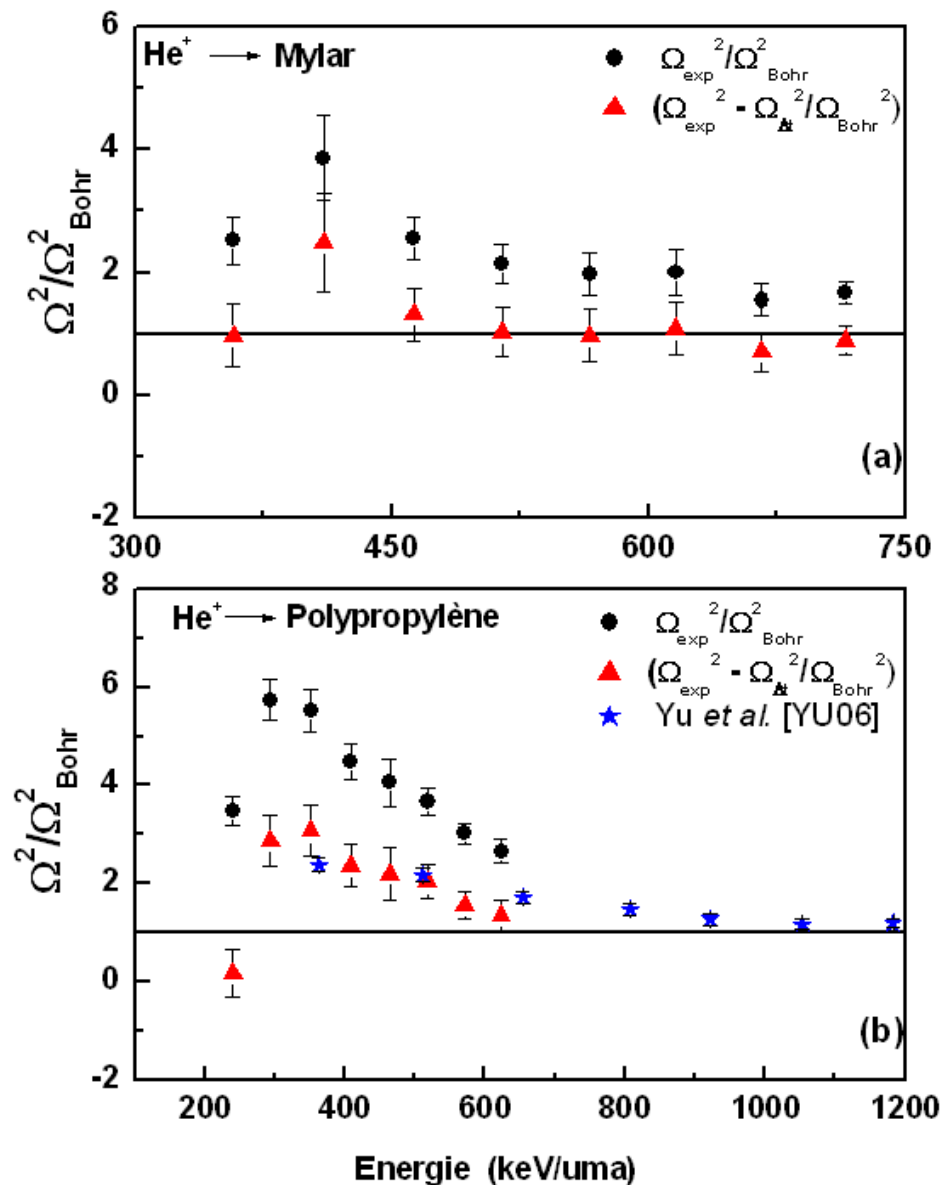


Figure III-17: Straggling expérimental relatif des ions alpha dans (a) le mylar et (b) le polypropylène. Les symboles cercle et triangle représentent respectivement, le straggling non corrigé et corrigé.

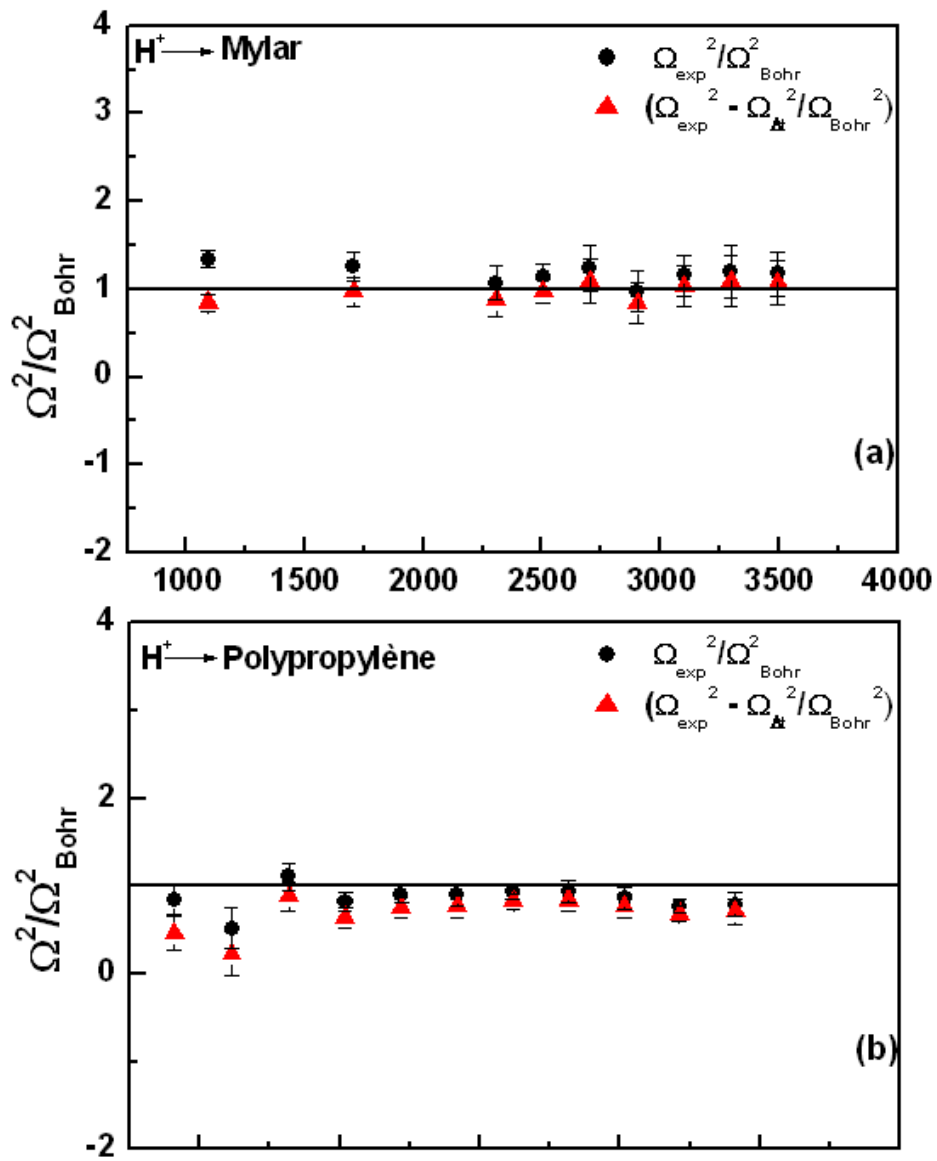


Figure III-18: Straggling expérimental relatif des protons dans (a) le mylar et (b) le polypropylène. Les symboles cercle et triangle représentent respectivement, le straggling non corrigé et corrigé.

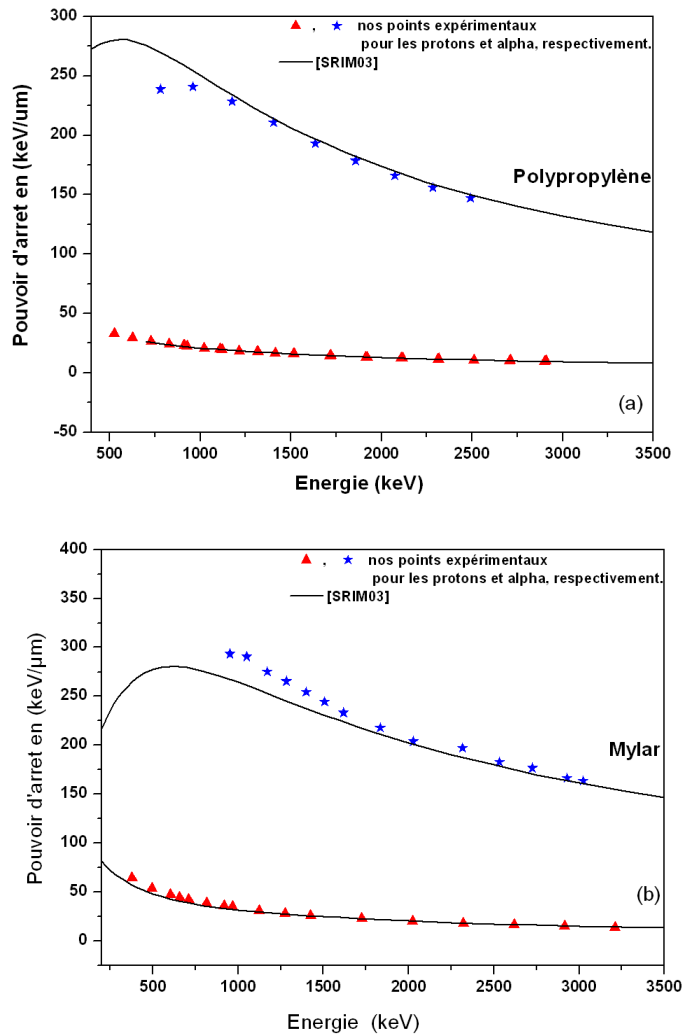


Figure III-19 : variation du pouvoir d'arrêt des ions alpha et protons dans (a) le polypropylène et (b) le mylar.

III-4 : Conclusion

Les mesures de la perte d'énergie et de la dispersion de cette perte d'énergie des particules incidentes dans des films polymères de faibles épaisseurs ont été effectuées de façon quasi simultanée en utilisant la technique de transmission indirecte permettant de minimiser les sources d'erreurs expérimentales.

Les pouvoirs d'arrêt des ions ${}^1_1H^+$, ${}^2_1H^+$ et ${}^4_2He^+$ dans les cibles de mylar, de polypropylène, de Lr-115 et de makrofol ont été mesurés dans la gamme d'énergie 340-3600 keV avec une précision de l'ordre de 5%. Ces mesures sont en bon accord avec les données publiées dans le rapport ICRU 49 [ICRU93], publié par la commission internationale sur les unités de rayonnements et de mesure (ICRU), commission chargée du maintien et de la mise à jour des données et méthodes expérimentales, concernant notamment le pouvoir d'arrêt et le parcours des ions dans la matière.

Nos mesures retenues dans la récente compilation en ligne effectuée par Helmut Paul [HEL06] sur le site web (<http://www.exphys.uni-linz.ac.at/stopping/>), constituent une base de données fiable.

L'analyse des données expérimentales du pouvoir d'arrêt des protons, dans le cadre de la théorie de Bethe-Bloch, en utilisant la méthode d'ajustement des variables X de Bichsel, a permis de déterminer le potentiel d'excitation et d'ionisation moyen $\langle I \rangle_{\text{exp}}$ pour les protons dans les différentes cibles utilisées.

Les valeurs du potentiel d'excitation et d'ionisation moyen $\langle I \rangle_{\text{exp}}$ obtenues sont en bon accord avec les données existant dans la littérature, confirmant l'applicabilité de la règle de sommation de Bragg pour l'estimation du potentiel d'ionisation et d'excitation dans un matériau composé, utilisée dans ce travail.

Les données expérimentales du straggling ont été obtenues pour des ions ${}^1_1H^+$, ${}^2_1H^+$ et ${}^4_2He^+$ traversant les films de mylar, de makrofol, de LR-115 et de polypropylène, avec une précision de l'ordre de $\pm 15\%$. Les résultats obtenus sont sensiblement bien décrits par les théories de Bohr et de Bethe-Livingston, notamment aux énergies incidentes supérieures à 500 keV/uma, confirmant la validité de la règle de Bragg pour l'estimation du straggling en énergie dans un matériau composé.

L'accord obtenu entre les valeurs expérimentales et théoriques du straggling peut toutefois être amélioré en tenant compte de l'effet de l'uniformité de l'épaisseur des films, effet qui influe notablement sur les mesures du straggling en particulier pour les particules alpha aux très basses énergies.

CONCLUSION GÉNÉRALE

CONCLUSION

Dans le cadre de ce travail, nous avons mesuré et analysé deux grandeurs physiques fondamentales caractérisant le ralentissement des ions dans les matériaux composés, à savoir : le pouvoir d'arrêt $S(E)$ (perte d'énergie moyenne par unité de parcours) et le straggling en énergie δE (fluctuation de la perte d'énergie). Les mesures ont été effectuées en utilisant la technique expérimentale de transmission indirecte basée sur la combinaison de deux techniques très utilisées dans les expériences du ralentissement des ions dans la matière : la technique de rétrodiffusion de Rutherford (RBS) et de la technique de perte d'énergie en transmission.

La technique de transmission indirecte, implémentée au niveau de l'accélérateur de particules (Van de Graaff) du centre de recherche nucléaire d'Alger, nous a permis de mesurer la perte d'énergie et la dispersion de cette perte d'énergie d'une manière quasi-simultanée en minimisant les sources d'erreurs expérimentales, de divers faisceaux d'ions (p, d, α) dans des cibles polymériques de type $(C_xH_yO_zN_t)_n$ (Mylar, Makrofol, Polypropylène et LR-115), dans une gamme d'énergie comprise entre 340 keV et 3600 keV. Dans la gamme 340 keV à 1000 keV, nous avons utilisé un faisceau d'ions moléculaires de type, H_2^+ pour l'hydrogène de « masse 2 » et H_3^+ pour l'hydrogène de « masse 3 ».

Les valeurs expérimentales du pouvoir d'arrêt des ions $^1_1H^+$, $^2_1H^+$ et $^4_2He^+$ dans les films de Mylar, Makrofol, Lr-115 et polypropylène, ont été déterminées avec une précision de l'ordre de $\pm 5\%$. Ces valeurs sont en bon accord avec les calculs du modèle semi empirique de Ziegler développé dans le code SRIM [SRIM03]. Ces résultats sont venus enrichir la dernière compilation des données du pouvoir d'arrêt des ions dans la matière, compilation publiée par Helmut Paul [HEL06](<http://www.exphys.uni-linz.ac.at/stopping/>).

Les données expérimentales du pouvoir d'arrêt des protons ont été analysées dans le cadre de la théorie de Bethe-Bloch, étendue aux matériaux composés en appliquant la règle d'additivité de Bragg, en utilisant la méthode d'ajustement des variables X de Bichsel [BIC90]. Cette analyse a permis de déterminer des valeurs du potentiel d'ionisation et d'excitation moyen $\langle I \rangle$, pour chaque milieu ralentisseur étudié, en bon accord avec celles publiées par d'autres laboratoires.

Les mesures expérimentales du straggling, inexistantes jusque là dans la littérature, ont été effectuées, pour des ions ${}^1_1H^+$, ${}^2_1H^+$ et ${}^4_2He^+$ traversant les films minces de Mylar, Makrofol, Lr-115 et polypropylène, avec une précision de $\pm 15\%$. Ces résultats ont été comparés à ceux déduits des prévisions théoriques des modèles de Bohr et de Bethe-Livingston appliqués en utilisant la loi d'additivité de Bragg et étudiés en tenant compte notamment de l'effet de l'uniformité de l'épaisseur des films utilisés sur la mesure du straggling. L'effet de l'uniformité de l'épaisseur des cibles, proportionnel au pouvoir d'arrêt des particules incidentes [BES80], est plus sensible aux basses énergies ; il est plus important pour les ions alpha que pour les protons.

Aux énergies $E > 600$ keV/uma, les valeurs expérimentales du straggling des protons et deutons, sont en bon accord avec les résultats de la théorie de Bohr et de la théorie de Bethe-Livingston, avec cependant, dans ce dernier cas, des écarts en valeur absolue variant de 10 à 40 %. Pour les particules alpha, dans la même gamme d'énergie, les valeurs expérimentales sont distinctes des valeurs de Bohr et se rapprochent davantage de celles données par la théorie de Bethe-Livingston.

Les modèles utilisés sont en défaut aux énergies des particules incidentes inférieures à 600 keV/uma, car ils ne rendent pas compte de l'augmentation graduelle du straggling observée dans cette gamme d'énergie et en particulier du maximum existant autour de 290 keV/uma et 400 keV/uma, pour le straggling des particules alpha dans le Polypropylène et le Mylar, respectivement. Une analyse des données dans le cadre du modèle diélectrique de Lindhard et Scharff, plus approprié à la description de la perte d'énergie aux basses énergies, est en cours d'exécution.

L'ensemble des résultats obtenus dans ce travail confirme la validité de l'application de la règle d'additivité de Bragg pour la détermination des grandeurs caractérisant le ralentissement des particules (pouvoir d'arrêt, straggling en énergie et potentiel d'ionisation) dans les matériaux composés à partir des valeurs correspondantes dans leurs constituants respectifs.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

RÉFÉRENCES

- [ABD91]: A. Abdesselam, J. P. Stoquert, G. Guillaume, M. Hage-Ali, J. J. Grob and P. Siffert, Nucl. Instr. and Meth. B61, (1991) 385.
- [ABD93]: A. Abdesselam, J. P. Stoquert, M. Hage-Ali, J. J. Grob and P. Siffert, Nucl. Instr. and Meth. B73, (1993) 115.
- [AHL80]: S. P. Ahlen, Rev. Mod. Phys. **52.1** (1980)121.
- [ALA00]: T. Alanko, J. Hyvonen, V. Kyllonen, S. Muller, J; Raisanen and A. Virtanen, Radiations Physics and Chemistry 59 (2000) 249.
- [AMM97]: H. Ammi, M. Chekirine and A. Adjerad. Radiat. Meas. 28, (1997) 15.
- [AMM00]: H. Ammi, M. Chekirine and M. Allab. Radiat. Meas. 32, (2000) 83.
- [AMM02]: H. Ammi, S. Mammeri, M. Chekirine, B. Bouzid and M. Allab, Nucl. Instr. and Meth. B 198, (2002) 5.
- [AMM04]: H. Ammi, S. Mammeri and M. Allab, Nucl. Instr. and Meth. B 213, (2004) 60.
- [AMM05] : H. Ammi, R. Zemih, S. Mammeri and M. Allab, Nucl. Instr. and Meth. B 230, (2005) 68.
- [AMM06] : H. Ammi, R. Zemih, S. Mammeri and M. Allab, Radiation Effects & Defects in Solids. Vol.161, N^o.6, (2006) 339.
- [AND78]: H. H. Andersen, H. Knudsen and V. Martini, Nucl. Instr. and Meth. 149, (1978) 137.
- [ANG00]: C. Angulo, Th. Delbar, J. S. Graulich and P. Leleux. Nucl. Instr. and Meth. B 170, (2000) 21.
- [ARA02]: L.L. Araujo, P. L. Grande, M. Behar, J. H. R. dos Santos. Nucl. Instr. and Meth. B 190, (2002) 79.
- [ARA04]: L.L. Araujo, P. L. Grande, M. Behar, J. F. Dias. Nucl. Instr. and Meth. B 219-220, (2004) 246.
- [ARB02] D.G. Arbo, M. S. Gravielle, J. E. Miraglia, J. C. Rickardt, G. H. Lantschner, M. Fama and N. R. Arista, Phys. Rev. A 65, 042901 (2002).
- [BAU84b]: H. Baumgart, W. Arnold, J. Günzl, E. Huttel, A. Hofmann, N. Kniest, E. Pfaff, G. Reiter, S. Tharraketta and G. Clausnitzer, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B5, (1984)1.
- [BAR67]: W.H. Barkas and M.J. Berger in: Studies in Penetration of Charged Particles in Matter. National Academy of Sciences- National Research Council Publication No. 1133, NAS-NRC. Washington. DC. 1967.

- [BET30]: H. A. Bethe, Ann. Physik 5 (1930) 325.
- [BET32]: H. A. Bethe, Z. F. Physik 76 (1932) 293.
- [BES80] F. Besenbacher, J. U. Andersen and E. Bonderup, Nucl. Instr. and Meth. 180, (1980) 1.
- [BIC64]: H. Bichsel, *Studies in Penetration of Charged Particles in Matters* (U.S. National Academy of Science, 1133 (1964), pp. 17-38.
- [BIC90]: H. Bichsel, Phys. Rev. A41, 3642 (1990).
- [BIT99]: H. Bitao, L. Zhaoyuan, Q. Zhong, Nucl Instr. and Meth. B149 (1999) 395.
- [BLO33]: F. Bloch, Ann. Phys. 16, 285 (1933).
- [BLO33]: F. Bloch, Z. Phys. 81, 363 (1933).
- [BOH13]: N. Bohr, Philos. Mag. 25, 10(1913); N. Bohr, Philos. Mag. 30, 581(1913).
- [BOH15] : N. Bohr, Philos. Mag. 30, 581 (1915).
- [BOH48]: N. Bohr, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk 18, No. 8 (1948) ; N. Bohr, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk 24, No. 19 (1948).
- [BOH48]: N. Bohr, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 18 (1948) 8.
- [BON67]: E. Bonderup, Kgl. Dansk. Vid. Sels. Mat. Fys. Medd 35 No. 17 (1967).
- [BON71]: Bonderup and P. Hvelplund, Phys. Rev. A4 (1971) 562.
- [BOR26]: M. Born, Z. Phys., 38 (1926) 803.
- [BOU71]: P. D. Bourland, W. K. Chu and D. Powers, Phys. Rev. B3, (1971)3625.
- [BRA05]: W. H. Bragg. and R. Kleeman, Philos. Mag. 10 (1905) 318.
- [CHE99]: M. Chekirine and H. Ammi. Radiat. Meas. 30, (1999) 131.
- [CHU72]: W.K. Chu and D. Powers, Phys. Lett. A40 (1972) 23
- [CHU76]: W.K. Chu, Phys. Rev. A13 (1976) 2057
- [CHU77]: W.K. Chu, in : Ion Beam Handbook for Material Analysis, eds. J.W. Mayer and E. Rimini (Academic Press, New York, 1977).
- [CLI98] : A. Climent-Font, J. Raisanen and E. Rauhala, Nucl. Instr. and Meth. B 136-138, (1998) 109-113.
- [COM66]: R. Comfort, J.F. Decker, E.T. Lynk, M.O. Scully and A.R. Quinton, Phys. Rev. 150 (1966) 249.
- [DAM04]: S. Damache, S. Ouichaoui, A. Belhout, A. Medouni and I. Toumert, Nucl. Instr. and Meth. B 255, (2004) 449.

- [DIW06]: P.K. Diwan, V. Sharma, S. Aggarwal, S. Kumar, S.K. Sharma, V.K. Mittal, B. Sannakki, R.D. Mathad, S.A. Khan and D.K. Avasthi, Nucl. Instr. and Meth. B 244, (2006) 289.
- [DOO86]: L. R. Doolittle, Nucl. Instr. and Meth. B 15, (1986) 227.
- [FAN47]: U. Fano. Phys. Rev. 72, 26 (1947).
- [FAN56]: U. Fano, Phys. Rev. 102, 385 (1956).
- [FAN63]: U. Fano, Annu. Rev. Nucl. Sci. 13 (1963)13.
- [FAN64]: U. Fano, *Studies in Penetration of Charged Particles in Matters*, Nuclear Science Report No. 39 (U. S. National Academy of Sciences, Washington DC, 1964), pp. 1-338.
- [FIR57]: O.B. Firsov, Zh. Eksp. Teor. Fiz. 32 (1957) 1464; O.B. Firsov, Zh. Eksp. Teor. Fiz. 33 (1957) 696.
- [HAQ89]: A. K. M. M. Haque, A. Mohammadi and H. Nikjoo, J. Phys.D: Appl. Phys. 22, (1989)1196.
- [HEL06]: H. Paul, on-line data base of stopping power measurement available from <http://www.exphys.uni-linz.ac.at/stopping/>
- [HOS00]: Y. Hoshino, T. Okazawa, T. Nishini and T. Nishimura, Nucl. Instr. and Meth. B171 (2000) 409.
- [HIR93]: T. Hiraoka, K. Hawashia, K. Hoshino, A. Fukumura, H.Bichsel, Med. Phys. 20 (1993) 135.
- [HUN55]: S. E. Hunt and K. Firth, Phys. Rev. 99 (1955) 78.
- [ICRU93]: ICRU report 49, (1993) Stopping power and Ranges for protons and alpha particles, International commission on radiation units and measurements (ICRU publications, Bethesda, Maryland).
- [KIS89]: A. Z. Kiss, E. Somorjai, J. Räsänen and E. Rauhala, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B39, (1989)15.
- [LAK04]: Lakhwant Singh and Ravinder Singh, Nucl. Instr. and Meth. B 225, (2004) 478.
- [LEB95] Leblanc L., Ross G. G. and Wallace W. E.. Nucl. Instr. and Meth. B95, (1995) 457.
- [LHO84]: A. L'Hoir and D. Schmaus, Nucl. Instr. Meth. B4, (1984)1.
- [LIG00]: R. Liguori Neto, N. Added and F.A.S. Continho, Nucl. Instr. and Meth. B 161-163, (2000) 159-163.
- [LIN52]: J. Lindhard and M. Scharff, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. **27** (1952) No 15.

- [LIN63]: J. Lindhard, M. Scharff and Schiott, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selesk, **33** N° 14 (1963).
- [LIN68]: J. Lindhard, V. Nielson and M. Scharff, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selesk, **36** N° 10 (1968); J. Lindhard, V. Nielson, M. Scharff and P.V. Thomson, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selesk, 33 N° 10 (1968).
- [LIV37]: M.S. Livingston and H.A. Bethe, Rev. Mod. Phys. 9 (1937) 245.
- [LOD74]: A. S. Lodhi and D. Powers, Phys. Rev., A10, 2131 (1974)
- [MAS06]: S. Masyoshi, D. J. Arseneau, J. J. Pan and D. G. Fleming, Phys. Rev. A74, 042708 (2006).
- [NOR70]: L. C. Northcliffe and R. F. Schilling, Nucl. Data tables 7, 233 (1970).
- [PAL66]: R. B. J. Palmer, Proc. Phys. Soc. 87, (1966)681.
- [PAR63]: J. T. Park and E. J. Zimmerman, Phys. Rev. 131, (1963)1611.
- [PLO96]: J. M. Plompen, F. Munnik, J. Raisanen and U. Watjen, J. Appl. Phys. 80(6), (1996) 3147.
- [POR94]: L.E. Porter, Nucl. Instr. and Meth. B 93, (1994) 203.
- [POR04]: L.E. Porter, W. H. Trzaska, J. Raisanen and V. Lyapin, J. Phys. Condens. Matter 16 (2004) 7663.
- [RAI96]: J. Raisanen, U. Watjen, A. J. M. Plompen and F. Munnik, Nucl. Instr. and Meth. B 118, (1996) 1-6.
- [RAI03]: J. Raisanen, W. H. Trzaska, T. Alanko, V. Lyapin and L. E. Porter, J. Appl. Phys. 94 (2003) 2080.
- [RAU85]: E. Rauhala and J. Raisanen, Nucl. Instr. and Meth. B 12, (1985) 321-324.
- [RAU87]: E. Rauhala and J. Raisanen, Nucl. Instr. and Meth. B 24/25, (1987) 362-365.
- [RAU88]: E. Rauhala and J. Raisanen, Nucl. Instr. and Meth. B 35, (1988) 130-134.
- [RAU88]: E. Rauhala and J. Raisanen, Phys. Rev. 37 (1988) 9249.
- [RAU92]: E. Rauhala E., J. Raisanen J., Zs. Fulop, A. Z. Kiss and I. Hunyadi, Nucl. Tracks Radiat. Meas. Vol 20, (1992) 611- 614.
- [RAU94] : E. Rauhala and J. Raisanen , Nucl. Instr. and Meth. B 93, (1994) 399.
- [RUT11]: E. Rutherford, E. Phil. Mag. 21, 669, (1911)
- [SAN80]: D. C. Santry and R. D. Werner, Nucl. Instr. and Meth. 178, (1980) 523.
- [SHI95]: N. Shiomi-Tsuda, N. Sakamoto and H. Ogawa, Nucl. Instr. and Meth. B 103, (1995) 255.

- [SHI96]: N. Shiomi-Tsuda, N. Sakamoto and H. Ogawa, Nucl. Instr. and Meth. B 115, (1996) 88.
- [SIG85]: P. Sigmund, K. B. Winterbon, Nucl. Instr. and Meth. B12 (1985), p. 1.
- [SIG02]: P. Sigmund, A. Schinner, Nucl. Inst and Meth . B 193 (2002) 49.
- [SRIM03]: J. F. Ziegler, J.P. Biersack, SRIM2003 – the Stopping and Range of Ions in Matter, Version 2003.23, code, available from <http://www.srim.org>.
- [STE52]: R.M. Sternheimer, Phys. Rev. 88, 51 (1952).
- [STE82]: R.M. Sternheimer, S.M. Seltzer, and M.J. Berger, Phys. Rev. B26, 6067 (1982).
- [STO82]: J. P. Stoquert, A. Amokrane and H. Baumevaille and J. C. Oberlin Raddiation effects, 60 (1982) 111-117.
- [TAK90]: K. Takahiro, F. Nishiyama, T. Yamasaki, Y. Osaka, S. Yamaguchi, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B52, (1990)117.
- [THW82]: D. I. Thwaites, Phys. Med. Biol. 27, (1982)565.
- [TIT39]: S. Titeica, Bull. Soc. Rou. Phys. 38 (1939) 81.
- [TSC68]: C. Tschalar, Nucl. Instr. and Meth. 61 (1968) 141.
- [VOL74]: O. Vollmer, Nucl. Instr. and Meth. 121 (1974) 373.
- [WHI79]: M.J. Whillock and A.A. Edwards, Phys. Med. Biol. 24, (1979)518.
- [YAN91] : Q. Yang, D. J. O'Connor and Z. Wang, Nucl. Instr. and Meth. B 61, (1991) 149.
- [YU06]: Y.C. Yu , J.Y. Hsu, J.H. Liang and K.M. Chen, Nucl. Instr. and Meth. B 249, (2006) 47.
- [ZHE98]: T. Zheng, L.Xiting, Z. Yongjun, X. Zonghinang, S. Dugyyu and W. Xuemei, Nucl. Instr. and Meth. B135 (1998) 169.
- [ZIE80]: J.F ; Ziegeler, ‘Handbook of Stopping Cross Section for Energetic Ions in all Elements ‘, Pergaman Press, New York (1980 ; U. Littmark and J.F ; Ziegeler, ‘Handbook of range Distributions for Energetic Ions in all Elements‘, Pergaman Press, New York (1980).
- [ZIE85]: J. F. Ziegler, J.P. Biersack, SRIM2003 – the Stopping and Range of Ions in Matter, Version 2003.23, code, available from www.srim.org.
- [ZIE88]: J. F. Ziegler and J. Manoyan, Nucl. Instr. and Meth. B35 (1988) 215.
- [ZIE99]: J. F. Ziegler, Journal of Applied Physics 85, 3 (1999).

Publications afférentes à ce travail

[AMM06] : H. Ammi, R. Zemih, S. Mammeri and M. Allab, Radiation Effects & Defects in Solids. Vol.161, N^o.6, (2006) 339.

[AMM05] : H. Ammi, R. Zemih, S. Mammeri and M. Allab, Nucl. Instr. and Meth. B 230, (2005) 68.

[AMM04]: H. Ammi, S. Mammeri and M. Allab, Nucl. Instr. and Meth. B 213, (2004) 60.

[AMM02]: H. Ammi, S. Mammeri, M. Chekirine, B. Bouzid and M. Allab, Nucl. Instr. and Meth. B 198, (2002) 5.

[AMM00]: H. Ammi, M. Chekirine and M. Allab. Radiat. Meas. 32, (2000) 83.

[CHE99]: M. Chekirine and H. Ammi. Radiat. Meas. 30, (1999) 131.

[AMM97]: H. Ammi, M. Chekirine and A. Adjerad. Radiat. Meas. 28, (1997) 15.