

Thèse de Doctorat

Mostafa HAZIM

*Mémoire présenté en vue de l'obtention du
grade de Docteur de l'Université de Nantes
sous le sceau de l'Université Bretagne Loire*

École doctorale : 3MPL-Molécules, Matières et Matériaux en Pays de la Loire

Discipline : Constituants élémentaires et physique théorique

Spécialité :

Unité de recherche : Laboratoire SUBATECH - UMR 6457

Soutenue le 14 mars 2017

Thèse N° :

Mesures des sections efficaces d'ionisations de la couche K induites par des protons de haute énergie pour une large plage de numéros atomiques

JURY

Président :	Denis Dauvergne , Directeur de recherche, Laboratoire de Physique Subatomique & Cosmologie (LPSC), Grenoble (France)
Rapporteurs :	Philippe Barberet , Maître de conférences titulaire de l'HDR, Centre Etudes Nucléaires de Bordeaux Gradignan (CENBG), Bordeaux (France)
Examineurs :	Andrea Denker , Responsable de département, Helmholtz-Zentrum Berlin, Berlin (Allemagne) Thomas Calligaro , Ingénieur de recherche, Centre de recherche de restauration des musées de France (C2RMF), Paris (France) Vincent Métivier , Maître-assistant titulaire de l'HDR, Ecoles de Mines de Nantes SUBATECH (France)
Invité(s) :	Nathalie MICHEL , Ingénieur de recherche, Université de Nantes, SUBATECH, GIP ARRONAX (France)
Directeur de Thèse :	Férid Haddad , Professeur à l'université de Nantes, SUBATECH, GIP ARRONAX (France)
Co-directeur de Thèse :	Adnan Naja , Professeur à l'université Libanaise, LPM, EDST, Tripoli (Liban)
Co-encadrant :	Charbel Koumeir , Ingénieur de recherche, Université de Nantes, SUBATECH, GIP ARRONAX (France)

Remerciements

À mes parents Mohamad et Hanane

À mes frères Ali, Ahmad, Mahmoud, Omar, Zakaria

Ce travail de thèse a été réalisé entre le laboratoire SUBATECH de l'école des mines de Nantes, le GIP ARRONAX et en collaboration avec le laboratoire de physique et modélisation (LPM) au Liban.

J'exprime tous mes remerciements à l'ensemble des membres de mon jury. Je cite en particulier M. Philippe Barberet et M. Denis Dauvergne qui m'ont fait l'honneur d'accepter d'être les rapporteurs de ma thèse. Je remercie aussi Mme Andrea Denker, M. Thomas Calligaro et M. Vincent METIVIER d'avoir acceptés de faire partie de mon jury de thèse.

Je voudrais également remercier mon directeur de thèse M. Ferid Haddad. Merci pour son aide exceptionnelle sur les plans humain, scientifique et administratif. Merci pour ses qualités d'écoute, sa présence à mes côtés et ses conseils avisés.

Mes vifs remerciements sont adressés aussi à mon co-directeur de thèse M. Adnan Naja pour la liberté qu'il m'a accordée et la confiance qu'il a eue en moi. Je tiens à lui dire que j'ai tellement appris de lui, tant sur le plan 'relationnel' que sur le plan scientifique. Il m'aimait et m'a soutenu comme il pouvait.

Je souhaiterais exprimer ma gratitude à monsieur Charbel KOUMEIR, Je tiens à remercier de tout mon cœur Charbel, Charbel n'a pas seulement encadré ma thèse, il a vécu avec moi tous les moments difficiles, j'ai appris de toi beaucoup de choses. Grand Merci.

Un grand merci à Mme Nathalie Michel, M. Noël Servagent, M. Arnaud Guertin et M. Vincent Métivier pour leur implication dans le projet, notamment lors des discussions scientifiques fructueuses où j'ai beaucoup appris.

J'aimerais adresser un remerciement particulier au personnel du cyclotron ARRONAX et de laboratoire SUBATECH et de l'école des Mines de Nantes pour leur aide, leur gentillesse et leur soutien pendant ces années.

Merci à l'Association libanaise pour la recherche scientifique (LASER) et l'Association AZM & SAADA pour avoir financé ce travail aussi, et surtout je souhaite remercier le Président de la Fédération des municipalités DanniyeH Mohammad Saadia pour son soutien continu.

J'aimerais adresser un remerciement particulier à M. Abdelaziz ELMEL pour l'aide et les conseils dans le cadre scientifique et culturel.

Merci à mes amis au Liban : Jana, Hala, Ahmad, Daher, Bassem , Omar, Youssef , Walid et tous les membres du LAsER : Lama, Khoulood, Rania et Zeina et en France : Hala, Chantal, Ismat, Julia, Yehya, Benjamin, Hayat, Kassem, Bernard, Ziena, Zeinab ,Mhamad, Hanane, Lara, Zahraa, Ghina, Dalia.

Je n'oublierai pas de saluer et remercier mes amies à ARRONAX : Estelle, Maddalena, Roberto, Thomas, Elodie, Céline et Francisco.

Je tiens à remercier aussi le staff administratif de la faculté des sciences et techniques de l'université de Nantes.

Enfin, je ne peux terminer sans remercier mes parents, Hanane et Mohamad, et mes frères Ali, Ahmad, Mahmoud, Omar et Zakaria, qui m'ont toujours soutenu et encouragé.

Table des matières

<i>JURY</i>	1
Table des matières	6
<i>Table des Figures</i>	10
<i>Liste des tableaux</i>	15
<i>Introduction</i>	17
1 Interaction particule/matière et les processus d'émissions de rayons X : applications à la méthode PIXE	20
1.1 Les méthodes d'analyse par faisceaux d'ions	21
1.2 Interaction particule/atome et les processus d'émissions de rayons X	24
1.2.1 Section efficace	24
1.2.2 Interaction d'un ion rapide avec la matière	24
1.2.3 <i>Le pouvoir d'arrêt du milieu</i>	24
1.3 Emission des rayons X et rendement de fluorescence	26
1.3.1 Les raies caractéristiques	27
1.4 Interaction des photons avec la matière	28
1.4.1 Effet photoélectrique	29
1.4.2 Effet Compton	29
1.4.3 Atténuation et absorption des photons	30
1.5 L'analyse d'un échantillon par la méthode PIXE	31
1.6 PIXE à basse énergie : Applications	32
1.7 PIXE à haute énergie	34
2 Etude des paramètres intrinsèques pour l'émission de rayons X	38
2.1 Rapport d'intensité $IK\beta I K\alpha$	39
2.1.1 Cas du titane	39
2.1.2 Cas du cuivre	40
2.1.3 Cas de l'argent	40
2.1.4 Cas de l'or	41
2.1.5 Les valeurs expérimentales	41
2.1.6 Les valeurs théoriques et empiriques	44
2.1.7 Les valeurs choisies pour ce travail	46
2.2 Rendement de fluorescence ω	47
2.2.1 Les valeurs expérimentales	47
2.2.2 Les valeurs théoriques, semi-empiriques et empiriques	49
2.2.3 Les valeurs choisies pour ce travail	52
2.3 Section efficace d'ionisation	53
2.3.1 Le modèle de l'approximation d'Onde Plane de Born	53

2.3.2	Le modèle ECPSSR (Energy loss Coulomb repulsion Perturbed Stationary State Relativistic theory)	54
2.3.3	<i>Correction de la liaison des électrons de la cible</i>	54
2.3.4	Correction de la déviation coulombienne de l'ion incident	55
2.3.5	Correction relativiste des électrons de la cible	56
2.3.6	Correction de la perte d'énergie de l'ion incident.....	56
2.3.7	Correction du modèle ECPSSR.....	57
2.3.8	Correction relativiste de l'ion incident RECPSSR.....	57
2.3.9	Correction des fonctions d'ondes des électrons ECPSShsR	58
2.4	Les sections efficaces expérimentales, empiriques et théoriques	59
2.4.1	Les sections efficaces expérimentales entre 1 et 70 MeV.....	59
2.4.2	<i>Comparaison entre les sections efficaces expérimentales et empiriques à basse énergie < 10MeV</i>	61
2.4.3	<i>Comparaison entre les sections efficaces théoriques et empiriques à basse énergie <10 MeV</i>	64
2.4.4	<i>Comparaison entre les sections efficaces expérimentales et théoriques à haute énergie jusqu'à 70MeV</i>	66
2.4.5	<i>Section efficace d'ionisation universelle</i>	69
3	Méthodes et matériels	72
3.1	Dispositifs de mesure des sections efficaces d'ionisation au cyclotron	
ARRONAX	73
3.1.1	La production du faisceau et la salle d'expérience	73
3.1.2	<i>La salle AX</i>	75
3.1.3	Le dispositif de détection	77
3.1.4	<i>Les cibles et leurs caractéristiques</i>	78
3.1.5	La mesure de l'énergie du faisceau	79
3.1.6	La mesure de l'intensité du faisceau	80
3.1.6.1	Méthode directe de mesure avec une cage de Faraday	80
	Cage de Faraday et ses caractéristiques	81
	Électromètre et ses caractéristiques.....	81
	Réglage du faisceau pour une bonne utilisation de la cage de Faraday	81
	Mesures et Incertitudes sur le nombre de particules	82
3.1.6.2	Méthode indirecte de mesure	82
	Les photons UV émis par l'argon de l'air	82
	Etalonnage de la réponse du PM	83
3.1.7	La mesure des rayons X	84
3.1.7.1	Principe de fonctionnement.....	84
3.1.7.2	Caractéristiques constructeur du détecteur HPGe utilisé	85
3.1.7.3	Caractéristiques géométriques mesurées à partir des images radiographiques	85
3.1.7.4	La chaîne d'acquisition	86
3.1.7.5	Etalonnage en énergie du détecteur et sa résolution	86

3.2	Mesure de la section efficace d'ionisation	88
3.2.1	La section efficace d'ionisation expérimentale	88
3.2.2	Analyse d'un spectre de RX.....	88
3.2.2.1	Le bruit de fond.....	89
3.2.2.2	Détermination du nombre de rayons X détectés	89
3.2.2.2.1	Ajustement gaussien	89
3.2.2.2.2	Intégration du pic.....	89
3.2.2.3	Nombre de rayons X pour différentes cibles.....	91
3.2.2.3.1	Cas du titane	92
3.2.2.3.2	Cas du cuivre	93
3.2.2.3.3	Cas de l'argent	93
3.2.2.3.4	Cas de l'or.....	96
3.2.3	L'efficacité en énergie du détecteur HPGe	96
3.2.3.1	Mesure de l'efficacité en énergie du détecteur HPGe.....	97
3.2.3.2	Mesure de l'efficacité pour les rayons X du titane avec la méthode de PIXE 98	
3.2.3.3	Modélisation de l'efficacité.....	100
3.2.3.3.1	Caractéristique du modèle	100
3.2.3.3.2	Comparaison entre l'efficacité modélisée et expérimentale.....	103
3.2.3.3.3	Optimisation des paramètres intrinsèques du détecteur HPGe.....	104
3.2.4	La section efficace d'ionisation par ISICS.....	106
4	Résultats	107
4.1	Spectres de rayons X expérimentaux	108
4.1.1	Les différents spectres normalisés pour chaque cible	108
4.1.2	Rapport du signal sur le bruit de fond	111
4.1.3	Le Rapport d'intensité.....	112
Les expériences réalisées nous ont permis de déterminer plusieurs rapports d'intensité : $IK\beta IK\alpha$ pour le titane, le cuivre, l'argent et l'or, $IK'\beta 1IK\alpha$ pour l'argent et $IK\alpha 2IK\alpha 1$ pour l'or. Ces rapports pourront être directement comparés entre les différentes expériences réalisées et avec les données de la littérature. Pour trouver le rapport d'intensité $IK\beta IK\alpha$, nous devons corriger le nombre de rayons X des raies $K\beta$ « $NXK\beta$ » et le nombre de rayons X des raies $K\alpha$ « $NX(K\alpha)$ » de l'efficacité de détection de chaque raie ($\varepsilon(K\alpha)$ et $\varepsilon(K\beta)$) et de l'auto-absorption de la cible.....		
4.1.3.1	Rapport $NXK\beta/NX(K\alpha)$ corrigé par l'efficacité.....	113
4.1.3.2	Rapport d'intensité $IK\beta IK\alpha$	114
4.2	Section efficace de production.....	117
4.2.1	Section efficace de production des pics caractéristiques.	117
4.2.2	Section efficace de production totale.	119
4.2.3	Comparaison avec les données bibliographiques.....	123
4.2.3.1	Cas du titane	123
4.2.3.2	Cas du cuivre	123
4.2.3.3	Cas de l'argent.....	125

4.2.3.4	Cas de l'or	125
4.2.3.5	Commentaires sur les résultats obtenus	125
4.3	Section efficace d'ionisation de la couche K.	127
4.4	Comparaison avec le modèle RECPSSR.....	131
	<i>Conclusion générale</i>	<i>137</i>
	<i>Bibliographie</i>.....	<i>139</i>
	<i>Annexe A</i>.....	<i>150</i>
	<i>Annexe B</i>.....	<i>164</i>
	Abstract	165
	Résumé	165

Table des Figures

<i>Figure 1.1 Les différentes méthodes d'analyse par faisceaux d'ions reproduit à partir de la référence (BERGER, et al., 2005).....</i>	<i>21</i>
<i>Figure 1.2 Schéma d'une collision entre un ion rapide et un atome provoquant une ionisation</i>	<i>24</i>
<i>Figure 1.3 Les différents types d'interaction du pouvoir d'arrêt du cuivre en fonction de l'énergie du proton incident.....</i>	<i>26</i>
<i>Figure 1.4 Rendement de fluorescence expérimentale de photons X de type K.....</i>	<i>27</i>
<i>Figure 1.5 Schéma des niveaux électroniques dans un atome avec leurs énergies (notées EK, ELj, EMj ...). Les flèches verticales indiquent les transitions électroniques. Les raies sont classées en série d'après la couche d'arrivée (K, L,) indiquée par la couche de départ (Moretto, et al., 2003)).</i>	<i>28</i>
<i>Figure 1.6 Effet photoélectrique</i>	<i>29</i>
<i>Figure 1.7 Effet Compton</i>	<i>30</i>
<i>Figure 1.8 Illustration du phénomène d'atténuation des photons dans la matière.....</i>	<i>31</i>
<i>Figure 1.9 Analyse d'un tableau de Léonard de Vinci par PIXE (Mandò, et al., 2005).....</i>	<i>32</i>
<i>Figure 1.10 Projet APXS.....</i>	<i>32</i>
<i>Figure 1.11 L'oreiller de St. Francis.....</i>	<i>33</i>
<i>Figure 1.12 Spectre de rayon X de la cible d'or irradiée par un faisceau de deuton d'énergie 6 MeV/u</i>	<i>33</i>
<i>Figure 1.13 Spectre de rayon X de la cible d'or irradiée par un faisceau de proton d'énergie 68 MeV.</i>	<i>34</i>
<i>Figure 1.14 Parcours des faisceaux des ions dans l'aluminium.....</i>	<i>35</i>
<i>Figure 1.15 Les Pièces analysent par HEPIXE.....</i>	<i>36</i>
<i>Figure 1.16 Un tableau d'art a analysé par HE-PIXE</i>	<i>36</i>
<i>Figure 2.1 Les valeurs expérimentales du rapport IKβ/IKα en fonction du numéro atomique Z. Les données correspondent à la compilation des données trouvées dans la littérature. (Aylikci, et al., 2010), (Bennal, et al., 2006), (Bennal, et al., 2010), (Bhuinya, et al., 1993), (Bhuinya, et al., 1992), (Bé, et al., 1998), (Bodart, et al., 1975), (Casnati, et al., 1985), (Chang, et al., 1994), (Çevik, et al., 2005), (Çevik, et al., 2007), (Dhal, et al., 1994), (Dogan, et al., 2016), (Dost, et al., 1981), (Ertugrul, et al., 2001), (Ertuğrul, et al., 2007), (Ertuğrul, et al., 2001a), (Ertuğrul, et al., 2002), (Han, et al., 2010), (Han, et al., 2007), (Kamal, et al., 1980), (Kaçal, et al., 2015), (Küçükönder, et al., 1993), (Marques, et al., 1980), (Mènesguen, et al., 2010), (Öz., 2006), (Padhi, et al., 1995), (Pawlowski, et al., 2002), (Raj, et al., 2000), (Raj, et al., 2002) , (Richard, et al., 1970) , (Şahin, et al., 2005), (Yalçın, 2007) et (Raj, et al., 1999)42</i>	

Figure 2.2 Les valeurs expérimentales du rapport $IK\beta/IK\alpha$ (cercles pleins noirs) comparées avec les valeurs théoriques du Scofield (courbe rouge) et les valeurs empiriques du Kahoul (courbe bleue).	45
Figure 2.3 Les valeurs expérimentales (cercles pleins noirs) et les valeurs moyennes du rapport $K\beta/K\alpha$ (cercles pleins bleus) comparées avec les valeurs empiriques de Kahoul 2014 (courbe rouge) et les valeurs empiriques de (Aylikci, et al. 2014) (courbe bleue) et les valeurs théoriques de Scofield et al.1974 (courbe noire).	45
Figure 2.4 La valeur moyenne pondérée pour les données expérimentales des rendements de fluorescence de la couche K comparée avec l'ajustement polynomial le plus récent (Daoudi, et al., 2015).	47
Figure 2.5 Le modèle théorique du rendement de fluorescence selon Kostroun et al (1971) comparé avec les modèles semi empiriques selon Krause (1979) et Hubbell et al (1994) et le modèle empirique de Daoudi et al. (2015).	51
Figure 2.6 Le rapport des sections efficaces RECPSSR/ECPSSR de la couche K pour différents éléments (Ti, Cu, Ag et Au) en fonction de l'énergie du proton incident.	57
Figure 2.7 Les courbes des rapports des sections efficaces d'ionisation (ECPSShsR) sur (ECPSSR) de la couche K en fonction de l'énergie du proton incident pour différents cibles (Ti, Cu, Ag et Au)	58
Figure 2.8 Données expérimentales de la section efficace d'ionisation de la couche K pour le titane en fonction de l'énergie du proton incident	59
Figure 2.9 Données expérimentales de la section efficace d'ionisation de la couche K pour le cuivre en fonction de l'énergie du proton incident	59
Figure 2.10 Données expérimentales de la section efficace d'ionisation de la couche K pour l'argent en fonction de l'énergie du proton incident.	60
Figure 2.11 Données expérimentales de la section efficace d'ionisation de la couche K pour l'or en fonction de l'énergie du proton incident.	60
Figure 2.12 Les données expérimentales de la section efficace d'ionisation de la couche K du titane, comparées avec les modèles empiriques, en fonction de l'énergie du proton incident.	61
Figure 2.13 Les données expérimentales de la section efficace d'ionisation de la couche K du cuivre, comparées avec les modèles empiriques, en fonction de l'énergie du proton incident.	62
Figure 2.14 Les données expérimentales de la section efficace d'ionisation de la couche K de l'argent, comparées avec les modèles empiriques, en fonction de l'énergie du proton incident	62
Figure 2.15 Les données expérimentales de la section efficace d'ionisation de la couche K de l'or, comparées avec les modèles empiriques, en fonction de l'énergie du proton incident ...	63
Figure 2.16 les sections efficaces théoriques (courbes) et les sections efficaces empiriques (points) dans le cas de Ti.....	64
Figure 2.17 Les sections efficaces théoriques (courbes) et les sections efficaces empiriques (points) dans le cas de Cu.	65
Figure 2.18 Les sections efficaces théoriques (courbes) et les sections efficaces empiriques (points) dans le cas de l'Ag.....	65
Figure 2.19 Les sections efficaces théoriques (en courbes) et les sections efficaces empiriques (en points) dans le cas de l'or	66

<i>Figure 2.20 Sections efficaces d'ionisation de la couche K pour le titane (expérimentales et théoriques) en fonction de l'énergie.....</i>	<i>67</i>
<i>Figure 2.21 Sections efficaces d'ionisation de la couche K pour le cuivre (expérimentales et théoriques) en fonction de l'énergie.....</i>	<i>67</i>
<i>Figure 2.22 Sections efficaces d'ionisation de la couche K pour l'argent (expérimentales et théoriques) en fonction de l'énergie.....</i>	<i>68</i>
<i>Figure 2.23 Sections efficaces d'ionisation de la couche K pour l'or (expérimentales et théoriques) en fonction de l'énergie.....</i>	<i>68</i>
<i>Figure 2.24 Les valeurs expérimentales (en points) et théoriques (en courbe) de la section efficace d'ionisation universelle pour les deux atomes argent et or.....</i>	<i>69</i>
<i>Figure 2.25 Les valeurs expérimentales (en points) et théoriques (en courbe) de la section efficace d'ionisation universelle pour les deux atomes titane et cuivre.....</i>	<i>70</i>
<i>Figure 2.26 les courbes des valeurs empirique (courbe bleu) selon Kahoul et al 2011 et théoriques RECPSSR (courbe noire) de la fonction universelle de la section efficace d'ionisation de la couche K pour le titane en fonction du rapport d'énergie.....</i>	<i>71</i>
<i>Figure 3.1 Le cyclotron ARRONAX en casemate centrale (CC) .</i>	<i>74</i>
<i>Figure 3.2 Lignes faisceaux du cyclotron ARRONAX et sec casemates</i>	<i>75</i>
<i>Figure.3.3 La casemate AX avec ces 3 lignes de faisceau.</i>	<i>76</i>
<i>Figure 3.4 Schéma descriptif général de l'expérience HE PIXE à ARRONAX.....</i>	<i>76</i>
<i>Figure 3.5 Photo du dispositif expérimental utilisé pendant nos expériences HE-PIXE à ARRONAX.....</i>	<i>77</i>
<i>Figure 3.6 Alignement du faisceau (a) et visualisation du faisceau avec une plaque d'alumine (b).....</i>	<i>78</i>
<i>Figure 3.7 Schéma de la cage de Faraday.....</i>	<i>81</i>
<i>Figure 3.8 Film radiochromique irradié pour vérifier la position du faisceau de proton de 68 MeV à l'entrée de la cage de faraday</i>	<i>82</i>
<i>Figure 3.9 Schéma descriptif de l'expérience HE PIXE à ARRONAX avec le détecteur Photo multiplicateur pour mesurer la charge</i>	<i>83</i>
<i>Figure 3.10 Etalonnage de la charge mesurée par le PM durant la manip avec un faisceau du deuton de 14,5 MeV.....</i>	<i>83</i>
<i>Figure 3.11 Schéma des bandes.....</i>	<i>84</i>
<i>Figure 3.12 Schéma de la chaine d'acquisition.....</i>	<i>85</i>
<i>Figure 3.13 Radiographie du détecteur HPGe</i>	<i>86</i>
<i>Figure 3.14 Etalonnage en énergie du détecteur HPGe</i>	<i>87</i>
<i>Figure 3.15 la variation de la résolution en énergie du détecteur HPGe en fonction de l'énergie des photons.....</i>	<i>87</i>
<i>Figure 3.16 Spectre de photons détectés d'une cible de cuivre irradiée par un faisceau de protons de 68 MeV</i>	<i>88</i>
<i>Figure 3.17 Spectre de rayons X de la source de cadmium.....</i>	<i>90</i>
<i>Figure 3.18 Pic caractéristique de la source de cadmium à 22,1 keV.....</i>	<i>91</i>
<i>Figure 3.19 Les pics $K\alpha$ et $K\beta$ du titane</i>	<i>92</i>
<i>Figure 3.20 Les pics $K\alpha$ et $K\beta$ du cuivre.....</i>	<i>93</i>
<i>Figure 3.21 Le pic $K\alpha$ d'argent.....</i>	<i>94</i>

Figure 3.22 Les deux pics d'échappement de la raie $K\alpha$ de l'argent	94
Figure 3.23 Les raies $K'\beta_1$ et $K'\beta_2$ de l'argent	95
Figure 3.24 Le pic d'échappement de la raie $K'\beta_1$ de l'argent.....	95
Figure 3.25 Les raies $K\alpha_1$ et $K\alpha_2$ de l'or	96
Figure 3.26 Dispositif expérimental pour mesurer l'efficacité du détecteur avec les différentes sources radioactives.....	97
Figure 3.27 Les points de mesure de l'efficacité expérimentale.....	98
Figure 3.28 Schéma de la manip PIXE pour mesurer l'efficacité des rayons X du titane	99
Figure 3.29 Les points correspondent aux efficacités expérimentales	100
Figure 3.30 Schéma descriptif du modèle de l'efficacité.....	101
Figure 3.31 Parcours des rayons X détectés dans le détecteur HPGe	101
Figure 3.32 Comparaisons entre les courbes de l'efficacité sans l'effet d'angle et géométrique à la distance 20 cm (a) et 1 cm (b) entre la source et le détecteur	103
Figure 3.33 Courbe de l'efficacité en fonction de l'énergie des rayons X (en keV) obtenues avec le modèle géométrique (sans optimisation). Les points correspondent aux efficacités expérimentales.....	104
Figure 3.34 Estimation de la couche morte et d'épaisseur de cristal germanium par minimisation de l'écart relative entre les efficacités modélisées et expérimentales.....	105
Figure 3.35 Courbes de l'efficacité en fonction de l'énergie des rayons X (en keV) obtenues avec le modèle géométrique (avec couche morte de $1.6\mu\text{m}$ de Ge). Les points en bleu correspondent aux efficacités expérimentales.....	105
Figure 3.36 Logiciel ISICS interface dialogue utilisateur.....	106
Figure 4.1 Spectres de rayons X normalisés sur la charge cumulée pour la cible d'or irradiée avec un faisceau de protons pour les énergies : 30 MeV (en noir), 42 MeV (en rouge), 54 MeV (en vert) et 68 MeV (en bleu).	109
Figure 4.2 Spectres de rayons X normalisés sur la charge cumulée pour la cible de l'argent irradiée avec un faisceau de protons pour les énergies, 30 MeV (en noir), 42 MeV (en rouge), 54 MeV (en vert) et 68 MeV (en bleu).	109
Figure 4.3 Spectres de rayons X normalisés par la charge totale cumulée pendant l'irradiation d'une cible de cuivre avec un faisceau de protons pour les énergies, 30 MeV (en noir), 42 MeV (en rouge), 54 MeV (en vert), 68 MeV (en bleu) et avec un faisceau de deuton pour les deux énergies 6,2 et 7,2 MeV/u (spectres hachurés)	110
Figure 4.4 Spectres de rayons X normalisés par la charge totale cumulée pendant l'irradiation d'une cible de titane avec un faisceau de protons pour les énergies, 30 MeV (en noir), 42 MeV (en rouge), 54 MeV (en vert), 68 MeV (en bleu) et avec un faisceau de deuton pour les deux énergies 6,2 et 7,2 MeV/u (spectres hachurés)	111
Figure 4.5 Rapport de nombre de rayons X du pic $K\alpha$ sur le nombre de bruit de fond correspondant pour les différentes cibles (Ti, Cu, Ag et Au) en fonction du type de l'ion incident (symboles pleins pour les protons et ouverts pour les deutons) et de son énergie	112
Figure 4.6 Rapport $IK\beta/IK\alpha$ obtenus dans nos expériences pour les différents éléments ..	116
Figure 4.7 Moyennes du rapport $IK\beta/IK\alpha$ obtenues pour différents éléments lors de nos mesures (points noirs) comparées avec les valeurs théoriques du Scofield (courbe rouge) et les valeurs empiriques pondérées du Kahoul (courbe bleu)	116
Figure 4.8 Valeurs expérimentales de la section efficace totale de production des rayons X de type K du titane en fonction de l'énergie des protons incidents.	123
Figure 4.9 La section efficace totale de production des rayons X de type K du cuivre en fonction de l'énergie des protons incidents.....	124
Figure 4.10 La section efficace de production de rayons X de type K de l'argent en fonction de l'énergie des protons incidents.	125

<i>Figure 4.11 La section efficace de production des rayons X de type K de l'or en fonction de l'énergie des protons incidents</i>	127
<i>Figure 4.12 La section efficace d'ionisation de la couche K du titane en fonction de l'énergie des protons incidents</i>	128
<i>Figure 4.13 La section efficace d'ionisation de la couche K du cuivre en fonction de l'énergie des protons incidents. L'encart sur la figure permet de zoomer sur la partie basse énergie</i> .129	
<i>Figure 4.14 La section efficace d'ionisation de la couche K de l'argent en fonction de l'énergie des protons incidents</i>	130
<i>Figure 4.15 La section efficace d'ionisation de la couche K de l'or en fonction de l'énergie des protons incidents</i>	130
<i>Figure 4.16 Les valeurs expérimentales des sections efficaces d'ionisation de la couche K du titane en fonction de l'énergie des protons incidents, comparé avec les modèles théoriques ECPSSR et RECPSSR</i>	131
<i>Figure 4.17 Les valeurs expérimentales des sections efficaces d'ionisation de la couche K du cuivre en fonction de l'énergie des protons incidents, comparées avec les modèles théoriques ECPSSR et RECPSSR</i>	132
<i>Figure 4.18 Les valeurs expérimentales des sections efficaces d'ionisation de la couche K d'argent en fonction de l'énergie des protons incidents, comparé avec les modèles théoriques ECPSSR et RECPSSR</i>	133
<i>Figure 4.19 Les valeurs expérimentales des sections efficaces d'ionisation de la couche K de l'or en fonction de l'énergie des protons incidents, comparées avec les modèles théoriques ECPSSR et RECPSSR</i>	134
<i>Figure 4.20 Section efficace d'ionisation universelle en fonction de l'énergie réduite. Les points correspondent à nos mesures pour l'argent et l'or, les courbes aux valeurs déterminées avec le modèle RECPSSR</i>	135
<i>Figure 4.21 Section efficace d'ionisation universelle en fonction de l'énergie réduite. Les points correspondent à nos mesures pour le cuivre et le titane, les courbes aux valeurs déterminées avec le modèle RECPSSR</i>	135
<i>Figure 4.22 les points expérimentaux (nos mesures), le modèle RECPSSR et l'ajustement empirique de Kahoul et al de la section efficace d'ionisation universelle pour le titane en fonction de l'énergie réduite</i>	136

Liste des tableaux

Tableau 1.1 Différents méthodes d'analyse par faisceau d'ion à partir de (BERGER, et al., 2005).....	23
Tableau 2.1 Notation pour les transitions $K\alpha$ et $K\beta$	39
Tableau 2.2 Rapport expérimental $IK\beta IK\alpha$ pour les différents éléments Ti, Cu, Ag et Au. (*Valeur moyenne des valeurs publiées pour le même auteur)	43
Tableau 2.3 Les valeurs moyennes expérimentales pondérées (cf. tableau 2.2) comparées aux valeurs empiriques et théoriques.....	46
Tableau 2.4 Rendement de fluorescence expérimental de chaque élément	49
Tableau 2.5 Les coefficients des ajustements du rendement de fluorescence pour différentes régions en Z et l'erreur quadratique moyenne ϵ_{rms} sur l'ajustement.....	50
Tableau 2.6 les valeurs des rendements de fluorescence théoriques, semi-empiriques, empiriques et expérimentales pour les atomes Ti, Cu, Ag et Au.....	52
Tableau 3.1 Principales caractéristiques des faisceaux disponibles auprès d'ARRONAX.....	73
Tableau.3.2 Caractéristiques différentes cibles.....	78
Tableau.3.3 Variation de l'énergie transmise, la dispersion énergétique et la variation relative de la section efficace dans les différentes cibles pour les faisceaux de protons.....	79
Tableau.3.4 Variation de l'énergie transmise, la dispersion énergétique et la variation relative de la section efficace dans les différentes cibles pour le faisceau de deuton (avec et sans dégradateur).....	80
Tableau.3.5 Caractéristiques du détecteur HPGe selon le fournisseur.....	85
Tableau.3.6 Les différentes raies utilisées dans nos études.....	91
Tableau 4.1 Les rapports de nombre de rayons X des raies $K\beta$ sur celui des raies $K\alpha$ corrigés par leurs efficacités pour différents faisceaux de protons à différentes énergies.....	113
Tableau 4.2 Les rapports de nombre de rayons X des raies $K\beta$ sur celui des raies $K\alpha$ corrigés par leurs efficacités pour différents faisceaux de deutons	114
Tableau 4.3 Les rapports de nombres de rayons X ($K'\beta_1/K\alpha$ pour l'argent et $K\alpha_2/K\alpha_1$ pour l'or corrigés par l'efficacité pour différents faisceaux de deutons.....	114
Tableau 4.4 Le rapport d'intensité $IK\beta IK\alpha$ pour différents éléments et différentes énergies du faisceau de protons.....	115
Tableau 4.5 Le rapport d'intensité $IK\beta IK\alpha$ pour différents éléments et différente énergie des deutons	115

Tableau 4.6 Les rapports $IK\beta_1'IK\alpha$ pour l'argent, $IK\alpha_2IK\alpha_1$ pour l'or pour différents faisceaux de protons.....	117
Tableau 4.7 Les sections efficaces de production des raies $K\alpha$ et $K\beta$ pour le titane et le cuivre pour les différents faisceaux.....	118
Tableau 4.8 Les sections efficaces de production des raies $K\alpha$, $K'\beta_1$ et $K'\beta_2$ de l'argent pour les différentes énergies du faisceau de protons.....	118
Tableau 4.9 Les sections efficaces de production des raies $K\alpha_1$, $K\alpha_2$, $K'\beta_1$ et $K'\beta_2$ de l'or pour différentes énergies des faisceaux de protons.	119
Tableau 4.10 Les sections efficaces de production totale des rayons X de type K pour les éléments Ti, Cu, Ag et Au, en fonction des différents faisceaux (*Deuton).....	119
Tableau 4.11 Les sections efficaces de production totale de rayon X de type K pour différentes énergies des faisceaux de protons (*Deuton) en utilisant les informations relatives à une raie principale.	120
Tableau 4.12 Les sections efficaces de production totale de rayon X de type K pour différentes énergies des faisceaux de protons à partir des raies principales de l'argent.....	121
Tableau 4.13 Les sections efficaces de production totale des rayons X de type K pour différentes énergies des faisceaux de protons à partir des raies principales de l'or.	121
Tableau 4.14 Les sections efficaces d'ionisation de la couche K pour différentes cibles : titane, cuivre, argent et or en fonction de l'énergie du proton incident (30, 42, 54 et 68 MeV) et du deuton incident (12,5 et 14,5 MeV).....	127

Introduction

La méthode PIXE (Particle induced X-Ray Emission) est une méthode d'analyse élémentaire non destructive, basée sur la détection des rayons X caractéristiques émis par un échantillon lors de son irradiation avec un faisceau d'ions. Elle est largement utilisée avec des faisceaux d'ions légers (H^+ et He^{++}) de quelques MeV dans plusieurs domaines comme l'étude de l'atmosphère, l'archéologie et l'art, la géologie, le biomédical (Smit, 2005). Avec des faisceaux de plus haute énergie (quelques dizaines de MeV), la méthode PIXE a été utilisée dans le domaine de la géologie pour l'analyse des éléments traces (Pineda, et al., 1991) et dans le domaine de l'art pour l'analyse de tableaux ou de pièces de monnaie anciennes (Denker, et al., 2005a).

Il y a plusieurs avantages à utiliser la méthode PIXE à haute énergie : on excite plus facilement les raies K (section efficace plus importante) qui sont moins nombreuses que les raies L (facilite l'analyse des spectres obtenus) et qui, ayant des énergies plus grandes, vont être moins atténuées dans l'échantillon (possibilité de faire une analyse en profondeur). A titre d'exemple, les objets d'art ont souvent une couche de protection en surface de quelques dizaines de micromètres (oxydation, corrosion, protection, ...), avec une composition chimique différente du volume et que l'on ne peut pas enlever sous peine d'altérer l'échantillon. Outre les applications précédemment citées, la méthode PIXE à haute énergie est en cours de développement au cyclotron ARRONAX-Nantes(France) afin d'en explorer le potentiel pour des analyses qualitatives et/ou quantitatives.

Pour réaliser des analyses PIXE quantitatives, il est nécessaire d'avoir une bonne connaissance de la section efficace d'ionisation des couches internes des atomes avec les faisceaux d'ions. Il existe énormément de travaux, anciens et récents, sur la mesure des sections efficaces d'ionisation avec les faisceaux de basse énergie et ce pour une large gamme de numéro atomique, Z , allant du carbone jusqu'à l'uranium (Paul, et al., 1989), (Kahoul, et al., 2011). Par contre, à haute énergie, il existe peu de données expérimentales. Pour la gamme d'énergie 10-30 MeV/u, on trouve une grande disparité entre les mesures existantes comme dans le cas du cuivre et du titane [(Akselsson, et al., 1974), (Poncet, et al., 1979)]. Pour la gamme d'énergie entre 30-68MeV/u, les données sont quasi-inexistantes pour les différents éléments. Parmi ces rares données, on trouve celles de Pineda et al [(Pineda, et al., 1990), (1990a)] qui donnent des mesures de sections efficaces de production des raies K pour les éléments des terres rares et lourds avec des protons de 66 MeV et 68 MeV, et celles de Denker et al (Denker, et al., 2005) qui a déterminé la section efficace d'ionisation de la couche K pour les éléments Ti, Cu, Mo, Sb, Ho et Au avec des protons de 68 MeV. Du point de vue théorique, la section efficace d'ionisation a été d'abord calculée par le modèle PWBA (Plane-Wave Born Approximation) basé sur l'approximation de Born des ondes planes (Merzbacher, et al., 1958). Ce modèle n'est pas en accord avec les données expérimentales (Lopes, et al., 1978) et des corrections ont été rajoutées par (Brandt, et al., 1981) qui prennent en compte les corrections suivantes : l'effet de perte d'énergie de la particule incidente lors de l'ionisation (E), la correction de la déviation coulombienne de l'ion incident (C), l'effet de perturbation des états stationnaires de l'électron de l'atome cible par l'ion incident (PSS) et la correction relativiste des électrons de la cible (R).

Ce nouveau modèle, appelé ECPSSR, a été validé par les données expérimentales à basse énergie (quelques MeV/u) (Lapicki, 2005). Par contre, à haute énergie, le manque de données expérimentales n'a pas permis pas de vérifier son comportement.

Des données expérimentales de section efficace d'ionisation sont donc nécessaires pour, à la fois, contraindre les modèles théoriques existants à haute énergie et mettre en œuvre de manière quantitative la méthode PIXE à haute énergie. Le premier objectif de ce travail est de réaliser des mesures de sections efficaces d'ionisation entre 30 et 68 MeV sur une large gamme de numéros atomiques pour compléter les données expérimentales existantes. Nous avons choisi d'étudier le titane (Ti) et les éléments nobles que l'on trouve en archéologie (Cu, Ag et Au). Cela permet de balayer des numéros atomiques allant de $Z=22$ jusqu'à $Z=79$. Le deuxième objectif est de comparer les résultats obtenus avec les modèles théoriques PWBA, ECPSSR et RECPSSR. Ce dernier prend en compte l'effet relativiste de la particule incidente (R) qui n'est pas négligeable pour les énergies utilisées dans ce travail. Nous comparerons aussi les résultats obtenus aux courbes de systématiques construites à partir des données expérimentales et de considération semi-empiriques.

Le travail de cette thèse est composé de quatre chapitres :

Dans le premier chapitre, nous présentons la méthode PIXE ainsi que les autres méthodes de contrôle non destructif utilisant les faisceaux d'ions. Les processus d'interaction des particules avec les atomes qui sont à la base de la méthode de PIXE et en particulier l'ionisation des atomes par les ions incidents et l'émission des rayons X sont détaillés. Les paramètres intrinsèques des atomes liés à l'émission des rayons X seront aussi présentés comme le rendement de fluorescence d'une couche atomiques ($K, L..$), ω , et les intensités des raies caractéristiques ($b(K_\alpha)$ et $b(K_\beta)$) puisque le choix de ces différents paramètres à un impact potentiel sur l'évaluation des sections efficaces d'ionisation.

Le deuxième chapitre présente de manière détaillée, l'état de l'art des données expérimentales, théoriques, empiriques et semi-empiriques disponibles. Dans un premier temps, nous nous focaliserons sur le rendement de fluorescence ω_K et le rapport relatif des intensités des raies (I_{K_β}/I_{K_α}) en fonction du numéro atomique Z . Les valeurs choisies et qui seront utilisées dans ce travail dans le chapitre résultat, sont présentées et détaillées. Dans un second temps, une présentation des modèles théoriques utilisés pour la détermination de la section efficace d'ionisation des couches K (PWBA, ECPSSR et RECPSSR) est faite. Dans cette deuxième partie, les données expérimentales et empiriques existantes pour les atomes choisis sont aussi présentées et une comparaison est faite avec les valeurs fournies par les modèles théoriques dans la gamme d'énergie incidente des protons allant de 1 MeV à 70 MeV.

Le troisième chapitre présente le dispositif expérimental utilisé auprès du cyclotron Arronax et la méthode d'analyse utilisée avec un focus particulier sur la détermination de l'efficacité du détecteur de rayons X.

Dans le quatrième et dernier chapitre, nous présentons l'ensemble des résultats obtenus : Le rapport d'intensité I_{K_β}/I_{K_α} pour les éléments étudiés, la section efficace de production de rayons X de type K et la section efficace d'ionisation pour ces éléments. Ces résultats sont

ensuite comparés avec les rares données expérimentales disponibles et les différents modèles théoriques et empiriques présentés dans le chapitre 2.

Une conclusion et des perspectives viennent conclure ce manuscrit.

1 Interaction particule/matière et les processus d'émissions de rayons X : applications à la méthode PIXE

Dans ce chapitre, nous présenterons tout d'abord les différentes méthodes d'analyse par faisceaux d'ions IBA (Ion Beam Analysis) et leurs champs d'applications. Pour cela nous discuterons les processus d'interaction rayonnement/matière pour les photons d'énergies allant de quelques keV à quelques MeV et pour les ions rapides ayant des énergies allant de quelques MeV/u à quelques dizaines de MeV/u. Ensuite, nous introduirons les notions associées à l'émission des rayons X par les atomes excités ou ionisés, au rendement de fluorescence et les raies des transitions vers les couches internes. La dernière partie est consacrée à la description de la méthode PIXE à basse et à haute énergie avec leurs applications. Les limitations dues aux faisceaux de basse énergie sont présentées ainsi que les avantages associés à l'utilisation des faisceaux de haute énergie.

1.1 Les méthodes d'analyse par faisceaux d'ions

L'expression "analyse par faisceaux d'ions" (IBA en anglais) fait référence à l'ensemble des techniques basées sur l'interaction d'un faisceau de particules chargées, comme les protons et les particules alpha de quelques MeV/u, avec un échantillon (cible). La figure 1.1 présente les différentes méthodes d'analyse par faisceaux d'ions existantes. Les différences principales entre ces méthodes sont le mode d'excitation qui est choisi et la nature des particules secondaires émises que l'on souhaite détecter. Chaque particule secondaire renferme une information particulière sur l'échantillon, c'est pourquoi les méthodes IBA sont complémentaires. Les différentes méthodes d'analyse par faisceaux d'ions sont :

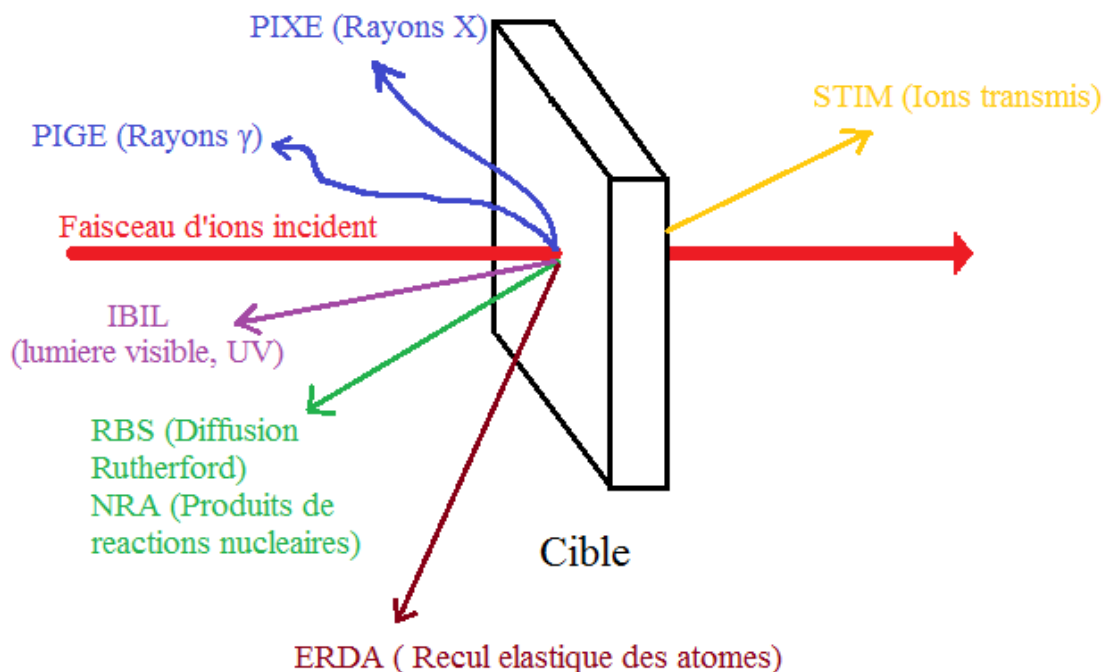


Figure 1.1 Les différentes méthodes d'analyse par faisceaux d'ions connues (reproduit à partir de la référence (BERGER, et al., 2005)).

- La méthode PIXE (Particules induced X-ray emission) est basée sur la détection des rayons X émis par des atomes ionisés ou excités suite à une irradiation par un faisceau de particules chargées. Le mécanisme en jeu est un mécanisme atomique et la section efficace de production des rayons X est supérieure à quelques barns. Ces rayons X (énergie, proportions) sont caractéristiques des éléments présents dans l'échantillon irradié ce qui permet de faire une analyse multi-élémentaire. La méthode a été utilisée pour analyser des éléments avec un numéro atomique $Z > 12$ (voir partie 1.4) dans différents domaines d'applications (voir partie 1.5) essentiellement avec des ions de basses énergie (quelque MeV/u).
- La méthode PIGE est basée sur la détection des rayons gammas émis au cours de la réaction de la particule incidente avec le noyau de la cible. On a ici un mécanisme d'excitation nucléaire. La section efficace de production des rayons gammas est inférieure au barn. Cette méthode, en général, est utilisée pour détecter les éléments légers ($Z < 12$) qui sont difficiles à détecter par la méthode PIXE. Ces 2 méthodes sont souvent utilisées conjointement.
- La méthode RBS (Rutherford backscattering spectroscopy) est basée sur les diffusions élastiques à grand angle ($> 90^\circ$) des particules incidentes telle que la rétrodiffusion Rutherford avec les particules alphas. Cette méthode est utilisée pour localiser la position d'une impureté dans un cristal, pour analyser les éléments de numéro atomique > 5 en surface (Lüth, 1995) et aussi pour l'analyse isotopique des éléments (BERGER, et al., 2005). Elle est aussi utilisée pour contrôler les matériaux multicouches (épaisseur et composition).
- La méthode NRA (Nuclear Reaction Analysis) est basée sur la détection de particules chargées émises (proton ou particule alpha) au cours de la réaction nucléaire entre les ions incidents et les noyaux des atomes de la cible. Cette méthode est utilisée pour doser les éléments légers dans un échantillon ($Z < 15$) et mesurer leurs profils de concentration (Trocellier, et al., 2002). Elle est limitée aux basses énergies car il ne faut pas qu'il y ait trop de voies de réactions ouvertes sous peine de ne plus être capable d'extraire l'information pertinente.
- La méthode ERDA (Elastic recoil detection analysis) est basée sur la détection des atomes de l'échantillon éjectés par recul élastique. La particule incidente est plus lourde que le noyau éjecté et l'échantillon est irradié en incidence rasante par rapport au faisceau. Cette technique est utilisée pour de nombreuses applications de profilage d'éléments légers en raison de sa sensibilité élevée, sa résolution en profondeur ($< 50\text{nm}$) et il y a la possibilité d'obtenir un profil multiélément par une mesure simultanée. Parmi les applications figure la quantification de l'hydrogène et le deutérium avec des hélions (Brice, 1988).
- La technique d'analyse STIM (Scanning Transmission Ion Microscopy) ou microscopie ionique en transmission, est basée sur la mesure de la perte d'énergie des particules du faisceau incident. L'énergie des projectiles en sortie de l'échantillon varie en fonction de la quantité de matière traversée. Comme exemple d'application, les défauts de métallisation ont été analysés dans un microcircuit électronique (Breese, et al., 1992).
- La méthode IBIL, pour Ion Beam Induced Luminescence, est basée sur la détection des photons (dans le domaine des UV, ou dans le visible ou dans les IR) qui sont émis par un matériau bombardé par des particules chargées. Cette technique est utilisée pour détecter les impuretés et les défauts à l'intérieur des matériaux (Valotto, et al., 2012).

Le tableau 1.1 présente, pour les différentes méthodes IBA présentées ci-dessus, les caractéristiques principales qui leur sont associées. On a ainsi dans les différentes colonnes, la résolution en profondeur et la sensibilité que l'on peut atteindre, la particule détectée et les domaines des applications principaux.

Méthode	Particule incidente	profondeur d'analyse	Sensibilité ($\mu\text{g/g}$)	Particule détectée	Domaine d'application
PIXE	p, α d'énergie de l'ordre de quelques MeV	0,1 à quelques $10\mu\text{m}$	5 à 100 sur cibles épaisses	Rayons X	Analyse multi élémentaire simultanée très sensible pour $Z>11$
RBS	p, α d'énergie de l'ordre de quelques MeV	0,001 à 10 μm	100 à 1000	projectile Rétrodiffusé	Elément lourd dans une matrice légère/ Profil de concentration
ERDA	α de quelques MeV	0.1 à 0,5 μm	10 à 1000	atomes de la cible	Dosage d'hydrogène
NRA	p, α de quelques MeV	quelques μm	1 à 1000	ion éjecté	Dosage des éléments légers en surface
PIGE	p, α de quelques MeV	10 à 50 μm	100 à 1000	Rayons γ	Analyse multi-élémentaire et dosage des éléments légers
IBIL	p 3MeV	quelques $10\mu\text{m}$	-	Lumière visible – UV -IR	Détecter les impuretés et les défauts à l'intérieur des matériaux

Tableau 1.1 *Différents méthodes d'analyse par faisceaux d'ion à partir de* (BERGER, et al., 2005)

Les méthodes d'analyses par faisceau d'ions sont à la fois qualitatives et quantitatives. Ces méthodes peuvent être utilisées simultanément. Les informations fournies, pour un échantillon donné, sont complémentaires. Elles sont en général utilisées avec des projectiles ayant une énergie incidente de quelques MeV.

Dans ce mémoire, nous nous intéresserons plus particulièrement à la méthode PIXE. Nous allons donc dans la suite étudier plus en détail les mécanismes d'interaction des projectiles avec la matière et la production de rayons X qui s'ensuit.

1.2 Interaction particule/atome et les processus d'émissions de rayons X.

L'interaction d'une particule incidente avec un atome peut donner lieu à de nombreux mécanismes. On peut, en utilisant les lois de la physique, déterminer la probabilité associée à l'un ou l'autre des mécanismes d'interaction. Cette probabilité est appelée section efficace associée du processus.

1.2.1 Section efficace

Une section efficace est homogène à une surface. Son unité est le barn (10^{-24}cm^2). En général, la section efficace dépend de la nature du projectile, de son énergie ainsi que des paramètres associés à l'atome cible comme le numéro atomique Z .

1.2.2 Interaction d'un ion rapide avec la matière

Le travail de cette thèse est focalisé sur la mesure de la section efficace d'ionisation de la couche électronique interne K par des protons rapides. On considère un ion rapide lorsque sa vitesse est plus grande que la vitesse moyenne des électrons du milieu. L'interaction d'un ion rapide avec un atome peut se faire avec les électrons par excitation ou ionisation et avec le noyau par diffusion élastique ou réaction nucléaire. Les interactions avec le noyau sont moins probables que celles avec les électrons. Les irradiations sont faites avec une cible mince. Dans ce cas, les interactions nucléaires ont un impact négligeable sur le faisceau d'ions. L'interaction élastique du projectile avec le noyau n'amène qu'un changement de direction du projectile et donc n'aura que peu d'impact sur les mécanismes étudiés. On se limitera donc dans la suite à la présentation des mécanismes d'interaction des ions avec les atomes.

1.2.3 Le pouvoir d'arrêt du milieu

Lorsqu'un ion rapide pénètre dans la matière, un transfert d'énergie se fait de l'ion aux électrons des atomes du milieu. Cela provoque l'excitation et/ou l'ionisation des atomes.

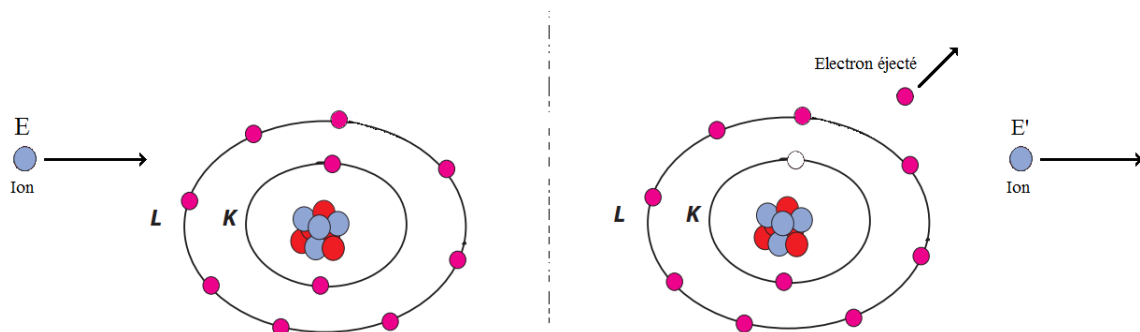


Figure 1.2 Schéma d'une collision entre un ion rapide et un atome provoquant une ionisation.

La figure 1.4 schématise la collision d'un ion rapide d'énergie E avec un atome. L'ion incident est plus rapide que les électrons de l'atome. On peut donc considérer que la position de ces derniers ne change pas pendant la durée de l'interaction. L'ion peut ioniser les couches atomiques par un transfert d'énergie T aux électrons qui seront éjectés. Pour un couple atome/ion donné, la probabilité d'ionisation dépend de l'énergie de liaison de la couche

considérée et de la vitesse de l'ion incident (son énergie). En général, l'ionisation des couches externes de l'atome est favorisée (possède une section efficace plus grande) par rapport à celle des couches internes.

L'énergie moyenne transférée par un ion à un atome est la somme des transferts d'énergies aux électrons de cet atome pondérés par les sections efficaces correspondantes. Cette énergie moyenne est calculée par la formule suivante :

$$\langle T \rangle_{\text{transférée à un atome}} = \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} T \sigma(T) dT$$

avec T_{\max} est le transfert d'énergie maximal durant une collision frontale entre l'électron et l'ion, T_{\min} est le transfert d'énergie minimale durant une collision distante et $\sigma(T)$ est la section efficace associée au transfert d'énergie T .

L'énergie moyenne transférée, au milieu traversé d'épaisseur dx et de nombre d'atomes par unité de volume N , est donnée par la formule ci-dessous, qui est le produit entre l'énergie moyenne transférée/atome et le nombre d'atomes par unité de surface $N \times dx$:

$$\langle T \rangle_{\text{Totale}} = N dx \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} T \sigma(T) dT$$

On définit alors le pouvoir d'arrêt $S(E)$ du milieu comme la variation moyenne de l'énergie du projectile au cours de son parcours:

$$S(E) = - \frac{dE}{dx} = \frac{\langle T \rangle}{dx} = N \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} T \sigma(T) dT$$

Pour un ion rapide modérément relativiste, la perte d'énergie électronique par unité de longueur, ou le pouvoir d'arrêt linéique du milieu, peut être approximé par la formule de Bethe :

$$- \frac{dE}{dx} = \frac{4\pi z^2 e^4 N_z Z}{(4\pi\epsilon_0)^2 m_e v^2} \left(\ln \frac{2m_e c^2 \beta^2 \gamma^2}{E_I} - \beta^2 \right) \quad (1.1)$$

Où β et γ sont des facteurs sans dimension définis par : $\beta = v/c$ et $\gamma = 1/\sqrt{1 - \beta^2}$ avec c , la vitesse de la lumière, v est la vitesse de l'ion et z sa charge

E_I est le potentiel d'excitation et d'ionisation moyen de l'atome

m_e est la masse au repos de l'électron

Z est le numéro atomique du milieu contenant N_z atomes par unité de volume.

L'équation ci-dessus reste valable tant que l'ion a une vitesse plus grande que la vitesse des électrons sur leurs orbitales. Cette formule montre que la masse de l'ion n'intervient pas dans le transfert d'énergie aux électrons et que la perte d'énergie est proportionnelle à z^2/v^2 . Cette

équivalence nous a permis d'utiliser un faisceau de deutons de 16 MeV pour simuler un faisceau de protons de 8 MeV et ainsi d'avoir un point de mesure à basse énergie.

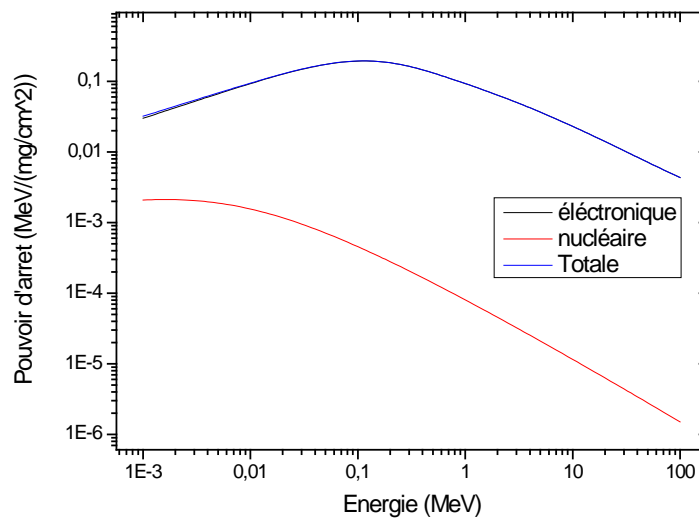


Figure 1.3 Les différents types d'interaction du pouvoir d'arrêt du cuivre en fonction de l'énergie du proton incident

La figure 1.6 présente l'évolution du pouvoir d'arrêt massique du cuivre en fonction de l'énergie du proton incident. Le pouvoir d'arrêt massique est défini par $\frac{1}{\rho} \frac{dE}{dx}$ avec ρ la masse volumique du milieu. Les valeurs ont été calculées en utilisant le logiciel SRIM (voir chapitre 3.1.3). Le pouvoir d'arrêt total est composé du pouvoir d'arrêt électronique et du pouvoir d'arrêt nucléaire. La composante électronique résulte de l'interaction de l'ion avec les électrons et la composante nucléaire intègre la diffusion élastique avec les noyaux. Elle est négligeable sur toute cette gamme d'énergie. Le pouvoir d'arrêt électronique présente un maximum, autour de 200 keV pour le cuivre, puis il décroît quand l'énergie des protons augmente suivant l'équation (1.2).

1.3 Emission des rayons X et rendement de fluorescence

Comme il a été mentionné dans le paragraphe précédent, suite au transfert d'énergie de l'ion incident, l'atome peut se retrouver dans un état excité et/ou ionisé. Pour retrouver une meilleure stabilité, dans un laps de temps de l'ordre de 10^{-14} sec, le trou généré sur l'orbitale sera comblé par un électron provenant d'une couche électronique externe. Lors de cette transition, l'électron passe d'un niveau moins lié à un autre plus lié. Il y aura donc une émission d'énergie soit sous forme d'un photon X (rayonnement X encore appelé fluorescence X) ou d'un électron selon le mécanisme décrit par P. Auger (électron dit Auger). Ces deux phénomènes sont en compétition, et la probabilité d'émission des photons X est définie à travers le rendement de fluorescence ω qui correspond au rapport du nombre des transitions qui conduisent à l'émission d'un photon X de fluorescence sur le nombre totale des transitions. On peut définir un rendement de fluorescence pour les différents types de transitions possibles.

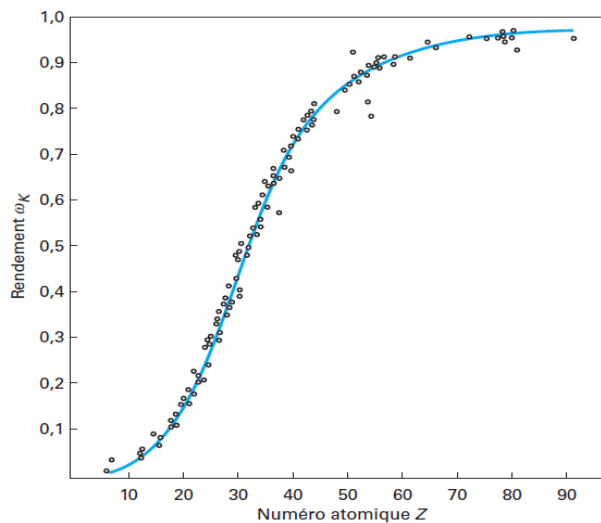


Figure 1.4 Rendement de fluorescence expérimentale ω_K de photons X de type K. La courbe bleue correspond à un ajustement empirique en fonction du numéro atomique (Moretto, et al., 2003)

La Figure 1.7 présente le rendement de fluorescence pour la couche K, ω_K , en fonction du numéro atomique Z de l'élément. Le faible rendement de fluorescence pour les éléments légers, aussi que la faible énergie de leurs rayons X, limitent l'utilisation de la méthode PIXE pour détecter ces éléments. Une étude détaillée du rendement de fluorescence est présentée dans le deuxième chapitre (2.2)

1.3.1 Les raies caractéristiques

La Figure 1.8 représente la répartition des niveaux d'énergie des états électroniques d'un atome en fonction de trois nombres quantiques n , l et j qui régissent le nombre maximum d'électrons susceptibles d'occuper un niveau d'énergie donné (Cohen-Tannoundji, et al., 1997).

Le nombre quantique principal n détermine la couche à laquelle appartient l'électron : K pour $n=1$, L pour $n=2$, M pour $n=3$...

l et j représentent respectivement le nombre quantique orbital et le nombre quantique de spin de l'électron.

Les transitions dipolaires électroniques sont autorisées par les règles de sélection suivantes :

$$\Delta n \geq 1, \Delta l = \pm 1 \text{ et } \Delta j = 0 \text{ ou } \pm 1$$

on peut avoir $\Delta n = 0$

L'application de ces règles de sélection permet de décrire les différentes transitions possibles et donc d'en déduire l'énergie que doivent avoir les photons de fluorescence produits. La figure 1.8 présente ses différentes transitions.

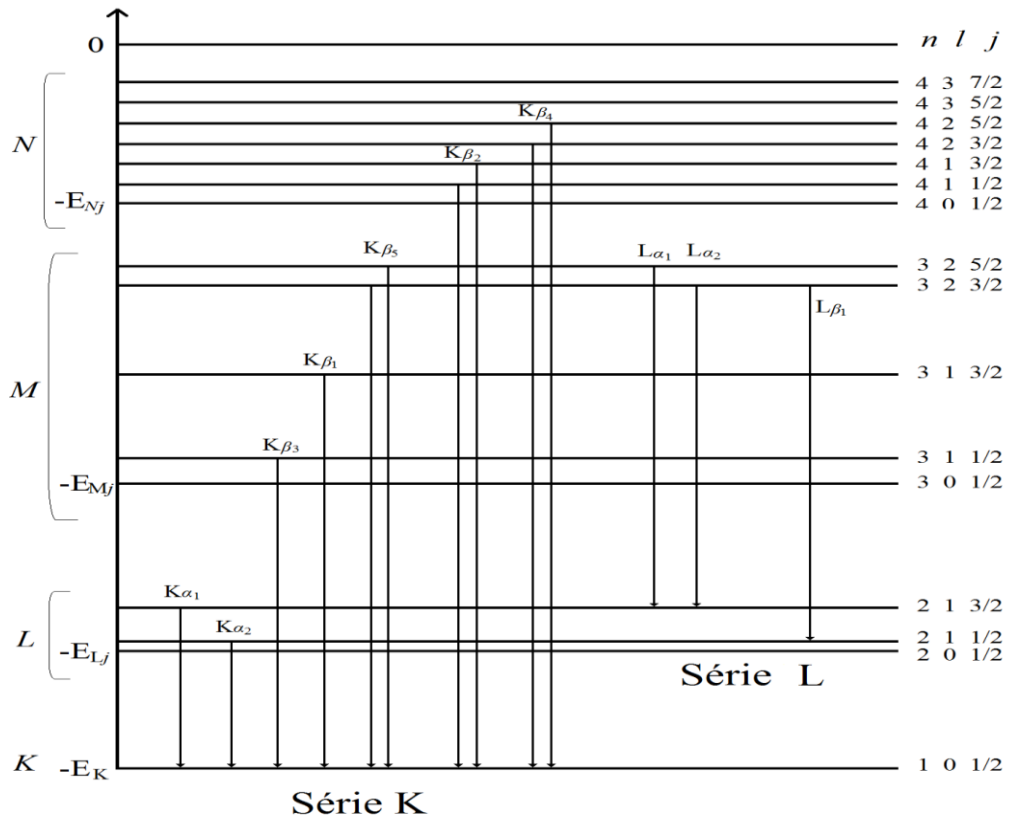


Figure 1.5 Schéma des niveaux électroniques dans un atome avec leurs énergies (notées $E_K, E_{Lj}, E_{Mj} \dots$). Les flèches verticales indiquent les transitions électroniques permises. Les raies sont classées en série d'après la couche d'arrivée (K, L,) indiquée par la couche de départ (Moretto, et al., 2003).

L'énergie des raies étant directement reliée aux niveaux d'énergie des atomes. L'énergie de chaque raie sera différente. Pour les raies X de type K, l'énergie des photons varie de quelques keV à plusieurs dizaines de keV. L'énergie d'un photon X peut donc être utilisée pour identifier les atomes présents dans l'échantillon (analyse élémentaire). Pour quantifier les éléments en utilisant une raie, il faudra connaître sa probabilité d'occurrence (ou rapport d'embranchement). Cette grandeur sera désignée par le paramètre b dans la suite du document.

1.4 Interaction des photons avec la matière

Une fois produit dans l'échantillon, les rayons X doivent en sortir afin d'être mesurés. Durant les expériences menées dans cette thèse, des rayons X avec une énergie entre quelques keV et quelques dizaines de keV sont mesurés. Dans cette gamme d'énergie, le processus d'interaction dominant des photons avec la matière est l'effet photoélectrique qui sera décrit ci-dessous en détail. Lors de nos expériences, une partie du faisceau est susceptible d'interagir avec les différents éléments de la ligne et du hall expérimental produisant des photons gamma dans la gamme d'énergie allant de quelques dizaines de keV à quelques MeV. Ces rayons gamma interagissent avec les électrons du milieu principalement selon le processus de l'effet Compton. Nous décrivons aussi ce mécanisme ci-dessous. Le troisième mécanisme présent lors de

l'interaction des photons avec la matière, le processus de création de paires (e^- , e^+), n'est possible pour les gamma qui ont une énergie supérieure ou égale à 2 fois l'énergie de masse au repos d'un électron (≥ 1022 keV). Dans nos conditions expérimentales, l'effet photoélectrique et l'effet Compton sont prédominants et nous ne présenterons pas en détail le mécanisme de création de paires.

1.4.1 Effet photoélectrique

Lorsqu'un photon d'énergie E_X est absorbé par un atome, un électron du cortège électronique d'énergie de liaison E_L est émis (Figure 1.2), à condition que l'énergie du photon soit plus grande que l'énergie de liaison de l'électron. L'énergie cinétique de l'électron éjecté est E_e :

$$E_e = E_X - E_L \quad (1.3)$$

Ce phénomène est appelé l'effet photoélectrique. L'absorption est plus probable sur les électrons les plus fortement liés comme dans le cas des électrons dans les couches internes K et L. En effet, les électrons de ces couches se trouvent proches du noyau qui doit absorber une partie de l'impulsion pour conserver l'impulsion totale.

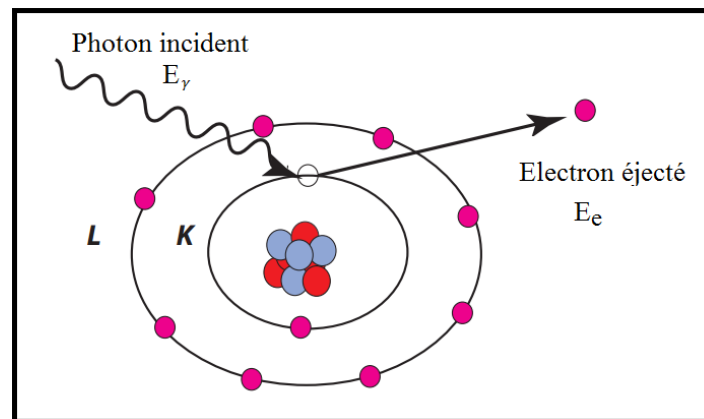


Figure 1.6 Effet photoélectrique

1.4.2 Effet Compton

La Figure 1.3 présente l'effet Compton, à partir de la diffusion inélastique d'un photon γ incident d'énergie E_γ sur un électron atomique avec une énergie de liaison faible devant l'énergie des photons incidents. Lors de ce processus, le photon n'est pas complètement absorbé mais diffusé à angle non-nul avec une énergie E'_γ donnée par :

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \left(\frac{E_\gamma}{m_e c^2}\right)(1 - \cos \theta)} \quad (1.4)$$

Ainsi, le photon incident transfère une partie de son énergie à l'électron de recul. L'énergie transmise dépend de l'angle de diffusion θ du photon :

$$E_e = E_\gamma - E'_\gamma \quad (1.5)$$

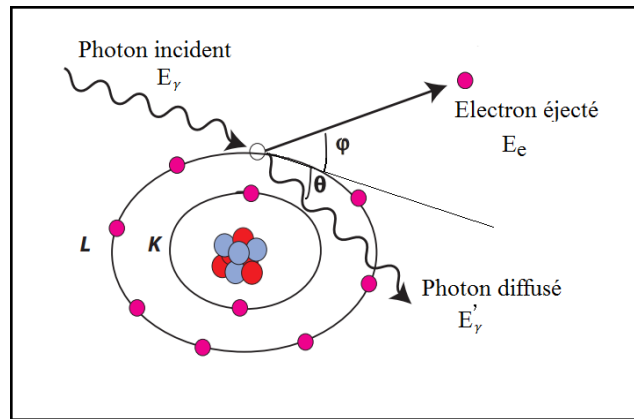


Figure 1.7 Effet Compton

La probabilité associée à l'effet Compton est proportionnelle au numéro atomique Z de l'atome cible, donc cet effet est prédominant dans des absorbants ayant des numéros atomiques élevés.

1.4.3 Atténuation et absorption des photons

Un faisceau de photons incidents, traversant un milieu donné, subit une atténuation. La figure ci-dessous (Figure 1.4) schématise l'atténuation du nombre des photons incidents N_0 dans un milieu donné d'épaisseur l . Le nombre de photons transmis N s'exprime par la loi d'atténuation suivante :

$$N = N_0 e^{-\mu_{att} l} \quad (1.6)$$

avec μ_{att} qui est le coefficient d'atténuation linéique qui exprime la probabilité d'interaction d'un photon d'énergie donnée par unité de longueur (cm^{-1}). Le coefficient d'atténuation tient compte des sections efficaces des différents processus d'interactions des photons avec la matière (dans notre cas essentiellement l'effet photoélectrique et l'effet Compton).

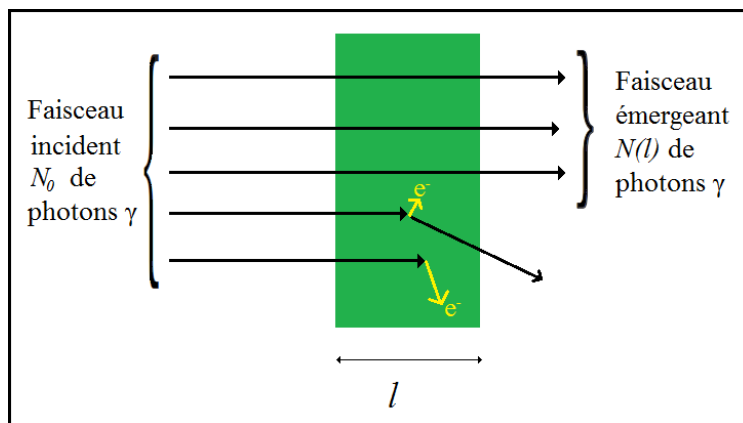


Figure 1.8 Illustration du phénomène d'atténuation des photons dans la matière

La relation qui relie le coefficient d'atténuation à la section efficace est donnée par :

$$\mu_{att} = \frac{N_A \rho}{A} \sigma_{tot} \quad (1.7)$$

où ρ représente la masse volumique du milieu traversé (en g/cm^3), σ_{tot} la section efficace totale (en $cm^2/atome$), N_A est le nombre d'Avogadro (en $atome/mol$) et A est la masse atomique du milieu (en g/mol).

1.5L'analyse d'un échantillon par la méthode PIXE

Lorsqu'on bombarde une cible donnée avec un faisceau de particules, des rayons X caractéristiques seront émis pour les différents éléments présents dans l'échantillon. Le spectre des rayons X détectés contient donc les pics des raies caractéristiques des différents éléments présents (voir *Figure 1.12* et *Figure 1.13*). Le spectre contient aussi des photons produits par le rayonnement de freinage des électrons secondaires (électrons éjectés dans le milieu suite à l'ionisation des atomes) et par effet Compton issu de l'interaction des rayons gamma avec le détecteur (les gammas proviennent de l'interaction du faisceau avec les noyaux soit de la cible soit des éléments présents dans le hall expérimental). Ces deux contributions forment un spectre continu appelé bruit de fond.

Dans le cas où le faisceau incident s'arrête dans la cible (cible épaisse), le lien entre, d'une part, le nombre de rayons X détectés dans un pic pour un élément donné, et, d'autre part, le nombre d'atomes par unité de volume, est donné par l'équation suivante.

$$N_X^Z = N_p \cdot N_Z \cdot \omega_K \cdot b \cdot \varepsilon_{tot} \cdot \int_{E_0}^0 \frac{\sigma_I(E) \cdot T_{ech}(E)}{S(E)} dE \quad (1.8)$$

Où E_0 est l'énergie initiale, N_p est le nombre de particules incidentes, ω_K est le rendement de fluorescence, b est l'intensité de la raie X, $\sigma_I(E)$ est la section efficace d'ionisation de la couche (K ou L,...), N_Z est le nombre d'atomes cibles par unité de volume, ε_{tot} est l'efficacité de détection, $T_{ech}(E)$ est un facteur de transmission tenant compte de l'auto absorption dans la cible et $S(E)$ est le pouvoir d'arrêt de la cible avec $S(E) = \frac{dE}{dx}$.

Pour une cible mince, la section efficace reste constante et donc la formule ci-dessus sera de la forme suivante :

$$\begin{aligned} N_X^Z &= N_p \cdot N_Z \cdot \omega_K \cdot b \cdot \varepsilon_{tot} \cdot \sigma_I \cdot \int_{E_0}^{E_1} \frac{e^{-\mu x}}{-\frac{dE}{dx}} dE \\ &= N_p \cdot N_Z \cdot \omega_K \cdot b \cdot \varepsilon_{tot} \cdot \sigma_I \cdot \int_0^d e^{-\mu x} dx \\ &= N_p \cdot N_Z \cdot \omega_K \cdot b \cdot \varepsilon_{tot} \cdot \sigma_I \cdot \frac{1}{\mu} (1 - e^{-\mu d}) \end{aligned} \quad (1.8)$$

Ces deux dernières équations permettent de déterminer la concentration d'un élément, dans un échantillon donné, à partir de la détection de ses rayons X.

Les éléments à partir de $Z > 11$ peuvent être analysés avec PIXE. Cette limite est liée au faible rendement de fluorescence des éléments légers ainsi qu'à la faible énergie de leurs rayons X émis qui sont rapidement atténués par le milieu.

1.6 PIXE à basse énergie : Applications

La méthode d'analyse PIXE est largement utilisée à basse énergie (<4 MeV) dans de nombreux domaines (Petukhov, et al., 1999). PIXE a été utilisée pour analyser les graines génétiquement modifiées avec un faisceau de protons de 2,4 MeV (Marli Moitinho Amaral Medeiros, et al., 2005). Elle a été appliquée pour l'identification des pigments et la discrimination de la stratigraphie des couches dans les tableaux de peintures.



Figure 1.9 Analyse d'un tableau de Léonard de Vinci par PIXE (Mandò, et al., 2005)

En 2005 un tableau de Léonard de Vinci, 'Madonna dei fusi' a été analysé avec un faisceau de protons de 3 MeV (Mandò, et al., 2005).

En archéologie, la méthode PIXE, avec un faisceau de proton de 2,5 MeV, a été utilisée dans l'analyse de grandes peintures murales d'égypte ancienne (Nagashima, et al., 1996). Les couches de peintures ont été étudiées sans endommager la zone d'analyse. Une couche de paraffine qui protégeait les peintures n'a pas perturbé l'analyse par la méthode PIXE.

Un système portable de PIXE, adapté pour l'analyse des échantillons sur le terrain, est déjà développé en utilisant une source radioactive alpha (^{210}Po , ^{244}Cm ou ^{241}Am). Un tel système a été déjà utilisé dans des sites archéologiques (PAPPALARDO, et al., 2003), ainsi que dans des missions spatiales comme le système APXS pour Alpha-Particle X-ray Spectrometer de la mission Mars Exploration Rover -NASA (Campbell, et al., 2011)

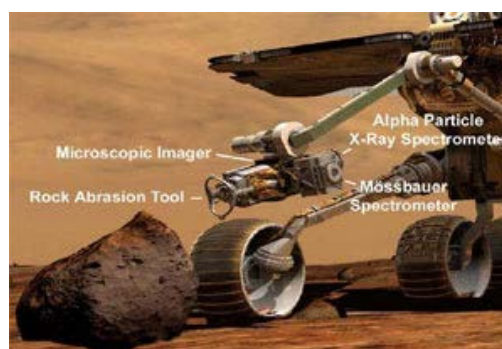


Figure 1.10 Projet APXS

PIXE a été aussi utilisé avec des microfaisceaux de particules pour obtenir une cartographie de concentrations d'un échantillon avec une résolution micrométrique. L'oreiller de « St. Francis of Assisi » a été analysé par microPIXE au laboratoire LABEC, par un faisceau de 3 MeV de protons, pour caractériser les broderies afin d'extraire la composition quantitative du

ruban doré et des estimations de son épaisseur. Dans ce cas, ils ont utilisé les raies L de l'or pour réaliser les analyses car l'émission des raies X de type K de l'or à une faible probabilité d'émission à basse énergie (Migliori, et al., 2008).



Figure 1.11 L'oreiller de St. Francis of Assisi.

La méthode PIXE à basse énergie a des avantages très importants par rapport aux autres méthodes d'analyse. C'est une méthode d'analyse élémentaire non destructive, rapide (quelques min) et simple à mettre en œuvre et de haute sensibilité. C'est une méthode d'analyse quantitative, les sections efficaces d'ionisation dans cette gamme d'énergie sont bien connues et elles sont en bon accord avec les modèles théoriques existants (voir chapitre 2.3.4.2). Les éléments lourds sont détectés par leurs raies L parce que la section efficace d'ionisation des couches K est faible à ces énergies de faisceau (voir chapitre 2.3.4).

La Figure 1.12 présente le spectre de rayons X d'une cible d'or irradiée par un faisceau de deuton d'énergie 6 MeV/u (c'est-à-dire à basse énergie). Ce spectre montre l'absence des raies X de type K de l'or à cette énergie.

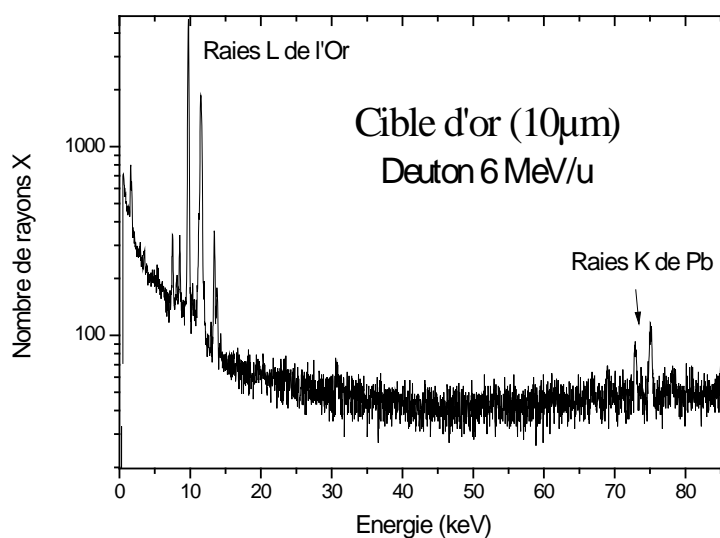


Figure 1.12 Spectre de rayon X de la cible d'or irradiée par un faisceau de deuton d'énergie 6 MeV/u

Les raies L sont nombreuses et il est souvent délicat de séparer les contributions de deux éléments proches en masse, ce qui rend l'analyse difficile. De plus avec la méthode PIXE à basse énergie, les ions projectiles pénètrent peu dans la matière (faible parcours) ce qui limite l'analyse aux premières couches de la surface.

1.7 PIXE à haute énergie

Pour analyser des échantillons plus épais en profondeur, comme par exemple certains objets d'art (Denker, et al., 2004), il faut utiliser des faisceaux plus énergétiques qui vont pénétrer plus profondément dans la matière. Dans le même temps, en utilisant des faisceaux plus énergétiques, on augmente la production de rayons X de type K puisque la section efficace d'ionisation de la couche K pour les éléments lourds est plus importante qu'à basse énergie (voir chapitre 2), rendant possible l'analyse avec les raies K. Cette analyse est plus simple que pour les raies L car il y a moins de pics présents et de ce fait moins de recouvrements entre ces pics. Enfin, les rayons X de type K sont plus énergétiques et leur atténuation dans le milieu est moins importante. Il y a donc un fort intérêt à combiner la profondeur de pénétration des ions de hautes énergies avec la faible atténuation des rayons X de haute énergie. C'est le principe de la méthode HE-PIXE, High energy PIXE, qui est particulièrement adéquate pour l'analyse des éléments lourds dans des échantillons épais ayant une matrice légère.

La Figure 1.13 présente le spectre en énergie des rayons X émis par une cible d'or irradiée avec un faisceau de protons de 68 MeV. Ce spectre montre la présence des raies X de type L et K de l'or. L'énergie des raies X de type K est plus élevée que celle des raies X de type L. Les raies X de type K de l'or sont aussi moins nombreuses que les raies X de type L et elles se situent dans une région facile à analyser (le bruit de fond varie faiblement dans cette région d'énergie).

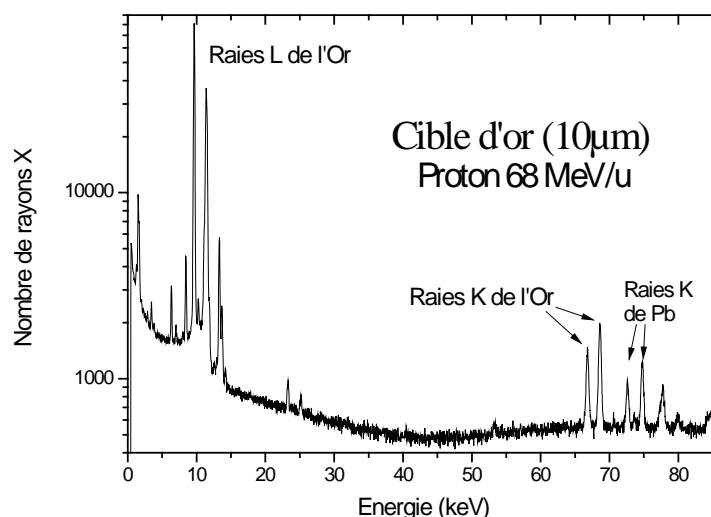


Figure 1.13 Spectre de rayon X d'une cible d'or irradiée par un faisceau de proton de 68 MeV.

La figure 1.14 représente le parcours des faisceaux de proton dans l'aluminium à haute énergie, 70 MeV, et à basse énergie, 8 MeV. Ces parcours ont été calculés en utilisant le logiciel SRIM (voir chapitre 3.1.3). La grande pénétration des ions de haute énergie dans la matière, associée

à la faible atténuation des rayons X de type K des éléments lourds, permet d'étendre l'analyse en profondeur.

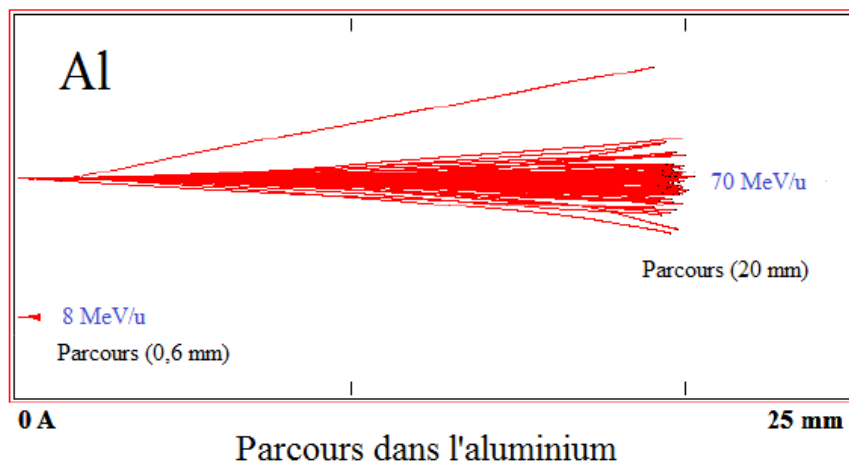


Figure 1.14 Parcours des faisceaux de proton dans l'aluminium

Lorsque l'on étudie l'évolution de la perte d'énergie par unité de distance, dE/dx , on s'aperçoit qu'elle est moins importante à haute énergie qu'à basse énergie. En utilisant des ions de haute énergie pour des échantillons où le faisceau ressort de l'échantillon, on limite le risque d'endommagement des échantillons. Ce dernier point est intéressant pour l'étude des objets d'art comme les toiles de maîtres.

L'analyse des objets d'arts ont déjà profité des avantages de la méthode de PIXE à haute énergie. (Denker, et al., 2005) ont analysé des pièces de monnaie épaisses (1mm) avec un faisceau de protons de 68 MeV (Figure 1.15).. Grâce au grand parcours des protons de haute énergie, les pièces ont été analysées en volume malgré la présence d'une couche de corrosion en surface (de quelques dizaines de μm).



Figure 1.14 Les pièces analysées par HEPIXE

A. Denker *et al* ont analysé aussi un flacon égyptien ancien avec HE-PIXE. Le flacon avait toujours le sceau original et les égyptologues étaient réticents à le briser pour obtenir des informations sur son contenu. Grâce au parcours des protons de 68 MeV, qui est plus grand que l'épaisseur de la paroi du flacon, le contenu du flacon a pu être analysé (Conférence PIXE 2017).

Enfin, des tableaux d'art ont été analysés par HE-PIXE pour identifier la composition des pigments, déterminer la séquence de couches de peinture et leurs épaisseurs (Denker, et al., 2004) (*Figure 1.16*).



Figure 1.15 Un tableau d'art a analysé par HE-PIXE

La méthode HE-PIXE est déjà mise en place au cyclotron Arronax (Ragheb, et al., 2014). Un dépôt composé d'un alliage nickel/gallium sur un support en Au a été analysé pour déterminer les concentrations massiques et l'épaisseur du dépôt. Les pourcentages massiques obtenus ont été comparés avec ceux obtenus en utilisant la technique d'analyse destructive ICP-OES (Inductively Coupled Plasma Optical Emission Spectroscopy). Les résultats obtenus par HEPIXE sont en accord avec ceux obtenus par la technique ICP-OES.

Pour profiter des avantages de cette méthode, notamment la possibilité d'avoir une quantification des éléments présents, il faut connaître le plus précisément possible les sections efficaces d'ionisation pour l'ensemble des éléments étudiés. Dans les bases de données, il existe peu de mesures disponibles dans la gamme d'énergie allant jusqu'à 70 MeV et elles ne concernent que quelques éléments. De plus, les mesures sont souvent uniques ce qui ne permet pas d'exclure des erreurs de mesures systématiques. Il y a donc un vrai manque de données au-delà de 20 MeV (voir chapitre 2) et c'est l'objet de ce travail que de contribuer à y remédier.

Nous avons réalisé des expériences de mesures des sections efficaces d'ionisation de la couche K pour les éléments titane, cuivre, argent et or (voir chapitre 3). Pour cela, nous avons utilisé des protons de haute énergie entre 30 et 68 MeV. Nous avons aussi utilisé un faisceau de deutons de 16 MeV pour avoir un point de comparaison à basse énergie (8 MeV/u) avec les données existantes et ainsi assurer un recouvrement avec une gamme d'énergie où les données sont nombreuses à titre de contrôle de la démarche expérimentale.

Notre dispositif expérimental a été conçu pour pouvoir déterminer les sections efficaces d'ionisation de la couche K en utilisant des cibles minces. Pour cela nous nous sommes appuyés sur l'équation (1.9) obtenue à partir de l'équation (1.8) :

$$\sigma_I(E) = \frac{N_X^Z}{N_p \cdot N_Z \cdot \omega_K \cdot b \cdot \varepsilon_{tot} \cdot \mu (1 - e^{-\mu d})} \quad (1.9)$$

Cette équation montre que, pour déterminer précisément la section efficace d'ionisation, il faut être capable de mesurer précisément les paramètres expérimentaux comme, le nombre de rayons X d'une énergie donnée produits, le nombre de particules incidentes bombardant la

cible, l'efficacité du détecteur à l'énergie de la raie X considérée et l'épaisseur de la cible pour connaître le nombre d'atomes cibles présents et pour corriger des effets d'auto-atténuation.

De plus, il faut aussi connaître précisément les paramètres intrinsèques des atomes cibles que sont le rendement de fluorescence, ω_K , et l'intensité des raies, b . Nous présenterons ces paramètres qui sont disponibles dans les bases de données dans le chapitre 2 et présenterons le choix qui a été fait pour chacun d'eux avec les justifications associées.

2 Etude des paramètres intrinsèques pour l'émission de rayons X

Dans ce chapitre, nous discutons du domaine théorique, empirique et semi-empirique pour la probabilité de transition K_β et K_α , le rendement de fluorescence ω_K et la section efficace d'ionisation de la couche K. Nous présentons aussi le modèle PWBA et les différentes corrections qui peuvent y être apportées pour comparer avec les mesures expérimentales.

2.1 Rapport d'intensité I_{K_β}/I_{K_α} .

Dans les spectres de rayons X que nous mesurons, nous pouvons identifier les raies K_α et K_β . Afin de déterminer la section efficace de production de rayons X de type K associée à chaque raie, nous utiliserons les intensités d'émission mesurées pour les différentes raies pour chaque élément cible étudié durant cette thèse (Ti, Cu, Ag et Au).

K_α	$K_{\alpha_1} = L_3 \rightarrow K$ $K_{\alpha_2} = L_2 \rightarrow K$ $K_{\alpha_3} = L_1 \rightarrow K$	
K_β	K_{β_1}'	$K_{\beta_1} = M_3 \rightarrow K$ $K_{\beta_3} = M_2 \rightarrow K$ $K_{\beta_5} = M_{4,5} \rightarrow K$
	K_{β_2}'	$K_{\beta_2} = N_{2,3} \rightarrow K$ $K_{\beta_4} = N_{4,5} \rightarrow K$ $KO_{2,3} = O_{2,3} \rightarrow K$

Tableau 2.1 Notation pour les transitions K_α et K_β

Le Tableau 2.1 présente les différentes transitions K_α et K_β . Le nombre de transitions à considérer varie en fonction de la structure électronique des atomes, nous allons donc dans la suite présenter les différentes raies à prendre en compte pour chacune des cibles que nous avons utilisées. De plus, à cause de la résolution en énergie du détecteur utilisé, il est parfois difficile de séparer les transitions des sous-couches avec des énergies proches l'une de l'autre (voir chapitre 3.1.5). Nous sommes donc contraints, dans ces cas-là, de sommer les différentes contributions. La transition K_{α_3} est en principe une transition interdite compte tenu des règles de sélection des transitions dipolaires électroniques. Cependant, on elle est présente avec une faible intensité à cause de la relaxation des règles de sélection liée à la présence du couplage spin-orbite ou du couplage vibronique en cas de molécule symétrique ou encore liée à l'interaction de configurations électroniques.

Dans notre cas, les transitions K_{α_3} et $KO_{2,3}$ sont de faibles intensités et seront négligées.

2.1.1 Cas du titane

Dans le cas du titane, à cause de la résolution du détecteur, le pic K_α renferme les deux transitions K_{α_1} et K_{α_2} , le pic K_β est la somme de deux transitions entre la couche K et la couche M (K_{β_1} et K_{β_3}). Les intensités relatives b des pics K_α et K_β du titane peuvent être écrites en fonction du rapport d'intensité I_{K_β}/I_{K_α} :

$$b_{Ti}(K_\alpha) = b(K_{\alpha_1} + K_{\alpha_2}) = \frac{I_{K_\alpha}}{I_K} = \frac{I_{K_\alpha}}{I_{K_\alpha} + I_{K_\beta}} = \frac{1}{(1 + \frac{I_{K_\beta}}{I_{K_\alpha}})} \quad (2.1)$$

$$b_{Ti}(K_\beta) = b(K_{\beta_1} + K_{\beta_3}) = \frac{I_{K_\beta}}{I_K} = \frac{I_{K_\beta}}{I_{K_\alpha} + I_{K_\beta}} = \frac{1}{(1 + \frac{I_{K_\alpha}}{I_{K_\beta}})} \quad (2.2)$$

2.1.2 Cas du cuivre

Dans le cas du cuivre, on doit considérer une transition additionnelle K_{β_5} entre la couche K et la couche M qui se trouve pratiquement au même endroit que les autres raies K_β .

$$b_{Cu}(K_\beta) = b(K_{\beta_1} + K_{\beta_3} + K_{\beta_5}) = \frac{I_{K_\beta}}{I_K} = \frac{I_{K_\beta}}{I_{K_\alpha} + I_{K_\beta}} = \frac{1}{(1 + \frac{I_{K_\alpha}}{I_{K_\beta}})} \quad (2.3)$$

2.1.3 Cas de l'argent

Dans le cas de l'argent, l'émission du groupe K_α est la somme de trois raies K_{α_1} , K_{α_2} et K_{α_3} . Dans l'émission du groupe K_β , deux pics K_{β_1}' (des transitions $M-K$) et K_{β_2}' (des transitions $N-K$) sont détectés séparément. Les intensités relatives, pour des pics K_α , K_{β_1}' et K_{β_2}' de l'argent sont données par les relations suivantes :

$$b_{Ag}(K_\alpha) = b(K_{\alpha_1} + K_{\alpha_2} + K_{\alpha_3}) = \frac{I_{K_\alpha}}{I_K} = \frac{I_{K_\alpha}}{I_{K_\alpha} + I_{K_\beta}} = \frac{1}{(1 + \frac{I_{K_\beta}}{I_{K_\alpha}})} \quad (2.4)$$

$$\begin{aligned} b_{Ag}(K_{\beta_1}') &= b_{Ag}(K_{\beta_1} + K_{\beta_3} + K_{\beta_5}) = \frac{I_{K_{\beta_1}'}}{I_K} = \frac{I_{K_{\beta_1}'}}{I_{K_\alpha} + I_{K_\beta}} = \frac{I_{K_{\beta_1}'}}{I_{K_\alpha}(1 + \frac{I_{K_\beta}}{I_{K_\alpha}})} \\ &= \frac{I_{K_{\beta_1}'}/I_{K_{\alpha_1}}}{(1 + \frac{I_{K_{\alpha_2}}}{I_{K_{\alpha_1}}})(1 + \frac{I_{K_\beta}}{I_{K_\alpha}})} \end{aligned} \quad (2.5)$$

$$\begin{aligned} b_{Ag}(K_{\beta_2}') &= b_{Ag}(K_{\beta_2} + K_{\beta_4}) = \frac{I_{K_{\beta_2}'}}{I_K} = \frac{I_{K_{\beta_2}'}}{I_{K_\alpha} + I_{K_\beta}} = \frac{I_{K_{\beta_2}'}}{I_{K_\alpha}(1 + \frac{I_{K_\beta}}{I_{K_\alpha}})} \\ &= \frac{I_{K_{\beta_2}'}/I_{K_{\alpha_1}}}{(1 + \frac{I_{K_{\alpha_2}}}{I_{K_{\alpha_1}}})(1 + \frac{I_{K_\beta}}{I_{K_\alpha}})} \end{aligned}$$

Nous avons calculé l'intensité de raies K_{β_1}' et K_{β_2}' en fonction du rapport $\frac{I_{K_{\alpha_2}}}{I_{K_{\alpha_1}}}$ et respectivement en fonction des rapports $I_{K_{\beta_1}}'/I_{K_{\alpha_1}}$ et $I_{K_{\beta_2}}'/I_{K_{\alpha_1}}$. Pour ces rapports, nous n'avons trouvé que des évaluations théoriques (Scofield, 1974a), pas de valeurs expérimentales.

2.1.4 Cas de l'or

Dans le cas de l'or, la résolution de notre détecteur nous permet de séparer les raies K_{α_1} et K_{α_2} . Les intensités relatives des raies K_{α_1} et K_{α_2} de l'or sont définies de la manière suivantes :

$$b_{Au}(K_{\alpha_1}) = \frac{I_{K_{\alpha_1}}}{I_K} = \frac{I_{K_{\alpha_1}}}{I_{K_{\alpha_1}} + I_{K_{\beta}}} = \frac{I_{K_{\alpha_1}}}{I_{K_{\alpha}}(1 + \frac{I_{K_{\beta}}}{I_{K_{\alpha}}})} = \frac{\frac{I_{K_{\alpha_1}}}{I_{K_{\alpha}}}}{(1 + \frac{I_{K_{\beta}}}{I_{K_{\alpha}}})} = \frac{1}{(1 + \frac{I_{K_{\alpha_2}}}{I_{K_{\alpha_1}}})} \quad (2.6)$$

$$b_{Au}(K_{\alpha_2}) = \frac{I_{K_{\alpha_2}}}{I_K} = \frac{I_{K_{\alpha_2}}}{I_{K_{\alpha}} + I_{K_{\beta}}} = \frac{I_{K_{\alpha_2}}}{I_{K_{\alpha}}(1 + \frac{I_{K_{\beta}}}{I_{K_{\alpha}}})} = \frac{\frac{I_{K_{\alpha_2}}}{I_{K_{\alpha}}}}{(1 + \frac{I_{K_{\beta}}}{I_{K_{\alpha}}})} = \frac{1}{(1 + \frac{I_{K_{\alpha_1}}}{I_{K_{\alpha_2}}})} \quad (2.7)$$

Lors de nos expériences, la faible statistique associée au nombre de rayons X détectés dans le cas des raies K_{β} de l'or ne nous a pas permis de déterminer la section efficace de production de ces raies. A notre connaissance, comme dans le cas de l'argent, il n'existe pas de valeurs expérimentales du rapport $I_{K_{\alpha_2}}/I_{K_{\alpha_1}}$ et nous utiliserons, quand cela est nécessaire, l'estimation théorique disponible (Scofield, 1974a).

Dans les paragraphes suivants, nous présentons, en fonction de numéro atomique, la variation du rapport de l'intensité $I_{K_{\beta}}/I_{K_{\alpha}}$ présentée dans la littérature à partir des données expérimentales, à partir d'estimations théoriques puis issue de modèles empiriques.

2.1.5 Les valeurs expérimentales

Plusieurs études expérimentales ont été faites sur le rapport d'intensité $I_{K_{\beta}}/I_{K_{\alpha}}$ pour différents éléments.

La figure (Figure 2.1) présente les données expérimentales du rapport d'intensité $I_{K_{\beta}}/I_{K_{\alpha}}$ (points noirs) en fonction du numéro atomique Z de l'élément considéré. Le rapport varie entre 0,1 pour Z=20 jusqu'à 0,275 pour Z=80, Ces données expérimentales ont été publiées entre 1970 et 2016. Elles montrent une foule des données expérimentales avec des variations relativement importantes. Néanmoins, on voit clairement que le rapport d'intensité de la transition entre les raies de type K_{β} et de type K_{α} augmente en fonction du numéro atomique Z. Cela est dû au fait que le nombre d'électrons dans les couches supérieures M et N, qui interviennent dans la transition K_{β} , augmente avec Z.

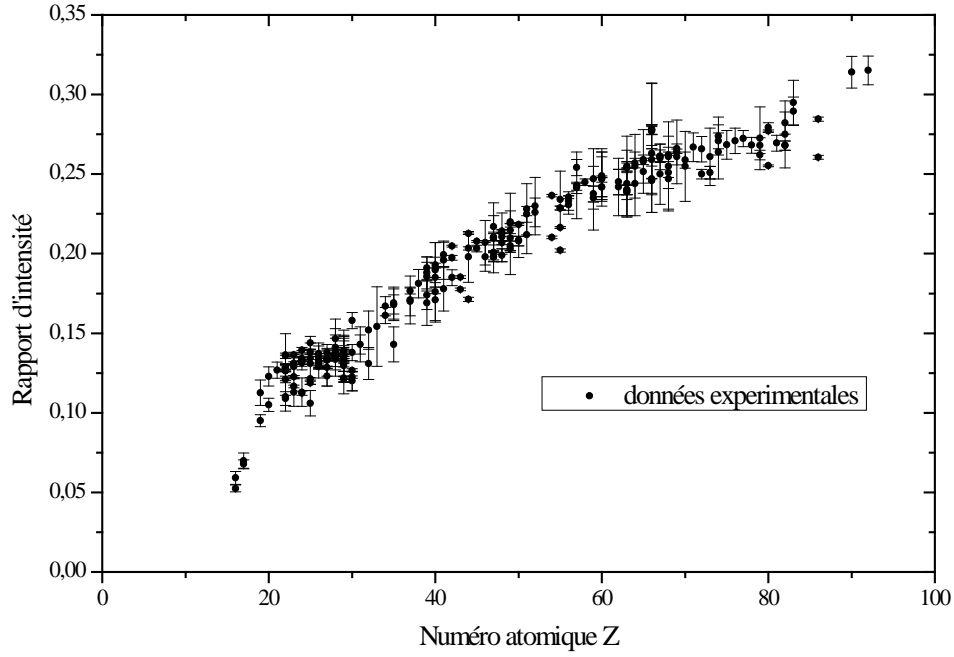


Figure 2.1 Les valeurs expérimentales du rapport $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ en fonction du numéro atomique Z . Les données correspondent à la compilation des données trouvées dans la littérature. (Aylikci, et al., 2010), (Bennal, et al., 2006), (Bennal, et al., 2010), (Bhuinya, et al., 1993), (Bhuinya, et al., 1992), (Bé, et al., 1998), (Bodart, et al., 1975), (Casnati, et al., 1985), (Chang, et al., 1994), (Çevik, et al., 2005), (Çevik, et al., 2007), (Dhal, et al., 1994), (Dogan, et al., 2016), (Dost, et al., 1981), (Ertugrul, et al., 2001), (Ertuğrul, et al., 2007), (Ertuğrul, et al., 2001a), (Ertuğrul, et al., 2002), (Han, et al., 2010), (Han, et al., 2007), (Kamal, et al., 1980), (Kaçal, et al., 2015), (Küçükönder, et al., 1993), (Marques, et al., 1980), (Ménesguen, et al., 2010), (Öz., 2006), (Padhi, et al., 1995), (Pawlowski, et al., 2002), (Raj, et al., 2000), (Raj, et al., 2002), (Richard, et al., 1970), (Şahin, et al., 2005), (Yalçin, 2007) et (Raj, et al., 1999)

Le tableau 2.2 présente les mesures récentes pour le rapport expérimental des intensités $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ pour les atomes de titane, cuivre, argent et or obtenu en utilisant différents types de particules incidentes comme projectile. Le tableau 2.2 présente aussi la valeur moyenne des données expérimentales $\overline{I_{K\beta}/I_{K\alpha}}$ et la valeur moyenne pondérée $\left(\overline{I_{K\beta}/I_{K\alpha}}\right)_P$ qui prend en compte l'incertitude des valeurs expérimentales selon l'équation suivante :

$$\left(\overline{I_{K\beta}/I_{K\alpha}}\right)_P = \left(\sum_{i=1}^N \left(\frac{1}{\Delta(I_{K\beta}/I_{K\alpha})_i} \right)^2 \right)^{-1} \sum_{i=1}^N \left(\frac{(I_{K\beta}/I_{K\alpha})_i}{(\Delta(I_{K\beta}/I_{K\alpha})_i)^2} \right) \quad (2.8)$$

Nous avons calculé l'erreur sur la valeur moyenne pondérée par la moyenne des écarts avec les données expérimentales.

Z	$I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ (Exp)	Particule incidente	$\overline{I_{K\beta}/I_{K\alpha}}$	Ecart type pour $\frac{I_{K\beta}}{I_{K\alpha}}$	$\left(\overline{I_{K\beta}/I_{K\alpha}}\right)_P$
^{22}Ti	0,1282 ± 0,0014 (Bhuinya, et al., 1992) 0,1289 ± 0,0014 (Bhuinya, et al., 1993) 0,1359 ± 0,0017 (Bé, et al., 1998) 0,1265 ± 0,0006 (Raj, et al., 1999) 0,1364 ± 0,0134 (Sogut, et al., 2002) 0,1265 ± 0,0006 (Pawlowski, et al., 2002) 0,1089 ± 0,0043 (Şahin, et al., 2005) 0,1100 ± 0,0090 (Han, et al., 2007) 0,1282 ± 0,0080 (Ertuğrul, et al., 2007)* 0,1233 ± 0,0063 (Aylikci, et al., 2014) 0,1290 ± 0,0076 (Kaçal, et al., 2015)	Photon Ion Photon Photon Photon Photon Photon Photon Photon Photon Photon	0,1252	0,009	0,1270 ± 0,0019
^{29}Cu	0,1396 ± 0,0085 (Kamal, et al., 1980)* 0,1382 ± 0,0016 (Casnati, et al., 1985) 0,1211 ± 0,0019 (Küçükönder, et al., 1993) 0,1335 ± 0,0006 (Padhi, et al., 1995) 0,1358 ± 0,0017 (Bé, et al., 1998) 0,1343 ± 0,0012 (Raj, et al., 2002) 0,1374 ± 0,0113 (Sogut, et al., 2002) 0,1390 ± 0,0130 (Öz., 2006) 0,1365 ± 0,0080 (Çevik, et al., 2007)* 0,1359 ± 0,0030 (Ertuğrul, et al., 2007) 0,1314 ± 0,0087 (Aylikci, et al., 2009) 0,1295 ± 0,0076 (Han, et al., 2010) 0,1370 ± 0,0082 (Kaçal, et al., 2015) 0,1258 ± 0,0064 (Aylikci, et al., 2014) 0,1296 ± 0,0099 (Dogan, et al., 2016)	Ion Photon Photon Photon Photon Photon Photon Photon Photon Photon Photon Photon Photon Photon Photon	0,1336	0,005	0,1335 ± 0,0016
^{47}Ag	0,2099 ± 0,0014 (Kamal, et al., 1980)* 0,2009 ± 0,0003 (Dhal, et al., 1994) 0,2023 ± 0,0139 (Ertuğrul, et al., 2007)* 0,1980 ± 0,0030 (Bennal, et al., 2010)	Ion Photon Photon Photon	0,2027	0,005	0,2013 ± 0,0031
^{79}Au	0,2726 ± 0,0190 (Kamal, et al., 1980)* 0,2620 ± 0,0030 (Bennal, et al., 2006) 0,2680 ± 0,0050 (Ertuğrul, et al., 2007)	Ion Photon Photon	0,2675	0,005	0,2637 ± 0,0066

Tableau 2.2 Rapport expérimental $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ pour les différents éléments Ti, Cu, Ag et Au. (*Valeur moyenne des valeurs publiées pour le même auteur)

Les analyses que nous avons réalisées dans le tableau 2.2 ont montré que le rapport d'intensité n'est pas affecté par la nature de la particule incidente. Il n'est pas non plus affecté par l'énergie incidente des projectiles. Ceci se base sur les différents travaux de (Kamal, et al., 1980) qui a étudié l'effet de l'énergie du faisceau incident sur le rapport $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$. Pour cela, il a utilisé des faisceaux de protons avec des énergies incidentes différentes (23,6, 32,1 et 43,6 MeV) pour irradier différentes cibles : Cu, Rb, Ag, Eu et Au. Il a trouvé que le rapport $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ n'est pas affecté par l'énergie du faisceau incident.

De son côté, (Bhuinya, et al., 1993) a étudié l'effet de la forme chimique sur le rapport de l'intensité $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ des atomes Ti, Ni et Cr dans les molécules Ti_xNi_{1-x} et Cr_xNi_{1-x} (x varie entre 0 et 1). Il a trouvé que ce rapport est affecté par la structure des molécules (effet de transfert de charge 3d dans les alliages). Une autre étude en 2005 par (Çevik, et al.) montre que le rapport d'intensité $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ dépend de la nature chimique du milieu (il trouve un écart de 25% par rapport à une cible en cuivre pur). En 2007, le même auteur (Çevik, et al.) a déterminé le rapport d'intensité $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ pour les métaux purs de numéro atomique entre 24 et 83.

Des études plus récentes (Han, et al., 2010) et (Aylikci, et al., 2009) ont étudié l'impact des alliages Co_xCu_{1-x} (x varie entre 0 et 1) et $CoCuAg$ respectivement. Dans ces deux cas, ils ont trouvé que la structure des molécules affecte le rapport $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ avec un écart de 8% pour le cuivre et un écart de 3% pour le cobalt.

On peut illustrer cette dépendance dans le cas du cuivre. Pour cet atome, la dernière couche remplie par les électrons est la couche N. Cela signifie que la liaison avec cette couche modifie la distribution des électrons qui à son tour change la probabilité des transitions de type $K\beta$ entre la couche K et la couche N. Cet effet de la forme chimique n'aura pas d'incidence dans notre cas où nous utilisons des métaux purs uniquement. C'est pourquoi, dans le tableau 2.2, nous avons mis les rapports des intensités $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ correspondants aux cibles pures.

2.1.6 Les valeurs théoriques et empiriques

Les calculs théoriques ont été faits par (Scofield, 1974) à l'aide de la théorie Hartree-Slater (HS) puis améliorés (Scofield, 1974a) grâce à l'utilisation d'une fonction d'onde Hartree-Fock (HF) décrivant l'état fondamental d'une molécule ou d'un atome sous la forme d'un déterminant de Slater unique.

Une étude récente par (Kahoul et al 2014) présente un ajustement pour les données expérimentales pondérées du rapport $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ selon l'équation 2.9, en utilisant les données publiées entre 1980 et 2011. (Kahoul et al 2014) ont réalisé un ajustement par morceau en choisissant trois régions de numéro atomique Z : de 16 à 30, de 31 à 55 et de 56 à 92. Ils obtiennent ainsi des jeux de paramètres pour chacune des 3 régions en Z.

$$I_{K\beta}/I_{K\alpha} = \left(\frac{(\sum_{n=0}^{n=3} b_n Z^n)^4}{1 + (\sum_{n=0}^{n=3} b_n Z^n)^4} \right) \quad (2.9)$$

La figure 2.2 présente, en fonction du numéro atomique Z, les données expérimentales du rapport d'intensité $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ à l'aide de points noirs, les valeurs empiriques selon Kahoul à l'aide de la courbe bleue et les valeurs théoriques déterminées par (Scofield, 1974a) à l'aide de la courbe rouge.

Dans la région des éléments ayant des numéros atomiques plus grands que 30, l'écart entre les deux méthodes empirique et théorique est compris entre 0,04% et 6,36%. Pour les éléments légers l'écart est plus important allant au-delà de 6%.

Si on compare les données expérimentales (les points noirs) et le modèle empirique selon (Kahoul, et al., 2014), l'écart du rapport d'intensité $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ varie de 0,5% à 20%. En particulier, dans le cas du cuivre, l'écart entre les données expérimentales et la valeur empirique du rapport

$I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ est compris entre 2,4% et 9% suivant la valeur expérimentale choisie. Cependant cet écart est compatible avec l'incertitude associée à l'ajustement empirique de Kahoul et al. En effet, l'ajustement a été fait dans une région où le rapport $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ augmente rapidement en fonction du numéro atomique (entre 16 et 20). Ce qui conduit à une incertitude de 10,5% sur la valeur du rapport d'intensité des raies $K\alpha$ et $K\beta$ du cuivre donnée par cet ajustement.

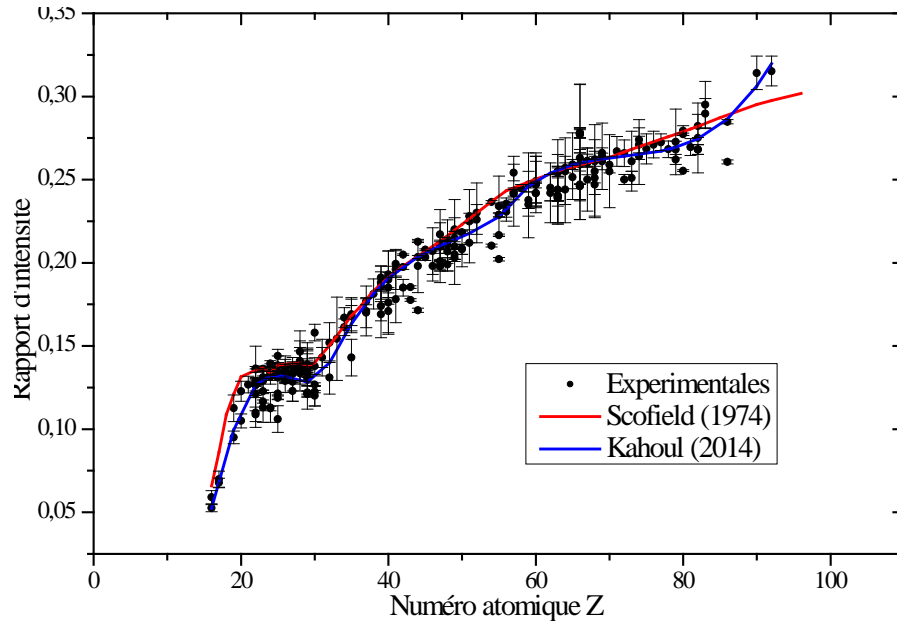


Figure 2.2 Les valeurs expérimentales du rapport $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ (points noirs) comparées avec les valeurs théoriques du Scofield (courbe rouge) et les valeurs empiriques du Kahoul (courbe bleue).

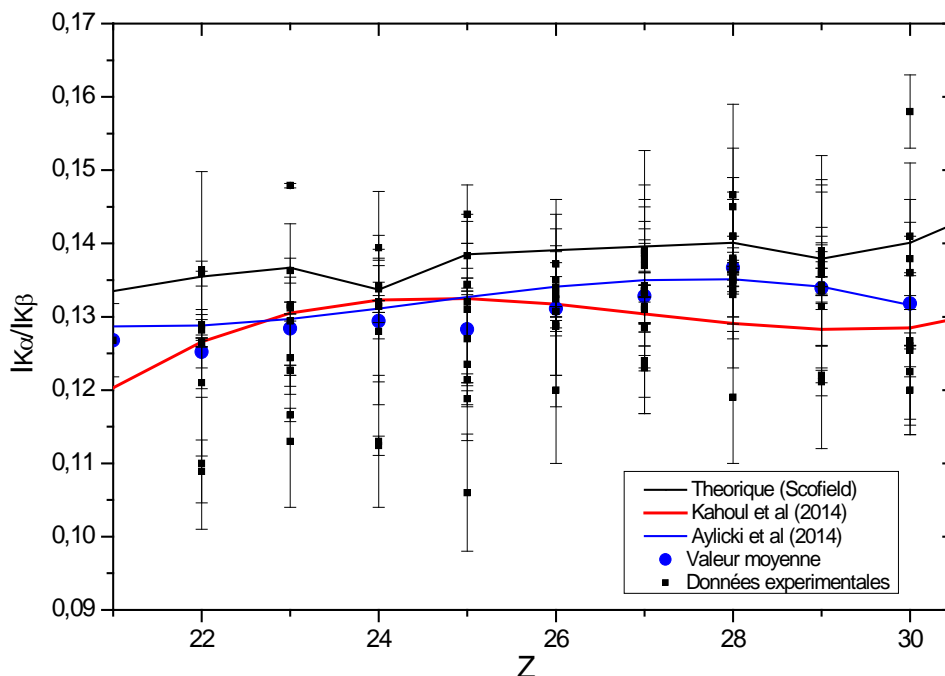


Figure 2.3 Les valeurs expérimentales (points noirs) et les valeurs moyennes du rapport $K\beta/K\alpha$ (points bleus) comparées avec les valeurs empiriques de Kahoul 2014 (courbe rouge) et les valeurs empiriques de (Aylicki, et al. 2014) (courbe bleue) et les valeurs théoriques de Scofield et al.1974 (courbe noire).

Une autre étude récente de 2014 (Aylikci, et al., 2014) présente un ajustement des données expérimentales du rapport $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ pour les numéros atomiques seulement entre 21 et 30.

La figure 2.3 présente, en fonction du numéro atomique pour les différents éléments entre 21 et 30, les données expérimentales du rapport d'intensité $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ (points noirs), les valeurs moyennes (points bleus), comparées avec les valeurs empiriques de (Kahoul, et al., 2014) (courbe rouge), les valeurs empiriques de (Aylikci, et al., 2014) (courbe bleue) et les valeurs théoriques de (Scofield, 1974a) (courbe noire). L'écart entre les deux ajustements empiriques est compris entre 0,15% et 6,6% dans la gamme de numéro atomique commun.

L'écart entre le rapport d'intensité déterminé par (Aylikci, et al., 2014) et les valeurs moyennes expérimentales est compris entre 0,15% et 3,3%. Dans le cas du titane, l'écart est égal à 1,1% et dans celui du cuivre l'écart est égal à 0,15%.

Le Tableau 2.3 récapitule les valeurs des rapports des intensités $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ pour les différents atomes Ti, Cu, Ag et Au en fonction des différents domaines.

Elément	Rapport $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$			
	Théorique	Empirique pondéré	Empirique pondéré	Moyenne expérimentale pondérée
	(Scofield, 1974a)	(Aylikci, et al., 2014)	(Kahoul, et al., 2014)	
Ti	0,1355	0,1288	0,1266	$0,1270 \pm 0,0019$
Cu	0,1379	0,1341	0,1283	$0,1335 \pm 0,0016$
Ag	0,213	-	0,2102	$0,2013 \pm 0,0031$
Au	0,2772		0,2695	$0,2637 \pm 0,0066$

Tableau 2.3 Les valeurs moyennes expérimentales pondérées (cf. tableau 2.2) comparées aux valeurs empiriques et théoriques

2.1.7 Les valeurs choisies pour ce travail

Pour déterminer la section efficace de production de rayons de type K pour les atomes Ti, Cu Ag et Au à partir d'une raie donnée, nous avons utilisé les valeurs moyennes expérimentales pondérées du rapport d'intensité $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$, qui sont des valeurs fiables, présentées dans la dernière colonne du Tableau 2.3. En effet, elles sont en accord avec les valeurs des ajustements empiriques les plus récents et les valeurs théoriques.

Dans le cas de l'argent, nous avons calculé la section efficace de production de rayons X de type K à partir de la raie $K'_{\beta 2}$. Dans le cas de l'or, nous avons calculé la section efficace de production de rayons X de type K à partir des deux raies $K_{\alpha 2}$ et $K_{\alpha 1}$. Pour calculer ces sections efficaces, nous avons utilisé les rapports théoriques $I_{K'_{\beta 2}}/I_{K\alpha}$, $I_{K_{\alpha 2}}/I_{K_{\alpha 1}}$ donnés par (Scofield, 1974a) car aucune valeur expérimentale n'a été trouvée pour ces deux rapports. On a utilisé la valeur de 0,1813 pour l'argent et celle de 0,5874 pour l'or.

2.2 Rendement de fluorescence ω

La détection des rayons X de type K, durant nos expériences, nous permet de mesurer la section efficace de production pour les différents éléments (voir chapitre III partie 3.1.2). Pour convertir la section efficace de production de rayons X de type K en section efficace d'ionisation de la couche K, nous avons besoin de connaître le rendement de fluorescence pour chaque élément étudié. La section efficace d'ionisation est la grandeur déterminée par les modèles théoriques. C'est donc un élément important pour comparer les grandeurs mesurées aux valeurs calculées.

Dans les paragraphes suivants, nous avons étudié la variation du rendement de fluorescence de la couche K en fonction du numéro atomique à travers les valeurs expérimentales, théoriques, empiriques et semi-empiriques que l'on peut trouver dans la littérature.

2.2.1 Les valeurs expérimentales

Plusieurs études expérimentales ont été réalisées sur le rendement de fluorescence de la couche K pour différents éléments.

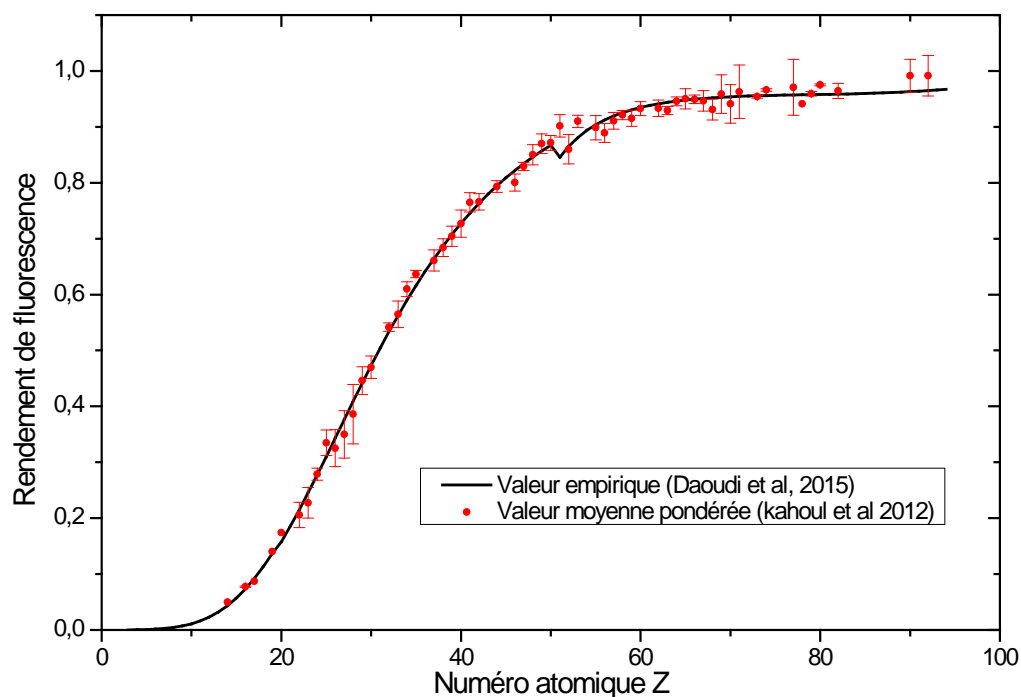


Figure 2.4 La valeur moyenne pondérée pour les données expérimentales des rendements de fluorescence de la couche K (points rouges) comparée avec l'ajustement polynomial par morceaux le plus récent (Daoudi, et al., 2015).

La figure 2.4 présente la variation de la valeur moyenne pondérée des données expérimentales du rendement de fluorescence (points rouges) en fonction du numéro atomique pour les différents éléments ayant un numéro atomique entre 14 et 92. Ces valeurs moyennes ont été calculées à partir des données expérimentales publiées entre 1994 et 2011 (Kahoul, et al., 2012).

La valeur moyenne pondérée des données expérimentales du rendement de fluorescence $\bar{\omega}_{KP}$ prend en compte l'incertitude sur les valeurs expérimentales selon l'équation suivante :

$$\bar{\omega}_{KP} = \left(\sum_{i=1}^N \left(\frac{1}{\Delta\omega_i} \right)^2 \right)^{-1} \sum_{i=1}^N \left(\frac{\omega_i}{(\Delta\omega_i)^2} \right) \quad (2.10)$$

La forme de la distribution est ajustée par un polynôme d'ordre 4 en Z qui décrit au mieux les résultats expérimentaux (Kahoul *et al* 2011). L'ajustement polynomial, présenté sur la figure (Figure 2.4), provient de l'étude la plus récente faite par (Daoudi, et al., 2015) dans laquelle les données ont été ajustées par morceaux selon trois intervalles de numéro atomique Z (voir le tableau 2.2). Du fait de la nature de l'ajustement, ce dernier présente des discontinuités sur les bords des intervalles d'interpolation. L'écart entre les valeurs moyennes pondérées selon (Kahoul, et al., 2012) et cet ajustement varie selon les trois intervalles. Dans la région des éléments légers ($Z < 20$), l'écart varie de 3 à 15% à cause du manque des données dans cette région. Dans la région des éléments moyens ($20 < Z < 50$), il varie de 0,02 à 8%. Dans la région des éléments lourds ($50 < Z < 99$), il varie de 0,02 à 6,2%. Compte tenu des discontinuités de l'ajustement de Douadi et al, ce dernier ne sera pas utilisé dans ce travail.

Cible	ω_K	Référence	$\bar{\omega}_K$	Ecart type pour $\bar{\omega}_K$	$\bar{\omega}_{KP}$
^{22}Ti	$0,205 \pm 0,005$	(Garg, et al., 1985)	0,221	0,009	$0,2148 \pm 0,005$
	$0,216 \pm 0,008$	(Bhan, et al., 1981)			
	$0,214 \pm 0,004$	(Şimşek, et al., 2000)			
	$0,222 \pm 0,006$	(Şimşek, et al., 2002b)			
	$0,222 \pm 0,027$	(Şahin, et al., 2005)			
	$0,218 \pm 0,008$	(Yashoda, et al., 2005)			
	$0,234 \pm 0,019$	(Han, et al., 2007)			
	$0,230 \pm 0,028$	(Ménesguen, et al., 2010)			
^{29}Cu	$0,229 \pm 0,012$	(Aylikci, et al., 2014)	0,448	0,018	$0,4489 \pm 0,006$
	$0,448 \pm 0,010$	(Garg, et al., 1985)			
	$0,441 \pm 0,018$	(Arora, et al., 1981)			
	$0,440 \pm 0,018$	(Bhan, et al., 1981)			
	$0,425 \pm 0,021$	(Pious, et al., 1992)			
	$0,452 \pm 0,003$	(Solé, et al., 1994)			
	$0,412 \pm 0,029$	(Durak, et al., 2001)			
	$0,455 \pm 0,015$	(Şimşek, et al., 2000)			
	$0,470 \pm 0,013$	(Şimşek, et al., 2002b)			
	$0,438 \pm 0,016$	(Gowda, et al., 2005)			
	$0,452 \pm 0,036$	(Han, et al., 2007)			
	$0,455 \pm 0,03 *$	(Aylikci, et al., 2009)			
	$0,478 \pm 0,047$	(Söğüt., 2010)			
	$0,437 \pm 0,019$	(Ménesguen, et al., 2010)			
$0,4776 \pm 0,028$	(Aylikci, et al., 2014)				
$0,456 \pm 0,028$	(Yilmaz, et al., 2015)				

^{47}Ag	$0,843 \pm 0,046$	(AL-Nasr, et al., 1987)	0,834	0,015	$0,8325 \pm 0,0102$
	$0,856 \pm 0,025$	(Garg, et al., 1985)			
	$0,857 \pm 0,034$	(Arora, et al., 1981)			
	$0,861 \pm 0,072$	(Bhan, et al., 1981)			
	$0,826 \pm 0,005$	(Takiue, et al., 1980)			
	$0,836 \pm 0,04$	(Balakrishna, et al., 1994)			
	$0,829 \pm 0,038$	(Durak, et al., 2001)			
	$0,843 \pm 0,047$	(Şimşek, et al., 2002a)			
	$0,818 \pm 0,018$	(Şimşek, et al., 2002b)			
	$0,815 \pm 0,041$	(Seven, 2002)			
	$0,827 \pm 0,066$	(Ertuğrul, et al., 2002)			
	$0,830 \pm 0,026$	(Gudennavar, et al., 2003)			
$0,821 \pm 0,032$	(Gowda, et al., 2005)				
$0,834 \pm 0,01$	(Bennal, et al., 2007)				
^{79}Au	$0,959 \pm 0,014$	(Gudennavar, et al., 2003)	0,963	0,006	$0,9593 \pm 0,0421$
	$0,967 \pm 0,083$	(Apaydin, et al., 2006)			

Tableau 2.4 Rendement de fluorescence expérimental de pour chacun des éléments étudiés.

Le Tableau 2.4 présente les mesures récentes pour le rendement de fluorescence de la couche K, ω_K , pour les atomes des cibles irradiées durant cette thèse Ti, Cu, Ag et Au. Şimşek et al. ont déterminé le rendement de fluorescence pour les éléments ayant des numéros atomiques entre $22 \leq Z \leq 30$ et $33 \leq Z \leq 53$ avec un détecteur Ge(Li) (Şimşek, et al., 2000) et (2002a). Il a utilisé un deuxième détecteur Si(Li) pour déterminer de nouveau le rendement de fluorescence pour les éléments ayant des numéros atomiques entre $22 \leq Z \leq 64$ (Şimşek, et al., 2002b). Les résultats des deux expériences sont en bon accord puisque l'écart entre eux est compatible avec les barres d'erreurs associées aux mesures.

(Aylikci, et al., 2009) ont montré que les rendements de fluorescence ω_K du Co et du Cu dans des alliages de CuCoAg, avec différentes concentrations de Co et de Cu, sont identiques à ceux mesurés avec des cibles pures (dans la limite des erreurs expérimentales). Dans ce cas, nous avons calculé les valeurs moyennes de ces différentes mesures (Tableau 2.4)

Pour chaque élément et à partir des valeurs présentées, la valeur moyenne du rendement de fluorescence $\bar{\omega}_K$, l'écart type de la valeur moyenne du rendement de fluorescence et la valeur moyenne pondérée $\bar{\omega}_{Kp}$ ont été calculés. L'erreur sur la valeur moyenne pondérée est la moyenne des écarts avec les données expérimentales.

2.2.2 Les valeurs théoriques, semi-empiriques et empiriques

Des calculs théoriques du rendement de fluorescence ont été réalisés par (McGuire, 1969), (1970) en utilisant le modèle Hartree-Fock-Slater pour les éléments de numéro atomique Z compris entre 4 et 54. Ultérieurement, des calculs théoriques non relativistes du rendement de fluorescence ont été réalisés par (Kostrun, et al., 1971b), (1971a) avec l'utilisation des fonctions hydrogénoïdes pour les éléments ayant de numéro atomique compris entre 10 et 70. Plus récemment, Krause (1979) a fait un ajustement semi-empirique sur les rendements de fluorescence à partir des données expérimentales publiées entre 1955 et 1972 pour les atomes ayant un numéro atomique Z compris entre 22 et 69. En 1981 Bambynek a déterminé un ajustement semi-empirique du rendement de fluorescence pour les éléments compris entre

l'aluminium et l'uranium ($Z=13$ à $Z=92$). Puis, quelques années plus tard, le même auteur a proposé un nouvel ajustement empirique des données expérimentales existantes sur la même gamme de Z (Bambynek, 1984). Enfin, une étude récente par (Kahoul, et al., 2011), (2012) a montré que l'ajustement par un polynôme en Z , selon la formule (2.11), reproduit au mieux la tendance des valeurs expérimentales :

$$\omega_K = \left(\frac{(\sum_{n=0}^{n=3} b_n Z^n)^4}{1 + (\sum_{n=0}^{n=3} b_n Z^n)^4} \right) \quad (2.11)$$

Le même auteur, (Kahoul, et al., 2012), a refait un ajustement empirique du rendement de fluorescence selon l'équation (2.11), en utilisant des mesures expérimentales entre 1984 à 2011. Finalement, en 2015, (Daoudi, et al., 2015) a réalisé un nouvel ajustement empirique par morceaux du rendement de fluorescence, toujours selon l'équation (2.11), en utilisant plus de mesures expérimentales (reparties entre 1934 à 2015). Les coefficients de ce dernier ajustement sont présentés dans le Tableau 2.5 pour les trois régions de numéro atomique Z . L'erreur quadratique moyenne dans le Tableau 2.5 a été calculée par la formule suivante :

$$\varepsilon_{rms} = \left[\sum \frac{1}{N} \left(\frac{\omega_K(\text{données}) - \omega_K(\text{ajustement})}{\omega_K(\text{ajustement})} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (2.12)$$

Avec N est le nombre de séries de données expérimentales utilisées.

Numéro atomique Z	Coefficients	Erreur ε_{rms} (%)
$3 \leq Z \leq 20$	$b_0 = 0,04039$ $b_1 = 0,02048$ $b_2 = 0,00104$ $b_3 = -(2,5337) \times 10^{-5}$	50,1
$21 \leq Z \leq 50$	$b_0 = -0,12024$ $b_1 = 0,04655$ $b_2 = (-4,7486) \times 10^{-4}$ $b_3 = (4,6223) \times 10^{-6}$	6,2
$51 \leq Z \leq 99$	$b_0 = 10,90047$ $b_1 = 0,49268$ $b_2 = 0,00623$ $b_3 = 2,66449 \times 10^{-5}$	3,4

Tableau 2.5 les coefficients des ajustements du rendement de fluorescence pour différentes régions en Z et l'erreur quadratique moyenne ε_{rms} sur l'ajustement.

L'erreur quadratique moyenne est élevée pour les éléments de faible numéro atomique ($3 \leq Z \leq 20$), parce que d'une part les données expérimentales existantes pour cette région sont peu nombreuses (51 valeurs expérimentales) comparées aux autres régions (448 valeurs expérimentales pour l'intervalle compris entre $21 \leq Z \leq 50$ et 245 valeurs expérimentales pour celui compris entre $51 \leq Z \leq 99$) et d'autre part, le rendement de fluorescence pour les éléments légers est petit ce qui rend les expériences compliquées et peut induire des erreurs supplémentaires lors de l'analyse des données (Daoudi, et al., 2015).

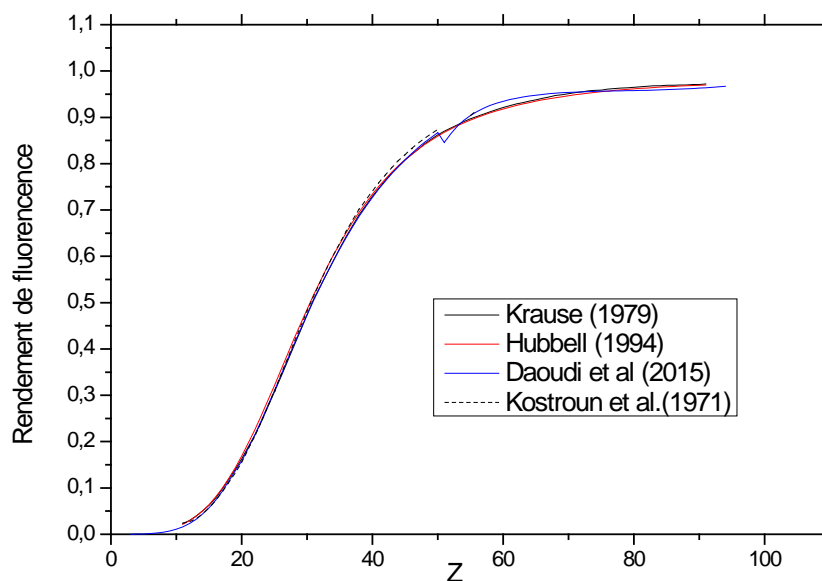


Figure 2.5 Le modèle théorique du rendement de fluorescence selon Kostroun et al (1971) comparé avec les modèles semi empiriques selon Krause (1979) et Hubbell et al (1994) et le modèle empirique de Daoudi et al. (2015)

La Figure 2.5 présente la variation théorique du rendement de fluorescence en fonction de numéro atomique selon Kostroun et al (1971) comparé avec les modèles semi empiriques de Krause (1979) et celui de Hubbell et al (1994) et la dernière étude empirique selon Daoudi et al. (2015). La comparaison entre ces différentes valeurs est divisée en 3 régions :

- 1- Pour la région des éléments de numéro atomique faible ($12 < Z < 21$), l'écart entre le rendement de fluorescence déterminé par Daoudi et al (2015) et la théorie selon Kostroun et al (1971) est compris entre 0,14 % et 3,6%. Par rapport aux modèles semi-empiriques de Krause (1979) et Hubbell et al (1994), les écarts varient de 3,4 % jusqu'à 21,5%.
- 2- Pour la région correspondant aux éléments ayant des numéros atomiques moyens ($20 < Z < 51$), l'écart entre le rendement de fluorescence déterminé par Daoudi et al (2015) et la théorie selon Kostroun et al (1971) est compris entre 0,86 % et 2,82%. Par rapport aux modèles semi-empiriques de Krause (1979) et Hubbell et al (1994), les écarts varient de 0,02 % jusqu'à 5,82%.
- 3- Pour la région correspondant aux éléments ayant des numéros atomiques grands ($50 < Z < 99$), l'écart entre le rendement de fluorescence déterminé par Daoudi et al (2015) et la théorie selon Kostroun et al (1971) est compris entre 0,002 % et 3%. Par rapport aux modèles semi-empiriques de Krause (1979) et Hubbell et al (1994), les écarts varient de 0,009 % jusqu'à 2,9%.

Les 4 études sont en accord pour les éléments avec un numéro atomique entre 20 et 99. Le modèle théorique selon Kostroun et al et l'ajustement polynomial empirique de Daoudi et al sont en bon accord pour les trois régions. Ce dernier point renforce la fiabilité du l'ajustement empirique de Daoudi et al., sauf pour les éléments du numéro atomique autour de 50 (à cause de la discontinuité de l'ajustement).

Le tableau suivant regroupe le rendement de fluorescence des atomes de nos cibles (Ti, Cu, Ag et Au) dans les différentes domaines, théorique selon Kostroun *et al.* (1971), semi-empirique de Krause (1979), empirique de Daoudi *et al.* (2015), les valeurs expérimentales moyennes pondérées et non pondérées calculées par Kahoul *et al.* (2012) et les valeurs expérimentales moyennes pondérées calculées pendant ce travail pour les données publiées entre 1980 et 2015.

Cible	Rendement de fluorescence ω_K					
	Théorique	Semi-empirique	Empirique	Valeur moyenne expérimental		
	Kostroun (1971)	Krause (1979)	Daoudi (2015) (1934-2015)	Kahoul (2012)		Pondéré (ce travail) (1980-2015)
				Non pondérée (1994-2011)	Pondérée (1994-2011)	
Ti	0,212	0,214	0,215	0,216	0,206	$0,2148 \pm 0,0050$
Cu	0,448	0,44	0,442	0,442	0,446	$0,4489 \pm 0,0060$
Ag	0,844	0,831	0,835	0,828	0,829	$0,8320 \pm 0,0102$
Au	-	0,964	0,958	0,963	0,959	$0,9593 \pm 0,0421$

Tableau 2.6 les valeurs des rendements de fluorescence théoriques, semi-empiriques, empiriques et expérimentales pour les atomes Ti, Cu, Ag et Au.

Le Tableau 2.6 montre que la variation du rendement de fluorescence de la couche K entre les différentes méthodes est inférieure à 5% pour le Ti, à 3,5% pour le Cu, à 2,2% pour l'Ag et à 1% pour l'or.

2.2.3 Les valeurs choisies pour ce travail

Pour convertir la section efficace de production en section efficace d'ionisation pour les atomes Ti, Cu, Ag et Au, nous avons utilisé les valeurs moyennes expérimentales et pondérées du rendement de fluorescence que nous avons établi à partir des données expérimentales publiées entre 1980 et 2015 (valeurs présentées dans la dernière colonne du Tableau 2.6). Ces dernières valeurs sont en bon accord avec les valeurs du modèle théorique et celles du dernier ajustement empirique et ne comporte pas de biais lié à la méthode d'ajustement.

2.3 Section efficace d'ionisation

Nous allons expliquer en bref le modèle théorique de la section efficace d'ionisation qui est basé sur l'approximation de Born de l'onde plane (pour plus de détails voir l'annexe A).

2.3.1 Le modèle de l'approximation d'Onde Plane de Born

L'émission de photons X induite par les ions incidents est basée sur l'ionisation des couches internes d'un atome par un faisceau de particules chargées. Dans le modèle de l'approximation d'onde plane de Born (PWBA) [(Merzbacher, et al., 1958) (Lapicki, et al., 1981)], on fait les hypothèses suivantes :

- Les états initial et final sont des ondes planes
- Les états des électrons de la cible sont ceux de l'atome non perturbé.

À partir de cette hypothèse, la section efficace d'ionisation différentielle par rapport à l'angle solide $d\Omega$ est proportionnelle à la matrice de diffusion $|f_k(\theta, \varphi)|^2$ selon l'équation suivante

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{k_d}{k_i} |f_k(\theta, \varphi)|^2 \quad (2.13)$$

où k_d est le vecteur d'onde diffusé, k_i est le vecteur d'onde incident.

Pour cela on utilise le potentiel qui décrit l'interaction entre les états des électrons éjectés par rapport au centre de masse (Bransden, et al., 2003) :

$$V(R) = \frac{Z_1 e^2}{4\pi\epsilon_0} \int d^3r_2 \phi_{nf}^*(r_2) \left(\frac{1}{R} - \frac{1}{|\vec{R} - \vec{r}_2|} \right) \phi_{ni}(r_2) \quad (2.14)$$

où Z_1 est le numéro atomique de la particule incidente, \vec{R} est le vecteur position de la particule incidente par rapport au centre de l'atome, \vec{r}_2 est le vecteur de position de l'électron par rapport au centre de l'atome, $\phi_{nf}^*(r_2)$ et $\phi_{ni}(r_2)$ sont les fonctions d'onde initiale et finale de l'électron.

La section efficace d'ionisation d'une couche s ($s=K, L_I, L_{II}, \dots$) peut s'écrire sous la forme suivante:

$$\sigma_s^{PWBA} = 8\pi a_0^2 \frac{Z_1^2}{Z_{2s}^4 \eta_s} f_s(\eta_s, \theta_s) \quad (2.15)$$

où a_0 est le rayon de Bohr, Z_{2s} est la charge électrique effective du noyau de l'atome cible (de numéro atomique Z_2) vu par un électron de l'orbitale s et f_s est une fonction dépendant du facteur de forme de la cible.

Les quantités sans dimension, θ_s et η_s , décrivent respectivement l'énergie réduite de liaison atome-électron et l'énergie réduite de l'ion. On obtient finalement l'expression suivante pour la section efficace d'ionisation par une particule chargée dans l'approximation de Born (Born, et al., 1927) :

$$\sigma_s^{PWBA} = \sigma_{s0} \frac{1}{\eta_s} f_s(\eta_s, \theta_s) \quad (2.16)$$

Avec σ_{s0} qui a la dimension d'une section efficace. En utilisant la variable ξ_s qui mesure le temps caractéristique de l'orbitale s par rapport au temps de collision, la section efficace d'ionisation de la couche s s'exprime sous la forme suivante :

$$\sigma_s^{PWBA} = \sigma_{s0} \frac{1}{\theta_s} F_s(\xi_s, \theta_s) \quad (2.17)$$

F_s est une autre fonction dépendant du facteur de forme de la cible.

Un des effets les plus importants qui a été négligé dans l'approche PWBA est la déviation coulombienne de la particule incidente due au noyau de l'atome-cible. Cette interaction s'oppose à la pénétration profonde de la particule dans les orbites internes, ce qui réduit évidemment d'autant plus la section efficace d'ionisation que la particule incidente est lente. On doit aussi tenir compte des corrections venant de la perturbation des orbites électroniques provoquée par le passage de la particule incidente chargée qui entraîne une augmentation de l'énergie de liaison des électrons.

2.3.2 Le modèle ECPSSR (Energy loss Coulomb repulsion Perturbed Stationary State Relativistic theory)

La prise en compte des corrections additionnelles suggérées dans le paragraphe précédent a mené à la théorie ECPSSR [(Lapicki, et al., 1981) et (Lapicki, 2005)], qui corrige la section efficace d'ionisation calculée dans le cadre de l'approximation de Born. Outre les corrections d'énergie de liaison des électrons (PSS - Perturbed Stationary-States) et de déviation coulombienne par le noyau (C), les effets dus au caractère relativiste des électrons (R) et à la perte d'énergie de la particule incidente lors de l'ionisation (E) ont été intégrés dans la formulation de la section efficace d'ionisation. Ces différents facteurs vont être décrits dans la section suivante.

2.3.3 Correction de la liaison des électrons de la cible

La correction de la liaison des électrons de la cible est traduite par les états stationnaires perturbés (PSS) de l'électron de l'atome cible (de numéro atomique Z_2) qui deviennent ceux d'une molécule diatomique (cible + particule incidente) à basse énergie. Quand $Z_1 \ll Z_2$, l'approximation de Born a été utilisée pour décrire les états électroniques d'un atome de numéro atomique $Z_1 + Z_2$. Dans ce cas, l'énergie de liaison des électrons atomiques augmente, ce qui induit une diminution de la section efficace d'ionisation.

Aux énergies intermédiaires et élevées, la particule chargée perturbe l'état stationnaire et entraîne un effet dit de polarisation qui aura comme conséquence une augmentation de la section efficace. On peut prendre en considération ces deux effets en corrigeant la section efficace de Born comme suit :

$$\sigma_S^{PSS} = \sigma_S^{PWBA} \left(\frac{\xi_S}{\zeta_S}, \theta_S \right) \quad (2.18)$$

où ζ_S est défini comme étant :

$$\zeta_S = 1 + \frac{2Z_1}{Z_{2S}\theta_S} (g_S(\xi_S) - h_S(\xi_S)) \quad (2.19)$$

où

$$g_K = \frac{1 + 9\xi_k + 31 \xi_k^2 + 98 \xi_k^3 + 12 \xi_k^4 + 25 \xi_k^5 + 4,2 \xi_k^6 + 0,515 \xi_k^7}{(1 + \xi_k)^9} \quad (2.20)$$

$$g_{L_1} = \frac{1 + 9\xi_k + 31 \xi_k^2 + 49 \xi_k^3 + 162 \xi_k^4 + 63 \xi_k^5 + 18 \xi_k^6 + 1,97 \xi_k^7}{(1 + \xi_k)^9} \quad (2.21)$$

$$g_{L_{2,3}} = \frac{1 + 10 \xi_k + 45 \xi_k^2 + 102 \xi_k^3 + 331 \xi_k^4 + 6,7 \xi_k^5 + 58 \xi_k^6 + 7,8 \xi_k^7 + 0,888 \xi_k^8}{(1 + \xi_k)^9} \quad (2.22)$$

et

$$h_S(\xi_S) = \frac{2n_2}{\theta_S \xi_S^3} I \left(\frac{C_S n_2}{\xi_S} \right) \quad (2.23)$$

où $C_k = C_{L_1} = 1,5$ et $C_{L_2} = C_{L_3} = 1,25$.

La fonction $I(x)$ est donnée par la relation :

$$I(x) = \begin{cases} \frac{2e^{-2x}}{x^{1,6}} & 3 \leq x < 11 \\ \frac{2e^{-2x}}{0,031 + 0,21x^{0,5} + 0,005x - 0,069x^{1,5} + 0,324x^2} & 0,035 \leq x < 3 \\ 0,75\pi \left[\ln \left(\frac{1}{x^2} \right) - 1 \right] & 0 < x < 0,035 \end{cases} \quad (2.24)$$

2.3.4 Correction de la déviation coulombienne de l'ion incident

Pour les particules à basse énergie, l'approximation de Born néglige l'influence de la répulsion entre les noyaux de la particule incidente et de l'atome cible (Brandt, et al., 1981). La correction de déviation coulombienne (C) modifie la trajectoire de la particule incidente et prend en compte une trajectoire hyperbolique. Le coefficient $C_S(d, q_{min}, \xi_S)$ est alors défini pour représenter la correction coulombienne :

$$C_S(d, q_{min}) = (9 + 2l_2) E_{10+2l_2}(\pi, d, q_{min}) \quad (2.25)$$

où d est la demi distance d'approche dans une collision frontale, q_{min} le vecteur d'onde de transfert minimal de la diffusion et E_{10+2l_2} est l'intégrale exponentielle d'ordre $(10 + 2l_2)$ avec l_2 qui est le nombre quantique associé au moment orbital angulaire de l'atome cible. La section d'ionisation s'écrit alors :

$$\sigma_S^{CPSS} = C_S(d \cdot q_{min} \cdot \xi_S) \sigma_S^{PWBA} \left(\frac{\xi_S}{\zeta_S}, \zeta_S \theta_S \right) \quad (2.26)$$

2.3.5 Correction relativiste des électrons de la cible

Cette correction tient compte de l'effet relativiste des électrons des orbites internes. Ce facteur est particulièrement important pour les électrons des atomes de Z_2 élevé. Le facteur de correction de la masse relativiste de l'électron est défini comme :

$$m_s^R(\xi_S) = \sqrt{1 + 1,1y_s^2} + y_s \quad (2.27)$$

où

$$y_{K,L_1} = \frac{0,4 \left(\frac{Z_{2S}}{c} \right)^2}{n_s \xi_{K,L_1}}, \quad y_{L_2,L_3} = \frac{0,15 \left(\frac{Z_{2L}}{c} \right)^2}{\xi_{L_2,L_3}} \quad (2.28)$$

La section efficace d'ionisation s'écrit alors :

$$\sigma_S^{CPSSR} = C_S(d \cdot q_{min} \cdot \xi_S) \sigma_S^{PWBA} \left(\sqrt{m_s^R} \frac{\xi_S}{\zeta_S}, \zeta_S \theta_S \right) \quad (2.29)$$

2.3.6 Correction de la perte d'énergie de l'ion incident

La correction de la perte d'énergie de la particule incidente lors du processus d'ionisation est trouvée à partir de la comparaison entre la modèle PWBA et EPWBA qui décrit la perte d'énergie (Energy-loss) par W. Brandt et G. Lapicki (Brandt, et al., 1981), la section efficace d'ionisation du modèle EPWBA est :

$$\sigma_S^{EPWBA} = f_S(z_S) \sigma_S^{PWBA} \quad (2.30)$$

Avec

$$f_S(z_S) = 2^{-\nu} (\nu - 1)^{-1} [(v z_S - 1)(1 + z_S)^\nu + (v z_S + 1)(1 - z_S)^\nu] \quad (2.31)$$

où $\nu = 9$ pour les orbitales s et L_1 et $\nu = 11$ pour les orbitales L_2 et L_3 .

$$z_S = \sqrt{1 - \frac{4}{M_1 \xi_S \theta_S} \left(\frac{\xi_S}{\zeta_S} \right)^2} \quad (2.32)$$

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

$$C_S^E(X) = C_S \left(\frac{2X}{Z_S(Z_S + 1)} \right) \quad (2.33)$$

Finalement, la section efficace d'ionisation dans la théorie ECPSSR sera :

$$\sigma_S^{ECPSSR} = C_S^E(d \cdot q_{min} \cdot \xi_S) \times f_S(Z_S) \times \sigma_S^{PWBA} \left(\sqrt{m_S^R \left(\frac{\xi_S}{\zeta_S} \right) \frac{\xi_S}{\zeta_S}}, \zeta_S \theta_S \right) \quad (2.34)$$

2.3.7 Correction du modèle ECPSSR

Le logiciel ISICS (Inner-Shell Ionization Cross Section) [(Liu, et al., 1996), (Cipolla, 2007), (Cipolla, 2009) et (Cipolla, 2011)] propose des corrections pour le modèle ECPSSR sous forme d'options. La première option consiste à prendre en compte l'effet relativiste de la particule incidente et la deuxième option consiste à prendre en compte la correction des fonctions d'onde des électrons.

2.3.8 Correction relativiste de l'ion incident RECPSSR

RECPSSR est un modèle qui prend en compte l'effet relativiste (R) des particules incidentes. La section efficace d'ionisation RECPSSR de la couche s (s=K, L_I, L_{II},...) est de la forme suivante :

$$\sigma_S^{RECPSSR} = C_S^E(d \cdot q_{min} \cdot \xi_S) \times f_S^R(Z_S) \times \sigma_S^{PWBA} \left(\sqrt{m_S^R \left(\frac{\xi_S}{\zeta_S} \right) \frac{\xi_S}{\zeta_S}}, \zeta_S \theta_S \right) \quad (2.35)$$

La figure ci-dessous présente le rapport de sections efficaces des modèles RECPSSR et ECPSSR, pour différentes cibles (Ti, Cu, Ag et Au), en fonction de l'énergie de la particule incidente (1-70MeV).

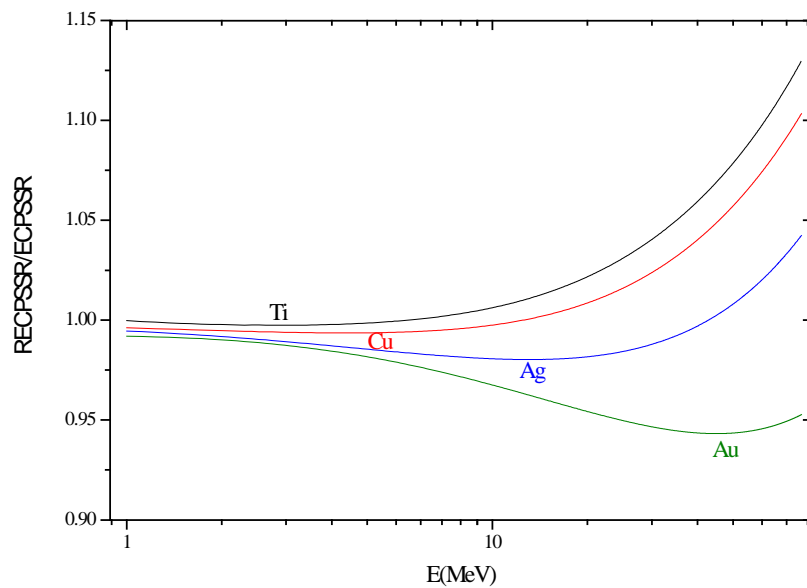


Figure 2.6 Le rapport des sections efficaces RECPSSR/ECPSSR de la couche K pour différents éléments (Ti, Cu, Ag et Au) en fonction de l'énergie du proton incident.

Les deux modèles ont des valeurs proches pour les faibles énergies incidentes des protons. Pour une énergie donnée, l'effet relativiste n'est pas le même en fonction des éléments. Il dépend de l'énergie de liaison de l'électron de la couche K ainsi que de sa vitesse.

Pour chaque élément, le rapport RECPSSR/ECPSSR passe par un minimum et à partir d'une certaine énergie, l'effet relativiste du projectile augmente la section efficace d'ionisation de la couche K.

2.3.9 Correction des fonctions d'ondes des électrons ECPSShsR

La Figure 2.7 présente les rapports de la section efficace d'ionisation de la théorie ECPSShsR sur ECPSSR pour différentes cibles (Ti, Cu, Ag et Au) en fonction de l'énergie des protons.

Les rapports montrent que l'utilisation de la fonction d'onde relativiste de Dirac-Hartree-Slater (hsR) est liée au numéro atomique de la cible. Pour un numéro atomique élevé, comme dans le cas de l'or, la section efficace d'ionisation ECPSShsR est plus grande que celle de la théorie ECPSSR. Le rapport $\sigma_K^{ECPSShsR} / \sigma_K^{RECPSSR}$ du Ti et Cu sont quasiment identiques. Ce changement de la fonction d'onde n'a pas d'influence sur l'ionisation à haute énergie pour les éléments légers.

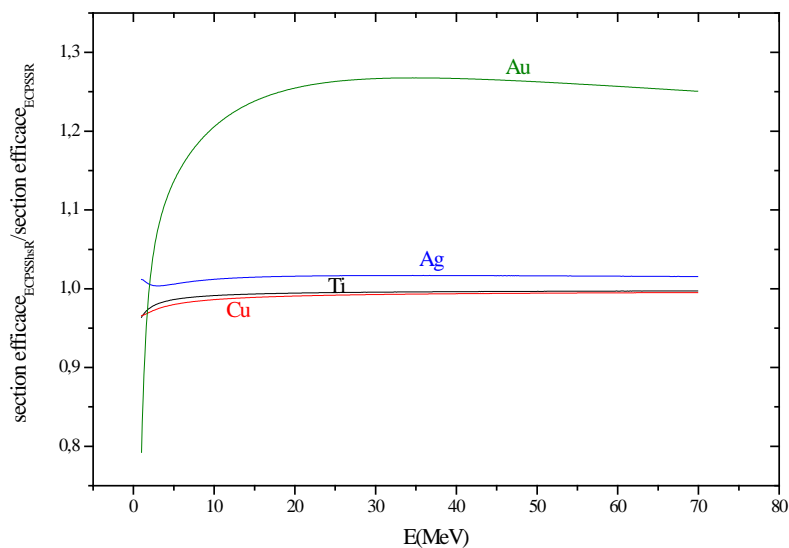


Figure 2.7 Les courbes des rapports des sections efficaces d'ionisation (ECPSShsR) sur (ECPSSR) de la couche K en fonction de l'énergie du proton incident pour différents cibles (Ti, Cu, Ag et Au)

2.4 Les sections efficaces expérimentales, empiriques et théoriques

2.4.1 Les sections efficaces expérimentales entre 1 et 70 MeV

Plusieurs études expérimentales ont été menées pour la mesure de la section efficace d'ionisation de la couche K pour différents éléments. Les figures (Figure 2.8, Figure 2.9, Figure 2.10 et Figure 2.11) présentent les valeurs expérimentales pour les différentes cibles Ti, Cu, Ag et Au en fonction de l'énergie des protons incidents entre 1 et 70 MeV.

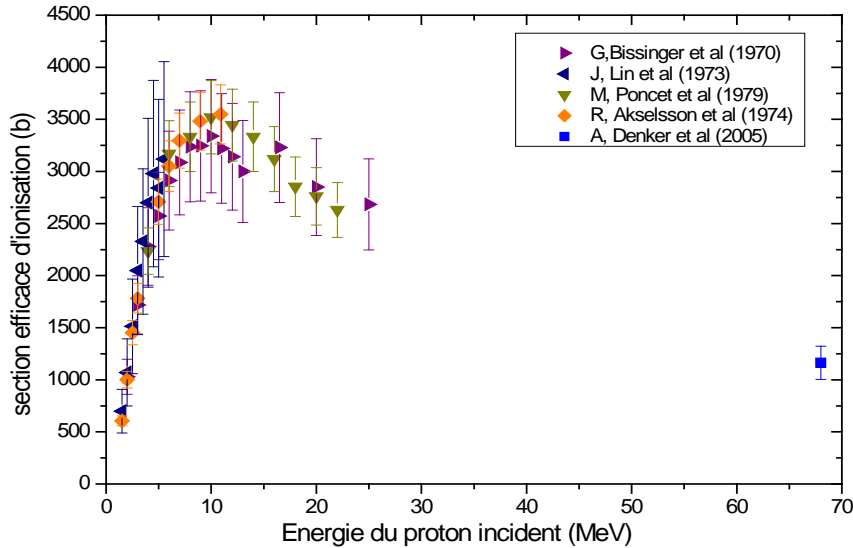


Figure 2.8 Données expérimentales de la section efficace d'ionisation de la couche K pour le titane en fonction de l'énergie du proton incident

La figure (Figure 2.8) montre l'absence de mesures de sections efficace d'ionisation de la couche K pour le titane au-delà de 25 MeV. On trouve seulement une mesure réalisée par (Denker, et al., 2005) à 68 MeV en 2005. Les données à basse énergie (<8 MeV) sont cohérentes entre les différentes sources disponibles.

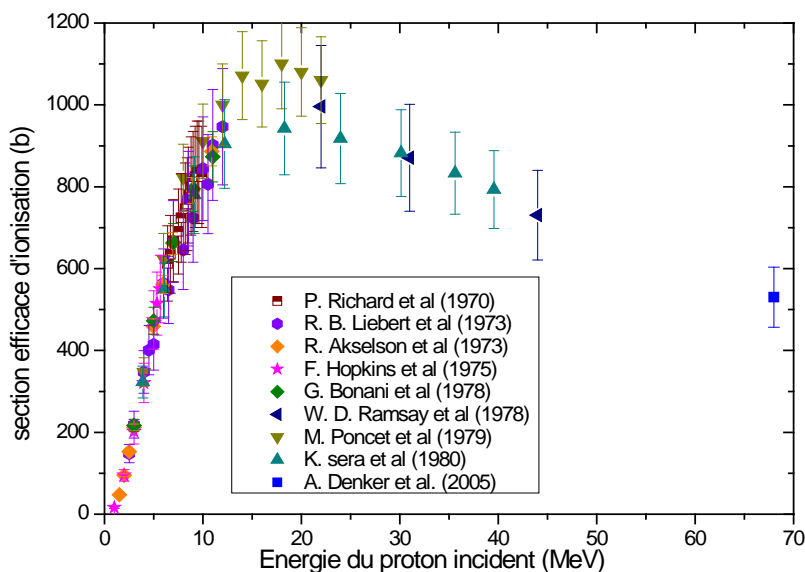


Figure 2.9 Données expérimentales de la section efficace d'ionisation de la couche K pour le cuivre en fonction de l'énergie du proton incident

La Figure 2.9 montre que dans le cas du cuivre, il y a des données jusqu'à 45 MeV puis un gap entre 45 MeV et 68 MeV. La mesure à 68 MeV a aussi été réalisée par (Denker, et al., 2005). Les données à basse énergie (<10 MeV) sont cohérentes entre les différentes sources disponibles.

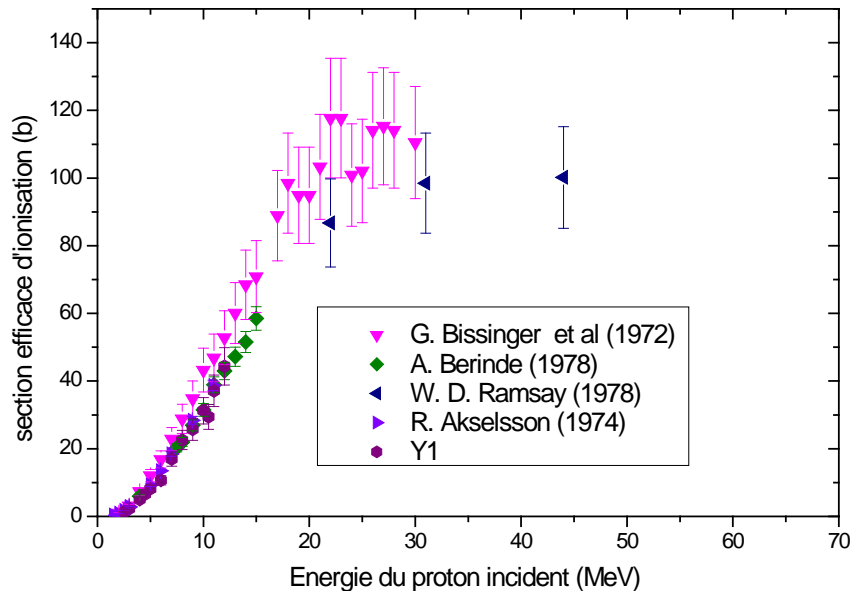


Figure 2.10 Données expérimentales de la section efficace d'ionisation de la couche K pour l'argent en fonction de l'énergie du proton incident.

Dans le cas de l'argent (Figure 2.10), les données expérimentales présentent une forte disparité à partir de 15 MeV et avec des grandes barres d'erreurs. A partir de 30 MeV, il existe seulement deux mesures.

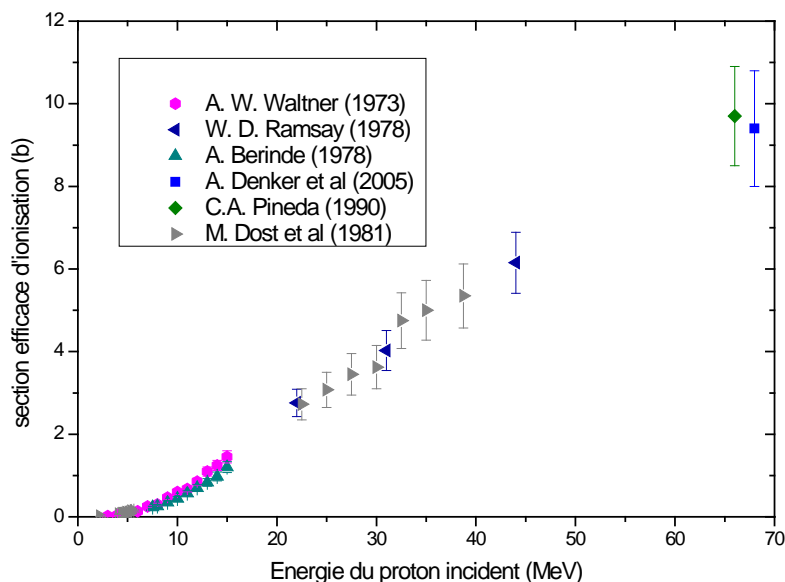


Figure 2.11 Données expérimentales de la section efficace d'ionisation de la couche K pour l'or en fonction de l'énergie du proton incident.

La Figure 2.11 montre l'existence de quelques mesures de section efficace d'ionisation de la couche K pour l'or à haute énergie. On retrouve un gap entre 45 MeV et 68 MeV.

Le manque de données expérimentales de la section efficace d'ionisation de la couche K pour différentes cibles (Ti, Cu, Ag et Au) explique notre choix de réaliser une campagne expérimentale pour avoir des valeurs mesurées dans les zones où il n'y en a pas. On a donc porté notre effort sur la zone 30 MeV – 68 MeV. L'évolution qui semble douce des valeurs de sections efficaces nous permet à priori de prendre un pas de mesure relativement large (à peu près une dizaine de MeV). Une mesure sera réalisée à 68 MeV pour comparer avec les données de (Denker, et al., 2005).

2.4.2 Comparaison entre les sections efficaces expérimentales et empiriques à basse énergie < 10 MeV

Pour la section efficace d'ionisation de la couche K avec les ions légers, il existe plusieurs modèles empiriques. Parmi eux, celui développé par (Paul, et al., 1989) est largement utilisé par la communauté de PIXE à basse énergie (Campbell, et al., 1993). Ce modèle a été optimisé avec des données expérimentales publiées avant 1989 pour des énergies incidentes majoritairement inférieures à 10 MeV. L'optimisation a été faite sur 5 régions de numéro atomique ($Z=4-10$, $11-30$, $31-41$, $41-60$ et $61-92$). En 2011 (Kahoul, et al., 2011) a fait un nouvel ajustement sur un grand nombre de données expérimentales publiées avant 2010, Cet ajustement regroupe les sections efficaces d'ionisation de la couche K à basse énergie (<10 MeV) pour différents éléments ayant un numéro atomique de 4 à 92.

Les figures (Figure 2.12, Figure 2.13, Figure 2.14 et Figure 2.15) présentent les valeurs expérimentales de la section efficace d'ionisation de la couche K pour les différentes cibles Ti, Cu, Ag et Au en fonction de l'énergie des protons incidents, comparées avec les valeurs des ajustements par (Kahoul, et al., 2011) et (Paul, et al., 1989) pour des énergies inférieures à 10 MeV.

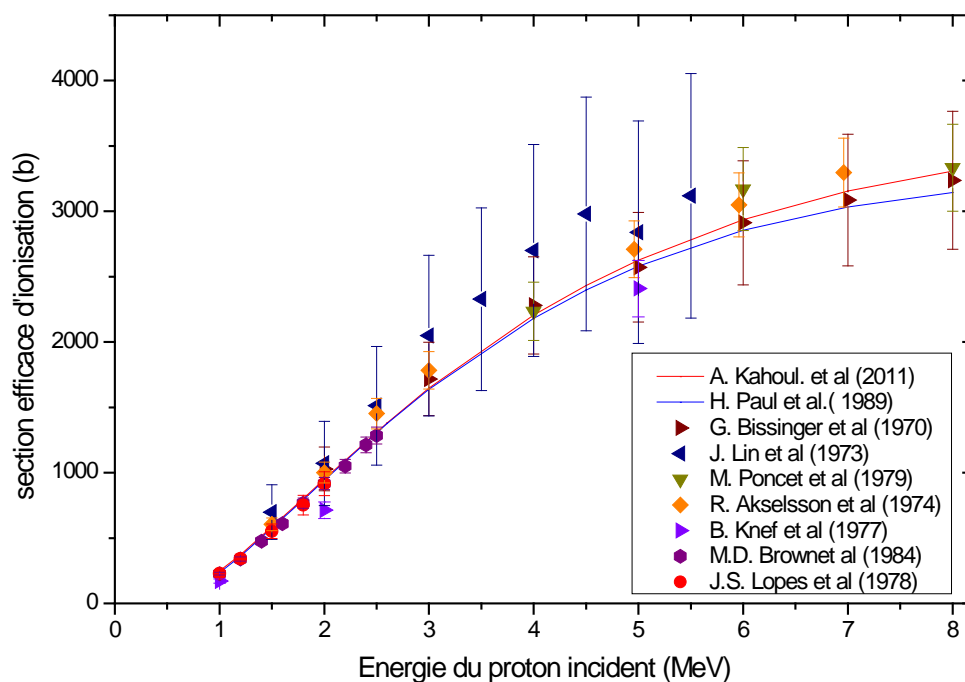


Figure 2.12 Les données expérimentales de la section efficace d'ionisation de la couche K du titane, comparées avec les modèles empiriques, en fonction de l'énergie du proton incident.

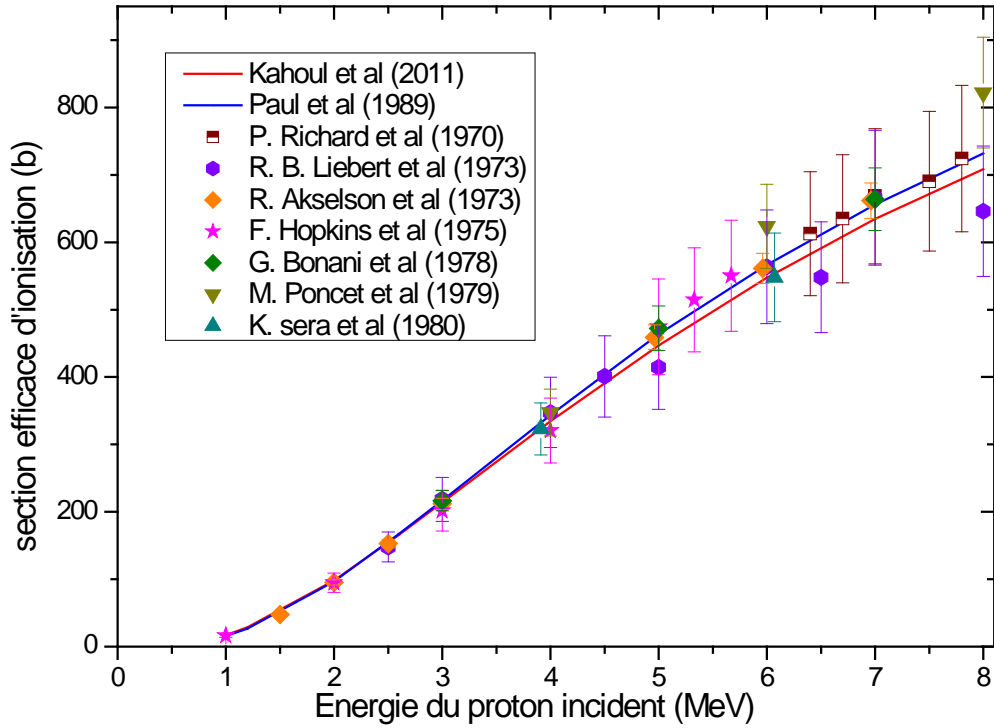


Figure 2.13 Les données expérimentales de la section efficace d'ionisation de la couche K du cuivre, comparées avec les modèles empiriques, en fonction de l'énergie du proton incident.

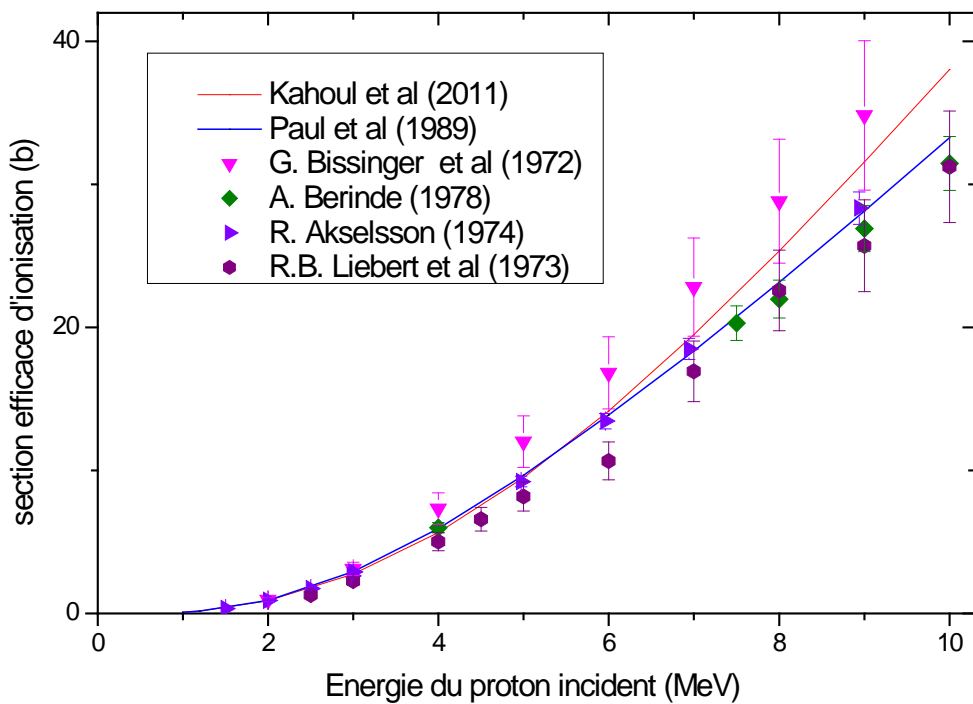


Figure 2.14 Les données expérimentales de la section efficace d'ionisation de la couche K de l'argent, comparées avec les modèles empiriques, en fonction de l'énergie du proton incident

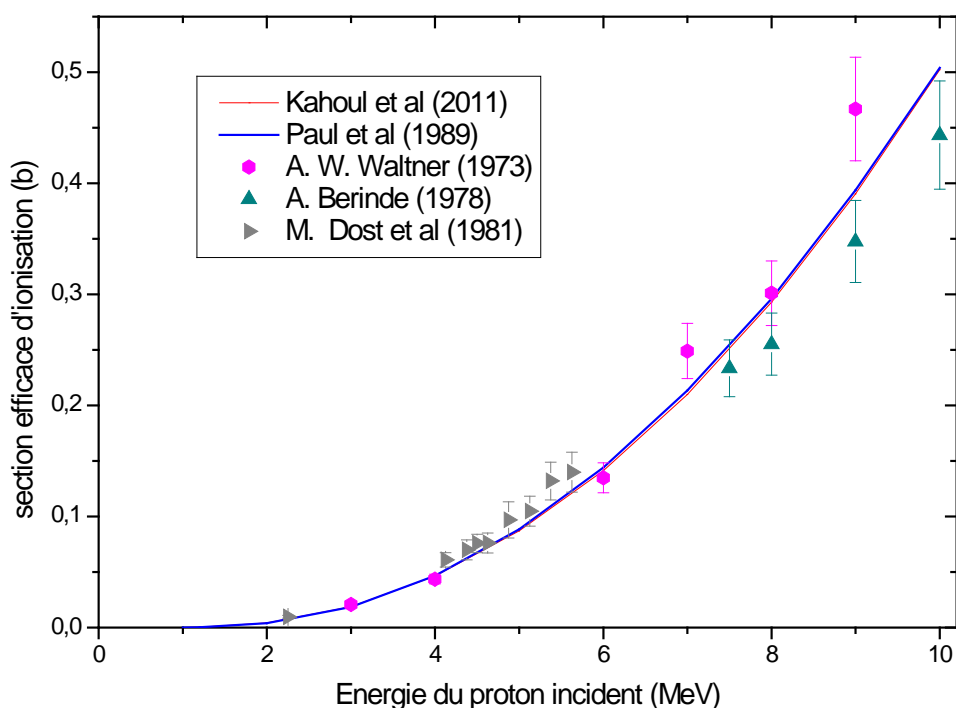


Figure 2.15 Les données expérimentales de la section efficace d'ionisation de la couche K de l'or, comparées avec les modèles empiriques, en fonction de l'énergie du proton incident

Les figures ci-dessus montrent que les deux modèles sont en bon accord avec les mesures expérimentales à basse énergie. Les deux modèles diffèrent au fur et à mesure que l'énergie augmente pour l'argent. C'est aussi pour cet élément qu'on a une dispersion importante des données. L'écart entre les deux modèles empiriques est au maximum de 5% dans le cas du titane, 7% dans le cas du cuivre, 11% dans le cas de l'argent et 4% dans le cas de l'or. Les bases de données utilisées par les deux études ne sont pas les mêmes ce qui explique l'écart entre les deux modèles.

2.4.3 Comparaison entre les sections efficaces théoriques et empiriques à basse énergie <10 MeV.

Les figures (Figure 2.16, Figure 2.17, Figure 2.18 et Figure 2.19) présentent les deux modèles empiriques (Kahoul, et al., 2011) et (Paul, et al., 1989) ainsi que les modèles théoriques PWBA, ECPSSR et RECPSSR de la section efficace d'ionisation de la couche K pour les éléments Ti, Cu, Ag et Au en fonction de l'énergie du proton incident. Les valeurs des modèles théoriques sont calculées par le logiciel ISICS (voir Chapitre 3.2.4).

Pour cette gamme en énergie, l'effet relativiste lié à l'ion incident est négligeable et il y a une faible différence entre les deux modèles RECPSSR et ECPSSR. Pour cela, les différentes comparaisons de cette partie ont été faites seulement avec ECPSSR.

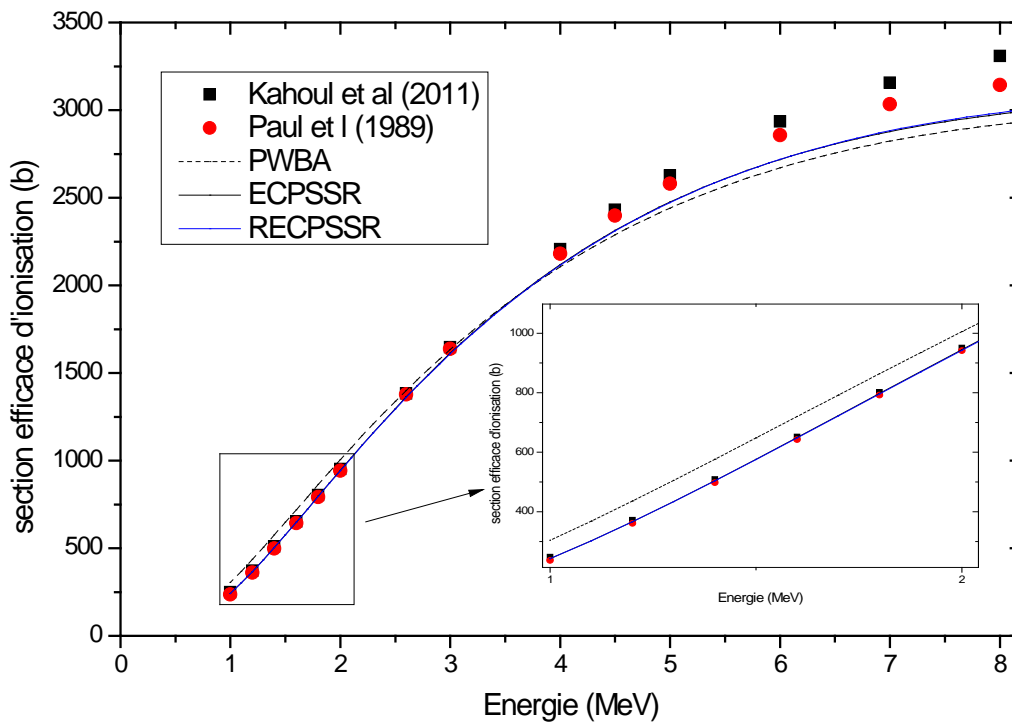


Figure 2.16 les sections efficaces théoriques (courbes) et les sections efficaces empiriques (points) dans le cas de Ti.

La Figure 2.16 montre que la section efficace d'ionisation de modèle ECPSSR paraît reproduire mieux les deux ajustements. L'écart varie jusqu'à 23% entre les valeurs empiriques et le modèle PWBA. Par contre pour le modèle ECPSSR, l'écart avec les valeurs empiriques est réduit et il varie entre 4 et 10%.

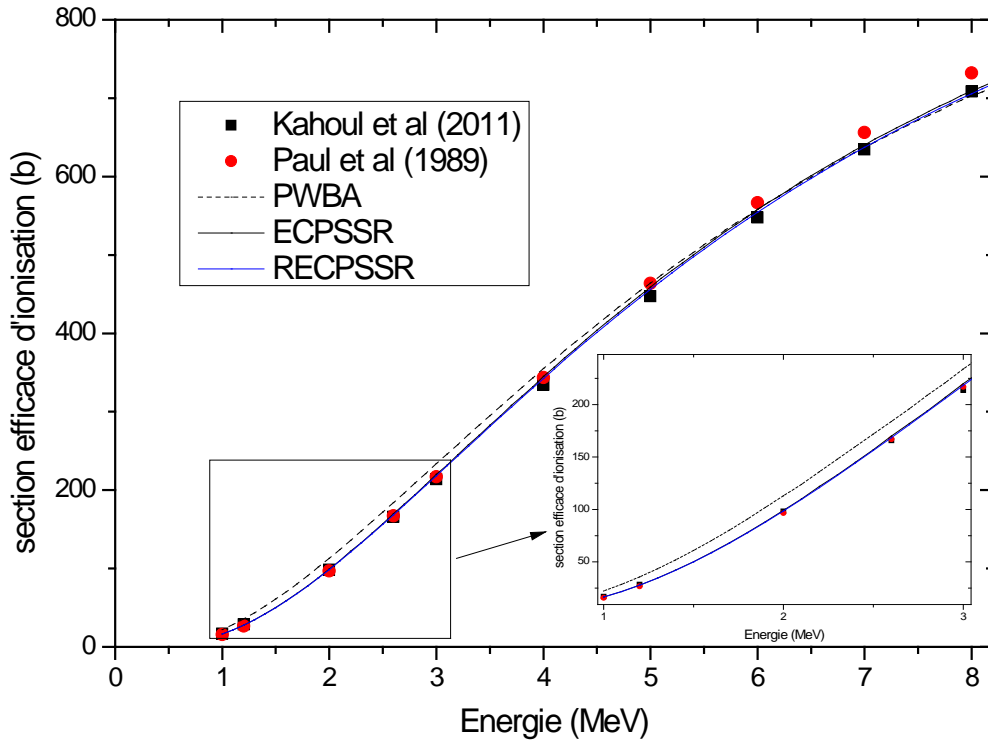


Figure 2.17 Les sections efficaces théoriques (courbes) et les sections efficaces empiriques (points) dans le cas de Cu.

La figure ci-dessus (Figure 2.17) montre que le modèle ECPSSR a un faible écart avec les valeurs empiriques (< 3 %), tandis que pour le PWBA, l'écart varie jusqu'à 30%. Comme dans le cas du Ti, le modèle ECPSSR décrit mieux les valeurs empiriques que le PWBA.

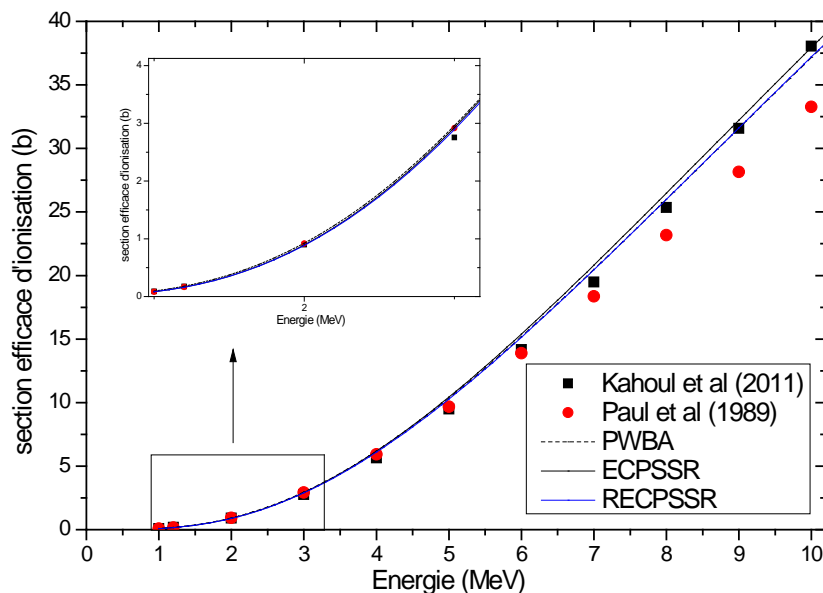


Figure 2.18 Les sections efficaces théoriques (courbes) et les sections efficaces empiriques (points) dans le cas de l'Ag

Dans le cas de l'argent, (Figure 2.18) les deux modèles PWBA et ECPSSR sont proches des valeurs empiriques selon l'ajustement de (Kahoul, et al., 2011).

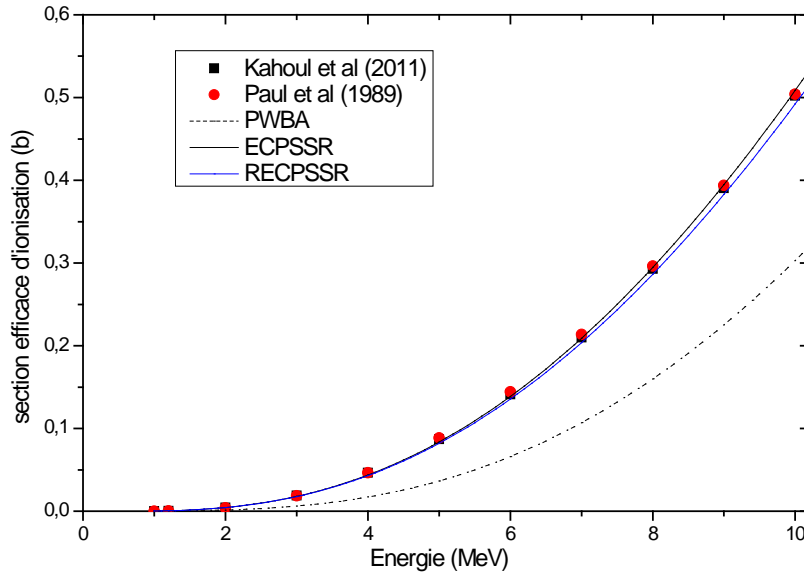


Figure 2.19 Les sections efficaces théoriques (en courbes) et les sections efficaces empiriques (en points) dans le cas de l'or

Dans le cas de l'or (Figure 2.19), les valeurs empiriques sont en bon accord avec la théorie ECPSSR avec un écart moins de 4 %. Pour le PWBA, il y a une grande divergence avec les valeurs empiriques. Les différentes corrections apportées par le modèle ECPSSR ont une grande conséquence sur la section efficace d'ionisation de l'or qui a un numéro atomique élevé, comme on s'y attend.

En résumé, les figures (Figure 2.16, Figure 2.17, Figure 2.18 et Figure 2.19) montrent que les modèles théoriques ECPSSR et RECPSSR, dans cette gamme d'énergie du projectile, sont en bon accord avec les deux modèles empiriques (Kahoul, et al., 2011) et (Paul, et al., 1989) dans le cas de Ti, Cu, Ag et Au.

2.4.4 Comparaison entre les sections efficaces expérimentales et théoriques à haute énergie jusqu'à 70 MeV.

Dans cette partie, nous comparons les sections efficaces théoriques seulement avec les sections efficaces expérimentales et non pas avec celles qui sont empiriques. En effet, à haute énergie, on trouve des valeurs seulement selon le modèle empirique de (Paul, et al., 1989) et avec des grandes incertitudes (>10%). Cela est principalement dû au faible nombre de données disponibles.

Les figures (Figure 2.20, Figure 2.21, Figure 2.22 et Figure 2.23) présentent les données expérimentales de la section efficace d'ionisation de la couche K en fonction de l'énergie des protons incidents entre 1 et 70 MeV, comparées avec celles issues des différentes valeurs théoriques des modèles PWBA (courbe pointillée), ECPSSR (courbe en noir) et RECPSSR (courbe en bleu).

Dans le cas du titane (Figure 2.20), les deux modèles PWBA et ECPSSR sont très proches à haute énergie. En effet, les différentes corrections du modèle ECPSSR ont des faibles conséquences à haute énergie. La prise en compte des effets relativistes du projectile par l'approche RECPSSR explique la différence avec les 2 autres modèles.

Les mesures expérimentales entre 6 et 15 MeV sont en accord avec la théorie compte tenu des barres d'erreurs qui sont très grandes. Les mesures de (Poncet, et al., 1979) sont en bon accord avec la théorie entre 15 et 20 MeV. La dernière mesure à haute énergie de (Denker, et al., 2005) est au-dessous de la valeur théorique.

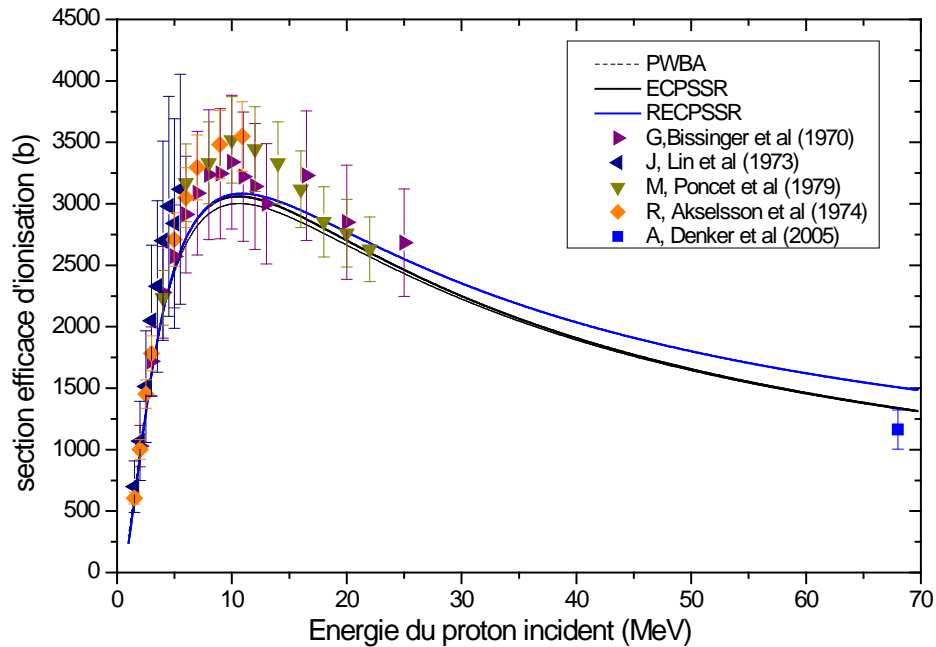


Figure 2.20 Sections efficaces d'ionisation de la couche K pour le titane (expérimentales et théoriques) en fonction de l'énergie.

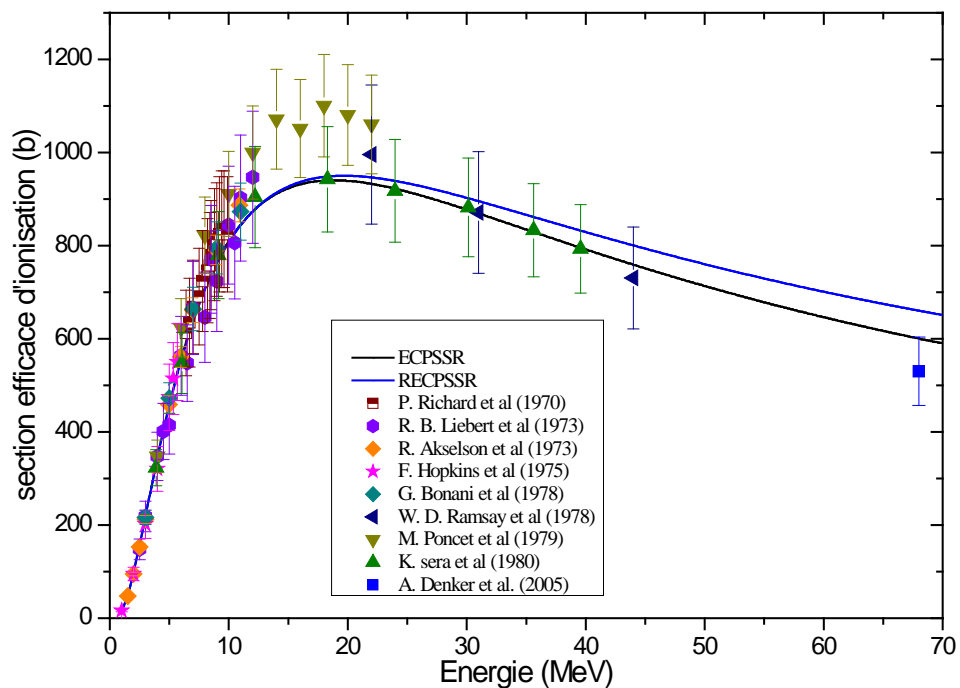


Figure 2.21 Sections efficaces d'ionisation de la couche K pour le cuivre (expérimentales et théoriques) en fonction de l'énergie.

Dans le cas du cuivre (Figure 2.21), les mesures expérimentales sont en bon accord avec la théorie sur une large gamme en énergie. Dans la région du maximum de la section efficace, il y a un désaccord en moyenne de 17% avec les mesures de (Poncet, et al., 1979). Comme dans le cas du titane, la dernière mesure à haute énergie (68MeV) de (Denker, et al., 2005) se trouve au-dessous de la théorie.

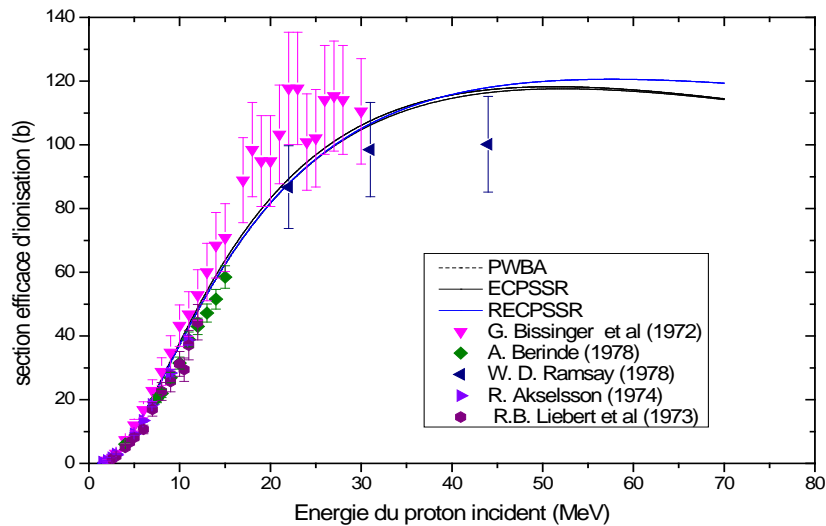


Figure 2.22 Sections efficaces d'ionisation de la couche K pour l'argent (expérimentales et théoriques) en fonction de l'énergie.

Dans le cas de l'argent (Figure 2.22), les mesures expérimentales entre 10 et 15 MeV sont en accord en moyenne avec la théorie. A partir de 15 MeV, il y a une divergence des données expérimentales associée à de grandes barres d'erreurs ce qui rend la comparaison délicate.

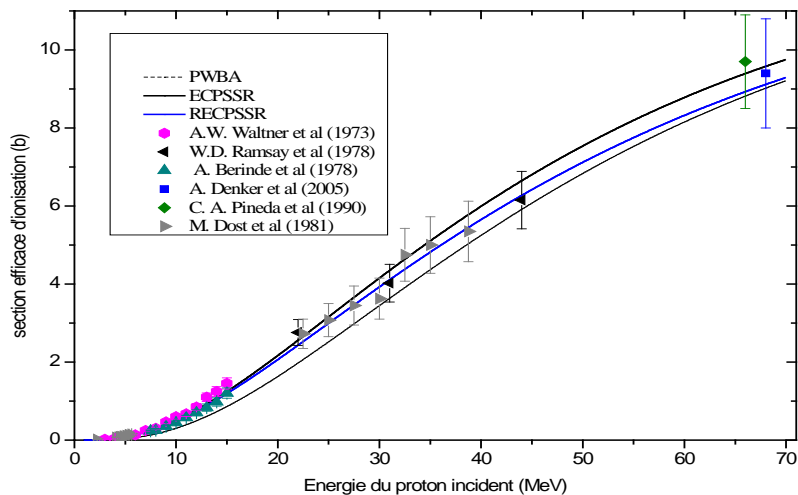


Figure 2.23 Sections efficaces d'ionisation de la couche K pour l'or (expérimentales et théoriques) en fonction de l'énergie.

Dans le cas de l'or (Figure 2.23), les deux modèles ECPSSR et PWBA sont différents à haute énergie à cause de l'effet relativiste de l'électron de la couche K. Les données expérimentales à partir de 20 MeV sont en accord avec le modèle ECPSSR. Elles sont aussi en accord avec

le modèle RECPSSR. Ces valeurs se trouvent loin du maximum de la section efficace qui est autour de 160 MeV (Liu, et al., 1996). On retrouve le même comportement, vis-à-vis du modèle ECPSSR, que pour les données expérimentales des autres éléments (Ti, Cu et Ag) à basse énergie (en amont du maximum de la section efficace).

2.4.5 Section efficace d'ionisation universelle

Pour montrer les résultats pour différents numéros atomiques sur la même courbe nous avons utilisé la section efficace d'ionisation universelle (Basba's, et al., 1978). Il s'agit de présenter le produit entre la section efficace d'ionisation et le carré du potentiel d'ionisation (Lide, 2004) de la couche K, $\sigma_i U_K^2$, en fonction du rapport de l'énergie de la particule incidente (E) sur le produit du potentiel d'ionisation de la couche K, (U_K), et de λ qui correspond au rapport de la masse du proton M_P sur la masse d'électron m_e :

$$\lambda = \frac{M_P}{m_e} \quad (2.36)$$

Les deux Figure 2.24 et Figure 2.25 montrent la section efficace d'ionisation universelle pour les atomes de titane, cuivre, argent et or en fonction du rapport de l'énergie normalisée $E/\lambda U_K$, dans le cas du modèle RECPSSR (les courbes) et les données expérimentales (les points).

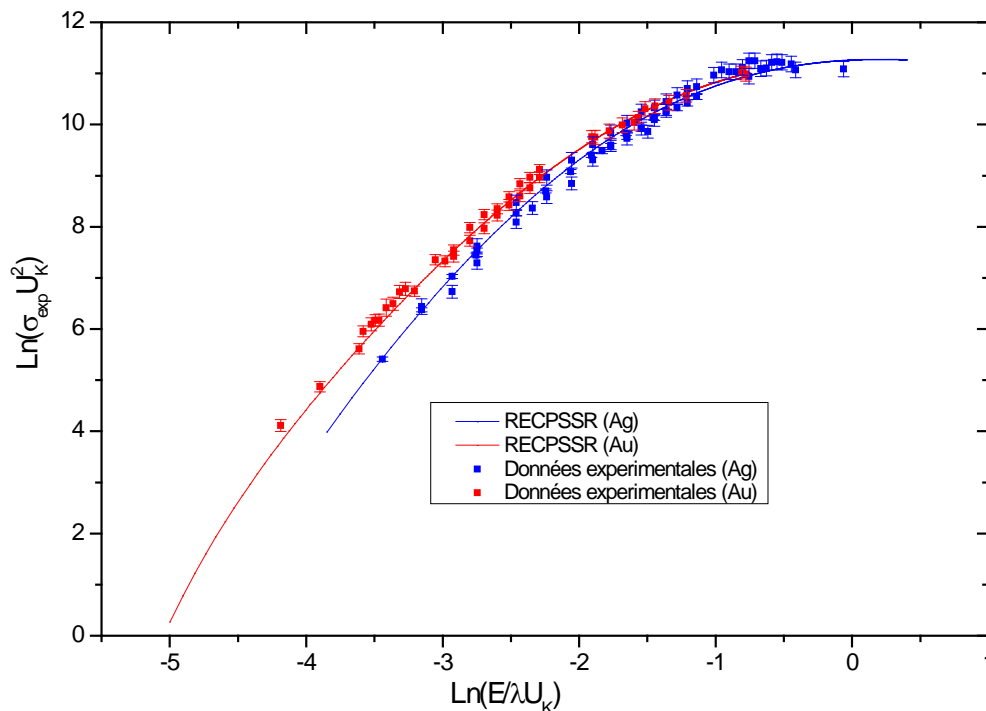


Figure 2.24 Les valeurs expérimentales (les points) et théoriques (les courbes) de la section efficace d'ionisation universelle pour les deux atomes argent et or

Dans le cas de l'Ag et de l'Au (Figure 2.24), les données expérimentales se trouvent avant le maximum des courbes universelles et elles sont en bon accord avec le modèle RECPSSR comme il a été mentionné dans la partie précédente.

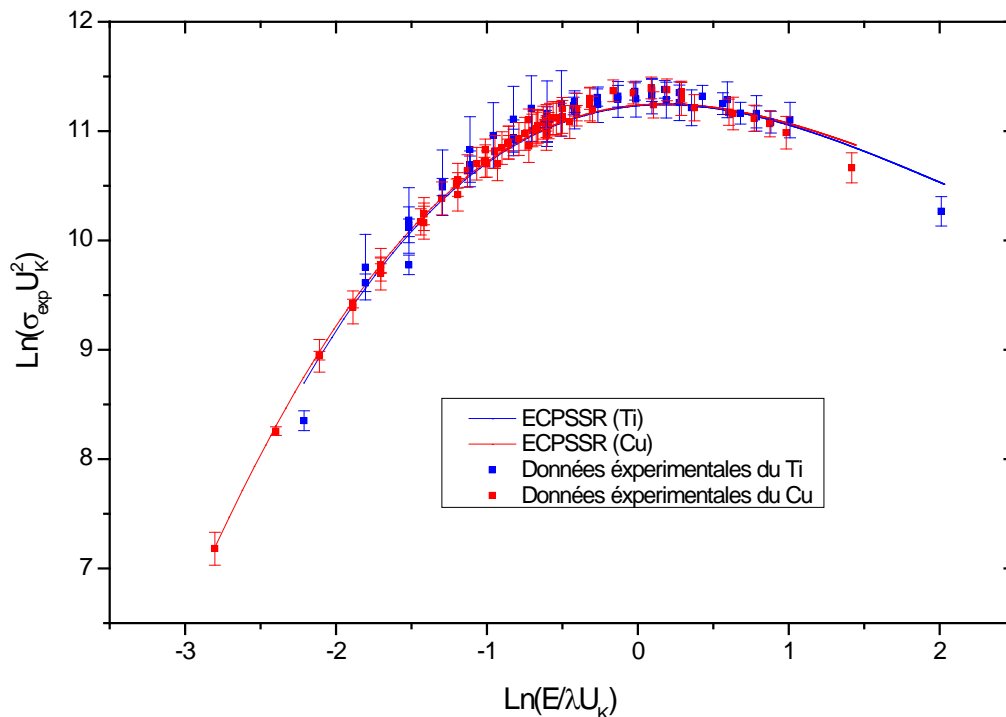


Figure 2.25 Les valeurs expérimentales (les points) et théoriques (les courbes) de la section efficace d'ionisation universelle pour les deux atomes titane et cuivre

Dans le cas du Cu et du Ti (Figure 2.25), les données expérimentales couvrent une large gamme des valeurs de l'énergie réduite. Les valeurs négatives ($< -0,5$) sont en accord avec le modèle RECPSSR comme dans le cas de l'argent et l'or. Par contre, autour du maximum de la section efficace universelle, il y a un écart avec les données et elles n'ont pas la même tendance que le modèle RECPSSR pour les énergies réduites positives. Afin de montrer au mieux la tendance globale des données expérimentales autour du maximum, nous avons présenté dans le cas du Ti (Figure 2.26), l'ajustement empirique de la section efficace universelle fait par Kahoul et al (Kahoul, et al., 2011) pour les valeurs de l'énergie réduite entre -2 et 0,88. Nous n'avons pas présenté l'ajustement pour le Cu parce qu'il a été fait sur une région restreinte de l'énergie réduite qui se trouve avant le maximum de la courbe universelle et ne permet donc pas de contraindre correctement le maximum attendu pour la section efficace universelle.

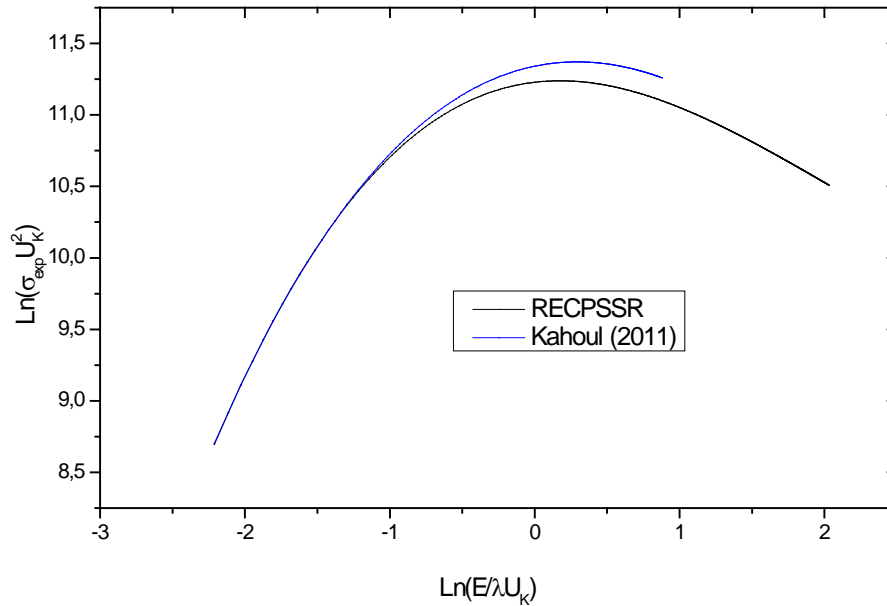


Figure 2.26 les courbes des valeurs empiriques (courbe bleu) selon Kahoul et al 2011 et théoriques RECPSSR (courbe noire) de la fonction universelle de la section efficace d'ionisation de la couche K pour le titane en fonction du rapport d'énergie.

En conclusion, les données expérimentales sont peu nombreuses au-dessus de 30 MeV pour les quatre éléments Ti, Cu, Ag et Au mais aussi pour tous les numéros atomiques en général (Lapicki, 2008). Les données existantes dans cette gamme d'énergie ont des grandes incertitudes et sont parfois différentes entre elles comme dans le cas de l'argent. De plus, pour le cuivre et le titane, il manque des données précises dans la région du maximum de la section efficace où on note une différence entre les modèles et les données expérimentales.

Le modèle ECPSSR est validé pour les énergies < 8 MeV dans le cas du titane et de cuivre. Pour l'argent, il est validé pour les énergies < 15 MeV. Pour l'or, les données expérimentales sont en accord avec ECPSSR à faible énergie < 10 MeV. Par contre, à haute énergie, les données expérimentales sont en accord à la fois avec les deux modèles ECPSSR et RECPSSR. Il est donc difficile de trancher entre ces deux modèles, en particulier à partir de 30 MeV, à cause du manque de données précises.

De nouvelles mesures expérimentales sont nécessaires pour compléter les bases de données expérimentales et pour tester la validité des modèles théoriques.

3 Méthodes et matériels.

Ce chapitre présente l'ensemble des outils et dispositifs utilisés dans ce travail pour la mesure des sections efficaces d'ionisation. Il s'agit de l'accélérateur, le cyclotron ARRONAX, et des caractéristiques des faisceaux utilisés dans ce travail (particules incidentes, énergies et intensités), des cibles utilisées pour les irradiations ainsi que des différents systèmes de détection utilisés pour la mesure des rayons X ainsi que pour réaliser la détermination du nombre de particules incidentes à travers une mesure de l'intensité du faisceau. Les méthodes associées à l'analyse des données sont aussi présentées dans ce chapitre. Il s'agit de la procédure de dépouillement des spectres de photons X mesurés lors des différentes expériences, des méthodes de détermination du nombre de particules incidentes et de la procédure de caractérisation de l'efficacité du détecteur.

3.1 Dispositifs de mesure des sections efficaces d'ionisation au cyclotron ARRONAX

ARRONAX, Accélérateur pour la Recherche en Radiochimie et Oncologie à Nantes-Atlantique, est un accélérateur de particules de la classe des cyclotrons, opérationnel depuis début 2011. Ce cyclotron et les laboratoires associés sont gérés par un groupement d'intérêt public, le GIP Arronax. Il regroupe le CNRS, l'INSERM, l'Université de Nantes, Mines Telecom atlantique, le CHU de Nantes, l'Institut de Cancérologie de l'Ouest, la Région des Pays de Loire et l'Etat. Le GIP Arronax a pour mission d'opérer cette installation afin de soutenir la recherche en médecine nucléaire en produisant des radionucléides innovants mais aussi de supporter des recherches sur des sujets connexes comme la physique, la radiolyse et la radiobiologie (Haddad, et al., 2008).

Le travail réalisé dans cette thèse se situe dans cette seconde partie des missions du GIP Arronax.

3.1.1 La production du faisceau et la salle d'expérience

Le cyclotron Arronax est capable d'accélérer différents types de particules (protons, deutérons et particules α) à haute énergie (jusqu'à 70 MeV pour les protons) et à haute intensité (jusqu'à 350 μ A pour les protons). L'ensemble de ses caractéristiques en fait une machine unique au monde.

Les caractéristiques des faisceaux produits par ARRONAX sont répertoriées dans le tableau suivant :

Faisceau Particules		Energies (MeV)	Intensité sur cible (μ A)
Protons	H^-	30 – 70	≤ 350
	HH^+	17	≤ 50
Deutérons	D^-	15 – 34	≤ 50
Particules α	He^{2+}	68	≤ 70

Tableau 3.1 Principales caractéristiques des faisceaux disponibles auprès d'ARRONAX

Le tableau met en évidence le fait qu'Arronax est capable d'accélérer des particules ayant des charges positives et négatives. Pour cela, il est équipé de 2 bancs de sources d'ions chacun ayant la charge de délivrer les particules d'une polarité donnée. Ainsi une source d'ion ECR (Electron Cyclotron Resonance) est utilisée pour produire les ions positifs (He^{2+} et HH^+) tandis qu'une source multicup plasma produit les ions négatifs (H^- et D^-). On peut voir sur la Figure 3.1, une photo du cyclotron dans la casemate CC avec sur le dessus les 2 bancs de source. L'extraction des ions négatifs est réalisée en utilisant une feuille mince carbone appelée « stripper ». En traversant la feuille, les électrons et le noyau composant le H^- vont être séparés. Ce dernier étant chargé positivement va sortir naturellement de la machine sous l'effet du champ magnétique qui est réglé pour faire tourner des particules chargées négativement (force de Lorentz). Ce mécanisme permet d'avoir des rendements d'extraction dans la machine proches de 100% ce qui est particulièrement important quand on travaille avec des faisceaux de forte intensité et de haute énergie. En effet toute particule perdue, compte tenu de son énergie, va participer à l'activation des structures ce qui rendra l'utilisation et la maintenance de la machine délicate sur le long terme.



Figure 3.1 Le cyclotron ARRONAX en casemate centrale (CC).

Le souhait de pouvoir avoir des faisceaux de particules α oblige à pouvoir créer et accélérer des ions positifs. Dans ce cas, le mécanisme précédent ne peut pas être utilisé et on doit guider les ions vers l'extérieur de la machine à l'aide d'un déflecteur électrostatique. Cette technique a un rendement beaucoup moins bon que la solution avec le « stripper », ~80%, mais c'est la seule disponible.

Compte tenu du faible encombrement d'un « stripper », Arronax possède deux systèmes de ce type placés sur une canne mobile qui peut entrer plus ou moins profondément dans le cyclotron et donc intercepter le faisceau à différentes profondeurs. Cela permet d'avoir accès à des faisceaux sur une large plage en énergie. Ainsi pour les protons et les deutons on peut travailler sur une large gamme en énergie comme on peut le voir dans la 3^{ème} colonne du Tableau 3.1. Cette technique d'extraction permet aussi, si on place deux feuilles de stripper dans la machine

de pouvoir extraire 2 faisceaux simultanément. C'est le fonctionnement en « dual beam » qui est possible seulement pour les H^- et les D^- (ARRONAX).

A l'inverse, un septum électrostatique est encombrant et l'interfaçage avec les autres éléments de la machine est délicat. Il a donc été décidé de placer ce dispositif en périphérie de la chambre à vide. On a donc accès uniquement à l'énergie maximale que l'on peut atteindre avec notre machine pour les particules positives (cf. 3^{ème} colonne du Tableau 3.1.)

La dispersion en énergie des faisceaux à la sortie du cyclotron n'a pas encore été mesurée et on utilise les valeurs fournies par le constructeur et issues de simulations (300 keV pour les protons et les deutons sur la gamme en énergie accessible).

Dans les travaux de la thèse, nous avons utilisé uniquement les protons et deutérons issus de l'accélération d'ions négatifs. Pour les protons nous avons utilisé les énergies suivantes : 30, 40, 54 et 68 MeV tandis que les deutérons ont permis de récupérer des informations à basse énergie en utilisant un faisceau de 16,9 MeV. Ces énergies permettent de couvrir la plage d'énergie utilisée en HEPIXE (voir chapitre II-5).

Pour effectuer des mesures de sections efficaces de production de rayons X, il n'est pas nécessaire de travailler à haute intensité compte tenu des grandes valeurs de ces sections efficaces (de l'ordre du barn). Dans la plupart des expériences nous avons travaillé avec une intensité faisceau de l'ordre de 100 pA.

3.1.2 La salle AX

Le cyclotron ARRONAX est placé au centre d'un ensemble de six casemates nommées P1, P2, P3, A1, A2 et AX (Figure 3.2). Les casemates A1, A2, P1 et P2 sont consacrées à la production de radionucléides et sont équipées de stations d'irradiation spécifiques reliées aux enceintes blindées de traitement par un système pneumatique. Dans ces casemates, on utilise des faisceaux intenses (de l'ordre de la centaine de μA). La casemate P1 contient un dispositif de production de neutrons secondaires. Dans cette casemate, on utilise aussi des faisceaux intenses de protons (entre 100 μA et 350 μA sur cible)

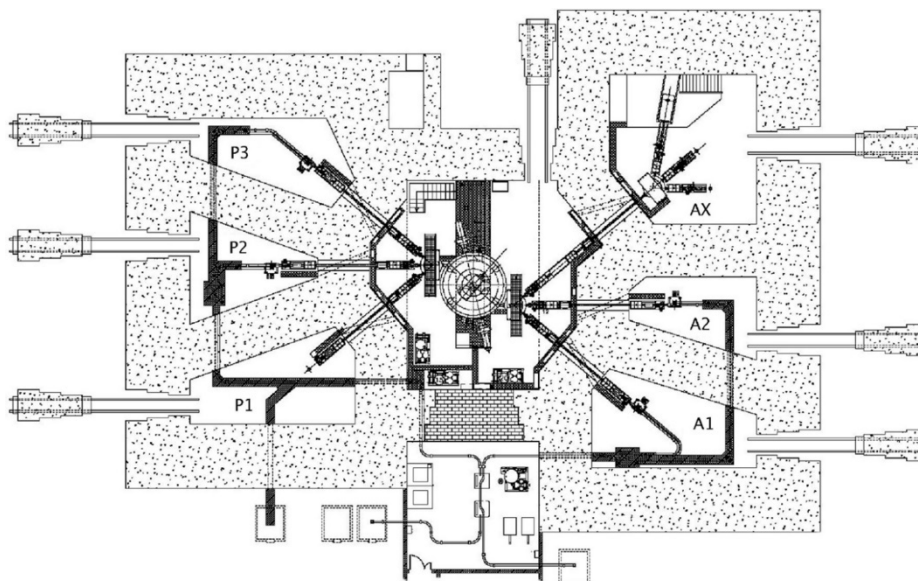


Figure 3.2 Lignes faisceaux du cyclotron ARRONAX et ses casemates

A contrario, la casemate AX est dédiée aux études de recherche avec les faisceaux. Les intensités de faisceau sont volontairement limitées (entre le pA et la centaine de nA). La casemate AX contient trois lignes de faisceau nommées AX3, AX4 et AX5 (Figure.3.3). Les lignes AX3 et AX4 sont horizontales tandis que la ligne AX5 est verticale et débouche dans une fosse où l'on peut installer le matériel expérimental. Chaque ligne est dédiée à un type d'activités. Ainsi les lignes AX4 et AX5 sont utilisées pour la recherche en radiolyse et radiobiologie. La ligne AX3 pour les expériences de physique. C'est donc sur cette ligne que nous avons réalisé nos mesures de sections efficaces d'ionisation.

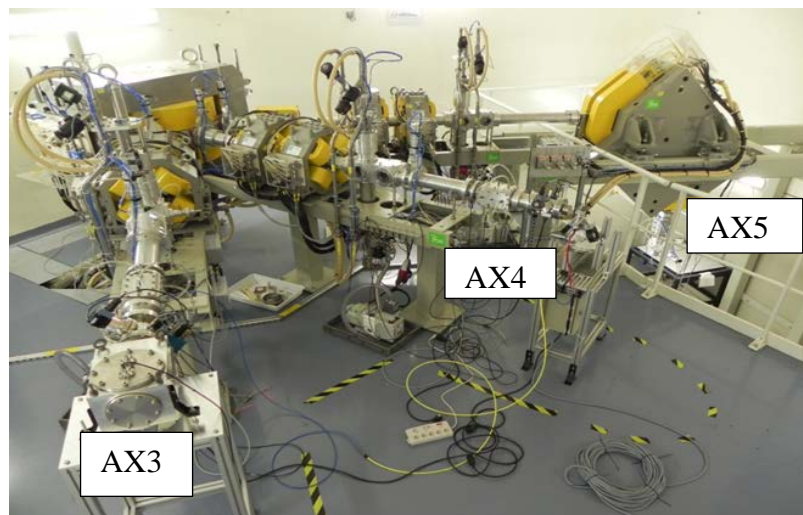


Figure.3.3 La casemate AX avec ces 3 lignes de faisceau.

Les lignes de faisceaux sont fermées avec des brides de fin de ligne ayant une fenêtre en Kapton, de $75\mu\text{m}$ d'épaisseur et un diamètre d'ouverture de 20 mm, permettant d'une part de préserver le vide dans les lignes pour le transport faisceau, et d'autre part de ne pas modifier de manière importante les caractéristiques du faisceau.

Pour réaliser nos expériences, nous avons installé au bout de la ligne faisceau notre dispositif expérimental composé du banc PIXE avec son système de collimation, du détecteur HPGe, du porte cible, de la cage de Faraday et dans certains cas d'un photomultiplicateur permettant la mesure de l'intensité faisceau via la mesure des photons émis par l'excitation de l'argon contenu dans l'air par le passage du faisceau. Un schéma de principe de notre dispositif est présenté sur la figure (Figure 3.4).

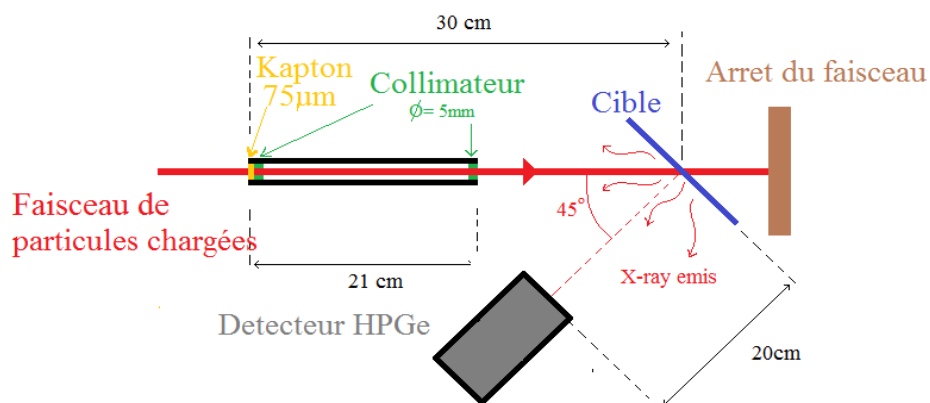


Figure 3.4 Schéma descriptif général de l'expérience HE PIXE à ARRONAX

Une photo du dispositif est présentée dans la Figure 3.5.

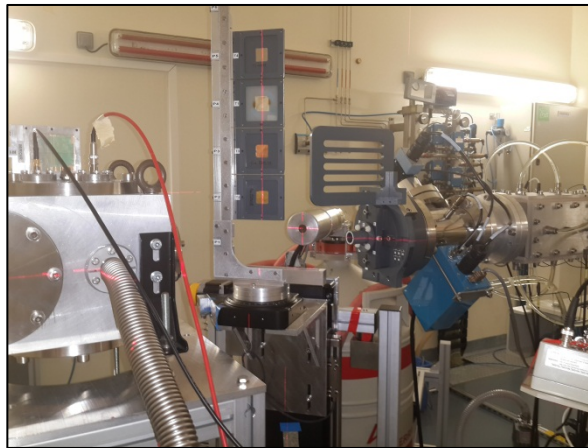


Figure 3.5 Photo du dispositif expérimental utilisé pendant nos expériences HE-PIXE à ARRONAX

3.1.3 Le dispositif de détection

Le faisceau incident est extrait à l'air à travers une fenêtre en Kapton, le faisceau passe ensuite à travers un collimateur en aluminium, de diamètre 5 mm puis atteint la cible située à 30 cm par rapport à la fenêtre en Kapton. Le détecteur de rayons X (HPGe) est placé à un angle θ de 135° par rapport à l'axe du faisceau de manière à être moins gêné par le rayonnement de freinage lié à l'interaction du faisceau avec la cible. Il est placé à une distance $d = 19.9$ cm par rapport à la cible. La cible fait un angle de 45° avec l'axe du faisceau de manière à être parallèle à la face d'entrée du détecteur pour minimiser l'auto-atténuation des rayons X dans la cible. Les projectiles qui traversent la cible sont collectés dans une cage de Faraday (sous vide avec anneau de garde) qui joue donc aussi le rôle d'arrêt faisceau. Elle est placée à la distance la plus proche possible par rapport à la cible, pour pouvoir collecter tout le faisceau sans produire une contribution de bruit de fond trop importante dans le détecteur HPGe. L'utilisation du collimateur, en limitant la tache faisceau à 5 mm, permet aussi d'assurer que l'ensemble du faisceau sera bien collecté dans la cage de Faraday malgré la « diffusion angulaire » induite par les différents matériaux traversés par les projectiles. Le collimateur limite aussi la tache faisceau sur la cible et permet de s'assurer que les conditions de la modélisation de l'efficacité du détecteur soient valides.

L'alignement des différents éléments du dispositif expérimental se fait à l'aide de lasers de pointage.

Pour permettre aux pilotes d'assurer un faisceau ayant les caractéristiques géométriques souhaitées à la position de la cible, une feuille d'alumine est placée à la même position que la cible (Figure 3.6 (a)). L'interaction des projectiles avec la cible va générer une émission de fluorescence dans le visible (Figure 3.6 (b)). Cette émission lumineuse est recueillie par une caméra et renvoyée en salle de commande afin de régler les caractéristiques géométriques du faisceau (position, taille).

Comme nous devons nous assurer que le faisceau est collecté entièrement par la cage de Faraday pour la mesure de l'intensité du courant, nous avons utilisé une deuxième alumine placée à 50 cm par rapport à la première (Figure 3.6 (a)). Cela permet d'ajuster la direction du

faisceau. La taille du faisceau durant les différentes expériences est toujours inférieure à 1 cm (Figure 3.6 (b)).

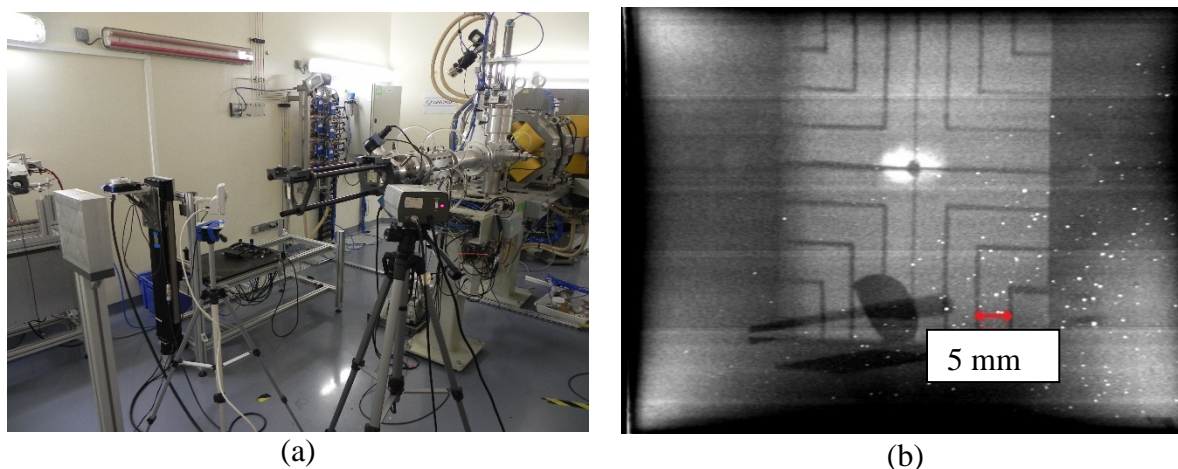


Figure 3.6 Alignement du faisceau (a) et visualisation du faisceau avec une plaque d'alumine (b)

3.1.4 Les cibles et leurs caractéristiques

Pour nos expériences, nous avons utilisé des cibles minces. Une cible est supposée mince lorsque la variation de l'énergie du faisceau dans la cible ainsi que la variation de la section efficace d'ionisation sont faibles. Dans notre cas, ces conditions ont été remplies pour les différentes expériences.

Plusieurs cibles ont été utilisées, réparties sur une large plage de masse, allant du titane, à l'or en passant par le cuivre et l'argent. Ces cibles ont été obtenues auprès de la société Goodfellow® qui est spécialisée dans la fabrication de feuille de matériaux de haute pureté. Les cibles avaient les dimensions $25 \times 25 \text{ mm}^2$ et une pureté élémentaire supérieure à 99.9%. Les caractéristiques de ces différentes cibles sont présentées dans le Tableau.3.2.

Cible	Numéro atomique (Z)	Densité (g.cm^{-3})	Epaisseur (μm)
Ti	22	4,51	$9,95 \pm 0,09$
Cu	29	8,96	$10,38 \pm 0,09$
Ag	47	10,5	$10,11 \pm 0,09$
Au	79	19,3	$10,14 \pm 0,09$

Tableau.3.2 Caractéristiques différentes cibles

Les épaisseurs des cibles minces disponibles fournies par la société Goodfellow® sont données avec une tolérance de +/- 15 %. Dans le but de minimiser l'incertitude sur le calcul de section efficace de production des rayons X, il est nécessaire d'obtenir une mesure précise de l'épaisseur de ces cibles. Avant sa première utilisation, chaque feuille est pesée et sa masse est obtenue avec une précision de 10^{-5} gramme. Chaque cible est aussi scannée afin de déterminer précisément sa surface. Connaissant la résolution du scanner ainsi que la masse de la cible

scannée et en supposant que les feuilles sont homogènes, l'épaisseur de chaque cible est obtenue avec l'erreur associée. L'épaisseur moyenne est donnée par la relation suivante :

$$epaisseur = \frac{m}{\rho \cdot S} \quad (3.1)$$

où ρ est la masse volumique ($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$), S et m sont respectivement la surface (cm^2) et la masse(g) de la cible. Les expériences, pour un élément donné, ont toujours été réalisées avec la même cible.

3.1.5 La mesure de l'énergie du faisceau

Le logiciel SRIM (2015) (the Stopping and Range of Ions in Matter) a été utilisé pour calculer l'énergie du faisceau incident dans la cible. Les tableaux (Tableau.3.3 et Tableau.3.4) présentent les différentes énergies des faisceaux de protons et de deutons à l'entrée et à la sortie de chaque cible et la variation relative de la section efficace d'ionisation. Cette dernière est déterminée en utilisant la simulation ECPSSR.

Distance entre la fenêtre en Kapton et la cible (cm)	$E_{initial}$ (MeV)	$E_{entrée}$ (MeV)	Cible	E_{sortie} (MeV)	Dispersion énergétique $\Delta E/E$ (%)	$\frac{\Delta\sigma_{ion}(\%)}{\sigma_{ion}}$
28	30,7	29,95	Ti	29,87	0,2	0,13
			Cu	29,79	0,21	0,23
			Ag	29,79	0,22	0,19
			Au	29,71	0,23	1,23
33,5	42	41,33	Ti	41,27	0,16	0,1
			Cu	41,21	0,17	0,13
			Ag	41,21	0,17	0,07
			Au	41,14	0,18	0,48
33,5	54	53,45	Ti	53,42	0,12	0,05
			Cu	53,35	0,15	0,12
			Ag	53,35	0,13	0,01
			Au	53,30	0,14	0,73
31	68	67,57	Ti	67,53	0,1	0,04
			Cu	67,49	0,1	0,07
			Ag	67,49	0,1	0,02
			Au	67,44	0,11	0,12

Tableau.3.3 Variation de l'énergie transmise, la dispersion énergétique et la variation relative de la section efficace dans les différentes cibles pour les faisceaux de protons

$E_{initial}$ (MeV)	Distance entre la Fenêtre en Kapton et la cible (cm)	Cible	Dégradeur (158,55 μm d'aluminium)	$E_{entrée}$ (MeV)	E_{sortie} (MeV)	$\frac{\Delta E}{E}$ (%)	$\frac{\Delta\sigma_{ion}}{\sigma_{ion}}$ (%)
16,9	30,5	Ti	Sans	14,53	14,29	0,5	0,48
			Avec	12,57	12,30	1	1,17
		Cu	Sans	14,53	14,07	0,5	2,42
			Avec	12,57	12,06	1	4,09

Tableau.3.4 Variation de l'énergie transmise, la dispersion énergétique et la variation relative de la section efficace dans les différentes cibles pour le faisceau de deuton (avec et sans dégradeur)

On remarque que la perte d'énergie dans les cibles est faible (inférieure à 1% dans tous les cas). C'est aussi le cas pour la variation de la valeur de la section efficace sur la gamme en énergie considérée. Dans le cas des deutons, la variation en énergie est plus importante puisqu'on a utilisé les mêmes cibles ce qui a pour effet d'induire une variation plus importante de la section efficace (au maximum 4% quand on utilise une feuille pour dégrader l'énergie des projectiles).

3.1.6 La mesure de l'intensité du faisceau

Deux méthodes ont été mises en place pour mesurer l'intensité du faisceau :

- Une méthode directe utilisant une cage de Faraday, qui joue aussi le rôle d'arrêt faisceau, et qui est connectée à un électromètre calibré.
- Une méthode indirecte basée sur la détection de la lumière émise par l'air suite au passage du faisceau. Cette méthode nécessite un étalonnage

3.1.6.1 Méthode directe de mesure avec une cage de Faraday

Dans le cas où le faisceau traverse la cible, il est possible de placer une cage de Faraday en aval de la cible pour récupérer l'ensemble du faisceau qui traverse la cible. Nous avons utilisé cette méthode lors des expériences avec les faisceaux de haute énergie (> 30 MeV). En effet, dans ce cas, la diffusion angulaire induite par l'interaction du faisceau avec la cible est négligeable et on peut s'assurer d'être dans des conditions de mesure où l'ensemble des particules incidentes est collecté par la cage de Faraday.

Cage de Faraday et ses caractéristiques

La cage de Faraday est composée d'une enceinte sous vide (de l'ordre de 10^{-3} millibars) et possède une fenêtre d'entrée en Kapton d'épaisseur de $75 \mu\text{m}$ et de diamètre 3 cm. A l'intérieur, se trouve un bloc de cuivre cylindrique d'ouverture de 3 cm qui arrête les ions du faisceau. Un anneau de garde polarisé à -1000V est situé à quelques millimètres de l'entrée du bloc en cuivre pour empêcher l'échappement des électrons secondaires émis par la surface du cuivre lors de l'interaction du faisceau avec le bloc de cuivre (Figure 3.7). Cette cage de Faraday est reliée à un électromètre pour mesurer la charge apportée par le faisceau incident.

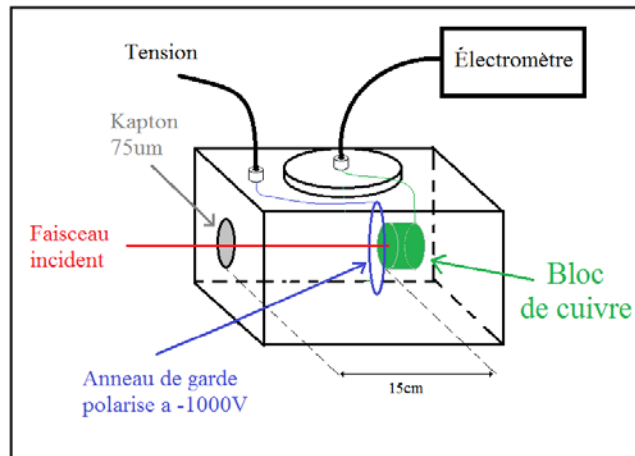


Figure 3.7 Schéma de la cage de Faraday

Électromètre et ses caractéristiques

L'électromètre utilisé est de type MULTIDOS fourni par PTW (Physikalisch Technische Werkstätten, Allemagne). Il est en général utilisé pour mesurer les courants des chambres d'ionisation en radiothérapie externe. La précision de mesure est de 0,5% pour un courant compris entre 0,01 et 10 nA. Il est équipé d'une fonction permettant l'intégration du courant au cours du temps.

Une source de courant certifiée a été utilisée pour vérifier la réponse de l'électromètre et la fuite dans le câble qui relie la casemate à la salle d'acquisition. La réponse de l'électromètre est parfaitement linéaire entre 0,01 et 10 nA et la fuite dans le câble est de l'ordre de 0,5 pA.

Réglage du faisceau pour une bonne utilisation de la cage de Faraday

La cage de Faraday a été placée à l'arrière de la cible et alignée par un laser. Pour s'assurer de l'alignement et du réglage du faisceau et en particulier de sa taille, un film radiochromique est placé à l'entrée de la cage de Faraday au début de chaque expérience. En traversant le film, le faisceau va impressionner le film entraînant un noircissement local. Plus le noircissement est important plus le nombre de projectiles ayant traversé le film est important. Sur la figure (Figure 3.8), un des films utilisés est présenté. Le cercle noir correspond à la taille de la fenêtre d'entrée de la cage de Faraday. On peut voir que le faisceau est plus petit que la taille de la fenêtre d'entrée de la cage de Faraday ce qui nous permet d'assurer que l'ensemble des charges seront collectées lors de la mesure.

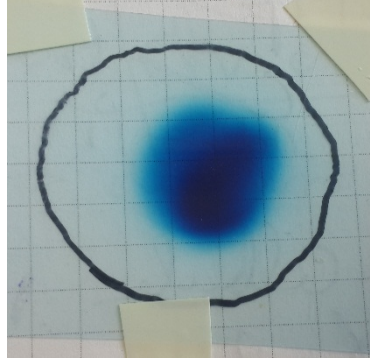


Figure 3.8 Film radiochromique irradié pour vérifier la position du faisceau de proton de 68 MeV à l'entrée de la cage de Faraday

Mesures et Incertitudes sur le nombre de particules

Comme on travaille avec des ions chargés une fois, le nombre de particules incidentes, N_p , est donné par la formule suivante :

$$N_p = \frac{Q}{e} \text{ avec } e = -1,602 \times 10^{-19} \text{ C} \quad (3.2)$$

où Q est la charge totale intégrée par l'électromètre et e est la charge élémentaire de l'électron.

L'incertitude de mesure sur le nombre de particules est égale à l'incertitude sur la mesure de la charge. L'incertitude sur la charge est la somme de l'incertitude de l'électromètre sur le courant et du courant de fuite 0,5 pA dans les câbles qui relient la cage de Faraday à l'électromètre. L'erreur relative sur le nombre de particules est de cette forme :

$$\frac{\Delta N_p}{N_p} (\%) = \frac{0,5 \text{ pA}}{I} + 0,5\% \quad (3.3)$$

3.1.6.2 Méthode indirecte de mesure

Pour le faisceau à faible énergie (D^+ , 16,9 MeV), l'ouverture de la cage de Faraday est plus petite que la tâche du faisceau induite par l'interaction avec la cible. Cette dernière a été élargie à cause de la diffusion angulaire des particules incidentes dans la cible et l'air. La collecte des particules avec la cage de Faraday sera incomplète et générera une mesure faussée. Pour s'affranchir de ce problème, nous avons utilisé une méthode indirecte basée sur la mesure de l'émission des rayons UV émis par l'air suite au passage du faisceau.

Les photons UV émis par l'argon de l'air

Pour mesurer les photons UV émis par l'air suite au passage des projectiles, nous avons placé un tube photomultiplicateur (PM) entre la cible et la feuille de Kapton de la sortie faisceau (Figure 3.9). Le PM a été collimaté pour limiter la détection de la lumière parasite. L'émission UV provient de l'excitation des atomes d'argon présents dans l'air par les projectiles. La désexcitation de ces atomes induit l'émission de photons UV.

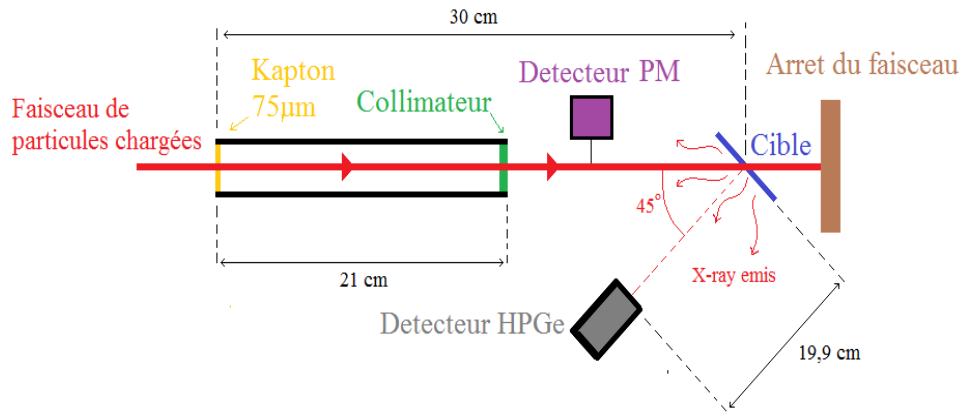


Figure 3.9 Schéma descriptif de l'expérience HE PIXE à ARRONAX avec le photomultiplicateur positionné pour mesurer les photons UV produits par l'interaction des projectiles avec l'air.

Le détecteur de lumière UV est composé d'une photocathode couplée à un photomultiplicateur (PM). La sensibilité de la photocathode s'étend entre 200 nm et 900 nm ce qui couvre bien une partie du spectre UV. Le photomultiplicateur utilisé est de type R928 (HAMAMATSU). Les photons interagissent avec la photocathode par effet photo-électrique. Des électrons seront émis, puis accélérés par un champ électrique et leur nombre sera amplifié par série de dynodes par le phénomène d'émission secondaire. Finalement une anode reçoit l'ensemble des électrons et une impulsion électrique sera générée. Le courant intrinsèque, courant d'obscurité, est de l'ordre de 10 pA pour une tension appliquée au PM de 600V.

Étalonnage de la réponse du PM

L'intensité fournie par le PM est étalonnée en fonction de l'intensité du faisceau mesurée par la cage de Faraday placée dans une configuration sans cible de manière à ce que l'entrée de la cage de Faraday soit positionnée au même endroit que la cible. La figure (Figure 3.10) présente la charge mesurée par la cage de Faraday pour différentes valeurs de charge générées par le PM. On constate qu'il y a une corrélation linéaire entre les deux grandeurs ce qui permet d'effectuer un étalonnage de la charge du PM pour en extraire le courant faisceau (le coefficient de corrélation linéaire est égal à 0,999). La droite d'étalonnage ne passe par l'origine à cause du bruit lumineux à l'intérieur de la casemate et du bruit intrinsèque du PM. Cette méthode demande qu'un étalonnage soit réalisé lors de chaque expérience.

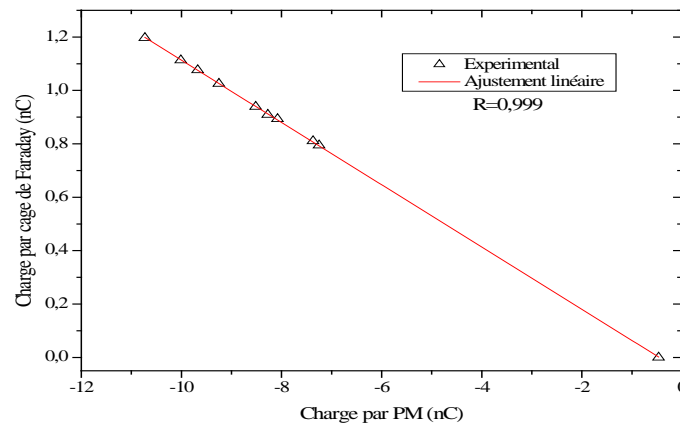


Figure 3.10 Etalonnage de la charge mesurée par le PM durant la manip avec un faisceau du deuton de 14,5 MeV

3.1.7 La mesure des rayons X

La mesure des rayons X a été réalisée à l'aide d'un détecteur semi-conducteur de germanium de grande pureté (High-Purity Germanium HPGe). Ce type de détecteur est très largement utilisé en spectrométrie gamma et X car il combine une bonne résolution en énergie avec une bonne efficacité intrinsèque de détection [(Ponpon, 2007) et (Leo, 1993)].

3.1.7.1 Principe de fonctionnement

Les photons X vont très majoritairement interagir par effet photoélectrique avec les atomes du cristal germanium. L'électron produit va interagir avec les électrons du milieu et induire le passage d'électrons secondaires dans la bande de conduction ce qui laissera des trous dans la bande de valence.

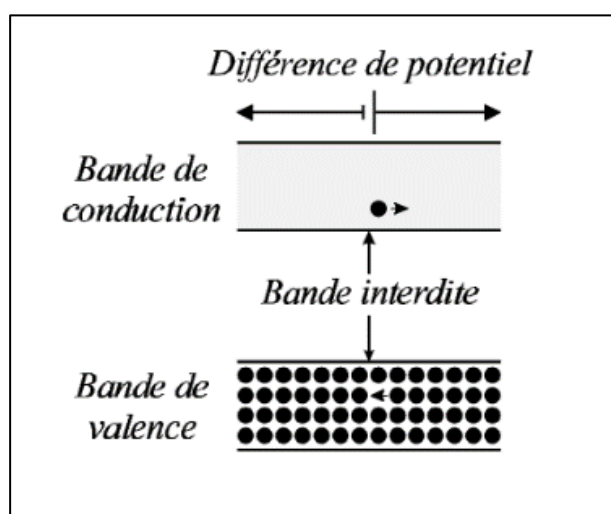


Figure 3.11 Schéma des bandes

Le germanium est un semi-conducteur à faible gap, autour de 0,67 eV (voir Figure 3.11). L'énergie moyenne à déposer dans le semi-conducteur germanium pour créer une paire électron-trou est de 2.94 eV (Brisset, 2008). Du fait de son faible gap, le germanium doit être refroidi à des températures cryogéniques (77K) afin de limiter la génération thermique de porteurs ce qui a pour effet d'augmenter le bruit de la mesure.

L'application d'une différence de potentiel, -500V, sur le germanium produira alors un courant à la sortie du cristal. La charge est proportionnelle à l'énergie déposée dans le cristal. Dans le cas du germanium, lorsque l'énergie des photons dépasse 11,103 keV, des photons de fluorescence seront créés à 9,87 keV (K_α du Ge) ou 10,97 keV (K_β du Ge). Suivant le lieu et la direction de l'émission de ces photons, il y a une probabilité que le photon s'échappe du détecteur. L'énergie alors récupérée dans le détecteur correspond à l'énergie incidente moins l'énergie emportée par le photon de fluorescence (9,87 keV ou 10,97 keV). C'est ce qu'on appelle le phénomène d'échappement. Ce phénomène est présent pour les photons qui ont une énergie plus grande que 11,103 keV. Cette valeur correspond à l'énergie d'ionisation de la couche K du Ge. La probabilité de ce phénomène décroît avec l'augmentation de l'énergie du photon incident. Dans l'analyse de nos spectres, c'est un phénomène que nous prenons en compte.

Le courant généré par le cristal de germanium doit ensuite être amplifié et mis en forme pour être utilisable. La figure (Figure 3.12) présente la chaîne d'acquisition utilisée. Le courant est transformé par un préamplificateur en une impulsion de tension. L'amplitude de cette impulsion est proportionnelle à l'énergie déposée dans le cristal. Ensuite, le signal analogique est amplifié, puis filtré avec une restauration de sa ligne de base avant d'être transformé en signal numérique (ADC). A la fin, l'amplitude du signal numérique sera attribuée à un numéro de canal avec l'analyseur à multicanaux. Le numéro du canal est relié à l'énergie déposée dans le cristal, et le nombre de coups dans un canal donné est relié au nombre de photons qui ont déposé la même énergie dans le cristal.

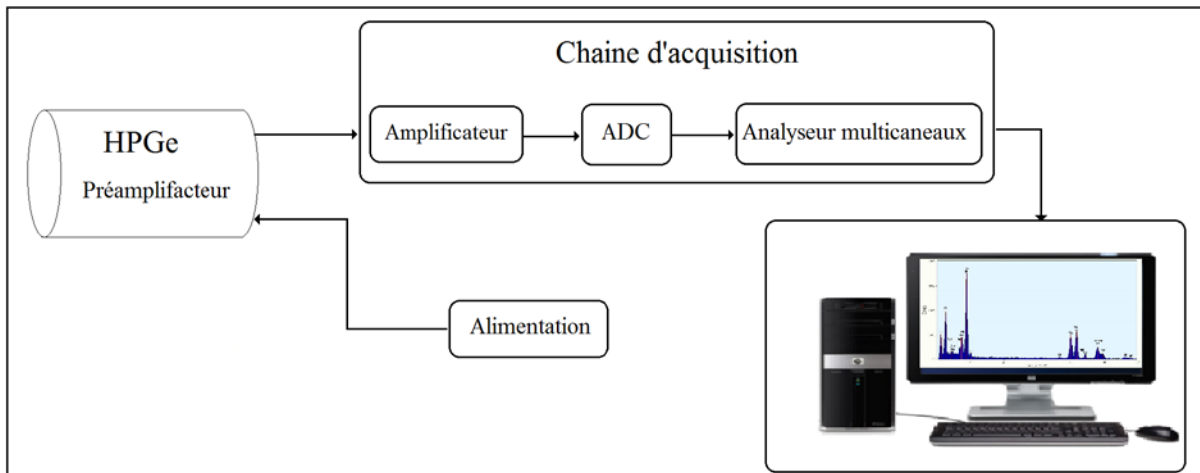


Figure 3.12 Schéma de la chaîne d'acquisition

3.1.7.2 Caractéristiques constructeur du détecteur HPGe utilisé

Les caractéristiques du détecteur HPGe fournies par le fabricant sont présentées dans le tableau suivant :

Caractéristiques du détecteur	Les données du constructeur
Distance Be-Ge	5 mm
Épaisseur de la couche Be	50 μ m
Épaisseur du cristal Ge	5 mm
Rayon du cristal Ge	3,98 mm

Tableau.3.5 Caractéristiques du détecteur HPGe selon le fournisseur

3.1.7.3 Caractéristiques géométriques mesurées à partir des images radiographiques

Nous avons effectué une radiographie du détecteur RX Canberra (Figure 3.13) dans la cabine à rayon X (micro-tomographie) au laboratoire Subatech. Cela nous a permis de vérifier le diamètre du cristal germanium et la distance entre la couche d'entrée en béryllium et le cristal.

Nous avons trouvé que le détecteur est centré, que le rayon R du cristal est $3,82 \pm 0,4$ mm et la distance entre la couche de béryllium et le cristal de germanium d_{vide} , est $8,64 \pm 0,4$ mm.

Les valeurs obtenues sont différentes de celles fournies par le constructeur. Cela nous a amené à être critique sur les informations du constructeur et à privilégier quand cela était possible la mesure des données nécessaires pour la simulation du détecteur.

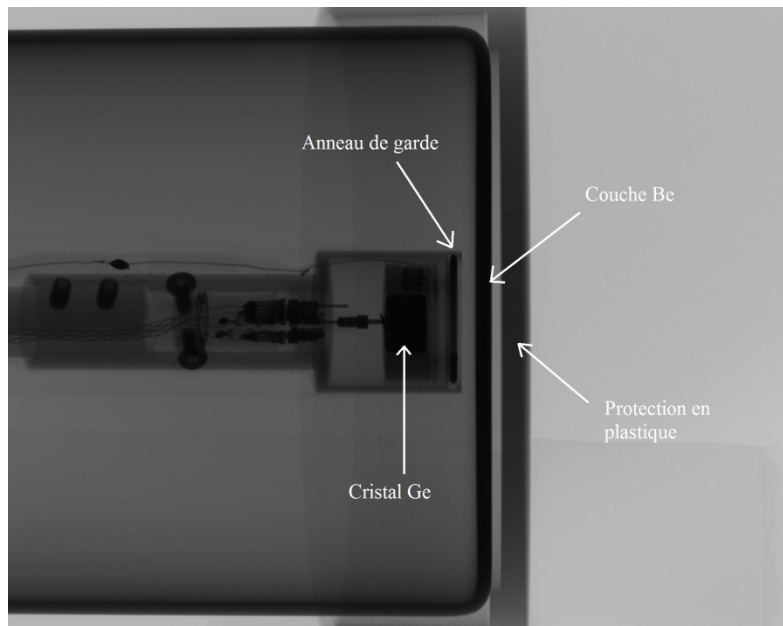


Figure 3.13 Radiographie du détecteur HPGe

Une autre information nécessaire pour modéliser l'efficacité du détecteur est l'épaisseur de la couche morte (non efficace) du détecteur. Nous avons supposé que la couche morte est composée à 100% de germanium avec une épaisseur estimée de 1,6 μm (voir paragraphe 3.2.3.3.3).

3.1.7.4 La chaîne d'acquisition

Le détecteur est relié à un boîtier DSA1000 de la société Canberra, qui inclut l'amplificateur, le convertisseur analogique/numérique (ADC) et l'analyseur multicanal. Les valeurs sortant de l'ADC seront réparties sur les différents canaux entre 1 et 8192.

L'acquisition des données se fait, durant nos expériences, avec le logiciel Genie2000 de Canberra. Ce logiciel permet de visualiser le signal à la sortie de l'analyseur multicanaux en temps réel sous forme d'un spectre, avec, en abscisse, le numéro de canal, et en ordonnée le nombre de coups dans ce canal (Ragheb, 2014).

3.1.7.5 Etalonnage en énergie du détecteur et sa résolution

Pour obtenir le spectre en énergie à partir du spectre brut obtenu, il faut réaliser un étalonnage en énergie qui consiste à établir une relation entre le numéro de canal et l'énergie déposée dans le cristal. Pour faire l'étalonnage, nous avons utilisé différentes sources radioactives ^{55}Fe , ^{109}Cd et ^{241}Am fournies par la société LEA-CERCA-France (voir annexe 164).

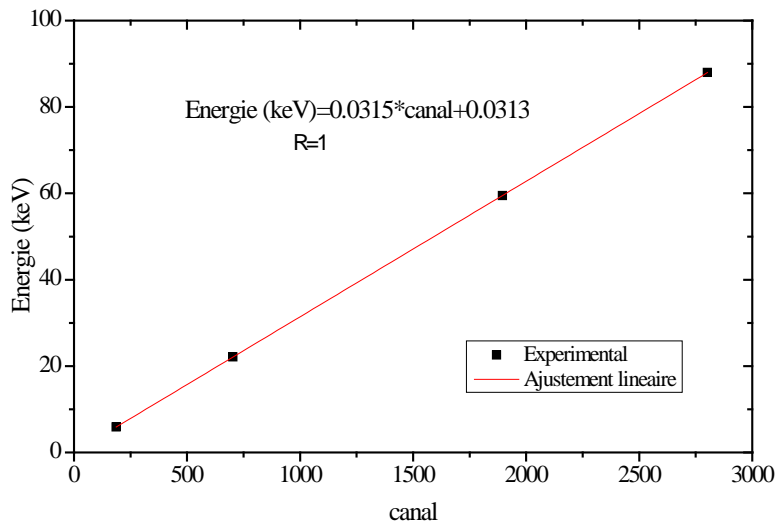


Figure 3.14 Etalonnage en énergie du détecteur HPGe

La Figure 3.14 présente l'étalonnage en énergie avec un ajustement linéaire. La droite d'étalonnage ne passe pas par l'origine à cause du bruit électronique et du bruit intrinsèque du détecteur.

La Figure 3.15 présente la variation de la largeur à mi-hauteur (FWHM) en fonction de la racine carrée de l'énergie. La résolution $FHWM$ a été ajustée par une droite de la forme suivante (Owens, 1985) :

$$FHWM = a_0 + a_1\sqrt{E} \quad (3.4)$$

Avec $a_0 = 0,077 \text{ keV}$ et $a_1 = 0,04 \text{ keV}^{1/2}$ avec un coefficient de corrélation égal à 0,992.

L'ajustement linéaire du ($FHWM$) en fonction de la racine carrée des énergies ne passe par l'origine à cause de la fluctuation du bruit électronique et les défauts de collection des charges.

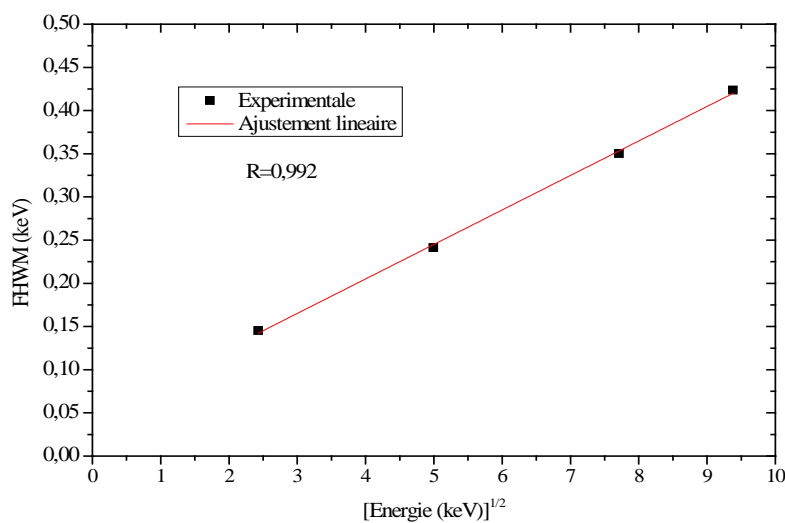


Figure 3.15 la variation de la résolution en énergie du détecteur HPGe en fonction de l'énergie des photons

3.2 Mesure de la section efficace d'ionisation

Dans cette partie, la méthode de mesure des sections efficaces d'ionisation de la couche K pour les éléments Ti, Cu, Ag, Au à haute énergie et l'étude de l'efficacité du détecteur sont présentées.

3.2.1 La section efficace d'ionisation expérimentale

Dans le cas d'une cible mince, la section efficace σ_{ion} d'ionisation est donnée par la formule suivante (voir chapitre 1.3) :

$$\sigma_{ion} = \frac{N_X^Z \times \frac{\mu}{\rho} \times \rho \times \cos(45)}{N_P \times N_Z \times w_Z \times \varepsilon_{tot} \times b \times (1 - e^{-\frac{\mu}{\rho} \cdot \rho \cdot d})} \quad (3.5)$$

où N_X^Z est le nombre de rayons X détectés, N_Z est le nombre d'atomes de l'élément Z par unité de volume, N_P est le nombre de particules incidentes, $\frac{\mu}{\rho}$ est le coefficient d'atténuation massique dans le matériau cible, ρ est la masse volumique du matériau cible, d est l'épaisseur de la cible, w_Z et b représentent respectivement le rendement de fluorescence de l'élément Z pour une transition déterminée et l'intensité relative d'émission de la raie considérée (voire le chapitre 2) et finalement ε_{tot} est l'efficacité du détecteur HPGe qui inclut l'absorption par les milieux séparant la cible du détecteur.

3.2.2 Analyse d'un spectre de RX

La figure (Figure 3.16) présente un exemple d'un spectre typique de rayons X obtenu dans nos expériences.

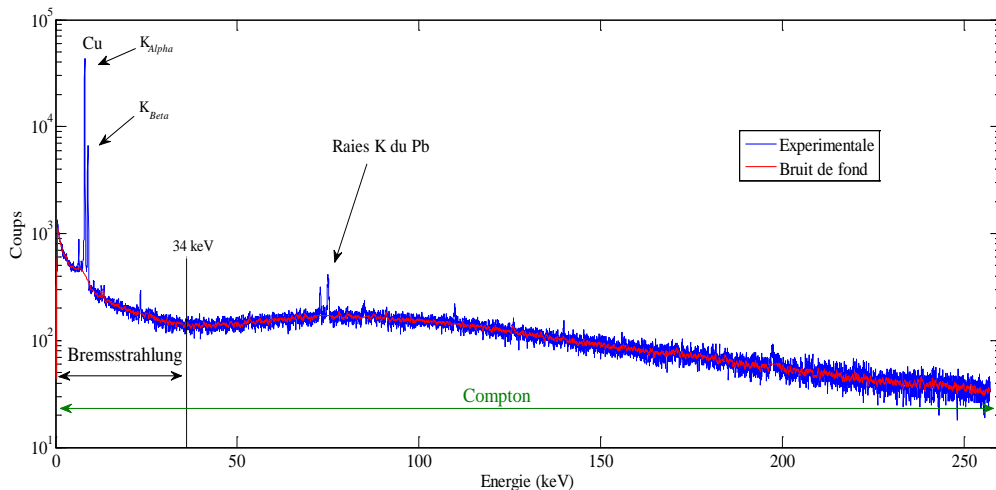


Figure 3.16 Spectre de photons détectés lors de l'irradiation d'une cible de cuivre par un faisceau de protons de 68 MeV

Le spectre présente 2 composantes :

- Une composante continue correspondant au bruit de fond

- Une composante sous forme de pics correspondant aux différents rayons X émis par les atomes contenus dans la cible et éventuellement dans l'environnement proche de la mesure

3.2.2.1 Le bruit de fond

Le bruit de fond provient essentiellement du rayonnement de freinage (ou bremsstrahlung) des électrons éjectés dans la matière suite à l'ionisation, ainsi que des rayons gamma provenant de réactions nucléaires, dans la cible ou dans l'environnement de l'expérience, qui peuvent interagir par effet Compton avec le détecteur (Bech, et al., 2003). Ces deux phénomènes, bremsstrahlung et diffusion Compton, provoquent un bruit de fond qui peut perturber la détection des éléments. Sur la Figure 3.16, on a représenté les zones où chacun des 2 mécanismes sont présents. La ligne rouge correspond à l'estimation réalisée du bruit de fond. Pour faire cet ajustement, nous avons moyenné le contenu des canaux dans chaque partie du spectre et remplacé les pics par la valeur du bruit de fond de la région correspondante.

3.2.2.2 Détermination du nombre de rayons X détectés

Lors de nos analyses nous avons utilisé deux méthodes pour estimer l'aire des pics présents dans les spectres de rayons X.

3.2.2.2.1 Ajustement gaussien

L'ajustement gaussien a été appliqué lorsque les raies K_α et K_β sont assez proches comme dans le cas du titane. (Figure 3.19 Les pics $K\alpha$ et $K\beta$ du titane). Cet ajustement gaussien a été effectué avec le logiciel Matlab. La fonction « *Lsqcurvefit* » a été utilisée pour trouver les coefficients de fonctions non-linéaires de forme connue (pic gaussien) en minimisant la somme de la différence élevée au carré entre les valeurs d'ajustement et les données expérimentales (Méthode des moindres carrés) (Marquardt, 1963).

L'erreur sur le nombre de rayons X détectés est la somme de l'erreur statistique et de l'erreur de l'ajustement :

$$Erreur N_X^Z = \sqrt{Erreur_{statistique}^2 + Erreur_{Ajustement}^2} \quad (3.6)$$

Ce dernier est calculé à partir du résiduel qui est la différence entre l'ajustement et les points expérimentaux.

3.2.2.2.2 Intégration du pic

Dans le cas où le pic est bien séparé des pics voisins, le nombre de coups mesurés, l'aire du pic, a été déterminé par intégration.

Dans un premier temps, un ajustement gaussien a été appliqué pour déterminer le centre du pic et l'écart type σ . La largeur à mi-hauteur H est donnée par la relation suivante :

$$H = 2\sqrt{2 \ln(2)} \sigma \quad (3.7)$$

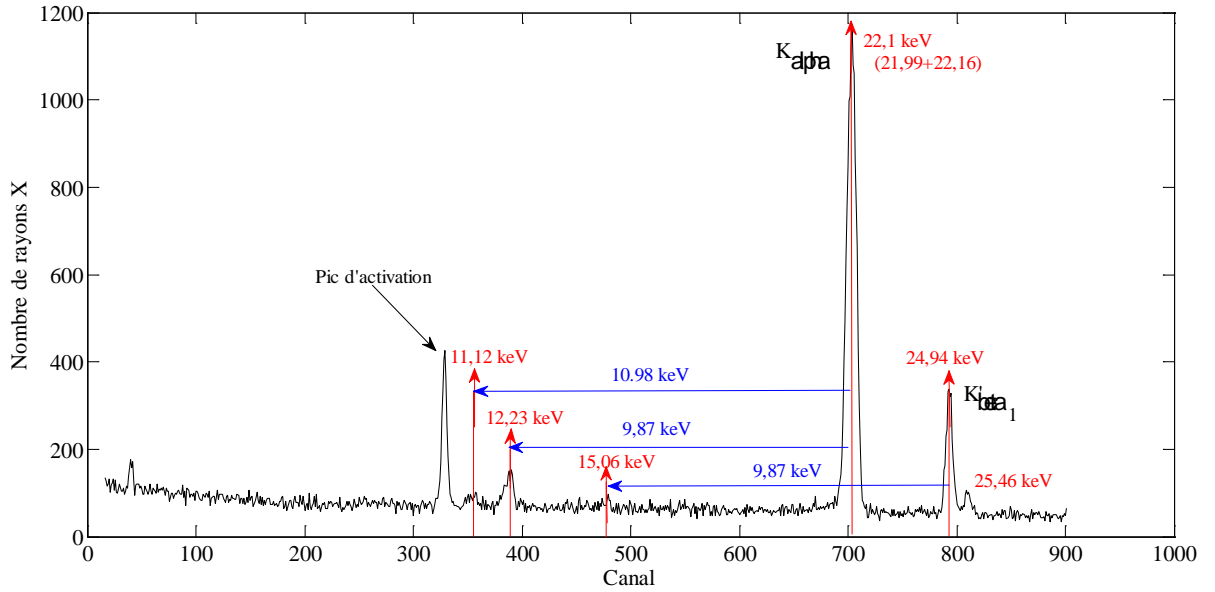


Figure 3.17 Spectre de rayons X de la source de cadmium

La largeur totale du pic en nombre de canaux est définie par 8σ (8σ correspond à la probabilité de trouver l'aire du pic à 99,9%).

La Figure 3.17 montre un exemple d'un spectre obtenu avec la source de cadmium. On voit les pics principaux de la source à 22,1 keV et 24,94 keV ainsi que les pics d'échappements correspondants. Le second pic d'échappement de la raie à 24,94 keV, n'est pas visible car son amplitude est inférieure à la limite de détection.

La Figure 3.18 montre le pic K_α de la source cadmium en fonction du numéro de canal. Le centre du pic correspond au canal 705, l'écart type est égal à 4,29 canaux ce qui donne une largeur à mi-hauteur égale à 10 canaux. Les bornes C_{\max} et C_{\min} correspondent respectivement à la borne supérieure et inférieure d'intégration du pic. \bar{N}_g et \bar{N}_d sont respectivement le nombre de coups moyen du bruit de fond, en deçà et au-delà du pic, à gauche et à droite du pic.

Le nombre de coups mesuré dans le pic est calculé à partir la formule suivante :

$$N_X^Z(\text{pic}) = \sum_{C_{\min}}^{C_{\max}} N(\text{canal}) - \left(\frac{\bar{N}_g + \bar{N}_d}{2} \right) \times (C_{\max} - C_{\min}) \quad (3.8)$$

L'erreur sur le nombre de coups mesurés est sous la forme suivante :

$$\frac{\Delta N_X^Z}{N_X^Z} = \sqrt{\frac{N_X^Z + N_{BdF}}{N_X^Z} + \frac{N_{BdF}}{N_X^Z}} \quad (3.9)$$

Lorsque des pics d'échappements sont présents, on doit prendre en compte l'aire de ces pics pour obtenir le nombre N_X^Z réel suivant la formule ci-dessous :

$$N_X^Z = N_X^Z(\text{pic principal}) + \sum N_X^Z(\text{pic d'echappement}) \quad (3.10)$$

Alors l'erreur totale est la somme de l'erreur sur le pic principal et sur les pics d'échappements (Eq. 3.19). L'erreur sur le nombre total de coups mesurés est sous la forme suivante :

$$(\Delta N_X^Z)_{total} = (\Delta N_X^Z)_{principale} + \sum (\Delta N_X^Z)_{echappement} \quad (3.11)$$

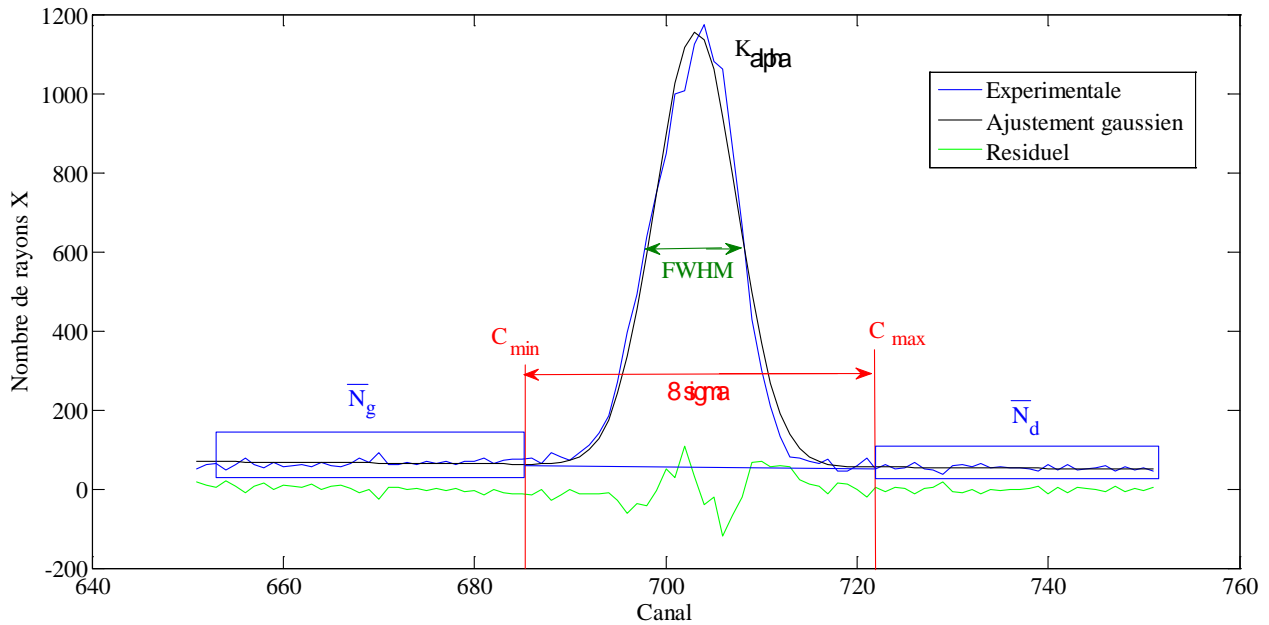


Figure 3.18 Pic caractéristique de la source de cadmium à 22,1 keV

3.2.2.3 Nombre de rayons X pour différentes cibles

Le Tableau.3.6 présente les caractéristiques des différentes raies X qui ont été étudiées dans ce travail pour les 4 cibles d'intérêt.

Cible	Raies	Energie (keV)
Ti	K_{α}	4,509
Cu	K_{α}	8,039
	K_{β}	8,905
Ag	K_{α}	22,1
	$K'_{\beta_1} = K_{\beta_1} + K_{\beta_3}$	24,943
Au	K_{α_1}	66,991
	K_{α_2}	68,806

Tableau.3.6 Les différentes raies utilisées dans nos études

Comme indiqué dans la partie précédente nous avons utilisé deux méthodes d'intégration différentes. Nous avons utilisé la méthode d'intégration pour les différentes raies K_{α} , K_{β} pour

le Cuivre, K_α pour l'argent et K_{α_1} , K_{α_2} pour l'or. L'ajustement gaussien a été utilisé pour la raie K_{β_1} de l'argent, les pics d'échappements et la raie K_α du titane.

L'écart entre la méthode d'ajustement et la méthode d'intégration pour calculer les nombres de rayons X détectés est inférieur à 1% dans le cas d'un pic bien défini.

3.2.2.3.1 Cas du titane

La Figure 3.19 présente le spectre mesuré d'une cible de titane irradiée par un faisceau de proton de 68 MeV ainsi que l'ajustement gaussien (courbe bleue) et le résiduel (courbe verte). Le rapport entre la somme des résiduels et l'aire du pic est de 0,034 pour K_α et de 0,01 pour K_β .

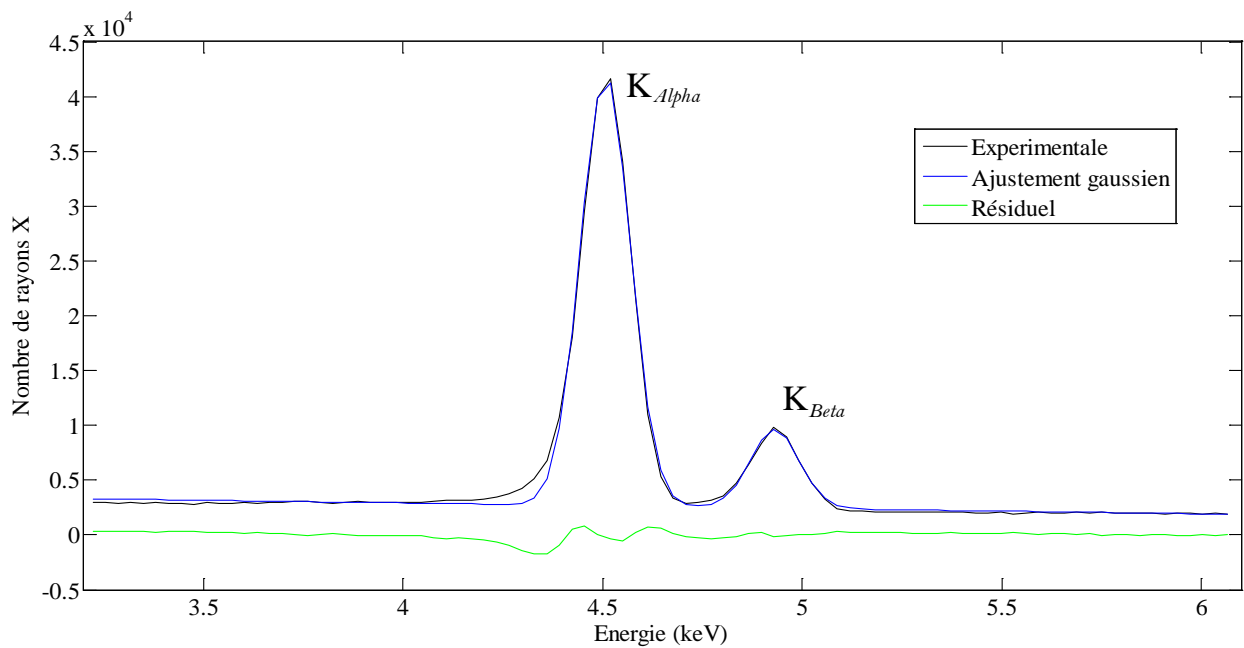


Figure 3.19 Les pics K_α et K_β du titane

3.2.2.3.2 Cas du cuivre

La figure (Figure 3.20) présente le spectre mesuré d'une cible de cuivre irradiée par un faisceau de proton de 68 MeV et les limites des différentes régions d'intérêt pour les deux pics K_α et K_β du cuivre. Dans ce cas, les deux pics sont bien séparés. La méthode d'intégration a été utilisée. L'incertitude sur l'aire des pics K_α et K_β est entre 0,3% et 2,5%.

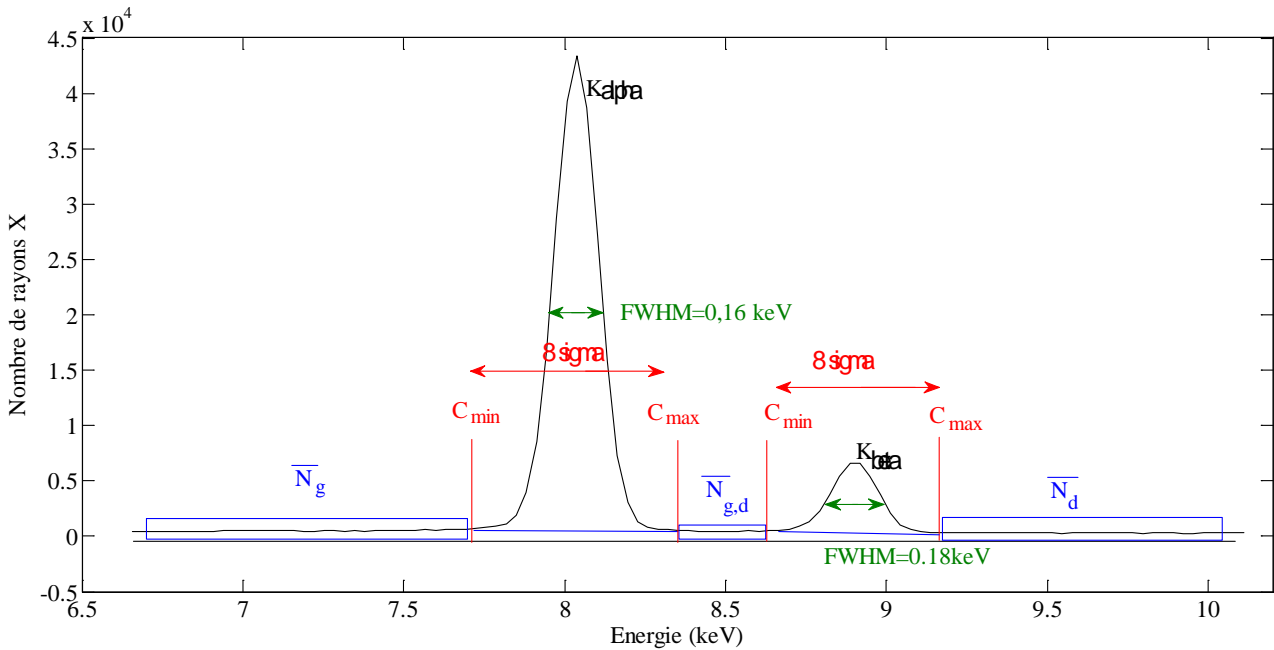


Figure 3.20 Les pics K_α et K_β du cuivre

3.2.2.3.3 Cas de l'argent

Dans le cas de l'argent, nous avons utilisé les deux pics K_α et K'_β pour calculer la section efficace d'ionisation de l'argent. Le pic K_α à 22,1 keV (Tableau.3.6) renferme deux raies très proches K_{α_1} et K_{α_2} correspondants respectivement aux énergies 21,99 keV et 22,16 keV. Ce pic principal a deux pics d'échappements correspondants aux énergies 11,12 keV et 12,23 keV. Le pic K'_β de l'argent renferme toutes les transitions entre la couche M et la couche K. Son énergie est 24,93 keV et ses deux pics d'échappements à 13,95 et 15,06 keV.

La figure (Figure 3.21) présente le pic K_α mesuré pour une cible d'argent irradiée par un faisceau de protons de 68 MeV et les bornes de la région d'intérêt associée. L'incertitude sur l'aire de ce pic est inférieure à 0,5%.

La figure (Figure 3.22) présente les deux pics d'échappements de la raie K_α de l'argent avec l'ajustement gaussien (en bleu) et le résiduel (en vert). Un ajustement a été effectué parce que les deux pics d'échappements sont proches. Le rapport entre la somme des résiduels et l'aire du pic est de 6,7% à 11,12 keV et de 1,1% à 12,23 keV.

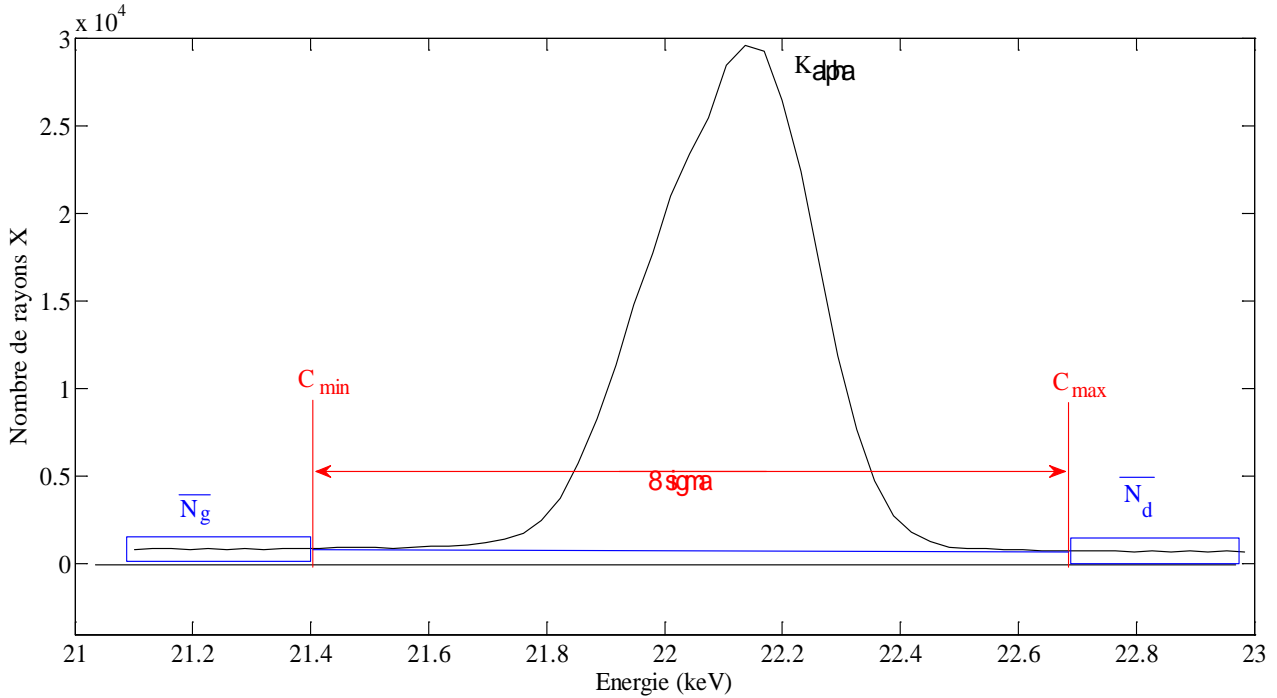


Figure 3.21 Le pic K_α d'argent.

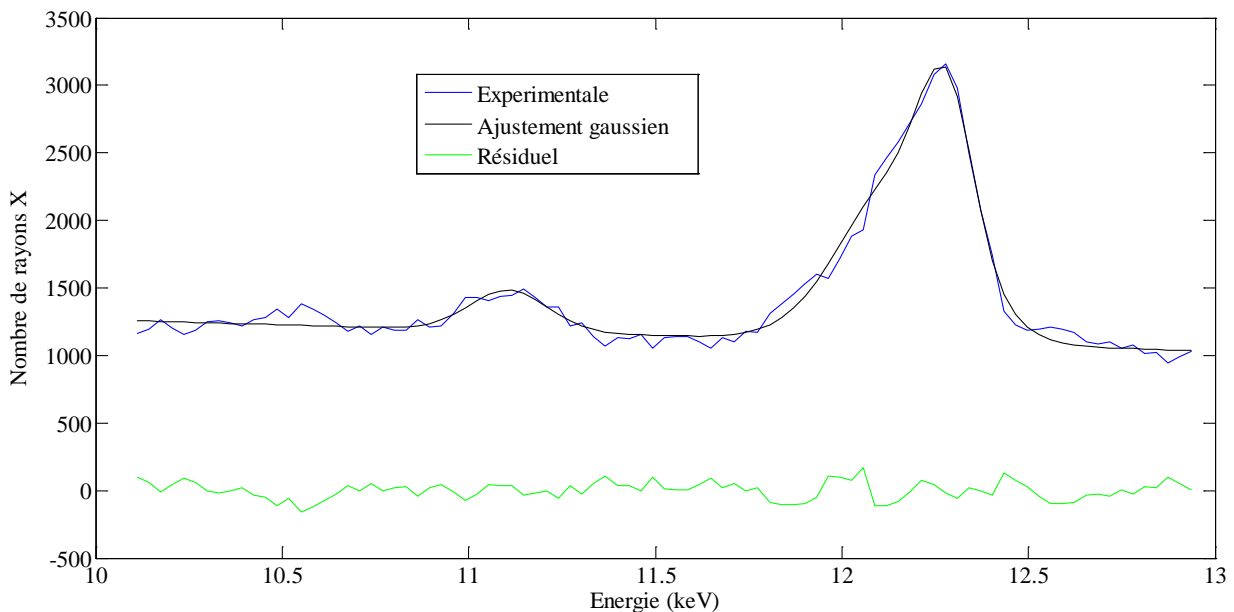


Figure 3.22 Les deux pics d'échappement de la raie K_α de l'argent

Le deuxième pic d'argent K'_{β_1} est proche du pic K'_{β_2} ($K_{\beta_2} + K_{\beta_4}$) d'énergie 25,45 keV qui correspond aux transitions de la couche N vers la couche K (Figure 3.24). Un ajustement

gaussien a été effectué pour séparer les deux pics. L'incertitude sur l'aire du pic K'_{β_1} est de l'ordre de 2%.

La figure (Figure 3.24) présente un ajustement gaussien (en noir) pour le pic d'échappement de la raie K'_{β_1} et le résiduel (en vert). Le rapport entre la somme des résiduels et l'aire du pic est de 1%.

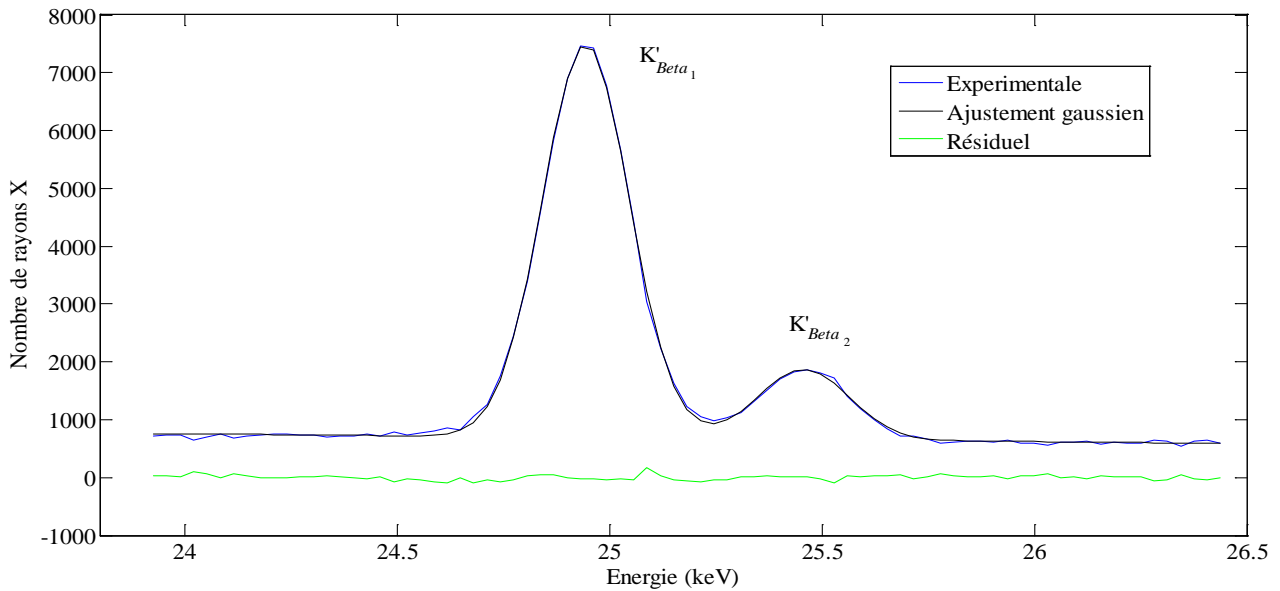


Figure 3.23 Les raies K'_{β_1} et K'_{β_2} de l'argent

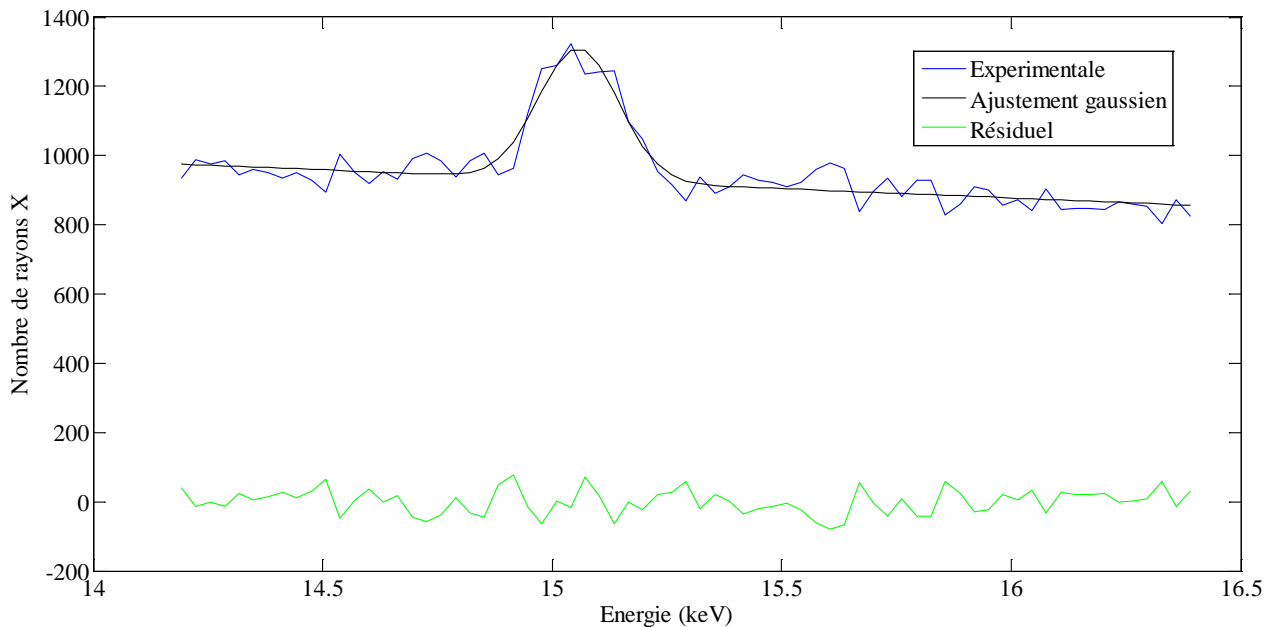


Figure 3.24 Le pic d'échappement de la raie K'_{β_1} de l'argent

3.2.2.3.4 Cas de l'or

La figure (Figure 3.25) présente le spectre mesuré d'une cible d'or irradiée par un faisceau de protons de 68 MeV et les bornes des différentes régions d'intérêt pour les deux raies K_{α_1} et K_{α_2} de l'or. Les deux pics sont bien séparés, donc la méthode d'intégration a été utilisée. L'incertitude sur l'aire des pics K_{α_1} et K_{α_2} est comprise entre 1% et 2%.

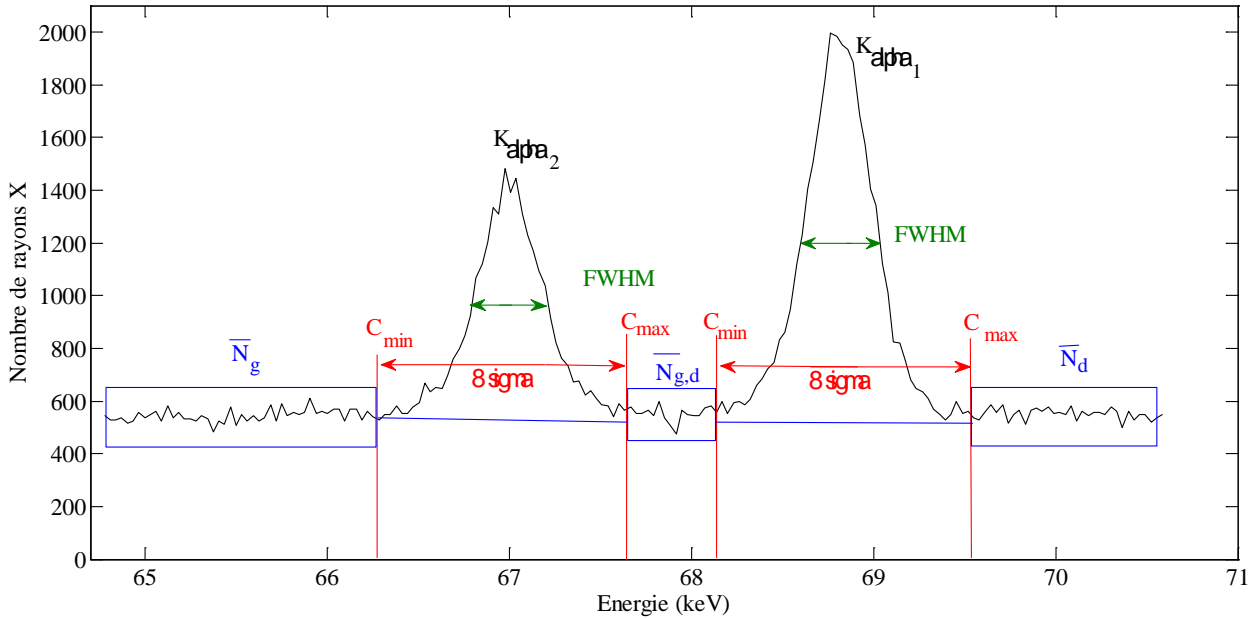


Figure 3.25 Les raies K_{α_1} et K_{α_2} de l'or

3.2.3 L'efficacité en énergie du détecteur HPGe

L'efficacité totale de détection est le rapport du nombre de coups mesurés N_X^Z au nombre total N de photons émis depuis une source radioactive étalonée. L'efficacité de détection d'un détecteur dépend de la loi de Beer-Lambert (voir chapitre 1). Cette efficacité varie en fonction de l'énergie du photon détecté.

Le but de cette étude est de mesurer l'efficacité du détecteur HPGe et de déterminer, en l'absence de données précises par le fournisseur, les caractéristiques géométriques du détecteur afin de reproduire la courbe d'efficacité par un modèle adéquat qui nous permettra d'avoir le comportement attendu du détecteur sur toute la plage de mesure de notre étude.

3.2.3.1 Mesure de l'efficacité en énergie du détecteur HPGe

La figure ci-dessous (Figure 3.26) présente le dispositif expérimental utilisé pour mesurer l'efficacité du détecteur à une distance de 19,9 cm entre la source et le détecteur, distance utilisée pendant les différentes expériences de mesures de la section efficace d'ionisation. Ces mesures sont réalisées « off-line » ce qui permet de faire des comptages longs et ainsi d'acquérir suffisamment de statistique.

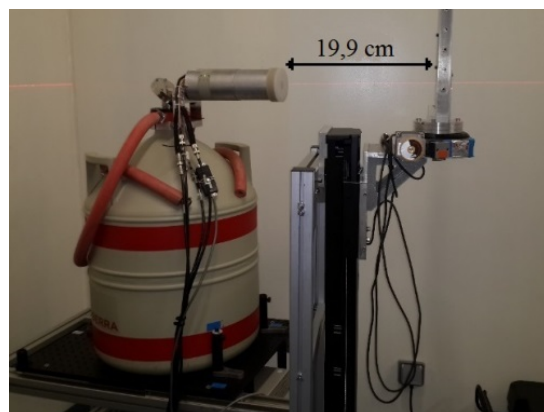


Figure 3.26 Dispositif expérimental pour mesurer l'efficacité du détecteur avec les différentes sources radioactives. Lors des mesures, le capot de protection était retiré.

L'efficacité totale varie en fonction de l'énergie et peut être exprimée comme suit :

$$\varepsilon = \frac{N_X^Z}{A \times P \times t} \quad (3.12)$$

A est l'activité actuelle de la source certifiée fournie par le fabricant, P est la probabilité d'émission associée à une raie gamma donnée (NND) et t est le temps de mesure. L'erreur relative sur l'efficacité de détection est calculée à partir de la formule suivante :

$$\frac{\Delta\varepsilon}{\varepsilon} = \sqrt{\left(\frac{\Delta A}{A}\right)^2 + \left(\frac{\Delta t}{t}\right)^2 + \left(\frac{\Delta P}{P}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N_X^Z}{N_X^Z}\right)^2} \quad (3.13)$$

Pour calculer le nombre de rayons X dans le spectre de chaque source, nous avons utilisé la méthode d'intégration pour les différentes raies K_α , pour le fer, pour le cadmium et pour l'américium. L'ajustement gaussien a été utilisé pour le pic K_β et les pics d'échappements du cadmium. L'erreur relative sur les mesures des efficacités expérimentales est comprise entre 3% et 5 %

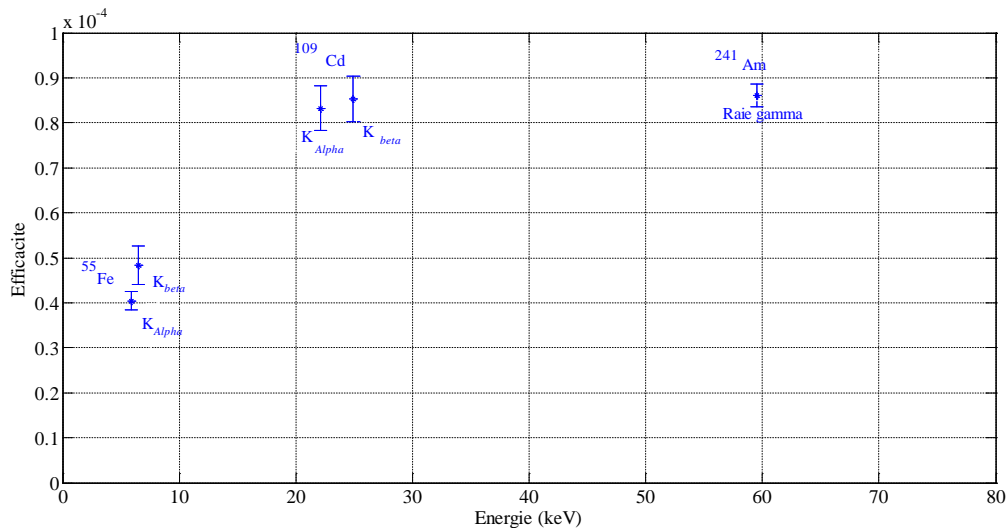


Figure 3.27 Les points de mesure de l'efficacité expérimentale

Les points bleus, dans la figure (Figure 3.27), présentent les efficacités expérimentales déterminées par les sources radioactives (⁵⁵Fe, ¹⁰⁹Cd et ²⁴¹Am). Les autres raies de l'américium et du cadmium n'ont pas été utilisées car la statistique était faible dans nos conditions de mesure. Nous n'avons pas de sources radioactives avec des photons de basse énergie, dans la région des rayons X du titane, pour mesurer l'efficacité de détection. Pour compléter ces mesures, nous avons utilisé la méthode PIXE, avec un faisceau incident de faible énergie dont on connaît la section efficace d'ionisation expérimentale, pour calculer l'efficacité pour les rayons X du titane.

3.2.3.2 Mesure de l'efficacité pour les rayons X du titane avec la méthode de PIXE

L'efficacité à basse énergie est influencée par plusieurs facteurs limitatifs comme la couche (béryllium), et la zone non active, couche du germanium dite « couche morte ». L'épaisseur de la couche en Be est donnée par le fournisseur tandis que les informations sur la couche morte ne sont pas fournies. Pour mesurer l'efficacité du détecteur pour les rayons X du titane, nous avons irradié la cible de titane avec un faisceau de deutons de 16,9 MeV pour lequel la section efficace d'ionisation ECPSSR est en accord avec les données expérimentales. L'irradiation a été réalisée dans la même configuration que les expériences de mesures des sections efficaces à haute énergie.

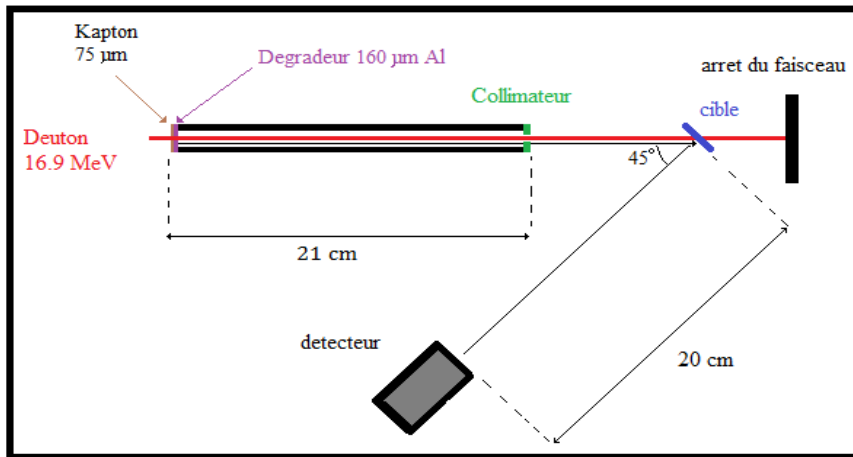


Figure 3.28 Schéma de la manip PIXE pour mesurer l'efficacité des rayons X du titane

Compte tenu de la présence d'une feuille de Kapton et d'air entre la sortie du faisceau et la cible, les deutons ont une énergie moyenne de $14,53 \pm 0,06$ MeV sur cible. Pour avoir un autre point de mesure à basse énergie, nous avons utilisé un dégradeur en aluminium d'épaisseur $158,6 \pm 1,3$ µm pour diminuer l'énergie du faisceau. La valeur de cette énergie est $12,57 \pm 0,06$ MeV à l'entrée de la cible. Les énergies du faisceau ont été calculées à partir du code SRIM.

L'énergie moyenne des deutons à la sortie de la cible de titane est égale à $12,3 \pm 0,1$ MeV. La section efficace d'ionisation ECPSSR du titane, par un faisceau de deutons à 12,57 MeV, est égale à 2777 barn et pour un faisceau de deutons à 12,3 MeV est égale à 2745 barn (code ISICS voir partie 3.2.4). L'écart entre les deux valeurs est 1,1 % donc on peut toujours utiliser l'équation (3.14).

La section efficace d'ionisation du titane par un deuton à une énergie donnée (E) est égale à celle du proton pour une énergie égale à la moitié de celle du deuton ($E/2$).

$$\sigma_{ion_{Deuton}}(E) = \sigma_{ion_{Proton}}(E/2) \quad (3.14)$$

L'égalité (Eq. 3.14) a été vérifiée par le code ISICS. La section efficace d'ionisation pour une énergie 6,22 MeV de proton est non disponible dans la bibliographie mais nous avons trouvé des mesures proches de cette valeur qui sont présentées dans le tableau suivant :

Energie du proton (MeV)	σ_{ion} (b)	Référence
6	3110	(Poncet, et al., 1979)
5,96	3060	(Akselsson, et al., 1974)

Tableau 3.6 Référence des sections efficaces d'ionisation du titane à 6 MeV

Nous avons multiplié ces mesures par un coefficient de correction (1,015) qui est le rapport entre la section efficace d'ionisation de 6,22 MeV à la section efficace d'ionisation de 6 MeV (les deux valeurs sont obtenues par ISICS).

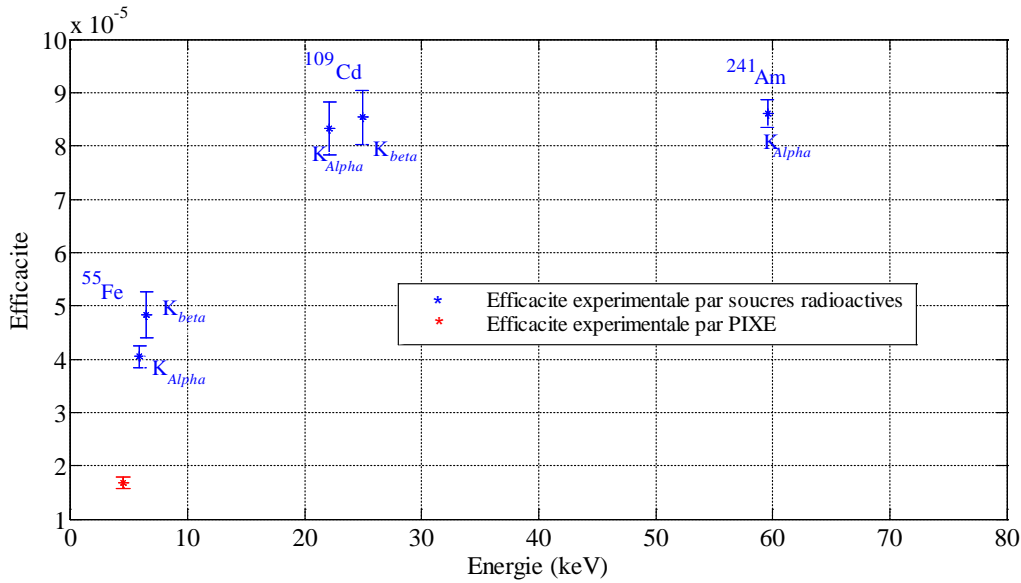


Figure 3.29 Les points correspondent aux efficacités expérimentales

A partir de la section efficace d'ionisation mesurée et à partir de l'équation 3 nous avons calculé l'efficacité du détecteur à l'énergie 4,5 keV. Il est présenté dans la Figure 3.29 par un point rouge. On n'a pas présenté la mesure à 14.5 MeV, car on s'est aperçu que la cage de Faraday n'était pas bien alignée et donc la charge mesurée n'était pas correcte.

3.2.3.3 Modélisation de l'efficacité

La modélisation de l'efficacité a été faite en prenant en compte l'effet des angles des photons incidents. Ce modèle sera désigné par la suite comme 'le modèle géométrique'. Ce modèle est comparé à un modèle plus simple de source ponctuelle placée à grande distance.

3.2.3.3.1 Caractéristique du modèle

Dans le système de coordonnées sphériques, l'efficacité du détecteur est donnée par la formule suivante (Selim, et al., 1996) :

$$\varepsilon = \frac{1}{4\pi} \int_{\theta} \int_{\varphi} f_{att} (1 - e^{-\mu_{Ge}d'}) \sin\theta d\theta d\varphi \quad (3.15)$$

Avec

$$\begin{aligned} f_{att} &= abs(air) \times abs(Be) \times abs(couche morte) \\ &= e^{-\mu_{Be}.d'_{Be}} e^{-\mu_{CM}.d'_{CM}} e^{-\mu_{air}.d'_{air}} \end{aligned} \quad (3.16)$$

Le facteur f_{att} représente l'atténuation des photons rayons X par la source elle-même et par d'autres matières entre la source et le volume actif du détecteur, μ_{Ge} est le coefficient d'atténuation du germanium (NIST) et d' est la distance parcourue par les photons avec un

angle θ dans le volume actif de germanium, d_{Ge} est l'épaisseur du cristal de germanium, d_{CM} est l'épaisseur de la couche morte, d_{Be} est l'épaisseur de la fenêtre d'entrée en béryllium, d_{air} est la distance entre la couche de béryllium et la source.

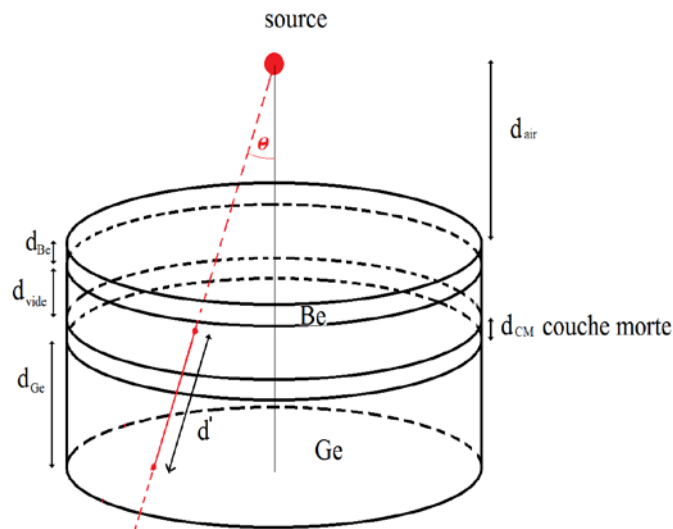


Figure 3.30 Schéma descriptif du modèle de l'efficacité

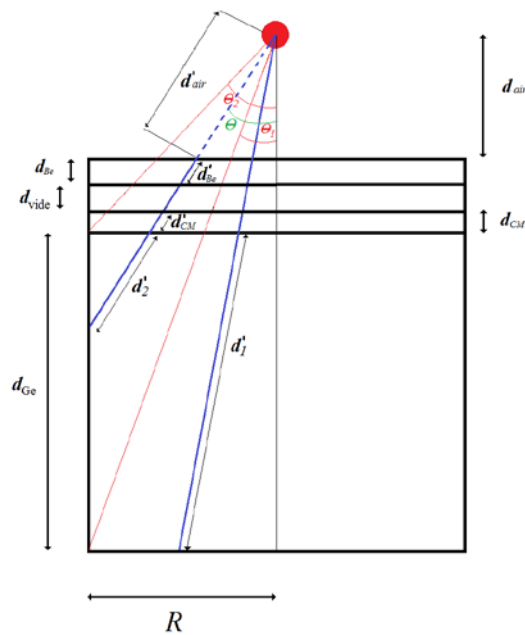


Figure 3.31 Parcours des rayons X détectés dans le détecteur HPGe

Les figures (Figure 3.30 et Figure 3.31) présentent les différentes grandeurs utilisées dans les calculs. Ainsi, R est le rayon de détecteur Germanium, d_{vide} est la distance vide entre la couche de béryllium et la couche morte, d_{air} est la distance entre la source et détecteur (couche de béryllium), μ_{air} , μ_{Be} et μ_{Ge} sont respectivement le coefficient d'atténuation linéaire de l'air, du Béryllium et du germanium, d_{Be} , d_{Ge} et d_{CM} sont respectivement l'épaisseur de la couche béryllium, l'épaisseur du cristal de germanium et l'épaisseur de la couche morte, d'_1 et d'_2 sont les trajets des photons à travers le volume actif du détecteur (Germanium)

L'intégration de la formule [Eq. 3.23] a été décomposée en deux parties :

$$\begin{aligned}
\varepsilon &= \frac{1}{4\pi} \int_{\theta} \int_{\varphi} f_{att}(1 - e^{-\mu_{Ge}d'}) \sin\theta d\theta d\varphi \\
&= \frac{1}{2} \left[\int_0^{\theta_1} f_{att}(1 - e^{-\mu_{Ge}d'_1}) \sin\theta d\theta \right. \\
&\quad \left. + \int_{\theta_1}^{\theta_2} f_{att}(1 - e^{-\mu_{Ge}d'_2}) \sin\theta d\theta \right]
\end{aligned} \tag{3.17}$$

avec

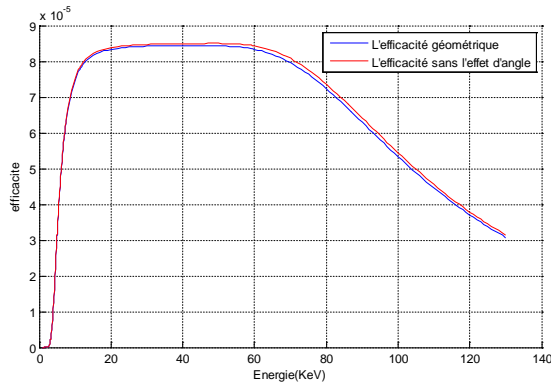
$$\begin{aligned}
\theta_1 &= \tan^{-1} \left(\frac{R}{d_{air} + d_{Be} + d_{vide} + d_{CM} + d_{Ge}} \right) \\
\theta_2 &= \tan^{-1} \left(\frac{R}{d_{air} + d_{Be} + d_{vide} + d_{CM}} \right)
\end{aligned} \tag{3.18}$$

Les différentes épaisseurs peuvent être exprimées en fonction de l'angle θ selon les expressions suivantes :

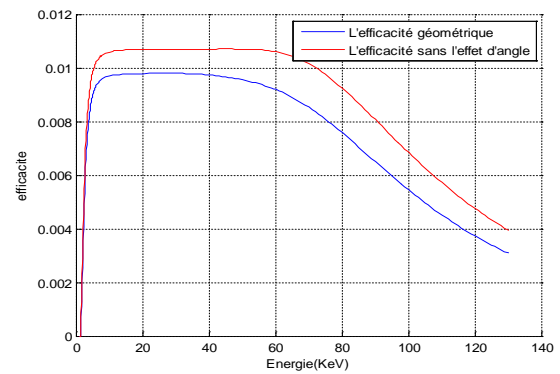
$$\begin{aligned}
d'_1 &= \frac{d_{Ge}}{\cos \theta} \\
d'_2 &= \frac{R}{\sin \theta} - \frac{d_{air} + d_{Be} + d_{vide} + d_{CM}}{\cos \theta} \\
d'_{air} &= \frac{d_{air}}{\cos \theta} \\
d'_{Be} &= \frac{d_{Be}}{\cos \theta} \\
d'_{CM} &= \frac{d_{CM}}{\cos \theta}
\end{aligned} \tag{3.19}$$

A titre de comparaison, on va aussi estimer l'expression de l'efficacité sans l'effet d'angle [Eq. 3.28], pour une source ponctuelle positionnée à une grande distance du détecteur est :

$$\begin{aligned}
\varepsilon' &= \frac{\Omega}{4\pi} \times abs(air) \times abs(Be) \times abs(Ge) \times abs(couche morte) \\
\text{avec } abs(air) &= e^{-\mu_{air} \cdot d_{air}}, \quad abs(Be) = e^{-\mu_{Be} \cdot d_{Be}}, \quad abs(Ge) = (1 - e^{-\mu_{Ge} \cdot d_{Ge}}) \\
&\text{et } abs(couche morte) = e^{-\mu_{Ge} \cdot d_{CM}} \\
\varepsilon' &= \frac{\Omega}{4\pi} \times e^{-\mu_{air} \cdot d_{air}} \times e^{-\mu_{Be} \cdot d_{Be}} \times (1 - e^{-\mu_{Ge} \cdot d_{Ge}}) \times e^{-\mu_{Ge} \cdot d_{CM}} \\
&= \frac{S}{4\pi d^2} \times e^{-\mu_{air} \cdot d_{air}} \times e^{-\mu_{Be} \cdot d_{Be}} \times (1 - e^{-\mu_{Ge} \cdot d_{Ge}}) \times e^{-\mu_{Ge} \cdot d_{CM}}
\end{aligned} \tag{3.20}$$



(a)



(b)

Figure 3.32 Comparaisons entre les courbes de l'efficacité sans l'effet d'angle et géométrique à la distance 20 cm (a) et 1 cm (b) entre la source et le détecteur

La Figure 3.32 (a et b) montre l'efficacité du détecteur HPGe (ϵ') suivant l'équation [Eq. 3.28] comparée avec l'efficacité obtenue par le modèle géométrique (ϵ). La comparaison a été faite pour deux distances entre la source et le détecteur : une grande distance $d_{air} = 20 \text{ cm}$ (a) et une faible distance $d_{air} = 1 \text{ cm}$ (b). Pour cette comparaison, les valeurs de la couche morte et d_{vide} ont été fixées respectivement à $0 \mu\text{m}$ et $0,865 \text{ cm}$.

Les courbes dans la Figure 3.32 (a) sont très proches l'une de l'autre à faible énergie et avec un écart de 1,5% à haute énergie. A cette distance, les rayons X entrent dans le détecteur avec un angle faible, donc il n'y a pas un effet d'angle et c'est pourquoi les 2 modèles donnent une efficacité proche.

Dans la Figure 3.32 (b), pour une faible distance entre source-détecteur, l'écart entre les courbes varie de 6 à 21% en fonctions de l'énergie. La courbe de l'efficacité théorique est au-dessus de la courbe de l'efficacité géométrique. En effet, le modèle géométrique prend en compte la variation des trajets RX en fonction dans leur angle d'incidence par rapport à l'axe du détecteur. Dans ce dernier cas, le volume actif est plus petit que dans le cas du modèle théorique qui ne prend pas l'effet d'angle et c'est pourquoi l'efficacité géométrique est inférieure à l'efficacité théorique.

3.2.3.3.2 Comparaison entre l'efficacité modélisée et expérimentale

La figure ci-dessous (Figure 3.33) présente la variation de l'efficacité en fonction de l'énergie obtenue avec le modèle géométrique et un rayon égal à $0,382 \text{ cm}$ ainsi que pour les mesures expérimentales réalisées. Les points en bleu présentent les efficacités expérimentales déterminées par les sources radioactives (^{55}Fe , ^{109}Cd et ^{241}Am) et le point rouge présente l'efficacité expérimentale déterminée par la méthode PIXE.

L'écart entre le modèle et les points expérimentaux varie entre 1 à 9 %. La courbe du modèle de l'efficacité ne passe pas par les barres d'erreurs de la mesure de l'efficacité pour les sources de Fe et d'Am. Il est donc nécessaire d'optimiser les paramètres intrinsèques du détecteur utilisés dans le modèle.

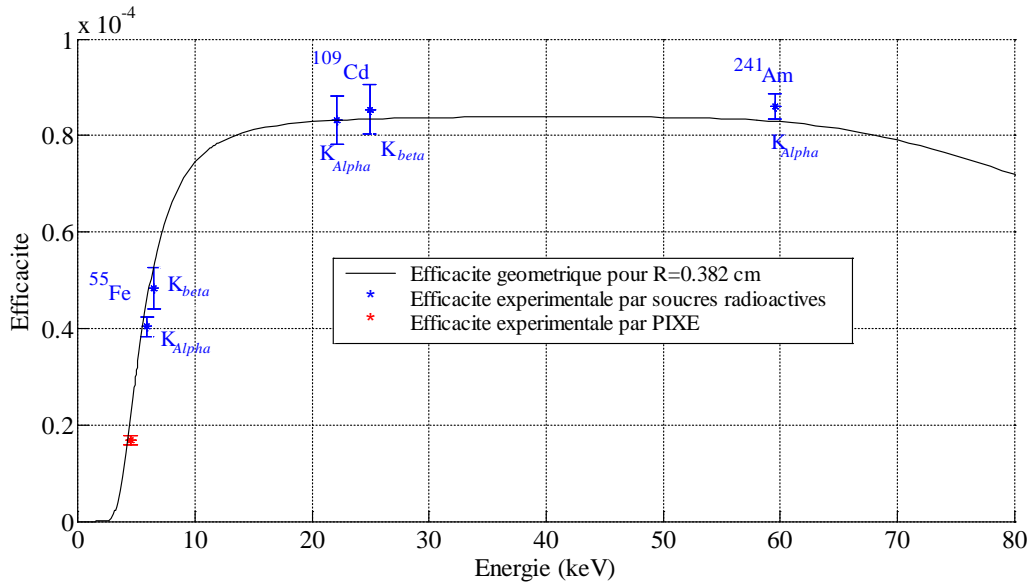


Figure 3.33 Courbe de l'efficacité en fonction de l'énergie des rayons X (en keV) obtenues avec le modèle géométrique (sans optimisation). Les points correspondent aux efficacités expérimentales.

3.2.3.3 Optimisation des paramètres intrinsèques du détecteur HPGe

Les photons de basse énergie (ceux du Fe et du Cd) sont influencés par l'épaisseur de la couche morte quand elle existe tandis que les photons de haute énergie (ceux de l'Am) sont influencés par le volume de la zone active. Nous avons donc choisi d'optimiser ces deux paramètres pour minimiser l'écart entre le modèle et les points expérimentaux.

Pour optimiser l'épaisseur de la couche morte, nous avons supposé qu'elle est formée de germanium (Elanique, et al., 2012) uniquement. Pour le rayon du cristal R, nous savons que la valeur constructeur est incorrecte suite à la mesure réalisée avec le tomographe à rayons X. Nous avons donc laissé ce paramètre libre autour de la valeur obtenue par cette technique. Pour améliorer le modèle, nous avons minimisé les écarts entre l'efficacité du modèle et les efficacités expérimentales par la méthode des moindres carrés pondérés (Figure 3.34). L'écart relatif de la méthode des moindres carrés pondérés est donné par la formule suivante :

$$RES(\%) = \sqrt{\frac{1}{\sum_i \left(\frac{1}{erreur_i}\right)^2} \sum_i \frac{(\varepsilon - eff_{Exp_i})^2}{(eff_{Exp_i} * erreur_i)^2}} \quad (3.21)$$

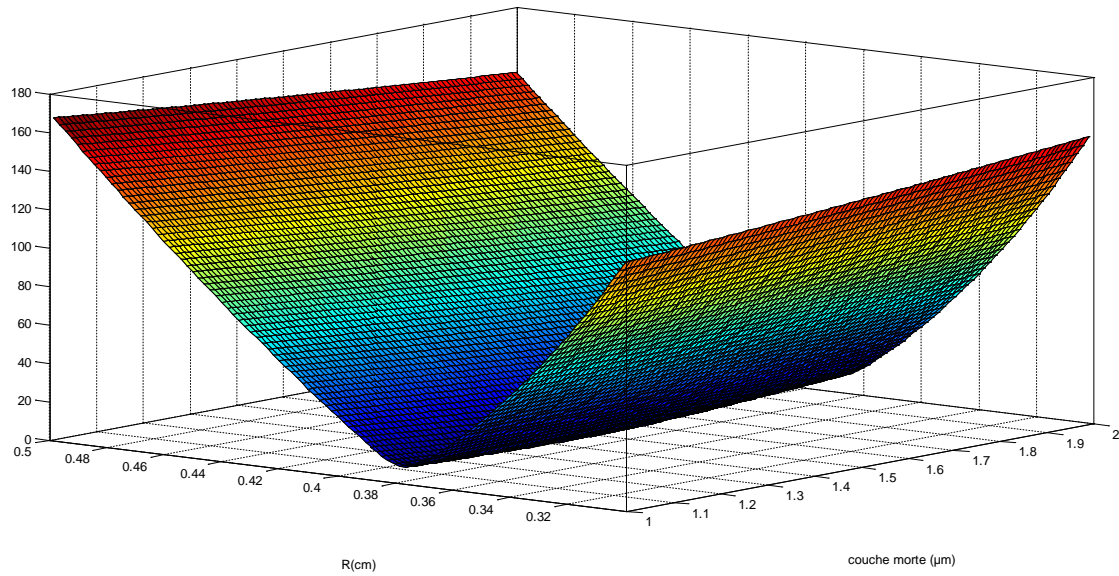


Figure 3.34 Estimation de la couche morte et d'épaisseur de cristal germanium par minimisation de l'écart relative entre les efficacités modélisées et expérimentales.

La Figure 3.34 montre l'écart relatif obtenu en fonction des différentes valeurs de R et de l'épaisseur de la couche morte. La meilleure reproduction des données d'efficacité est obtenue pour une valeur de R égale à 3.86 mm et une couche morte de germanium d'épaisseur 1,6 μm . La Figure 3.35 présente l'évolution de la courbe d'efficacité modélisée en fonction de l'énergie des rayons X pour ces paramètres. On a un bon accord avec les valeurs expérimentales (voir le zoom sur la partie basse énergie). On voit aussi apparaître une perte d'efficacité autour de l'énergie d'ionisation du germanium liée à la présence de la couche morte qui va induire une atténuation des photons X, atténuation qui est liée au coefficient d'atténuation linéaire qui présente une discontinuité à 11 keV pour le germanium.

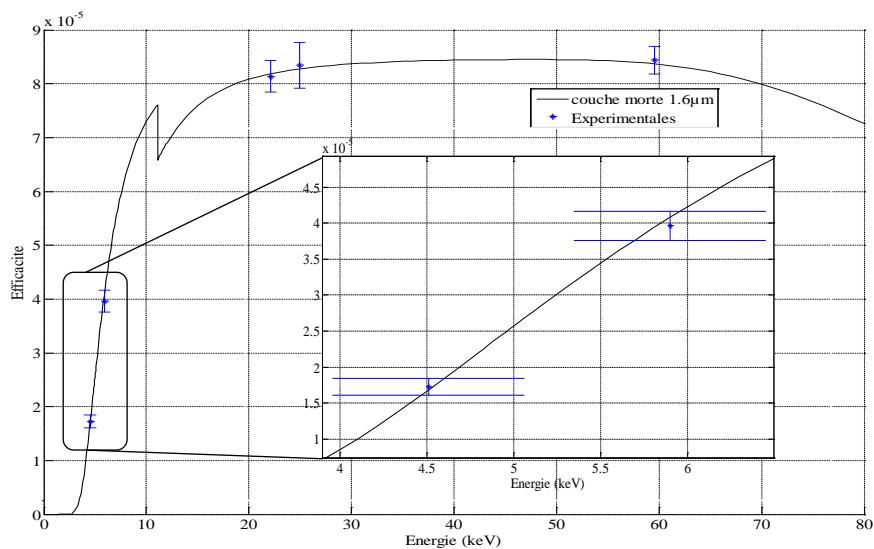


Figure 3.35 Courbes de l'efficacité en fonction de l'énergie des rayons X (en keV) obtenues avec le modèle géométrique (avec couche morte de 1.6 μm de Ge). Les points en bleu correspondent aux efficacités expérimentales.

3.2.4 La section efficace d'ionisation par ISICS

Le logiciel ISCIS (Inner-Shell Ionization Cross Section) [(Liu, et al., 1996), (Cipolla, 2007), (Cipolla, 2009) et (Cipolla, 2011)] est un logiciel codé en langage C. Il donne la section efficace d'ionisation pour différentes couches atomiques K, L et M et de production des rayons X associés.

```

NUMBER OF POINTS IN GAUSS-LEGENDRE QUADRATURE = 50
PROJECTILE ATOMIC NUMBER Z1 < or element symbol > : 1 < H >
TARGET ATOMIC NUMBER Z2 < or element symbol > : 50 < Sn >
PROJECTILE ENERGY UNIT <Y=keU/N=eU> : Y
START ENERGY = 300
END ENERGY = 300
ENERGY STEP = 1
Calculate K shell <Y/N> : Y
Calculate L shell <Y/N> : N
Calculate M shell <Y/N> : N
R option for K shell... Uses Rel. Proj. vel. <Y/N> : N
United Atom Approx. <Y/N> : N
hsR scaling for K shell <Y/N> : N
Specify your own parameters <Y/N> : N
Show calculation detail <Y/N> : N
Have <C>omplete or <B>rief printout <C/B> : C
Have a printout of this calculation <Y/N> : N
Use the batch file or not <Y/N> : N
START RUNNING THE PROGRAM <Y/N> : N
F1 to quit at this moment. A USAGE will display.
  
```

Figure 3.36 Logiciel ISICS : interface dialogue utilisateur

Le calcul de section efficace peut être réalisé en utilisant différents modèles : PWBA/ECPSSR (voir chapitre 2.32.3), ECPSShsR qui utilise la fonction d'onde hsR (Dirac-Hartree-Slater Relativistic wave functions) (Lapicki, 2005), RECPSSR qui prend en compte l'effet relativiste du projectile incident et ECPSSR-UA qui change l'énergie de liaison des électrons. Il permet de modifier la masse et la charge du projectile, l'énergie de liaison et le rendement de fluorescence de la cible.

4 Résultats

Dans un premier temps nous allons présenter les différents spectres de rayons X obtenus pendant les différentes expériences réalisées. Nous avons ensuite déterminé le rapport d'intensité $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ et les sections efficaces de production $\sigma_p^T(K)$ et d'ionisation de la couche K, $\sigma_I(K)$, pour les différents éléments d'intérêt : Ti, Cu, Ag et Au. Ces résultats sont comparés aux données bibliographiques ainsi qu'aux valeurs fournies par les modèles théoriques ECPSSR et RECPSSR.

4.1 Spectres de rayons X expérimentaux

Dans cette partie, nous présentons les spectres de rayons X normalisés par rapport à la charge cumulée pendant le tir sur les cibles Ti, Cu, Ag et Or en fonction de l'énergie et du type de l'ion incident.

Afin de déterminer la section efficace d'ionisation de la couche K, nous avons analysé les spectres en identifiant les pics présents et en déterminant le nombre de coups dans chacun d'eux corrigé de l'absorption dans la cible et de l'efficacité de la détection comme présenté dans le chapitre 3. Comme indiqué dans le chapitre 3, le détecteur a été placé à 19.9 cm de la cible dans toutes les expériences sauf celle réalisée avec un faisceau de protons de 30 MeV pour laquelle la distance a été de 26.8 cm. Pour les expériences utilisant des protons de 42 MeV et 54 MeV, nous avons utilisé un ensemble de deux collimateurs pour limiter la taille du faisceau sur la fenêtre d'entrée de la cage de Faraday (Chapitre 3.1.4.1.1). Cela a entraîné une augmentation du bruit de fond dans les spectres associés à ces deux expériences compte tenu de l'interaction des particules incidentes avec le collimateur.

L'intensité du faisceau a été réglée entre 50pA et 200pA et le temps d'irradiation varie entre quelques minutes (dans le cas où la section efficace de production est grande) et quelques dizaines de minutes. Le temps mort du détecteur HPGE, donné par le logiciel d'acquisition Genie 2000, a toujours été inférieur à 5% pendant les différentes irradiations. Le temps mort a été caractérisé par des sources radioactives placées à différentes distances par rapport au détecteur. Le taux de comptage durant les irradiations était en moyenne de l'ordre de 2500 coups/sec

4.1.1 Les différents spectres normalisés pour chaque cible

Afin de pouvoir visualiser plus précisément la partie pertinente des spectres de rayons X associés à chaque élément, nous avons décidé de présenter un zoom du spectre. De même, afin de faciliter la comparaison entre les spectres obtenus lors des différentes expériences, nous avons normalisé les spectres par la charge cumulée lors de chaque expérience.

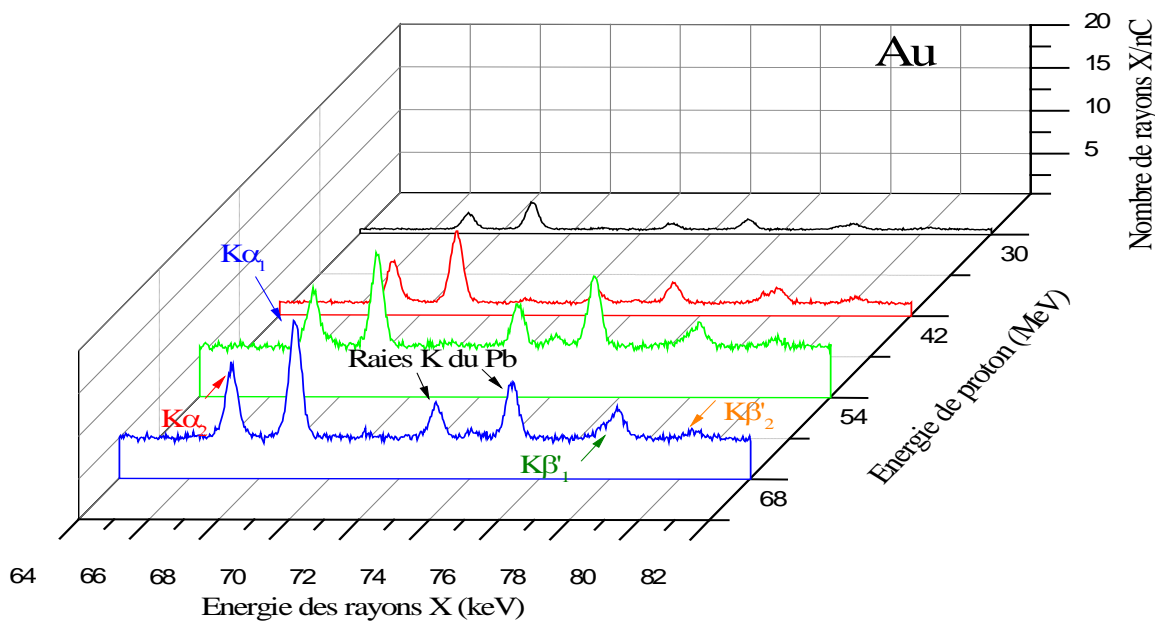


Figure 4.1 Spectres de rayons X normalisés sur la charge cumulée pour la cible d'or irradiée avec un faisceau de protons pour les énergies : 30 MeV (en noir), 42 MeV (en rouge), 54 MeV (en vert) et 68 MeV (en bleu).

La figure ci-dessus (Figure 4.1) présente une partie des spectres des rayons X de la cible d'or, entre 64 keV et 82 keV, irradiée avec un faisceau de protons pour les énergies 30 MeV, 42 MeV, 54 MeV et 68 MeV. Le bruit de fond évolue très peu dans cette région du spectre. Les différents rayons X de l'or sont clairement visibles sur le spectre. L'amplitude des différents pics augmente avec l'énergie des protons incidents.

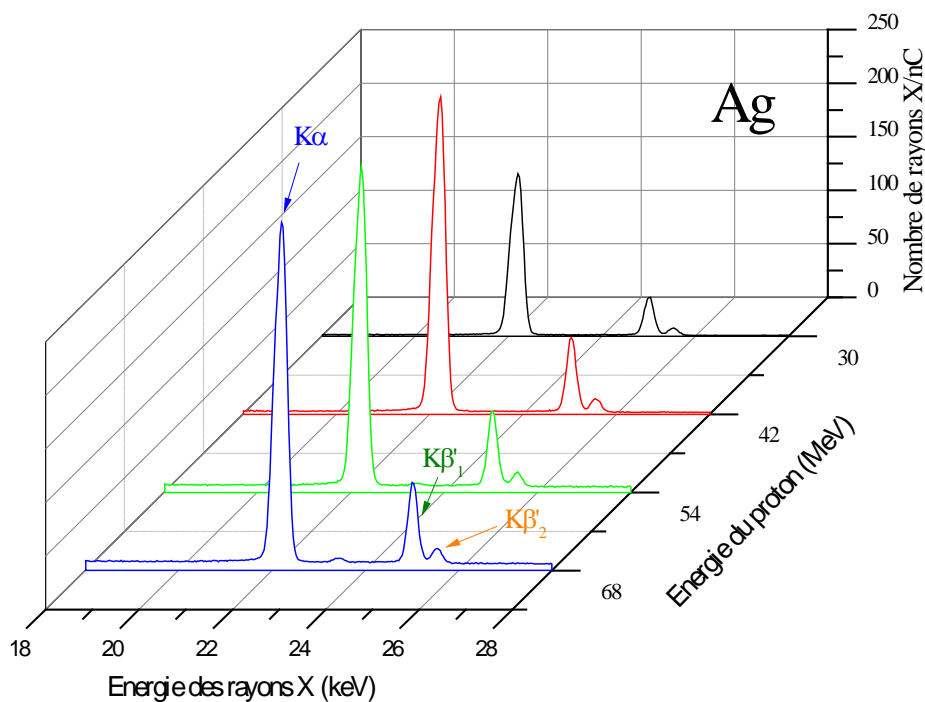


Figure 4.2 Spectres de rayons X normalisés sur la charge cumulée pour la cible de l'argent irradiée avec un faisceau de protons pour les énergies, 30 MeV (en noir), 42 MeV (en rouge), 54 MeV (en vert) et 68 MeV (en bleu).

La Figure 4.2 présente la partie des spectres des rayons X comprise entre 18 et 28 keV pour la cible d'argent. Les spectres sont normalisés par la charge cumulée durant l'expérience. Les raies caractéristiques des 3 spectres pour les énergies de proton 42 MeV, 54 MeV et 68 MeV ont des amplitudes proches. Ceci résulte de la faible variation de la section efficace d'ionisation attendue entre 40 et 68 MeV (voir Figure 2.22). Le bruit de fond varie linéairement avec une faible pente dans cette région d'énergie des rayons X.

La Figure 4.3 présente la partie des spectres des rayons X comprise entre 7 et 10 keV pour la cible de cuivre normalisée par la charge cumulée obtenue lors de l'irradiation avec un faisceau de protons pour les énergies 30 MeV (en noir), 42 MeV (en rouge), 54 MeV (en vert) et 68 MeV (en bleu). Cette cible a aussi été utilisée pour des expériences utilisant les deutons comme projectile aux énergies 12.5 MeV et 14.5 MeV (spectres hachurés).

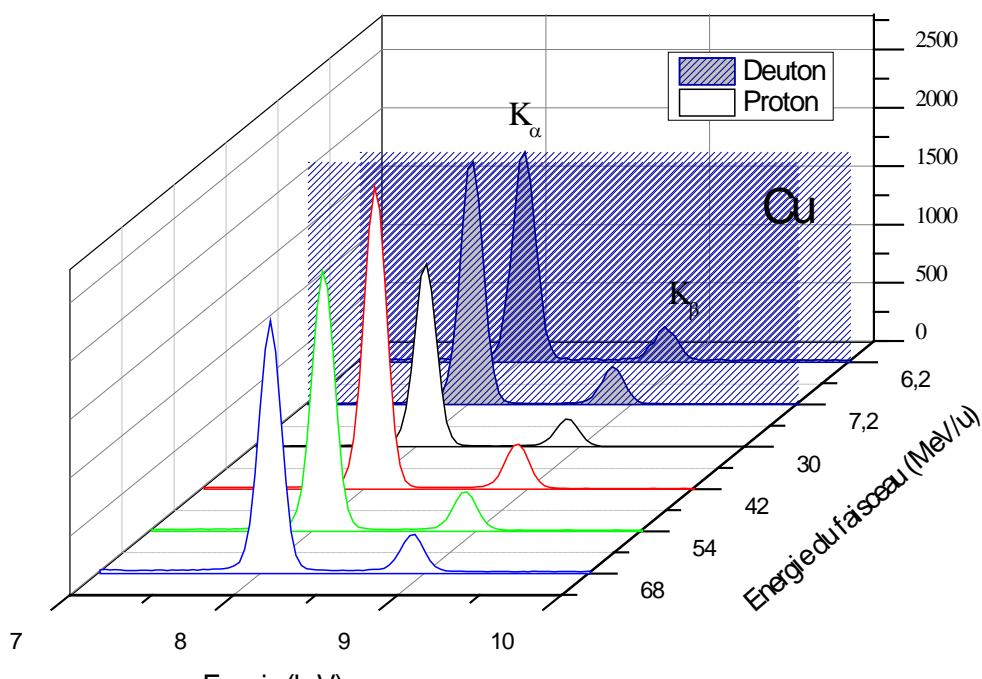


Figure 4.3 Spectres de rayons X normalisés par la charge totale cumulée pendant l'irradiation d'une cible de cuivre avec un faisceau de protons pour les énergies, 30 MeV (en noir), 42 MeV (en rouge), 54 MeV (en vert), 68 MeV (en bleu) et avec un faisceau de deuton pour les deux énergies 6,2 et 7,2 MeV/u (spectres hachurés)

La Figure 4.4 présente la partie des spectres des rayons X comprise entre 3 et 6 keV pour la cible de titane normalisée par la charge cumulée obtenue lors de l'irradiation avec un faisceau de protons pour les énergies 30 MeV (en noir), 42 MeV (en rouge), 54 MeV (en vert) et 68 MeV (en bleu). Cette cible a aussi été utilisée pour des expériences utilisant les deutons comme projectile aux énergies 12.5 MeV et 14.5 MeV (spectres hachurés). Le bruit de fond au-dessous des pics du Ti a une forme non linéaire car les pics du titane se situent dans la région de faible énergie où se trouve un niveau de bruit de fond plus élevé et non linéaire (Figure 3.16). Les amplitudes des pics augmentent quand on passe en deuton. Les sections efficaces d'ionisation sont plus élevées à basse énergie (Tableau 4.7)

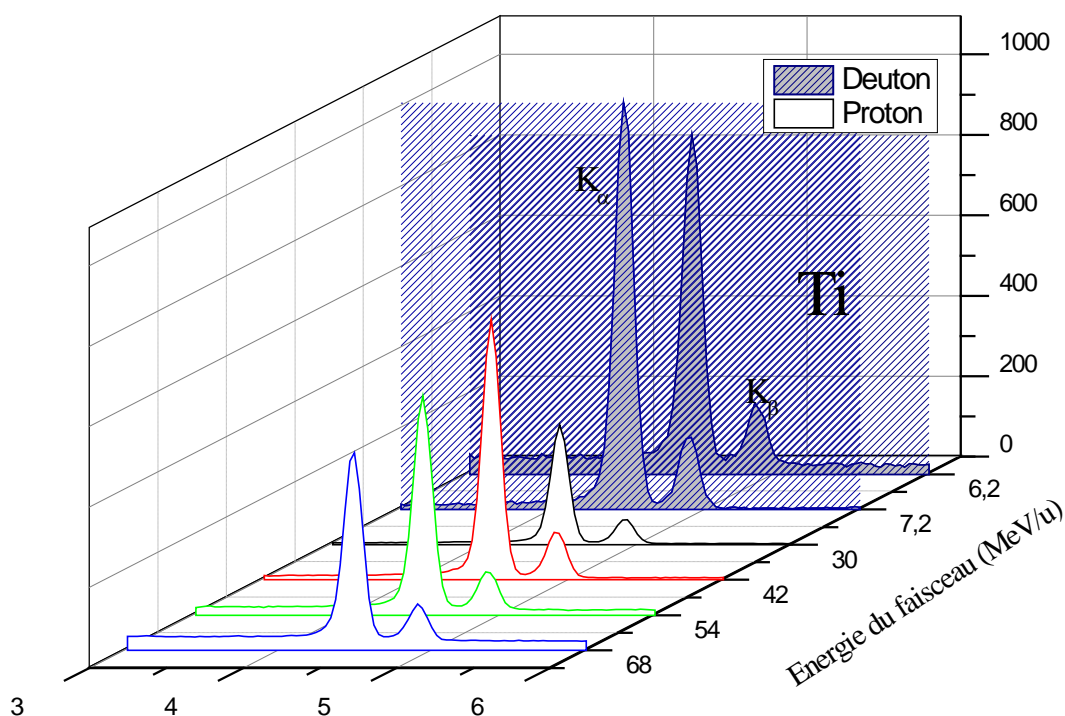


Figure 4.4 Spectres de rayons X normalisés par la charge totale cumulée pendant l'irradiation d'une cible de titane avec un faisceau de protons pour les énergies, 30 MeV (en noir), 42 MeV (en rouge), 54 MeV (en vert), 68 MeV (en bleu) et avec un faisceau de deutons pour les deux énergies 6,2 et 7,2 MeV/u (spectres hachurés)

Le bruit de fond dans les spectres obtenus avec des deutons de 12.5 MeV est le plus élevé. Cet augmentation est due au dégradeur en aluminium utilisé (voir chapitre 3.2.3.2) En effet, le passage à travers la feuille dégradeur provoque un « straggling angulaire » du faisceau. La tache faisceau est donc plus importante au niveau du collimateur placé avant la cible ce qui va entraîner un bruit de fond plus élevé.

4.1.2 Rapport du signal sur le bruit de fond

L'étude du rapport entre le nombre de rayons X dans les pics de la raie K_{α} et le bruit de fond qui se trouve au-dessous de ces pics nous donne des indications sur l'influence potentielle de la soustraction de bruit de fond sur la détermination du nombre de rayons X mesurés. On note ce rapport par $N_X/N(BDF)$ où N_X est le nombre de rayons X de la raie K_{α} et $N(BDF)$ est le bruit de fond associé à ce pic. Comme indiqué dans le chapitre 3.2.2.1, ce dernier est intégré sur une largeur de 8 sigma. Pour le calcul du rapport signal sur bruit de fond nous avons utilisé les raies X ayant la plus grande population et, par incidence, la plus petite erreur statistique. Les raies choisies sont la raie K_{α} pour le titane, le cuivre et l'argent et la raie K_{α_1} pour l'or.

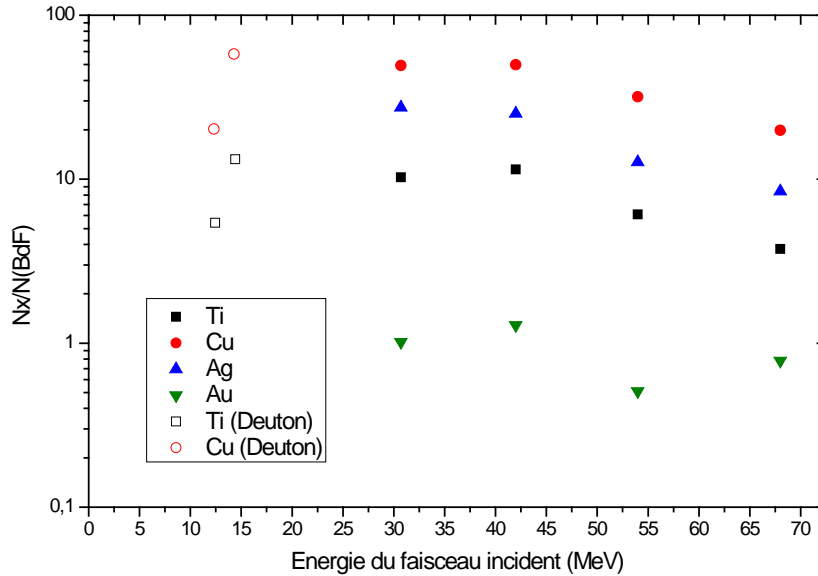


Figure 4.5 Rapport de nombre du rayons X du pic K_{α} sur le nombre de bruit de fond correspondant pour les différentes cibles (Ti, Cu, Ag et Au) en fonction du type de l'ion incident (symboles pleins pour les protons et ouverts pour les deutons) et de son énergie

La Figure 4.5 présente le rapport $N_X/N(BdF)$ pour les différentes cibles (Ti, Cu, Ag et Au). Les deux symboles vides (\circ et \square) désignent l'utilisation du faisceau de deutons et les symboles pleins (\blacksquare , \blacktriangle , \blacktriangledown et \bullet) désignent l'utilisation du faisceau de protons. Ce rapport dépend de la section efficace de production des rayons X pour le numérateur et, pour le dénominateur, du rayonnement de freinage des électrons secondaires dans la cible et du bruit nucléaire produit par le faisceau. La part de ce dernier provenant de la cible est négligeable par rapport au bruit induit par les collimateurs et l'arrêt du faisceau. En plus du bruit nucléaire produit instantanément par le faisceau, il faut ajouter le bruit provenant de l'activation des différents éléments de la casemate liée à la production de neutrons secondaires qui peut varier d'une expérience à l'autre.

Le rapport signal/bruit en général a diminué avec l'augmentation de l'énergie du faisceau sauf dans le cas des deutons à 12,5 MeV pour lequel l'utilisation d'une feuille dégradateur augmente le bruit produit dans les collimateurs. Pour une énergie donnée, le cuivre a le meilleur rapport grâce à sa grande section efficace de production associée à une bonne efficacité de détection. Pour le titane, malgré sa grande section efficace de production, le rapport signal/bruit varie entre 4 et 10. Ceci est lié à la diminution de l'efficacité de détection des rayons X produits dans cette gamme d'énergie et le fait que le bruit de fond est plus élevé dans la région basse énergie du spectre. Ce dernier point nous a amené à estimer le bruit de fond au-dessous des pics du titane à partir du spectre de la cible d'argent irradiée durant la même expérience. Ce dernier a été utilisé parce qu'il ne présente pas de pics dans la région du titane.

4.1.3 Le Rapport d'intensité

Les expériences réalisées nous ont permis de déterminer plusieurs rapports d'intensité : $I_{K_{\beta}}/I_{K_{\alpha}}$ pour le titane, le cuivre, l'argent et l'or, $I_{K'_{\beta_1}}/I_{K_{\alpha}}$ pour l'argent et $I_{K_{\alpha_2}}/I_{K_{\alpha_1}}$ pour l'or. Ces rapports pourront être directement comparés entre les différentes expériences réalisées

et avec les données de la littérature. Pour trouver le rapport d'intensité I_{K_β}/I_{K_α} , nous devons corriger le nombre de rayons X des raies K_β « $N_X(K_\beta)$ » et le nombre de rayons X des raies K_α « $N_X(K_\alpha)$ » de l'efficacité de détection de chaque raie ($\varepsilon(K_\alpha)$ et $\varepsilon(K_\beta)$) et de l'auto-absorption de la cible.

4.1.3.1 Rapport $N_X(K_\beta)/N_X(K_\alpha)$ corrigé par l'efficacité.

À partir de l'efficacité présentée dans le chapitre précédent (partie 3.2.3), nous avons corrigé le rapport de nombre de rayons X des raies K_β sur le nombre de rayons X des raies K_α « $N_X(K_\beta)/N_X(K_\alpha)$ » par le rapport de l'efficacité $\varepsilon(K_\alpha)/\varepsilon(K_\beta)$

Le rapport corrigé est donné par la formule suivante :

$$F = \frac{(N_X(K_\beta) \times \varepsilon(K_\alpha))}{(N_X(K_\alpha) \times \varepsilon(K_\beta))} \quad (4.1)$$

L'erreur sur ce rapport est sous la forme suivante :

$$\frac{\Delta(F)}{F} = \sqrt{\left(\frac{\Delta N_X(K_\beta)}{N_X(K_\beta)}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N_X(K_\alpha)}{N_X(K_\alpha)}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \varepsilon(K_\alpha)}{\varepsilon(K_\alpha)}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \varepsilon(K_\beta)}{\varepsilon(K_\beta)}\right)^2} \quad (4.2)$$

Dans le cas de l'argent, la transition K_β est divisée en deux pics K'_{β_1} et K'_{β_2} qui ont des énergies très proches pour lesquelles la variation d'efficacité est négligeable. Dans ce cas nous avons fait la somme du nombre de rayons X pour les deux pics et corrigé des mêmes coefficients. Dans le cas de l'or, les transitions K_α et K_β sont divisées en deux pics respectivement K_{α_1} et K_{α_2} , K'_{β_1} et K'_{β_2} (voir chapitre 2.1.4). Le détecteur a pratiquement la même efficacité pour les deux raies K_α . La même remarque prévaut pour les deux raies K_β . Dans ce cas, nous avons additionné le nombre de rayons X de chaque famille et corrigé en utilisant les mêmes coefficients. Les résultats du rapport corrigé par l'efficacité F sont présentés dans le Tableau 4.1 pour les irradiations avec les faisceaux de protons et le Tableau 4.2 pour les irradiations avec les faisceaux de deutons.

Energie du faisceau de protons (MeV)	$\frac{(N_X(K_\beta) \times \varepsilon(K_\alpha))}{(N_X(K_\alpha) \times \varepsilon(K_\beta))}$			
	Ti	Cu	Ag	Au
30	0,136 ± 0,014	0,142 ± 0,011	0,209 ± 0,014	0,269 ± 0,011
42	0,137 ± 0,014	0,144 ± 0,010	0,204 ± 0,013	0,269 ± 0,009
54	0,138 ± 0,015	0,143 ± 0,011	0,204 ± 0,013	0,265 ± 0,009
68	0,137 ± 0,014	0,143 ± 0,010	0,208 ± 0,015	0,264 ± 0,010

Tableau 4.1 Les rapports du nombre de rayons X des raies K_β sur celui des raies K_α corrigés par leurs efficacités de détection pour les faisceaux de protons à différentes énergies.

Energie du faisceau de deutons (MeV)	$\frac{(N_X(K_\beta) \times \varepsilon(K_\alpha))}{(N_X(K_\alpha) \times \varepsilon(K_\beta))}$	
	Ti	Cu
12.5	0,132 ± 0,015	0,142 ± 0,010
14.5	0,131 ± 0,015	0,144 ± 0,012

Tableau 4.2 Les rapports de nombre de rayons X des raies K_β sur celui des raies K_α corrigés par leurs efficacités de détection pour les faisceaux de deutons à différentes énergies.

Nous avons aussi déterminé le rapport $N_X(K'_{\beta_1})/N_X(K_\alpha)$ corrigé par le rapport des efficacités $\varepsilon(K_\alpha)/\varepsilon(K'_{\beta_1})$ pour la cible d'argent et le rapport $N_X(K_{\alpha_2})/N_X(K_{\alpha_1})$ corrigé par le rapport des efficacités $\varepsilon(K_{\alpha_1})/\varepsilon(K_{\alpha_2})$ pour la cible d'or. Les résultats sont présentés dans le Tableau 4.3 :

Energie du faisceau de protons (MeV)	$\frac{(N_X(K'_{\beta_1}) \times \varepsilon(K_\alpha))}{(N_X(K_\alpha) \times \varepsilon(K'_{\beta_1}))}$	$\frac{(N_X(K_{\alpha_2}) \times \varepsilon(K_{\alpha_1}))}{(N_X(K_{\alpha_1}) \times \varepsilon(K_{\alpha_2}))}$
	Ag	Au
30	0,177 ± 0,011	0,593 ± 0,025
42	0,175 ± 0,011	0,593 ± 0,024
54	0,175 ± 0,012	0,595 ± 0,025
68	0,178 ± 0,011	0,593 ± 0,024

Tableau 4.3 Les rapports de nombres de rayons X (K'_{β_1}/K_α pour l'argent et $K_{\alpha_2}/K_{\alpha_1}$ pour l'or corrigés par l'efficacité de détection pour les faisceaux de protons à différentes énergies

Comme attendu, les tableaux Tableau 4.1, Tableau 4.2 et Tableau 4.3 montrent que les rapports corrigés par les efficacités, pour un élément donné, sont constants en fonction de l'énergie du faisceau incident.

4.1.3.2 Rapport d'intensité I_{K_β}/I_{K_α}

Pour convertir les rapports précédents en rapport d'intensité I_{K_β}/I_{K_α} , il faut corriger par l'auto-absorption de la cible. On obtient alors la formule suivante où le coefficient d'absorption dépend de l'énergie de la raie X considérée :

$$I_{K_\beta}/I_{K_\alpha} = \frac{(N_X(K_\beta) \times \varepsilon(K_\alpha))}{(N_X(K_\alpha) \times \varepsilon(K_\beta))} \times \frac{(1 - e^{-\frac{\mu}{\rho}(K_\alpha) \cdot \rho \cdot d}) \times \frac{\mu}{\rho}(K_\beta)}{(1 - e^{-\frac{\mu}{\rho}(K_\beta) \cdot \rho \cdot d}) \times \frac{\mu}{\rho}(K_\alpha)} \quad (4.3)$$

L'erreur sur le rapport $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ est calculée par la formule suivante (on néglige l'erreur sur l'absorption) :

$$\frac{\Delta(I_{K\beta}/I_{K\alpha})}{I_{K\beta}/I_{K\alpha}} = \sqrt{\left(\frac{\Delta N_X(K\beta)}{N_X(K\beta)}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N_X(K\alpha)}{N_X(K\alpha)}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \varepsilon(K\alpha)}{\varepsilon(K\alpha)}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \varepsilon(K\beta)}{\varepsilon(K\beta)}\right)^2} \quad (4.4)$$

Le Tableau 4.4 rassemble les valeurs des rapports intensités $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ pour les différents éléments Ti, Cu, Ag et Au en fonction de l'énergie du faisceau de protons.

Energie du faisceau de protons (MeV)	$I_{K\beta}/I_{K\alpha}$			
	Ti	Cu	Ag	Au
30	0,129 ± 0,014	0,135 ± 0,011	0,204 ± 0,014	0,265 ± 0,010
42	0,131 ± 0,014	0,136 ± 0,010	0,200 ± 0,014	0,265 ± 0,009
54	0,132 ± 0,015	0,135 ± 0,011	0,200 ± 0,013	0,262 ± 0,009
68	0,131 ± 0,014	0,136 ± 0,010	0,204 ± 0,015	0,262 ± 0,010

Tableau 4.4 Le rapport d'intensité $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ pour les différents éléments et les différentes énergies du faisceau de protons

Le Tableau 4.5 présente les valeurs $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ pour les deux éléments Ti et Cu pour les différentes énergies du faisceau de deutons.

Energie du faisceau de deutons (MeV)	$I_{K\beta}/I_{K\alpha}$	
	Ti	Cu
12.5	0,125 ± 0,015	0,134 ± 0,010
14.5	0,126 ± 0,015	0,136 ± 0,012

Tableau 4.5 Le rapport d'intensité $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ pour les différents éléments et les différentes énergies des deutons.

La Figure 4.6 regroupe les valeurs $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ présentées dans les deux tableaux ci-dessus. Ces valeurs sont indépendantes de l'énergie et du type du faisceau incident. Ces résultats sont en accord avec les données bibliographiques présentées dans le chapitre 2.1.5.

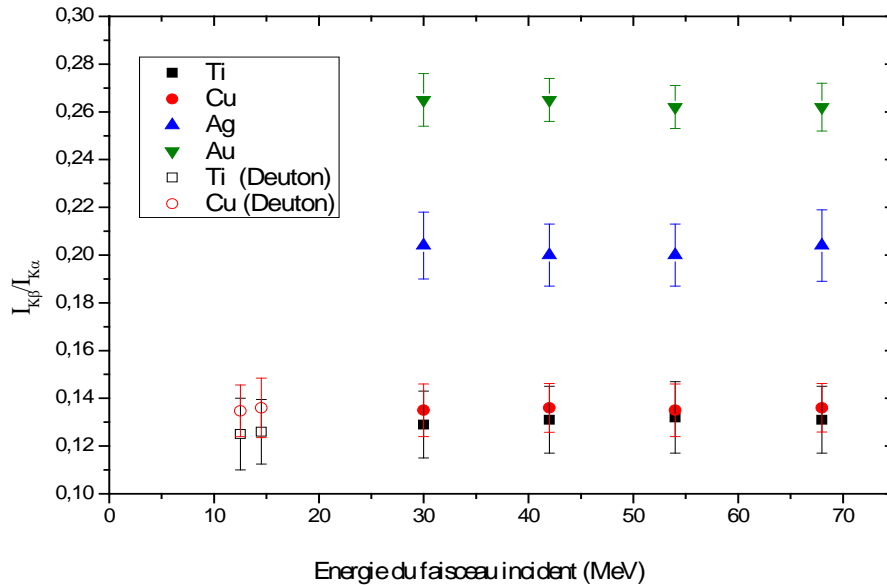


Figure 4.6 Rapport $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ obtenus dans nos expériences pour les différents éléments cibles.

Plusieurs études expérimentales sont disponibles sur le rapport d'intensité $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ pour différents éléments (voir chapitre 2.1.5). La figure (Figure 4.7) présente les valeurs moyennes de nos mesures expérimentales du rapport d'intensité $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ (points noirs) comparées avec les valeurs empiriques pondérées selon (Kahoul, et al., 2014) et les valeurs théoriques selon (Scofield, 1974a) en fonction du numéro atomique Z.

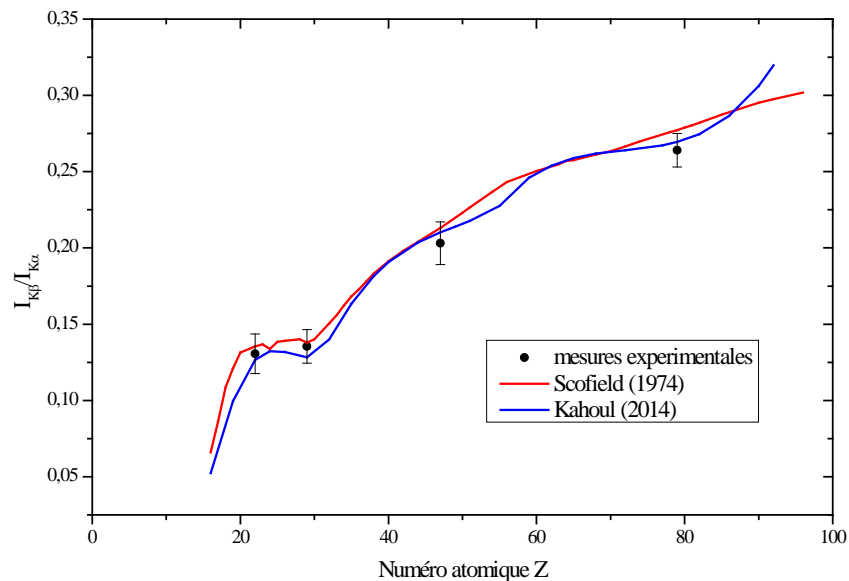


Figure 4.7 Moyennes du rapport $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ obtenues pour différents éléments lors de nos mesures (points noirs) comparées avec les valeurs théoriques du Scofield (courbe rouge) et les valeurs empiriques pondérées du Kahoul (courbe bleu)

D'après la Figure 4.7, les rapports d'intensités obtenus pour les différents éléments sont en bon accord avec les valeurs théoriques et l'ajustement empirique des données expérimentales avec un écart inférieur à 4.7%.

Nous avons calculé le rapport d'intensité de K'_{β_1} sur celle de K_{α} « $I_{K'_{\beta_1}}/I_{K_{\alpha}}$ » pour l'argent et le rapport d'intensité de K_{α_2} sur K_{α_1} pour l'or, « $I_{K_{\alpha_2}}/I_{K_{\alpha_1}}$ ». Ces rapports se trouvent dans le Tableau 4.6 et sont comparés avec les valeurs théoriques selon Scofield (1974) car il n'y a pas des valeurs expérimentales disponibles, voir chapitre II-1.

Energie du faisceau de protons (MeV)	$I_{K'_{\beta_1}}/I_{K_{\alpha}}$		$I_{K_{\alpha_2}}/I_{K_{\alpha_1}}$	
	Ag		Au	
	Expérimental	Théorique	Expérimental	Théorique
30	$0,173 \pm 0,012$	0,181	$0,595 \pm 0,027$	0,5874
42	$0,170 \pm 0,012$		$0,594 \pm 0,026$	
54	$0,170 \pm 0,011$		$0,596 \pm 0,023$	
68	$0,173 \pm 0,013$		$0,594 \pm 0,027$	

Tableau 4.6 Les rapports $I_{K'_{\beta_1}}/I_{K_{\alpha}}$ pour l'argent, $I_{K_{\alpha_2}}/I_{K_{\alpha_1}}$ pour l'or pour différents faisceaux de protons.

Comme le rapport d'intensité $I_{K_{\beta}}/I_{K_{\alpha}}$, ces résultats sont indépendants de l'énergie du faisceau incident. L'écart du rapport $I_{K'_{\beta_1}}/I_{K_{\alpha}}$ entre les valeurs expérimentales et la valeur théorique est inférieur à 4.5% et l'écart du rapport $I_{K_{\alpha_2}}/I_{K_{\alpha_1}}$ entre la mesure expérimentale et la valeur théorique est inférieur à 1.5%. Cela signifie que la théorie est en bon accord avec nos mesures.

4.2 Section efficace de production

La section efficace de production totale des rayons X type K est égale à la somme des sections efficaces de production de chaque pic des raies X de type K. Elle est indépendante du rapport de l'intensité $I_{K_{\beta}}/I_{K_{\alpha}}$.

Nous avons aussi utilisé l'intensité d'une raie K, pour convertir la section efficace de production de cette raie en section efficace de production totale des rayons X de type K. Cette méthode peut être utilisée dans le cas où il n'y a pas assez de statistique dans un pic (ou plusieurs) parmi les pics associés aux raies X de type K.

4.2.1 Section efficace de production des pics caractéristiques.

La section efficace de production d'une raie X (ou des raies X) de type K est donnée par la formule suivante (chapitre 1.3) :

$$\sigma_P(K_i) = \frac{N_X(K_i) \times \frac{\mu}{\rho}(K_i) \times \rho \times \cos(45)}{N_P \times N_Z \times \varepsilon_{tot}(K_i) \times (1 - e^{-\frac{\mu}{\rho}(K_i) \cdot \rho \cdot d})} \quad (4.5)$$

L'erreur associée est calculée selon la formule suivante :

$$\frac{\Delta\sigma_P(K_i)}{\sigma_P(K_i)} = \sqrt{\left(\frac{\Delta N_X(K_i)}{N_X(K_i)}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N_P}{N_P}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \varepsilon(K_i)}{\varepsilon(K_i)}\right)^2 + \left(\frac{\Delta d}{d}\right)^2} \quad (4.6)$$

Les valeurs de la section efficace de production des raies K_α ($\sigma_P(K_\alpha)$) et K_β ($\sigma_P(K_\beta)$) pour le titane et le cuivre en fonction de l'énergie des faisceaux de protons et de deutons sont données dans le Tableau 4.7.

Energie du faisceau (MeV)	Ti		Cu	
	$\sigma_P(K_\alpha)$ (barn)	$\sigma_P(K_\beta)$ (barn)	$\sigma_P(K_\alpha)$ (barn)	$\sigma_P(K_\beta)$ (barn)
12,5	568 ± 46	71,1 ± 6,4	239 ± 15	32,3 ± 2,2
14,5	-	-	275 ± 14	37,1 ± 2,3
30	534 ± 39	69,3 ± 5,2	395 ± 20	53,2 ± 2,7
42	432 ± 32	56,5 ± 4,4	340 ± 17	46,4 ± 2,4
54	373 ± 28	49,3 ± 3,8	297 ± 15	40,2 ± 2,1
68	313 ± 23	41 ± 3,1	268 ± 14	36,3 ± 1,9

Tableau 4.7 Les sections efficaces de production des raies K_α et K_β pour le titane et le cuivre pour les différents faisceaux.

L'incertitude sur les mesures pour le titane est de l'ordre de 7%, plus grande que pour le cuivre où elle est de l'ordre de 5%. Cette différence est due aux différences des incertitudes de l'efficacité et à la méthode de calcul du nombre de rayons X détectés pour chaque élément.

Nos valeurs de la section efficace de production des raies K_α , K'_{β_1} et K'_{β_2} de l'argent pour les différentes énergies du faisceau de protons sont présentées dans le Tableau 4.8 :

Energie du faisceau (MeV)	$\sigma_P(K_\alpha)$ (barn)	$\sigma_P(K'_{\beta_1})$ (barn)	$\sigma_P(K'_{\beta_2})$ (barn)
30	74,8 ± 2,9	13,0 ± 0,8	2,3 ± 0,15
42	81,7 ± 3,0	13,8 ± 0,7	2,5 ± 0,14
54	83,5 ± 3,2	14,2 ± 0,8	2,5 ± 0,15
68	82,6 ± 3,2	14,3 ± 0,8	2,5 ± 0,15

Tableau 4.8 Les sections efficaces de production des raies K_α , K'_{β_1} et K'_{β_2} de l'argent pour les différentes énergies du faisceau de protons

L'incertitude sur la mesure de la section efficace de production pour le pic principal (K_{α}) est inférieure à 4% et pour les pics K'_{β_1} « $\sigma_P(K'_{\beta_1})$ » et K'_{β_2} « $\sigma_P(K'_{\beta_2})$ » inférieure à 6%. La section efficace de production de K'_{β_2} , « $\sigma_P(K'_{\beta_2})$ », est très faible et l'incertitude associée importante principalement à cause de la faible statistique du pic de la raie K'_{β_2} dans le spectre (Figure 4.2).

Le tableau (Tableau 4.9) présente les sections efficaces de production des raies K_{α_1} , K_{α_2} , K'_{β_1} et K'_{β_2} de l'or pour les différentes énergies du faisceau de protons. L'incertitude sur les mesures expérimentales pour les deux raies K_{α_1} et K_{α_2} sont inférieures à 3%, inférieure à 6% pour les raies K'_{β_1} et voisine de 10% pour K'_{β_2} .

Energie du faisceau (MeV)	$\sigma_P(K_{\alpha_1})$ (barn)	$\sigma_P(K_{\alpha_2})$ (barn)	$\sigma_P(K'_{\beta_1})$ (barn)	$\sigma_P(K'_{\beta_2})$ (barn)
30	1,76 ± 0,05	1,04 ± 0,03	0,57 ± 0,03	0,17 ± 0,02
42	2,74 ± 0,07	1,63 ± 0,5	0,87 ± 0,04	0,27 ± 0,03
54	3,57 ± 0,10	2,13 ± 0,7	1,21 ± 0,06	0,31 ± 0,04
68	4,26 ± 0,13	2,53 ± 0,08	1,47 ± 0,07	0,34 ± 0,04

Tableau 4.9 Les sections efficaces de production des raies K_{α_1} , K_{α_2} , K'_{β_1} et K'_{β_2} de l'or pour différentes énergies des faisceaux de protons.

4.2.2 Section efficace de production totale.

La section efficace de production totale de rayons X de type K, « $\sigma_P^T(K)$ », est égale à la somme de toutes les sections efficaces de production de raies caractéristiques de type K :

$$\sigma_P^T(K) = \sum_i \sigma_P(K_i) \quad (4.7)$$

Energie du faisceau (MeV)	$\sigma_P^T(K)$ (barn)			
	Ti	Cu	Ag	Au
12,5*	640 ± 49	271 ± 17	-	
14,5*	-	312 ± 18		
30	604 ± 44	449 ± 23	90,1 ± 3,9	3,53 ± 0,14
42	488 ± 35	386 ± 20	98 ± 3,8	5,52 ± 0,18
54	422 ± 32	337 ± 17	100,2 ± 4,1	7,22 ± 0,27
68	354 ± 27	301 ± 16	99,5 ± 4,1	8,60 ± 0,32

Tableau 4.10 Les sections efficaces de production totale des rayons X de type K pour les éléments Ti, Cu, Ag et Au, en fonction des différents faisceaux (*Deuton)

Le Tableau 4.10 présente les valeurs de la section efficace de production de rayons X de type K pour le titane, le cuivre, l'argent et l'or en fonction de l'énergie des faisceaux incidents (protons et deutons). L'erreur sur les sections efficaces de productions totales varie entre 7% dans le cas de titane et 4% dans le cas de l'or. Ces valeurs renferment seulement les erreurs expérimentales déterminées dans ce travail (les erreurs sur le nombre de particules, l'efficacité et le nombre de rayons X). Ces valeurs de sections efficaces de production seront nos valeurs de référence pour la suite.

Nous avons aussi déterminé la section efficace de production totale à partir d'une raie principale en divisant la section efficace de production de cette raie par l'intensité correspondante. Dans les cas du titane et du cuivre, nous avons calculé la section efficace de production de rayons X de type K par l'intermédiaire du rapport d'intensité $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ donné dans le chapitre 2 (voir chapitre 2 partie 2.1.7). L'ensemble de ces résultats est présenté dans le Tableau 4.11:

Energie du faisceau (MeV)	Raie principale	$\sigma_p^T(K)$ (barn)	
		Ti	Cu
12,4*	K_α	641 ± 53	271 ± 17
	K_β	631 ± 58	275 ± 18
14,4*	K_α	-----	311 ± 18
	K_β		314 ± 19
30	K_α	602 ± 45	449 ± 23
	K_β	615 ± 47	452 ± 23
42	K_α	487 ± 37	385 ± 19
	K_β	501 ± 40	394 ± 20
54	K_α	420 ± 32	337 ± 17
	K_β	437 ± 34	341 ± 18
68	K_α	354 ± 27	301 ± 15
	K_β	364 ± 28	302 ± 15

Tableau 4.11 Les sections efficaces de production totale de rayon X de type K pour différentes énergies des faisceaux de protons (*Deuton) en utilisant les informations relatives à une raie principale.

Les sections efficaces de production totale obtenues à partir de K_α et de K_β sont en bon accord les unes avec les autres. La comparaison entre les deux valeurs de la section efficace de production totale pour le même élément dans les deux tableaux Tableau 4.10 et Tableau 4.11 montre un écart de moins de 0,5% lorsque nous avons utilisé la raie K_α et un écart de 3.6% lorsque nous avons utilisé la raie K_β . Nous avons conclu que notre choix du rapport d'intensité

K_β/K_α est suffisamment précis pour calculer la section efficace de production totale pour les deux éléments titane et cuivre.

Dans le cas de l'argent, nous avons calculé la section efficace de production totale de rayons X de type K à partir de deux pics principaux qui correspondent aux raies K_α et K'_{β_1} en utilisant les rapports $I_{K'_{\beta_1}}/I_{K_\alpha}$ et I_{K_β}/I_{K_α} donnés dans le chapitre 2 (voir paragraphe 2.1.7). Ces résultats sont présentés dans le Tableau 4.12

Energie du faisceau (MeV)	$\sigma_p^T(K)$ (barn)	
	Calculé à partir des raies K_α	Calculé à partir des raies K'_{β_1}
30	89.9 ± 3.7	86.2 ± 5.5
42	98.1 ± 3.9	91.7 ± 5.1
54	$100,3 \pm 4.1$	93.9 ± 5.7
68	99.3 ± 4.1	95.0 ± 5.5

Tableau 4.12 Les sections efficaces de production totale de rayon X de type K pour différentes énergies des faisceaux de protons à partir des raies principales de l'argent.

L'incertitude sur la mesure de la section efficace de production que nous avons calculée à partir des raies K_α de l'argent est inférieure à 4.2% et celle des raies K'_{β_1} est inférieure à 6.5%. Dans ce dernier cas, on ne prend pas en compte l'erreur sur les valeurs théoriques du rapport d'intensité $K'_{\beta_1}/K_{\alpha_1}$ (voir chapitre 2 2.1.7). Les valeurs issues des raies K'_{β_1} sont systématiquement plus faibles que celles issues de K_α . L'écart entre les deux mesures peut être dû à l'utilisation de la valeur théorique du rapport d'intensité et $I_{K'_{\beta_1}}/I_{K_\alpha}$ (voir Tableau 4.6).

La comparaison entre les deux valeurs de la section efficace de production de rayons X de type K des tableaux Tableau 4.8 et Tableau 4.12 montre un écart inférieur à 0,3% lorsque nous avons utilisé la raie K_α et un écart inférieur à 6.4% lorsque nous avons utilisé la raie K_β . Nous avons conclu que l'utilisation des raies K_α de l'argent, avec le rapport d'intensité K_β/K_α choisi, permet de fournir la section efficace de production totale avec une bonne précision.

Energie du faisceau (MeV)	$\sigma_p^T(K)$ (barn)	
	Calculé à partir de la raie K_{α_1}	Calculé à partir de la raie K_{α_2}
30	$3.52 \pm 0,14$	$3.57 \pm 0,15$
42	$5.50 \pm 0,20$	$5.56 \pm 0,21$
54	$7.17 \pm 0,27$	$7.28 \pm 0,29$
68	$8.55 \pm 0,34$	$8.64 \pm 0,36$

Tableau 4.13 Les sections efficaces de production totale des rayons X de type K pour différentes énergies des faisceaux de protons à partir des raies principales de l'or.

Le Tableau 4.13 présente les valeurs de la section efficace de production de rayons X de type K de l'or calculées à partir des raies les plus intenses K_{α_1} et K_{α_2} en utilisant les rapports $I_{K_{\alpha_2}}/I_{K_{\alpha_1}}$ et $I_{K_{\beta}}/I_{K_{\alpha}}$ donnés dans le chapitre 2 (voir 2.1.7). L'incertitude moyenne sur les mesures est égale à 4%. L'écart entre les deux mesures est inférieur à 1.5%, car le rapport d'intensité $I_{K_{\alpha_2}}/I_{K_{\alpha_1}}$ théorique est proche de celui mesuré dans ce travail (voir Tableau 4.6).

La comparaison entre la section efficace totale de production de rayons X de type K mesurée (Tableau 4.10) et les valeurs obtenues de manières indirectes présentées dans le Tableau 4.13 sont très proches avec un écart inférieur à 1%. On peut en conclure que les mesures à partir des raies K_{α_2} et K_{α_1} sont fiables.

Avec pour objectif de vérifier la bonne prise en compte des effets liés à l'épaisseur de la cible, nous avons réalisé une irradiation en utilisant une cible de cuivre d'épaisseur 20 μm . Nous avons réalisé cette expérience avec des faisceaux de protons d'énergies 42 et 54 MeV. Nous avons obtenu un écart inférieur à 1 % sur la section efficace totale de production de rayons X de type K entre les valeurs de cette expérience et celles obtenues avec la cible plus mince. Cela montre notre bonne maîtrise des effets influencés par l'épaisseur de la cible.

Les valeurs de sections efficaces totales de production obtenues en faisant la somme des sections efficaces partielles des différentes raies K_{α} et K_{β} sont en bon accord avec les sections efficaces de production totale calculées à partir des raies K_{α} . Il y a une différence plus importante avec les valeurs obtenues à partir des raies K_{β} .

Dans la partie suivante, nous comparons les sections efficaces totales de production mesurées dans ce travail avec celles disponibles dans la bibliographie. Pour cette comparaison, nous avons choisi d'utiliser les sections efficaces de production totales calculées à partir de la somme des sections efficaces de production partielles.

4.2.3 Comparaison avec les données bibliographiques.

4.2.3.1 Cas du titane

La Figure 4.8 présente la section efficace de production totale des rayons X de type K du titane en fonction de l'énergie du proton incident entre 1 et 70 MeV. Cette figure présente nos mesures (points rouges) et les données publiées entre 1970 et 2005. Parmi ces différentes données, on trouve une seule mesure au-delà de 30 MeV, celle de A. Denker (Denker, et al., 2005) à 68 MeV (carré bleu).

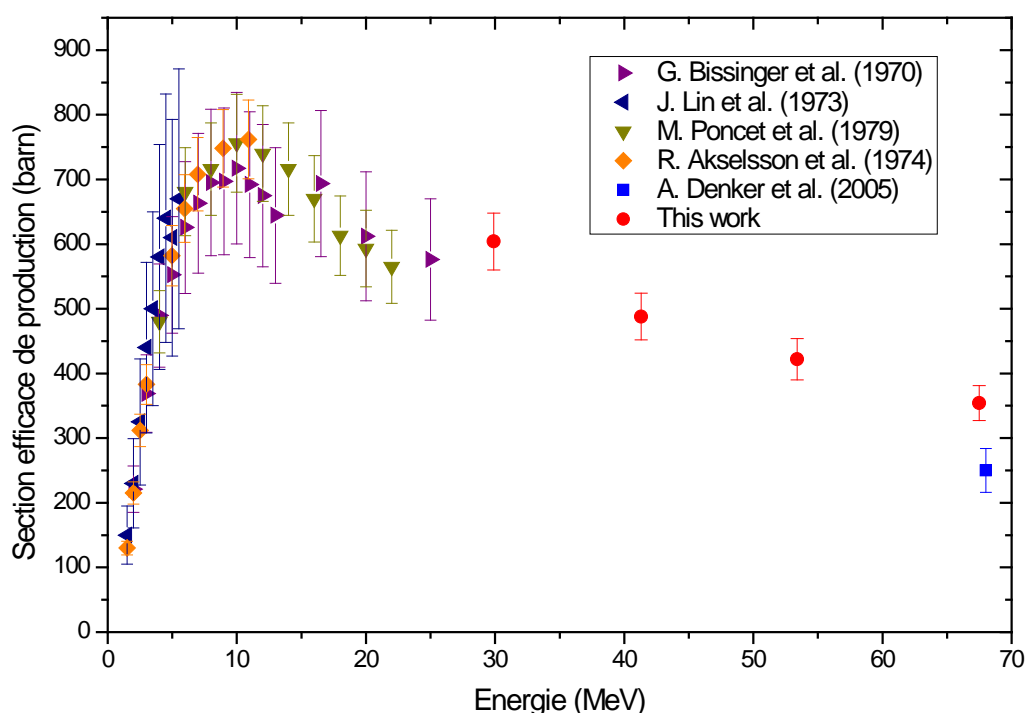


Figure 4.8 Valeurs expérimentales de la section efficace totale de production des rayons X de type K du titane en fonction de l'énergie des protons incidents.

Nos points semblent être au-dessus de la tendance que l'on peut extrapoler à partir des points aux énergies plus faibles. Il faut cependant être prudent car il y a des disparités importantes entre les différentes séries de points à basse énergie. La sélection d'une série ou une autre amène à des conclusions différentes. L'écart entre notre mesure à 68 MeV et celle de A. Denker est de 30%. Dans le cas du titane, on se trouve dans une zone d'énergie où l'efficacité du détecteur évolue rapidement et une grande maîtrise du détecteur est nécessaire. Cela nous a amené à porter une attention particulière à la modélisation de notre détecteur ce qui n'est pas discuté par la plupart des autres auteurs.

4.2.3.2 Cas du cuivre

La Figure 4.9 présente les sections efficaces de production de rayons X de type K du cuivre en fonction de l'énergie des protons incidents. Elle présente aussi les données bibliographiques publiées entre 1970 et 2005. Nos mesures faites avec les protons à haute énergie (30, 42, 54 et 68 MeV) sont représentées par des points rouges. Afin d'obtenir des informations avec des

projectiles de basses énergies, nous avons complété ces données avec des mesures en deutons de basse énergie (6,2MeV/u et 7,2MeV/u).

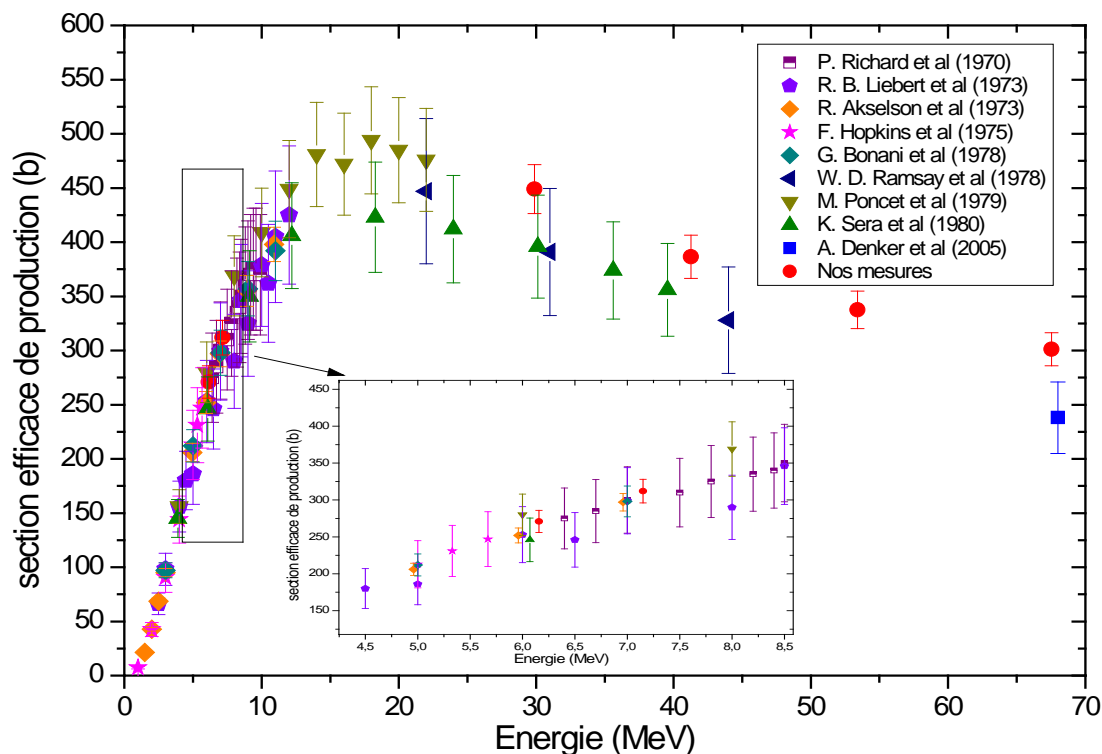


Figure 4.9 La section efficace totale de production des rayons X de type K du cuivre en fonction de l'énergie des protons incidents.

À faible énergie, nous avons trouvé que nos mesures sont en bon accord avec les autres mesures expérimentales. Cela signifie qu'il n'y a pas une erreur systématique dans notre dispositif expérimental et que nos mesures de la section efficace totale de production des rayons X de type K sont sous contrôle ce qui nous permet d'avoir une forte confiance dans les valeurs obtenues pour les autres énergies.

Les autres mesures à haute énergie présentent la même tendance en fonction de l'énergie incidente du projectile que les points expérimentaux de la littérature. On trouve un écart entre nos données et celles de la littérature. Cet écart est inférieur à 10% avec les mesures de K. Sera (Sera, et al., 1980) (triangle vert) et de W.D. Ramsay (Ramsay, et al., 1978) (triangle bleu marine). A 68 MeV, on trouve un écart de 20% par rapport à la valeur obtenue par A. Denker (Denker, et al., 2005) (carré bleu).

4.2.3.3 Cas de l'argent

Les sections efficaces de production des rayons X de type K pour l'argent en fonction de l'énergie du proton incident sont présentées dans la Figure 4.10. Les données bibliographiques présentées ont été obtenues dans les années 1970. Nous n'avons pas trouvé d'autres mesures plus récentes pour l'argent. Cette figure montre des points de mesures communs dans la région de 30 MeV à 42 MeV avec celle de W. D Ramsay (Ramsay, et al., 1978) et G. Bissinger (Bissinger, et al., 1972). On note une dispersion importante des données dans cette région. L'écart avec nos mesures varie entre 2% et 12%.

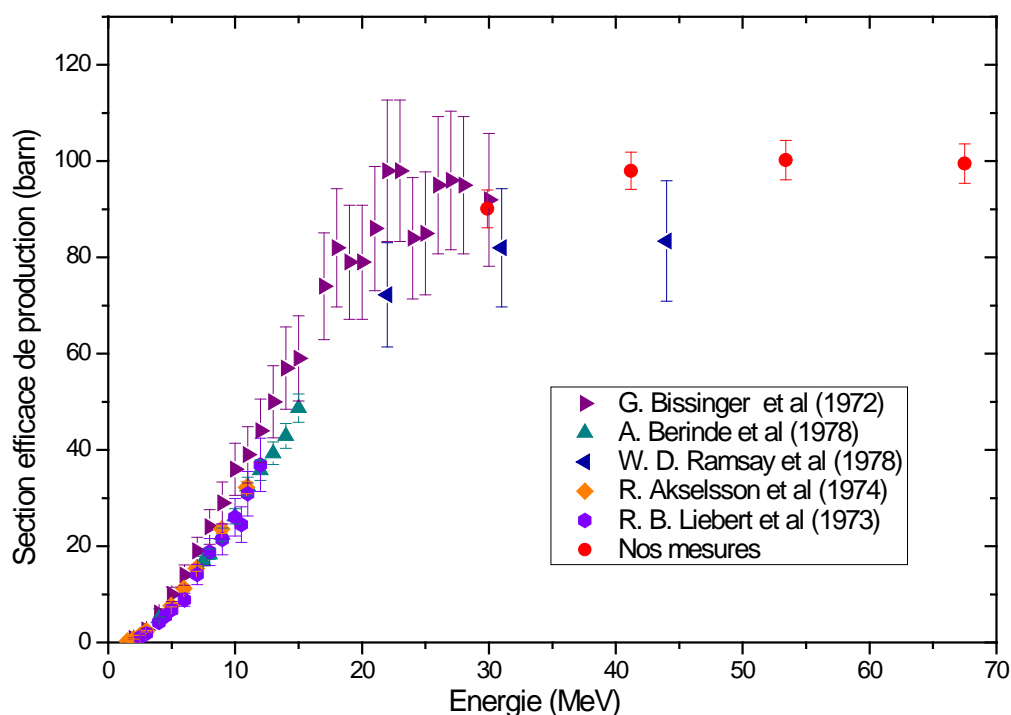


Figure 4.10 La section efficace de production de rayons X de type K de l'argent en fonction de l'énergie des protons incidents.

4.2.3.4 Cas de l'or

La Figure 4.11 présente nos mesures de sections efficaces totales de production de rayons X de type K pour l'or (points rouges) en fonction de l'énergie des protons incidents. Elle présente aussi les données bibliographiques publiées entre 1973 et 2005. Nous avons trouvé un écart de 5% par rapport à la mesure de A. Denker à 68 MeV et un écart de 9% par rapport à celle de C.A. Pineda (Pineda, et al., 1990) à 66 MeV. L'ensemble de ces valeurs sont compatibles entre elles compte tenu des incertitudes associées. Nos mesures sont en bon accord avec les tendances des mesures de W.D. Ramsay et des mesures de M. Dost (Dost, et al., 1981) entre 30 et 42 MeV.

4.2.3.5 Commentaires sur les résultats obtenus

L'accord trouvé avec les données publiées pour le Cu, l'Ag et l'Au valide le dispositif expérimental et en particulier la mesure du nombre de particules incidentes et l'efficacité du détecteur dans la région de 5,9 keV à 70keV.

Dans le cas du titane, nous avons un désaccord avec la tendance des données expérimentales à haute énergie au-delà de 30 MeV. Plusieurs sources d'erreurs sont possibles :

- La détermination du nombre de rayons X :
Les pics du Ti, K_{α} et K_{β} se trouvent dans une région où le bruit de fond est conséquent. Les résultats de la partie (4.1.3) montrent que le rapport $I_{K_{\beta}}/I_{K_{\alpha}}$ du Ti est en bon accord à la fois avec les données empiriques et théoriques. Cela confirme que la procédure utilisée dans ce travail pour extraire le nombre de rayons X des pics du titane est précise.
- La détermination de l'efficacité du détecteur dans cette gamme d'énergie (<5 keV):
L'efficacité dépend du choix de la section efficace d'ionisation de la couche K du titane à 6 MeV et du dispositif expérimental que l'on a validé. Or nous avons choisi la valeur empirique de A. Kahoul (Kahoul, et al., 2011) qui est en accord à la fois avec les valeurs expérimentales et théoriques (voir chapitre 2.3.4). Donc la mesure de l'efficacité du titane, présentée dans le chapitre 3 (voir partie 3.2.3) est précise.
- Une erreur systématique dans nos mesures non encore identifiée. Cette source d'erreur peut aussi être présente dans les données publiées compte tenu de la difficulté à déterminer l'efficacité de détection dans cette zone d'énergie. L'utilisation d'un autre dispositif de détection avec une technologie différente, par exemple un Si(Li) pourrait permettre d'identifier une potentielle erreur systématique en refaisant cette mesure pour le titane.

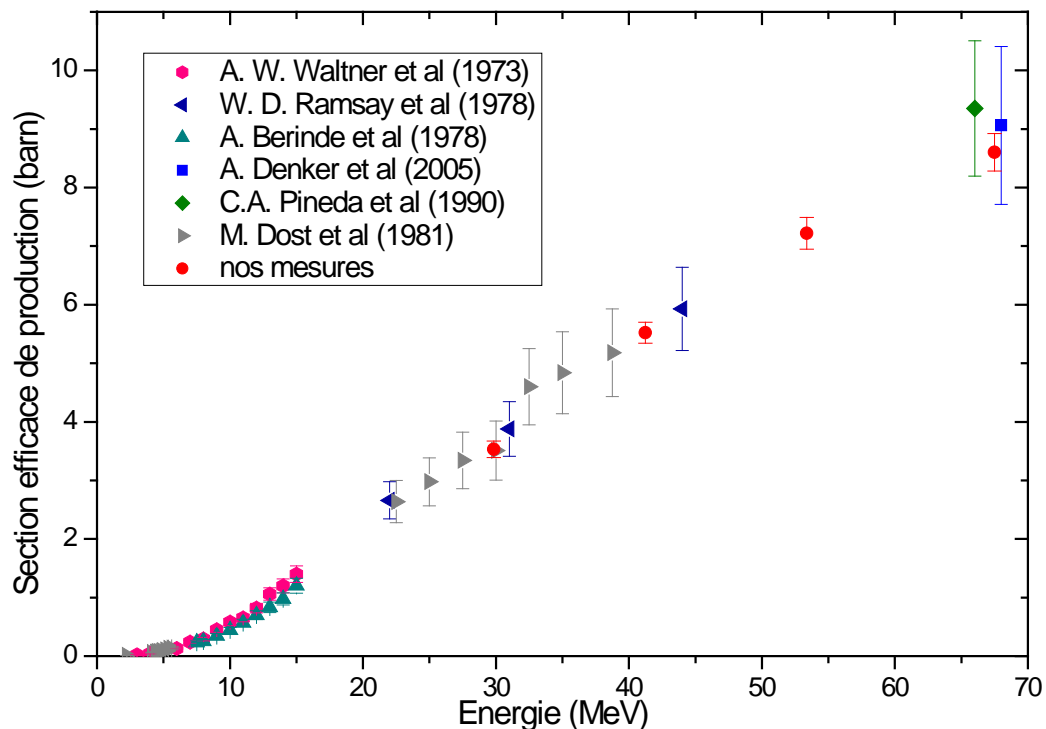


Figure 4.11 La section efficace de production des rayons X de type K de l'or en fonction de l'énergie des protons incidents

Afin de poursuivre notre compréhension des valeurs mesurées, nous avons effectué une comparaison avec les différents modèles disponibles pour l'évaluation des sections efficaces de production des raies X de type K.

4.3 Section efficace d'ionisation de la couche K.

Dans cette partie nous comparons les sections efficaces d'ionisation expérimentales et théoriques qui sont calculées avec les modèles ECPSSR et PWBA. Ces dernières ont été présentées dans le chapitre 2 (voir partie 2.3.4.4). Pour le titane, le cuivre et l'argent, les valeurs des deux modèles sont assez proches à haute énergie. Dans ces cas, le modèle PWBA ne sera pas présenté. Par contre il sera présenté dans le cas de l'or pour lequel les deux modèles ne donnent pas les mêmes valeurs à haute énergie.

À partir de la section efficace totale de production de rayons X de type K « $\sigma_p^T(K)$ ». On peut déduire les sections efficaces d'ionisation de la couche K « $\sigma_I(K)$ » par la formule suivante :

$$\sigma_I(K) = \sigma_p^T(K) / \omega_K \quad (4.8)$$

avec ω_K qui représente le rendement de fluorescence de la couche K, Nous avons utilisé la valeur moyenne pondérée du rendement de fluorescence, que nous avons étudié dans le chapitre 2 (partie 2.2), pour calculer les sections efficaces d'ionisation expérimentales.

Energie du faisceau (MeV)	$\sigma_I(K)$ (barn)			
	Ti	Cu	Ag	Au
12,5*	-	605 ± 34	-	
14,5*	-	695 ± 42		
30	2811 ± 217	1000 ± 52	108,2 ± 4,8	3,69 ± 0,21
42	2273 ± 177	861 ± 45	117,7 ± 4,8	5,75 ± 0,31
54	1966 ± 154	752 ± 40	120,4 ± 5,2	7,53 ± 0,43
68	1650 ± 129	671 ± 35	119,6 ± 5,1	8,97 ± 0,51

Tableau 4.14 Les sections efficaces d'ionisation de la couche K pour différentes cibles : titane, cuivre, argent et or en fonction de l'énergie du proton incident (30, 42, 54 et 68 MeV) et du deuton incident (12,5 et 14,5 MeV).

Le tableau ci-dessus présente nos mesures de sections efficaces d'ionisation de la couche K pour différentes cibles : titane, cuivre, argent et or en fonction de l'énergie du faisceau incident de protons pour les énergies de 30, 42, 54 et 68 MeV, et de deutons pour les énergies de 12,5 et 14,5 MeV.

Les sections efficaces d'ionisation théoriques de la couche K sont indépendantes de l'intensité relative $I_{K\beta}/I_{K\alpha}$ et du rendement de fluorescence ω_K .

Les figures présentées ci-dessous sont obtenues à partir de celles de la partie précédente, en divisant la section efficace totale par le rendement de fluorescence, et en rajoutant les sections efficaces d'ionisations théoriques. On a montré dans le chapitre 2 (voir partie 2.3.4.3.) que le modèle ECPSSR est en bon accord avec les mesures expérimentales à basse énergie (<8-10MeV).

La Figure 4.12 permet de comparer le modèle ECPSSR (courbe noire) et les mesures expérimentales de la section efficace d'ionisation de la couche K (à partir des données bibliographiques et nos mesures) pour la cible de titane en fonction de l'énergie des protons incidents (1 à 70 MeV).

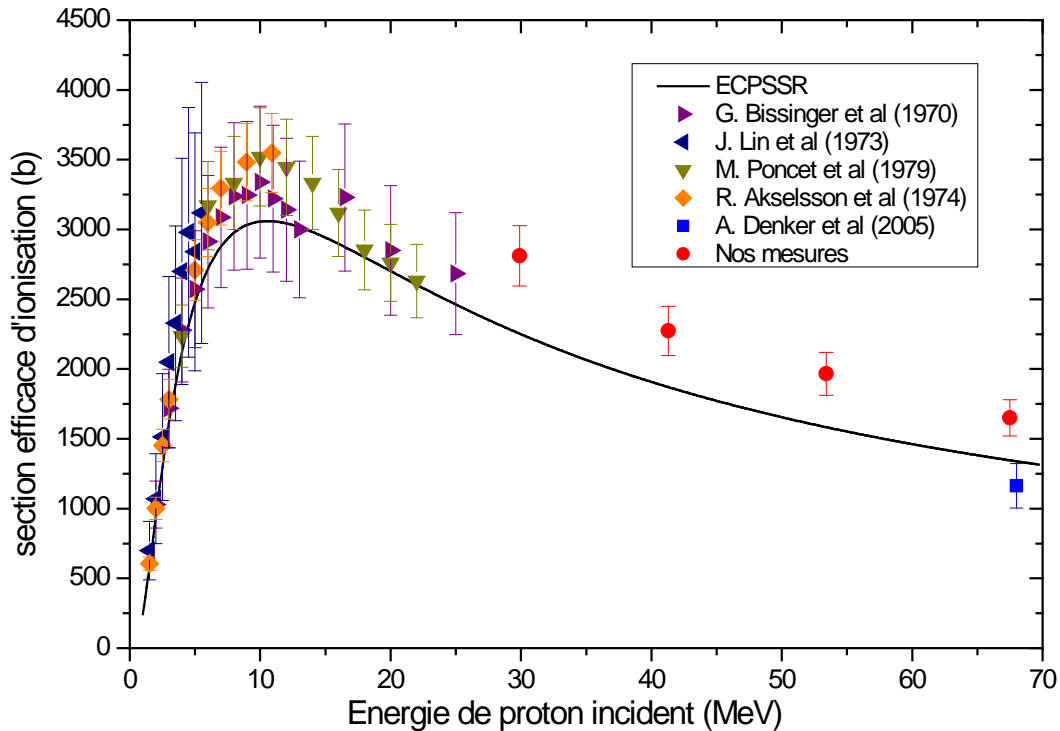


Figure 4.12 La section efficace d'ionisation de la couche K du titane en fonction de l'énergie des protons incidents.

Nos mesures expérimentales (points rouges) de la section efficace d'ionisation à haute énergie ont la même tendance que celle du modèle ECPSSR avec un écart moyen de 20 %

Dans ce cas, il est difficile de tirer une conclusion puisque nos mesures ne sont pas en accord avec les données expérimentales bibliographiques. On note que le modèle semble sous-estimer la section efficace d'ionisation de la couche K autour du maximum de l'ordre de 15%.

Dans le cas de Cu (Figure 4.13), nos mesures avec les deutons à basse énergie (encart dans la figure) sont en accord avec la théorie ECPSSR avec un écart de moins de 6%. A haute énergie, nos mesures montrent la même tendance que les sections efficaces du modèle ECPSSR (courbe noire) avec un écart de l'ordre de 12%. Là encore, le modèle semble sous-estimer la valeur de la section efficace d'ionisation au niveau du maximum avec un écart de l'ordre de 15%.

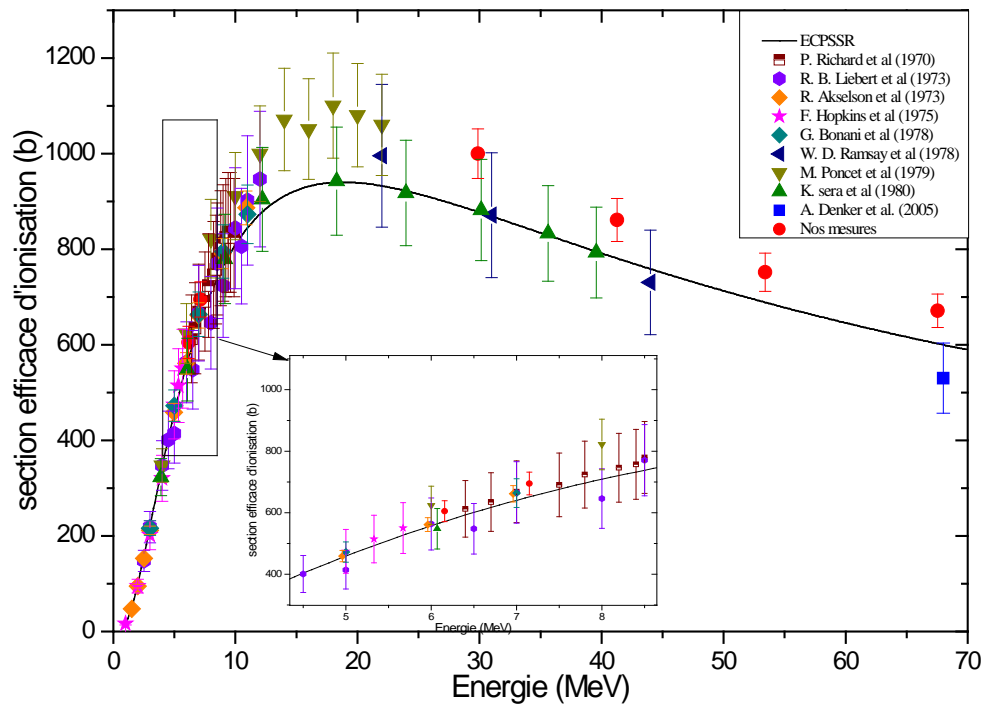


Figure 4.13 La section efficace d'ionisation de la couche K du cuivre en fonction de l'énergie des protons incidents. L'encart sur la figure permet de zoomer sur la partie basse énergie.

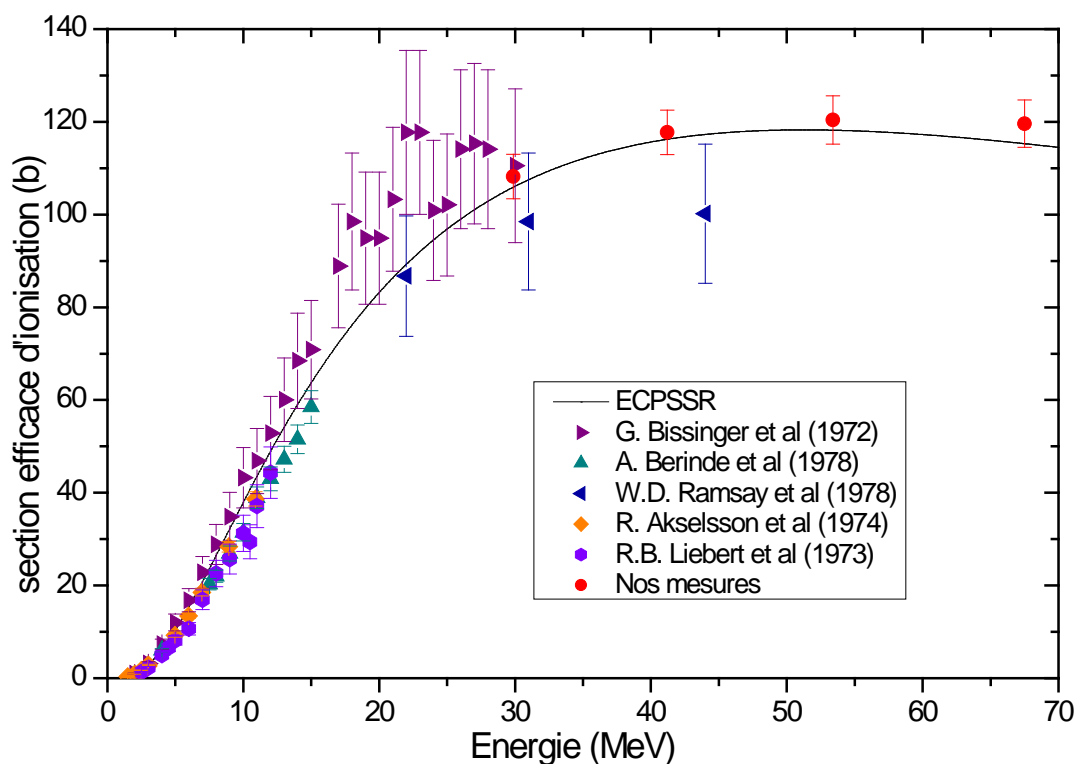


Figure 4.14 La section efficace d'ionisation de la couche K de l'argent en fonction de l'énergie des protons incidents

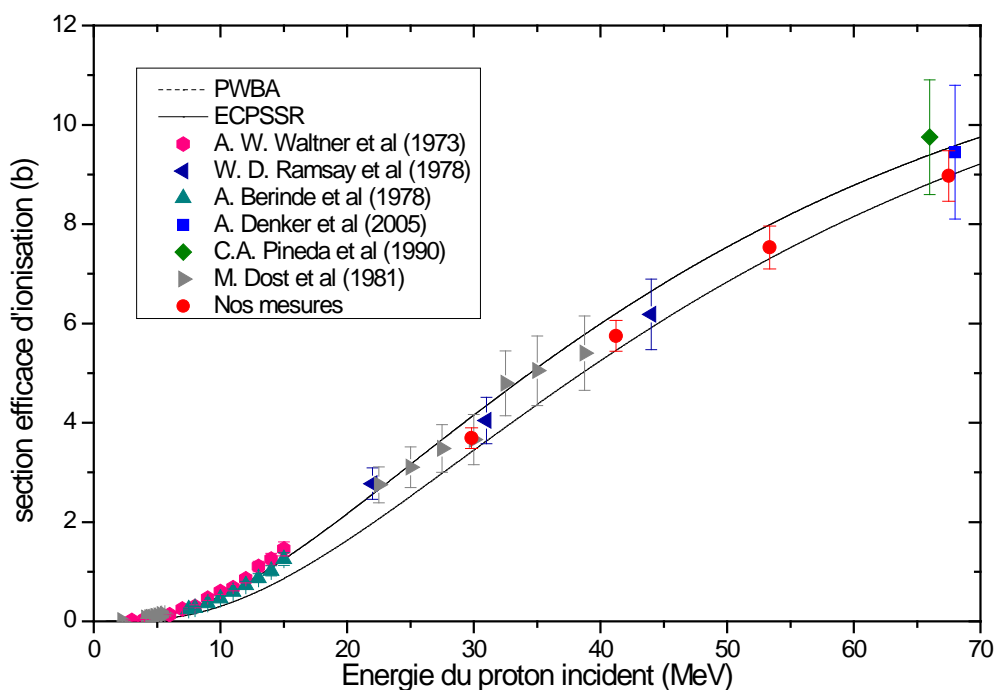


Figure 4.15 La section efficace d'ionisation de la couche K de l'or en fonction de l'énergie des protons incidents

Dans le cas de l'Ag (Figure 4.14), nos mesures sont en bon accord avec les valeurs théoriques du modèle ECPSSR (courbe noire) avec un écart au maximum de 4%. Dans ce cas on peut

conclure que le modèle ECPSSR est en accord avec les données mesurées compte tenu des barres d'erreurs.

Dans le cas de l'or (Figure 4.15), nos mesures de la section efficace d'ionisation de la couche K ont la même tendance que celle du modèle ECPSSR (courbe noire) avec un écart qui varie entre 6 et 9%. Là encore, on peut conclure que le modèle ECPSSR est en accord avec les données mesurées compte tenu des barres d'erreurs.

Avec ces comparaisons, on peut conclure que le modèle reproduit correctement les données quand on se retrouve dans la partie basse énergie des courbes de sections efficaces de production des raies X de type K, avant le maximum. Cela est vérifié pour les 4 cibles utilisées. Lorsque l'on travaille au-delà du maximum, on trouve un désaccord entre les mesures et les prédictions du modèle.

4.4 Comparaison avec le modèle RECPSSR.

Comme nous avons montré dans le chapitre 2.3.3.1, le modèle RECPSSR prend en compte l'effet relativiste (R) de la particule incidente. Cet effet doit être présent dans la gamme des énergies que nous utilisons dans nos expériences.

Les figures suivantes (Figure 4.16, Figure 4.17, Figure 4.18 et Figure 4.19) présentent les valeurs expérimentales (nos mesures en points rouges) des sections efficaces d'ionisation de la couche K pour différents cible (Ti, Cu, Ag et Au) en fonction de l'énergie incidente de protons (de 1 à 70 MeV). Elles présentent aussi les deux modèles théoriques ECPSSR (courbe noire) et RECPSSR (courbe bleue).

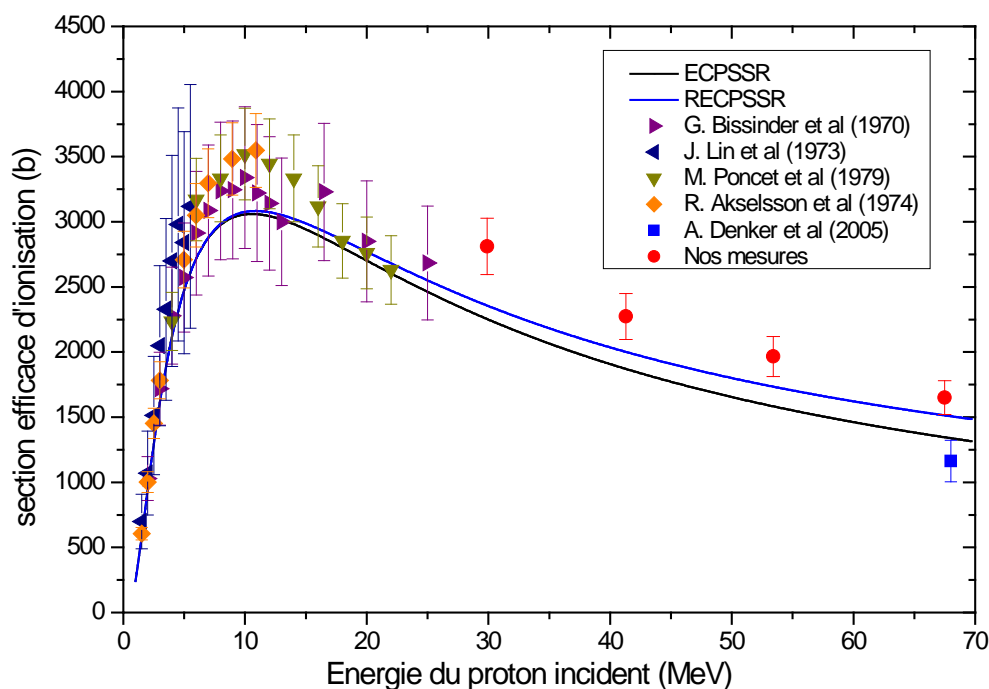


Figure 4.16 Les valeurs expérimentales des sections efficaces d'ionisation de la couche K du titane en fonction de l'énergie des protons incidents, comparé avec les modèles théoriques ECPSSR et RECPSSR

Comme attendu, c'est à haute énergie que l'on voit des différences et le modèle RECPSSR est plus proche de nos mesures de sections efficaces d'ionisation de la couche K du titane que le modèle ECPSSR. L'écart des valeurs entre le modèle théorique RECPSSR et nos mesures est inférieur à 16%

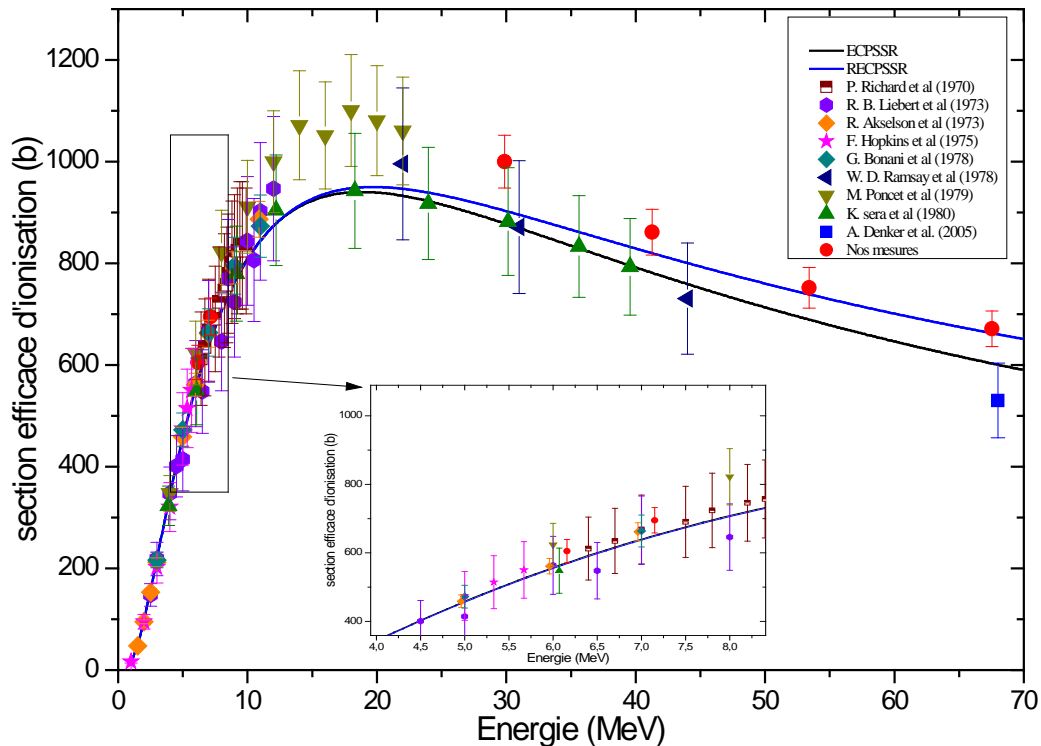


Figure 4.17 Les valeurs expérimentales des sections efficaces d'ionisation de la couche K du cuivre en fonction de l'énergie des protons incidents, comparées avec les modèles théoriques ECPSSR et RECPSSR

Pour le cas du cuivre, la Figure 4.17 montre que le modèle RECPSSR est en meilleur accord avec nos mesures. L'écart entre nos mesures et le modèle RECPSSR est compris entre 1.3% et 9.7%.

La figure (Figure 4.18) montre que, dans le cas de l'argent, nos mesures sont en meilleur accord avec les valeurs théoriques du modèle RECPSSR (Courbe bleue) avec un écart de moins de 3,5% et avec la même tendance qu'avec le modèle ECPSSR.

On retrouve la même conclusion pour l'or comme on peut le constater sur la figure (Figure 4.19). L'écart entre nos mesures et le modèle RECPSSR est égal à 5% à 30 MeV et moins de 1% pour les autres énergies incidentes

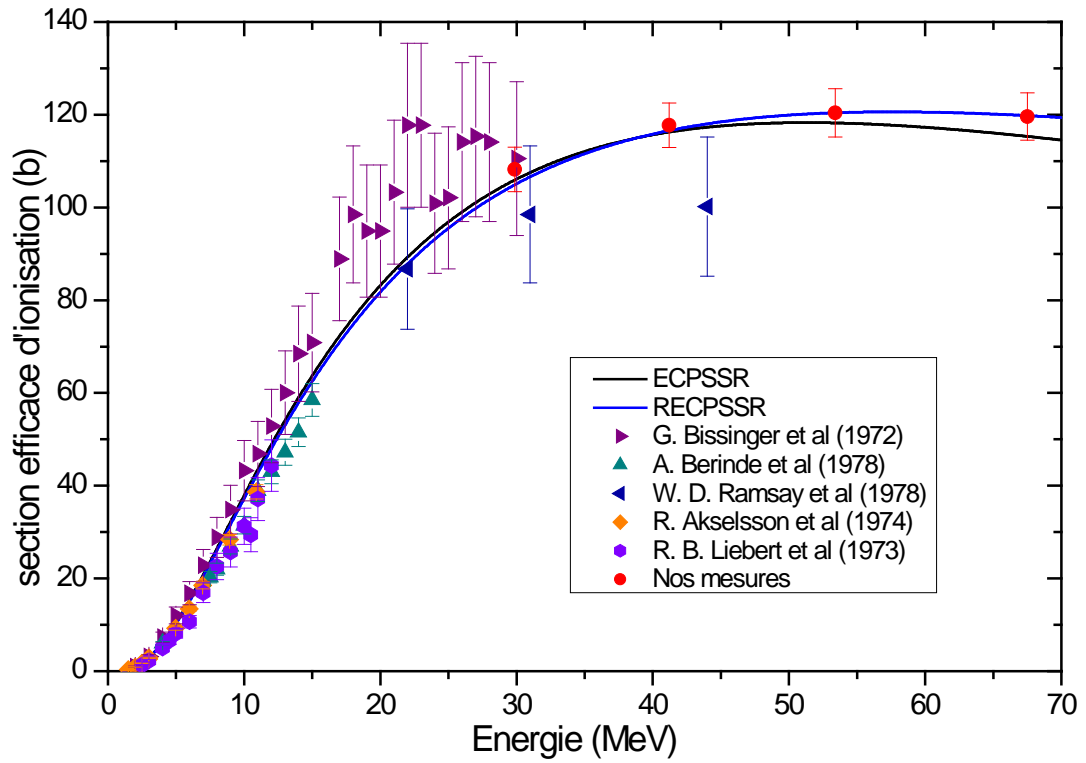


Figure 4.18 Les valeurs expérimentales des sections efficaces d'ionisation de la couche K d'argent en fonction de l'énergie des protons incidents, comparé avec les modèles théoriques ECPSSR et RECPSSR.

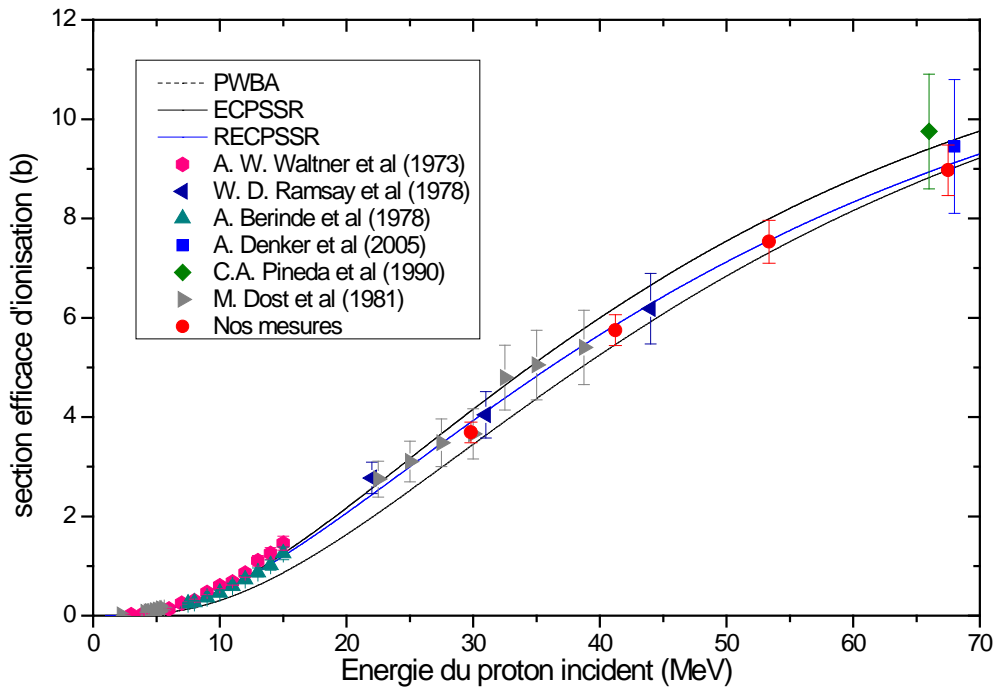


Figure 4.19 Les valeurs expérimentales des sections efficaces d'ionisation de la couche K de l'or en fonction de l'énergie des protons incidents, comparées avec les modèles théoriques ECPSSR et RECPSSR.

Le modèle RECPSSR reproduit bien nos mesures dans le cas de l'argent et de l'or. Il reproduit aussi les mesures dans le cas du cuivre compte tenu des incertitudes de mesure sauf au point 30 MeV qui est proche du maximum de la section efficace. Dans le cas du Ti, la correction relativiste a réduit l'écart du modèle avec nos mesures. Elle a aussi réduit l'écart au point à 30 MeV dans le cas de Cu.

Afin d'avoir une vue globale des valeurs mesurées et de leur accord avec les modèles, nous allons présenter la section efficace universelle en fonction de l'énergie réduite du proton.

La Figure 4.20 présente la section efficace d'ionisation universelle pour nos données et le modèle RECPSSR dans le cas de l'argent et de l'or. On a présenté les données de ces deux atomes ensemble parce qu'elles se retrouvent dans la même région située sur la partie gauche de la courbe universelle. Notons qu'il y a une différence entre les deux courbes dans cette représentation quasi-universelle. Dans cette région le modèle RECPSSR est en bon accord avec les données existantes comme on l'a déjà identifié auparavant ce qui confirme la validité de ce modèle dans cette région.

La Figure 4.21 présente la section efficace d'ionisation universelle pour nos données et le modèle RECPSSR dans le cas du titane et cuivre. Nos points se situent majoritairement dans la partie droite de la courbe après le maximum de la courbe sauf pour les deux points du cuivre de basse énergie (obtenu avec les deutons) qui se trouvent à gauche du maximum. Dans le cas de Cu, plus on s'approche du maximum, plus on a un désaccord avec la théorie. Dans le cas du Ti, les points sont très différents des valeurs déterminées avec le modèle RECPSSR.

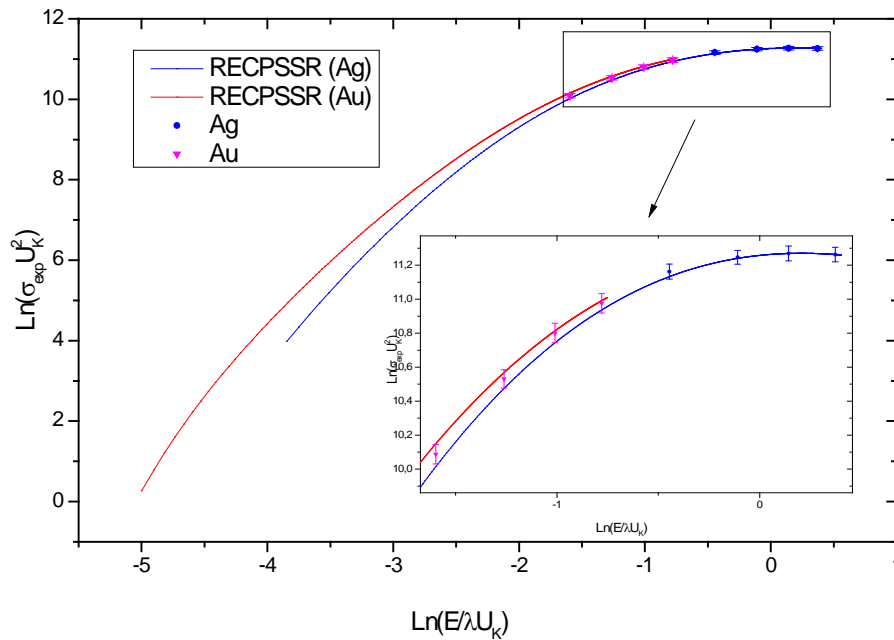


Figure 4.20 Section efficace d'ionisation universelle en fonction de l'énergie réduite. Les points correspondent à nos mesures pour l'argent et l'or, les courbes aux valeurs déterminées avec le modèle RECPSSR.

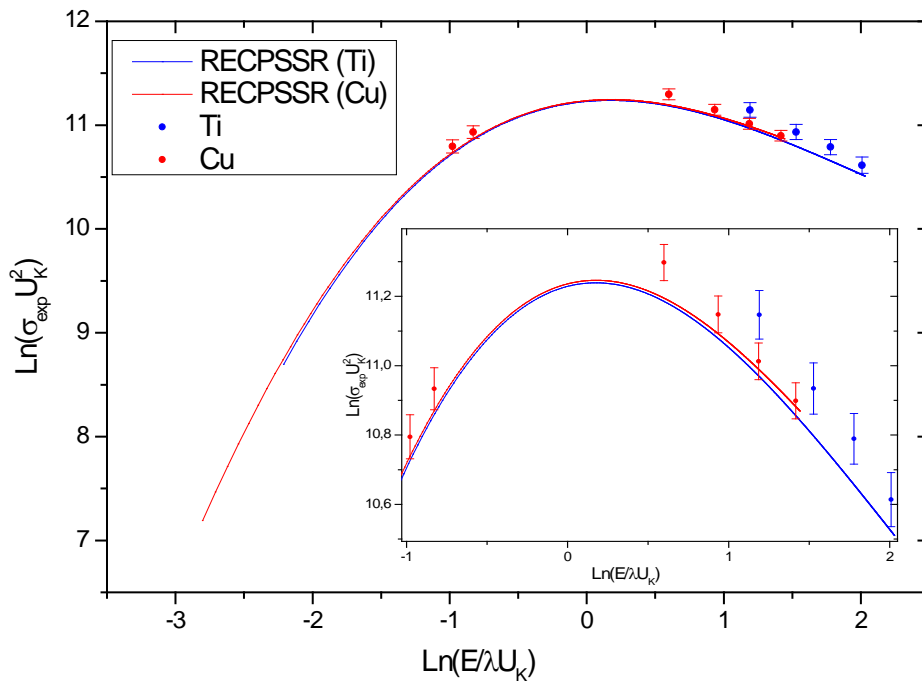


Figure 4.21 Section efficace d'ionisation universelle en fonction de l'énergie réduite. Les points correspondent à nos mesures pour le cuivre et le titane, les courbes aux valeurs déterminées avec le modèle RECPSSR.

On retrouve bien un écart entre les valeurs du modèle et celles mesurées pendant ce travail. Pour aller plus avant dans ce travail, nous avons choisi de comparer nos données avec les modèles empiriques. Nous allons nous focaliser sur le titane qui est l'élément pour lequel il y a la plus grande différence avec les modèles et celui qui présente aussi une forte incertitude expérimentale compte tenu de la difficulté de la mesure.

La figure (Figure 4.22) présente l'ajustement empirique de Kahoul et al (Kahoul, et al., 2011) pour la section efficace d'ionisation universelle du titane. Cet ajustement a été fait en utilisant des données sur une gamme d'énergies réduites allant de -5,48 et 0,88. Nous avons extrapolé cet ajustement pour travailler dans la gamme d'énergie réduite de nos valeurs expérimentales qui se situe au-delà de 1,18. Cet ajustement est représenté par une courbe bleue sur la figure. Il est en parfait accord avec nos données. Comme indiqué précédemment, il présente un désaccord important avec le modèle autour du maximum et est en accord avec le modèle pour les basses énergies réduites.

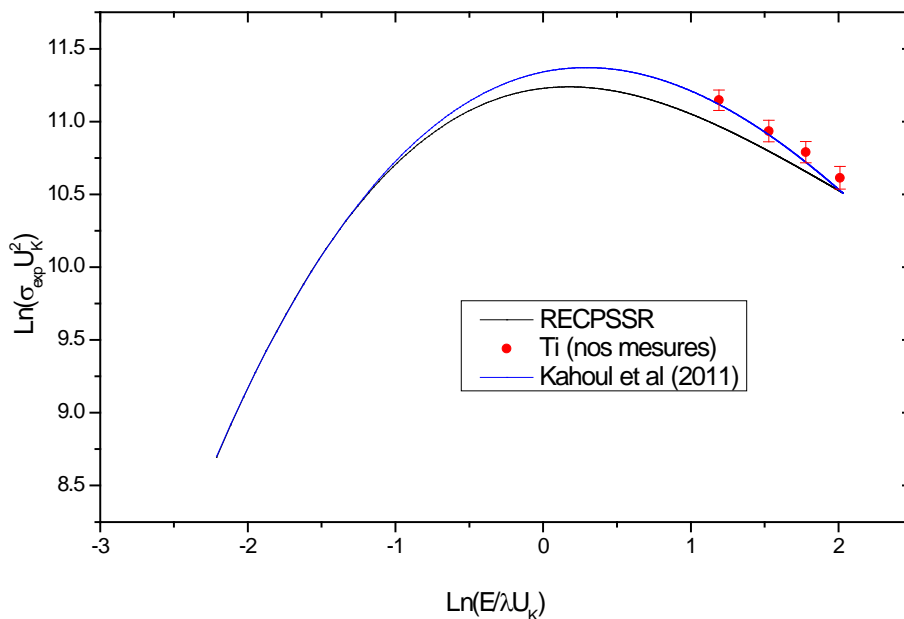


Figure 4.22 les points expérimentaux (nos mesures), le modèle RECPSSR et l'ajustement empirique de Kahoul et al de la section efficace d'ionisation universelle pour le titane en fonction de l'énergie réduite

L'ensemble de ces comparaisons, avec les données de la littérature, les modèles théoriques et les modèles empiriques, nous conforte dans la qualité des données mesurées lors de ce travail. On a pu montrer que le modèle RECPSSR est le modèle qui reproduit le mieux l'ensemble des données collectées. Il est en parfait accord avec les données disponibles pour les énergies réduites négatives. Il reproduit aussi correctement les données pour les éléments lourds, Argent et or. Pour le cuivre, à haute énergie le modèle est en accord avec les données mesurées. On trouve un désaccord du modèle pour les données du titane et pour les données du cuivre autour du maximum de la courbe.

Cela nous indique que des données additionnelles sont nécessaires dans cette gamme d'énergie réduite pour les éléments légers. Il serait aussi intéressant pour les éléments lourds d'explorer les hautes énergies pour accéder à des énergies réduites positives.

Enfin, un travail théorique reste à faire pour que les modèles puissent reproduire correctement l'ensemble des sections efficaces d'ionisation des couches K.

Conclusion générale

Une série de mesures de la section efficace d'ionisation de la couche K à haute énergie (entre 30 et 68 MeV) pour une large plage de numéro atomique Z (titane, cuivre, argent et or) a été réalisée au cyclotron Arronax. Une mesure précise de la section efficace d'ionisation requiert la maîtrise de nombreux paramètres :

- Au niveau expérimental, une attention particulière a été portée sur la caractérisation de l'ensemble du dispositif expérimental et sur l'analyse des spectres mesurés afin de contrôler les différentes sources d'incertitude. Un élément important est la détermination de l'efficacité du détecteur en fonction de l'énergie des photons. Pour cela nous avons mis en place un modèle de l'efficacité du détecteur HPGe sur l'ensemble de la plage en énergie. Ce modèle prend en compte les caractéristiques du détecteur fournies par le constructeur et par des images radiographiques. Il tient compte des mesures expérimentales de l'efficacité réalisées à l'aide de sources radioactives disponibles dans la commerce (^{55}Fe , ^{109}Cd et ^{241}Am) ainsi que du résultat d'une expérience PIXE que nous avons réalisée avec un faisceau de deutons. Cette mesure nous a permis de contraindre la courbe d'efficacité à basse énergie, dans la région du pic K_α du titane à 4,5 keV, où elle évolue rapidement. Enfin, à l'aide d'une méthode des moindres carrés, par minimisation de l'écart entre l'efficacité modélisée et mesurée, nous avons optimisé l'épaisseur de la couche morte et le rayon du cristal du détecteur.
- Une étude détaillée a été effectuée pour choisir le rendement de fluorescence ω_K et le rapport d'intensité I_{K_β}/I_{K_α} qui sont des données nécessaires pour convertir la section efficace de production de rayons X de type K en section efficace d'ionisation. Nous avons choisi les valeurs moyennes pondérées des données expérimentales qui sont en bon accord avec celles des modèles empiriques et théoriques.

À l'issue des différentes expériences, nous avons obtenu les mesures des rapports d'intensité I_{K_β}/I_{K_α} pour les différentes cibles Ti, Cu, Ag et Au. Ces valeurs sont indépendantes de l'énergie et du type du faisceau incident. Nos résultats ont été en bon accord à la fois avec les données existantes et les deux modèles théoriques et empiriques avec un écart inférieur à 4,7%. Cela a donné une première indication sur la qualité des données obtenues. Afin de poursuivre ce travail de comparaison des données obtenues avec la littérature, nous avons mesuré la section efficace de production de rayons X de type K à faible énergie (6,2MeV/u et 7,2MeV/u) dans le cas du cuivre. Ces mesures sont en bon accord avec les données expérimentales de la bibliographie à faible énergie incidente. Ceci a validé notre dispositif expérimental et a montré que nos mesures sont fiables et précises.

Les sections efficaces de production totale de type K ont été obtenues à haute énergie (30, 42, 54 et 68 MeV) pour les éléments titane, cuivre, argent et or dans une gamme en énergie où il y a un faible nombre de données expérimentales disponibles. Dans le cas du titane, la grande disparité des données expérimentales rend la comparaison délicate. Cependant, elles sont en bon accord avec l'ajustement empirique de Kahoul. Dans le cas du cuivre, nos mesures ont la même tendance globale que les données expérimentales existantes mais avec un écart variant entre 10 et 20%. Dans le cas de l'argent, seule existe une valeur à 30 MeV qui est en bon accord

avec nos valeurs. Pour l'or, nos mesures sont en bon accord avec les mesures expérimentales avec un écart compris entre 5 et 9 %.

La comparaison avec les modèles théoriques a été faite à travers la section efficace d'ionisation de la couche K. Nos mesures pour les différents éléments ont montré la même tendance globale que le modèle ECPSSR. Les valeurs fournies par ce modèle à basse énergie sont en accord avec nos mesures et les mesures de la littérature compte tenu des barres d'erreurs. Au-delà du maximum de la section efficace, il y a un désaccord entre les mesures et les prédictions du modèle. Le modèle RECPSSR, qui prend en compte les effets relativistes liés au projectile, reproduit mieux l'ensemble des données collectées, dans le cas de l'argent et l'or (cibles lourdes). Il reproduit aussi les mesures dans le cas de cuivre, à haute énergie. Cela confirme l'importance de la prise en compte des effets relativistes dans le calcul de la section efficace d'ionisation à haute énergie. Par contre, comme dans le cas de l'ECPSSR, il existe toujours un désaccord dans le cas du titane et du cuivre autour du maximum de la section efficace, correspondant à une énergie réduite ($E/\lambda U_K$) autour de 0.

En général, le modèle RECPSSR a validé l'ensemble des données collectées expérimentalement pour les énergies réduites négatives et a amélioré le modèle ECPSSR pour les énergies réduites positives. Néanmoins des différences importantes persistent autour du maximum de la section efficace d'ionisation.

La méthode HEPIXE peut être utilisée pour faire de la quantification jusqu'à 70 MeV. Pour les éléments lourds (au-delà de l'argent), on a validé l'utilisation de la section efficace d'ionisation théorique RECPSSR et pour les éléments légers, entre le titane et le cuivre, l'extrapolation du modèle empirique de Kahoul peut être utilisée.

Perspectives

Un nouvel ajustement des données expérimentales de section efficace d'ionisation, tenant en compte les nouvelles mesures, est nécessaire afin de pouvoir faire de la quantification avec la méthode HE-PIXE.

Afin de mieux contraindre les modèles théoriques et aussi de trancher entre des séries de données expérimentales discordantes, de nouvelles mesures de la section efficace d'ionisation de la couche K sont à entreprendre. Pour les éléments légers, comme le titane et le cuivre, il faut privilégier la gamme d'énergie qui se trouve au voisinage du maximum de la section efficace, à énergie réduite nulle. Pour les éléments lourds, il faut aller travailler à très haute énergie, pour vérifier les modèles théoriques dans la partie positive des énergies réduites. Il sera aussi intéressant de travailler autour du maximum. Avec cet ensemble de nouvelles données, il sera possible de contraindre fortement les codes théoriques. Un travail théorique pourra alors être mené sur les modèles afin d'améliorer leur pouvoir prédictif, sur toute la plage de Z et d'énergie, pour les sections efficaces d'ionisation des couches K.

Bibliographie

Akselsson R. and Johansson T.B. [Journal] // *Z. phys.* - 1974. - Vol. 266. - pp. 245-255.

AL-Nasr I.A. [et al.] Measurement of Ka Cross sections and Fluorescence Yields for Elements in the range $42 < Z < 57$ using radioisotope X-ray fluorescence [Journal] // *Appl. Phys. A.* - 1987. - Vol. 43. - pp. 71-73.

Apaydin G. and Tiraşođlu. E. Measurements of K shell X-ray production cross section and fluorescence yields of elements in the atomic number range $65 < Z < 92$ at 123.6 keV. [Journal] // *Nucl. Instrum. Methods B.* - 2006. - 2 : Vol. 246. - pp. 303-308.

Arora S.K, Allawadhi K.L. and Sood B.S. Measurement of K-Shell Fluorescence Yields in Elements $28 < Z < 53$ [Journal] // *Physica B&C.* - 1981. - Vol. 111C. - pp. 71-75.

ARRONAX Cyclotron Cyclotron ARRONAX [Online] // [www.cyclotron-nantes.fr.](http://www.cyclotron-nantes.fr/) - <http://www.cyclotron-nantes.fr/>.

Aylikci N. Kup [et al.] Alloying effect on K shell X-ray fluorescence parameters and radiative Auger ratios of Co and Zn in Zn_xCo_{1-x} alloys [Journal] // *Chemical Physics Letters*,. - 2010. - Vol. 484. - pp. 368-373.

Aylikci N. Kup [et al.] Influence of alloying effect on X-ray fluorescence parameters of Co and Cu in CoCuAg alloy films. [Journal] // *Chemical Physics Letters*,. - 2009. - Vol. 475. - pp. 135-140.

Aylikci V. [et al.] Empirical, Semi-Empirical and Experimental Determination of K X-Ray Fluorescence Parameters of Some Elements in the Atomic Range $21 \leq Z \leq 30$ [Journal] // *Spectroscopy Letters.* - 2014. - Vol. 48. - pp. 331-342.

Balakrishna K.M. [et al.] K fluorescence yield measurements in rare earth and heavy elements [Journal] // *Journal of Physics B.* - 1994. - 4 : Vol. 27. - pp. 715-720.

Bambynek W. [Conference] // *Proc. X-ray and Inner-Shell Ionisation Processes in Atoms, Molecules and Solid.* - Leipzig : [s.n.], 1984. - pp. 20-23.

Bambynek W. [et al.] X-ray Fluorescence Yields, Auger, and Coster-Kronig Transition Probabilities [Journal] // *Reviews of Modern Physics.* - 1972. - Vol. 44. - pp. 716-813.

Basba's G., Brandt W. and Laubert R. Universal cross sections for K-shell ionization by heavy charged particles. II. Intermediate particle velocities [Journal] // *Physcal Review A.* - 1978. - Vol. 17. - pp. 1655-1674.

Basdevant J.L. [Book Section] // *Mécanique quantique.* - [s.l.] : ellipses, 1986.

Baydaş E., Öz E. Orhan and Büyükhildiz M. Measurements of K shell fluorescence yields for Ti, V, Cr, Fe, Co, Ni, and Cu elements and the halogen compounds. [Journal] // *Turk. J. phys.* - 2009. - Vol. 33. - pp. 311-316.

Bé M.M. [et al.] Measurment of the Kb/Ka intensity ratios for elements in the $22 < Z < 29$ region [Journal] // *Applied Radiatiand Isotopes.* - 1998. - Vol. 49 . - pp. 1367-1372.

- Bech L. and Moretto P.** Emission X induite par particules chargees (PIXE): theorie [Journal] // Techniques de l'ingenieur. - 2003. - p. 2557.
- Benka O. and Kropf A.** [Journal] // Atomic Data Nuclear. - 1978. - Vol. 22. - p. 219.
- Bennal A. S. and Badiger N. M.** Measurement of K-L radiative vacancy transfer probabilities for Ta, Au and Pb in 2 PI geometrical configuration [Journal] // Nuclear Instruments and Methods B. - 2006. - Vol. 247. - pp. 161-165.
- Bennal A.S. and Badiger N.M.** Measurement of K shell absorption and fluorescence parameters for the elements Mo, Ag, Cd, In and Sn using a weak gamma source. [Journal] // Journal of Physics B. - 2007. - Vol. 40. - pp. 2189-2199.
- Bennal A.S., Niranjana K.M. and Badiger N.M.** Determination of K to L shell total vacancy transfer probabilities using a weak gamma source: an alternative method [Journal] // Journal of Quantitative Spectroscopy Radiative Transfer. - 2010. - Vol. 111. - pp. 1363–1371.
- BERGER Pascal and REVEL Gilles** Microsonde nucléaire -Principe et appareillage [Journal] // Technique de l'ingénieur. - 2005. - p. 2563.
- Bertol A.P.L., Hin R. Hinrichs and Vasconcellos M.A.S** Proton induced K X-ray production cross section of the elements Al, Si, Ti, Fe and Ni in the 0.7-2.0 Mev energy range [Journal] // Nucl. Inst. Meth. Phys. B. - 2015. - Vol. 365. - pp. 8-12.
- Bethe H** Zur theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie [Journal] // Annalen der Physik. - 1930. - 3 : Vol. 397. - pp. 325-400.
- Bhan C., Chaturvedi S.N. and N.Nath** Measurement of K X-Ray Fluorescence cross section [Journal] // X-Ray Spectrom. - 1981. - Vol. 10. - pp. 128-130.
- Bhuinya C.R. and H.C.Padhi** Alloying effect on the Kb to Ka intensity ratios in TixNi 1-x and CrxNi1-x alloys studied by gama ray fluorescence and fast proton ionization [Journal] // Physics Review A. - 1993. - Vol. 47. - pp. 4885-4890.
- Bhuinya C.R. and Padhi. H.C.** Alloying effect on the Kb/Ka intensity ratios of Ti, Cr and Ni. [Journal] // Journal of Physics B. - 1992. - Vol. 25 . - pp. 5283-5287.
- Bissinger G. A. [et al.]** Study of the Production of K X Rays in Ca, Ti, and Ni by 2-28-MeV Protons [Journal] // Phys. Rev. A. - 1970. - Vol. 1. - pp. 841-847.
- Bissinger G. and A.W.waltner S.M. Shaftrh and** [Journal] // Phys. Rev. A. - 1972. - Vol. 5. - p. 2046.
- Bodart F., Wilk S. and Deconninck G.** [Journal] // X ray spectrometry. - 1975. - Vol. 4. - p. 161.
- Bonani G. [et al.]** Quantitative Spurenanalyse mit ioneninduzierter Röntgenstrahlung [Journal] // Helv. Phys. Acta. - 1978. - Vol. 51. - pp. 272-297.
- Born M. and Oppenheimer J.** Zur Quantentheorie der Molekeln [Journal] // Annalen der Physik. - 1927. - Vol. 84. - pp. 457-484.

- Brandt W. and lapicki G.** Energy-loss effect in inner-shell coulomb ionization by heavy charged particles [Journal] // Phys. Rev. A. - 1981. - Vol. 23. - p. 1717.
- Bransden B.H. and Joachain C.J.** Physics of atoms and molecules [Book]. - [s.l.] : second edition, 2003. - p. 551.
- Breese M.B.H. [et al.]** Applications of scanning transmission ion microscopy [Journal] // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. - 1992. - Vol. 64. - pp. 505-511.
- Brice B.L. Dolye and D.K.** THE ANALYSIS OF ELASTIC RECOIL DETECTION DATA [Journal] // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. - 1988. - Vol. 35. - pp. 301-308.
- Brisset Francois** Microscopie electronique a balayage et microanalyses [Book Section]. - [s.l.] : EDP Sciences, 2008.
- Brown M.D. [et al.]** [Journal] // IEEE trans. Nucl. Sci.. - 1982. - Vol. 30. - p. 957.
- Burhop E.H.S.** Le rendement de fluorescence [Journal] // J. Physique et le Radium. - 1955. - pp. 625-629.
- Burhop E.H.S.** The auger effect [Journal] // Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences. - 1935. - Vol. 148. - pp. 272-284.
- Campbell J.L. [et al.]** A GUPIX-based approach to interpreting the PIXE-plus-XRF spectra from the Mars Exploration Rovers: I. Homogeneous standards [Journal] // Nucl. Inst. Meth. B. - 2011. - Vol. 269. - pp. 57-68.
- Campbell J.L. [et al.]** Quantitative PIXE microanalysis of thick specimens [Journal] // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. - 1993. - Vol. 77. - pp. 95-109.
- Casnati E. [et al.]** Measurement of the Kb/Ka yields ratios of Cu, Mo and Cd stimulated by 59.5 keV photons. [Journal] // Journal of Physics B. - 1985. - Vol. 18. - pp. 2843-2849.
- Çevik U. [et al.]** Chemical effects on the Kb/Ka X-ray intensity ratios of Mn, Ni and Cu complexes [Journal] // European Physical Journal D. - 2005. - Vol. 36. - pp. 29-32.
- Çevik U. [et al.]** K-shell X-ray fluorescence cross-section and intensity ratios for som pure metals at 59.5 and 123.6 keV [Journal] // Nuclear Instruments and Methods B. - 2007. - Vol. 262. - pp. 165-170.
- Chang C.N. [et al.]** The vanadium Kb/Ka intensity ratios of some vanadium compounds [Journal] // Journal of Physics B. - 1994. - Vol. 27. - pp. 5251-5256..
- Cipolla S. J.** An improved version of ISICS: a program for calculating K-, L- and M-shell cross sections from PWBA and ECPSSR theory using a personal computer [Journal] // Computer Physics Communications. - 2007. - Vol. 176. - pp. 157-159.
- Cipolla S. J.** ISICS2008: An expanded version of ISICS for calculating K-, L-, and M-shell cross sections from PWBA and ECPSSR theory [Journal] // Computer Physics Communications. - 2009. - 9 : Vol. 180. - pp. 1716-1717.

Cipolla S. J. ISICS2011, an updated version of ISICS: A program for calculation K-, L-, and M-shell cross sections from PWBA and ECPSSR theories using a personal computer [Journal] // *Comp. Phys. Comm.* - 2011. - Vol. 182. - pp. 2439-2440.

Cohen-Tannoudji C., Diu B. and Laloë F. *Mecanique Quantique II* [Book Section]. - 1997.

Daoudi S. [et al.] New K-shell fluorescence yields Curve for elements with $3 < Z < 99$ [Journal] // *Journal of the Korean Physical Society*. - 2015. - 9 : Vol. 67. - pp. 1-7.

Denker A. [et al.] High-energy PIXE using very energetic protons: quantitative analysis and cross-sections [Journal] // *X-Ray Spectrom.* - 2005. - Vol. 34. - pp. 376-380.

Denker A. [et al.] High-energy PIXE using very energetic protons: quantitative analysis and cross-sections [Journal] // *X-Ray Spectrom.* - 2005. - Vol. 34. - pp. 376-380.

Denker A. [et al.] Influence of corrosion layers on quantitative analysis [Journal] // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*. - 2005a. - Vol. 239. - pp. 65-70.

Denker A. [et al.] Influence of corrosion layers on quantitative analysis [Journal] // *Nucl. Inst. Meth. B* . - 2005. - Vol. 239. - pp. 65-70.

Denker A. [et al.] Non-destructive analysis of coins using high-energy PIXE [Journal] // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. - 2004. - Vol. 226. - pp. 163-171.

Denker A. and Opitz-Coutureau J. Paintings – high-energy protons detect pigments and paint-layers [Journal] // *Nucl. Inst. Meth. B*. - 2004. - Vol. 213. - pp. 677-682.

Dhal B. B. and Padhi H. C. Relative K X-ray intensities in some selected elements between Mn and Sb following ionization by 59.54 keV gamma rays [Journal] // *Physical Review A*. - 1994. - Vol. 50. - pp. 1096-1100.

Dogan n.M. [et al.] Alloying effect on K shell X-ray fluorescence cross-sections and intensity ratios of Cu and Sn in $Cu_{1-x}Sn_x$ alloys using the 59,5 keV gamma rays [Journal] // *Radiation Physics and Chemistry* . - 2016. - Vol. 126. - pp. 111-115.

Dost M [et al.] K-shell ionisation cross sections and relative x-ray emission rates of Sn, Ho, Tm, Au, Pb and Bi bombarded with 9-155 MeV alpha particles [Journal] // *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* - 1981. - Vol. 14. - pp. 3153-3161.

Durak R. and Y. Özdemir Measurement of K-shell fluorescence cross-sections and yields of 14 elements in the atomic number range $25 \leq Z \leq 47$ using photoionization. [Journal] // *Radiation Physics and Chemistry*. - 2001. - 1 : Vol. 61. - pp. 19–25.

Elanique A. [et al.] Dead layer thickness characterization of an HPGe detector by measurements and Monte Carlo simulations [Journal] // *Applied Radiation and Isotopes*. - 2012. - Vol. 70. - pp. 538-542.

Ertuğrul B. [et al.] kb/ka X-ray intensity ratios for elements in the range $16 < Z < 92$ excited by 5.9, 59.5 and 123.6 keV photons [Journal] // *Radiation and physics and Chemistry*, . - 2007. - Vol. 76. - pp. 15-22.

- Ertuğrul M. [et al.]** Measurement of Ka/Kb intensity ratios for elements in the range $22 < Z < 69$ at 59.5 keV [Journal] // Journal of Physics B. - 2001a. - Vol. 34. - pp. 909-914.
- Ertugrul M. [et al.]** Measurement of the Ka and Kb X-rays polarization degree and polarization effect on the Kb/Ka intensity ratio. [Journal] // Nuclear Instruments and Methods B., - 2001. - Vol. 179. - pp. 465-468.
- Ertuğrul M., Karabulut A. and Budak. G.** Measurement of the K shell absorption jump factor of some elements. [Journal] // Radiation and Physics and Chemistry. - 2002. - Vol. 64. - pp. 1-3.
- Fernow R.C.** Introduction to Experimental Particle Physics; [Book]. - [s.l.] : Cambridge University Press., 1986.
- Garg M.L. [et al.]** Energy Dependence of photon-Induced Ka and Kw X-ray Fluorescence Cross section for Some Elements with $20 < Z < 56$ [Journal] // X-Ray Spectrom. - 1985. - Vol. 14. - pp. 165-169.
- Gowda R., Yashoda T. and Krishnaveni S.** Measurements of K shell fluorescence yields for the elements in the range $22 \leq Z \leq 52$ excited by 14.4 and 122 keV photons. [Journal] // Nucl. Instrum. Methods B.. - 2005. - 3 : Vol. 240 . - pp. 607-611.
- Gudennavar S.B. [et al.]** K-shell fluorescence parameters of medium-Z elements. [Journal] // Radiat. Phys. Chem.. - 2003. - Vol. 68. - pp. 721-726.
- Haddad F. [et al.]** Arronax, a high-energy and high intensity cyclotron for nuclear medicine [Journal] // European Journal of Nuclear Medicine and Molecular imaging. - 2008. - Vol. 35. - pp. 1377-1387.
- Han I. [et al.]** Measurements of K X-ray fluorescence cross section, fluorescence yields and intensity ratios for some elements in the atomic range $22 \leq Z \leq 68$. [Journal] // Appl. Radiat. Isot.. - 2007. - 6 : Vol. 65 . - pp. 669-675.
- Han I. and Demir L.** Charge transfer and delocalization studies from Kb-to-Ka X-ray intensity ratios in CoxCu1-x alloys [Journal] // Annals of Nuclear Energy. - 2010. - Vol. 37. - pp. 822-826.
- Hopkins F. [et al.]** Comments on the departure from the Z^2 dependence in ionization by heavy projectiles [Journal] // Phys. Rev. A . - 1975. - Vol. 11. - p. 1482.
- Hubbell J.H. [et al.]** A review, bibliography, and tabulation of K, L, and higher atomic shell X-ray fluorescence yields [Journal] // Phys. Chem. Ref. Data. - 1994. - Vol. 23. - pp. 339-364.
- Kaçal Mustafa Recep, Han İbrahim and Akman Ferdi** Determination of K shell absorption jump factors and jump ratios of 3d transition metals by measuring K shell [Journal] // Applied Radiation and Isotopes. - 2015. - Vol. 95. - pp. 193-199.
- Kahoul A. [et al.]** K-shell Fluorescence yields for elements with $6 < Z < 99$ [Journal] // Radiation Physics and Chemistry. - 2011. - Vol. 80. - pp. 369-377.
- Kahoul A. [et al.]** New procedure calculation of K-shell ionization cross sections by proton impact [Journal] // Radiation Physics and Chemistry . - 2011. - Vol. 80. - pp. 1300-1311.

- Kahoul A. [et al.]** new procedure calculation of photo-induced kb/ka intensity ratios for elements 16S to 92U [Journal] // journal of radiation reserch and applied sciences. - 2014. - Vol. 7. - pp. 346-362.
- Kahoul A. [et al.]** Updated database and new empirical values for K-shell fluorecence yields [Journal] // Radiation Physics and Chemistry. - 2012. - Vol. 81. - pp. 713-727.
- Kahoul A., Nekkab M. and Deghfel B.** Empirical K-shell ionization cross section of elements from Be to U by proton impact [Journal] // Nuclear Instruments and Methodes in physics Research B. - 2008. - Vol. 266. - pp. 4969-4975.
- Kamal Z. [et al.]** IS THE K beta/K alpha X-RAY INTENSITY RATIO DEPENDENT UPON THE ENERGY OF AN INDUCING PROTON? [Journal] // PHYSICS LETTERS. - 1980. - 6 : Vol. 75A. - pp. 475-477.
- Khan M.R., Crumpton D. and Francois P.E.** [Journal] // J. Phys. B . - 1976. - Vol. 9. - p. 455.
- Kostroun V.O., Chen M.H. and Crasemann B.** Atomic radiationless transition probabilities to the 1s state and theoretical K-Shell fluorecence yields [Journal] // Phys. Rev. A. - 1971a. - Vol. 4. - p. 429.
- Kostrun V. O., Chen M. H. and Crasemann B.** Atomic radiation transition probabilities to the 1s state and theoretical K-shell fluorecence yields [Journal] // Physical Review A. - 1971b. - Vol. 3. - pp. 533-544.
- Koumeir C. [et al.]** Applicatios of nuclear techniques [Conference] // AIP Conference Proceedings. - Greece : [s.n.], 2011. - pp. 105-112.
- Krause M. O.** Atomic Radiative and Radiationless Yields for K and L Shells [Journal] // J. Phys. Chem. Ref. Data. - 1979. - 2 : Vol. 8. - pp. 307-327.
- Küçükönder A., Şahin Y and Büyükkasap E.** Chemical effects on Kb/Ka X-ray in coordination compounds of some 3d elements [Journal] // Journal of Physics B. - 1993. - Vol. 26. - pp. 101-105.
- Lapicki G. and Zander A.** Universal cross sections for K-shell ionization by low-velocity protons: Importance of relativistic and energy-loss effects [Journal] // Physical Review A. - 1981. - Vol. 23. - p. 2072.
- Lapicki G.** Testing the ECPSSR theory and its modifications with ratios of antiproton-to-proton ionization cross section. [Journal] // Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B. - 2005. - Vol. 241. - pp. 34-42.
- Lapicki G.** the status of theoretical K-shell ionization cross sections by protons [Journal] // X-Ray Spectrometry. - 2005. - Vol. 34. - pp. 269-278.
- Lapicki Gregory** Scaling of analytical cross sections for K-shell ionization by nonrelativistic protons to cross sections by protons at relativistic velocities [Journal] // Journal of Physics B. - 2008. - Vol. 41. - p. 115201.

Leo W.R. Techniques for nuclear and particle physics experiments [Book Section]. - Berlin : Springer-Verlag, 1993.

Lide David R. [Book Section] // CRC Handbook of Chemistry and Physics. - 2004.

Liebert R. B. [et al.] X-Ray Production by Protons of 2.5-12 MeV Energy [Journal] // Phys. Rev. A. - 1973. - Vol. 8. - pp. 2336-2341.

Lin J. and Carlton L. Duggan and R. F. [Conference] // proceedings of International conference on Inner Shell Ionization phenomena Atlanta 1972. - [s.l.] : R.W Fink, S.t Manson, M. Palms and P.V. Rao, 1973.

Liu Z. and Cipolla S. J. ISICS: A program for calculating K-, L- and M-shell cross sections from ECSSR theory using a personal computer [Journal] // Computer Physics Communications. - 1996. - 3 : Vol. 97. - pp. 315-330.

Lopes J.S. [et al.] X-ray production in Ca, Sc Ti, V, Cr, Mn and Fe by protons of 0.5-2MeV energy [Journal] // J. Phys B. - 1978. - Vol. 11. - p. 605.

Lüth Hans Surfaces and Interfaces of Solid Materials [Book]. - New York : Springer, 1995.

Mandò P.A., Fedi M.E. and Migliori N. Grassi and A. Differential PIXE for investigating the layer structure of paintings [Journal] // Nucl. Inst. Meth. B. - 2005. - Vol. 239. - pp. 71-76.

Marli Moitinho Amaral Medeiros I. [et al.] Multielemental Analysis of Genetically Modified Food using ANAA and PIXE Techniques [Journal] // Brazilian Journal of Physics. - 2005. - 3B : Vol. 35. - pp. 814-817.

Marquardt D. An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters [Journal] // SIAM Journal Applied Mathematics. - 1963. - Vol. 11. - pp. 215-219.

Marques M. I., Martins M. G. and Ferreira J. G. The experimental relative intensity K_{β}/K_{α} in elements with $33 < Z < 57$ [Journal] // Journal of Physics B. - 1980. - Vol. 13. - pp. 41-45.

Massey H. S. W. and Burhop E. H. S. The Relativistic Theory of the Auger Effect [Journal] // Proceedings of the Royal Society A. - 1936. - Vol. 153. - pp. 661-682.

McDaniel F. D., Gray T. J. and Gardner R. K. [Journal] // Phys. Rev. A. - 1975. - Vol. 11. - p. 1482.

McGuire E.J. K-shell Auger transition rates and fluorescence yields for elements Ar–Xe [Journal] // Phys.Rev.A. - 1970. - Vol. 2. - pp. 273-278.

McGuire E.J. K-shell Auger transition rates and fluorescence yields for elements Be–Ar. [Journal] // Phys.Rev.. - 1969. - Vol. 185. - pp. 1-6.

Ménesguen Y. and Lépy M.-C. Mass attenuation coefficients in the range $3.8 \leq Z \leq 11$ keV, K fluorescence yield and K_{β}/K_{α} relative X-ray emission rate for Ti, V, Fe, Co, Ni, Cu and Zn measured with a tunable monochromatic X-ray source [Journal] // Nucl. Instrum. Methods B. - 2010. - 16 : Vol. 268. - pp. 2477-2486.

- Merzbacher E. and Lewis H. W.** Encyclopedia of physics [Journal] // Handbuch der Physik / ed. Flugge S.. - Berlin : [s.n.], 1958. - Vol. 34. - p. 166.
- Migliori A. and Mandò N. Grassi and P.A.** Scanning-PIXE analysis of gold lace embroideries in a relic of St. Francis [Journal] // Nucl. Inst. Meth. B. - 2008. - Vol. 266. - pp. 2339-2342.
- Moretto P. and Beck L.** Emission X induite par particules chargées (PIXE): théorie [Journal] // Techniques de l'ingénieur. - 2003. - p. 2557.
- Nagashima S. [et al.]** Application of the external PIXE analysis to ancient Egyptian objects [Journal] // Nucl. Inst. Meth. B. - 1996. - Vol. 109. - pp. 658-661.
- NIST NIST** [Online] // NIST. - <http://www.nist.gov/pml/>.
- NNDC** [Online]. - <http://www.nndc.bnl.gov/>.
- Owens A.** Spectral degradation effects in an 86 cm³ Ge(HP) detector [Journal] // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. - 1985. - Vol. 238. - pp. 473-478.
- Öz. E.** Determination of ratios of emission probabilities of Auger electrons and K-L- shell radiative vacancy transfer probabilities for 17 elements from Mn to Mo at 59.5 keV [Journal] // Journal of Quantitative Spectroscopy Radiative Transfer. - 2006. - Vol. 97. - pp. 41-50.
- Padhi H.C. and Dhal B.B.** Kb/Ka X-ray intensity ratios of Fe, Co, Ni, Cu, Mo, Ru, Rh and Pd in equiatomic aluminides [Journal] // Solid State Communications,. - 1995. - Vol. 96. - pp. 171-173.
- PAPPALARDO L. [et al.]** THE IMPROVED LNS PIXE-ALPHA PORTABLE SYSTEM: ARCHAEOMETRIC APPLICATIONS [Journal]. - 2003. - Vol. 45. - pp. 333-339.
- Paul H.** A test of theoretical K-shell ionization cross section for proton [Journal] // Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B. - 1989. - Vol. 42. - pp. 443-448.
- Paul H.** An analytical cross-section formula for K X-ray production by protons [Journal] // Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B. - 1984. - Vol. 3. - pp. 5-10.
- Paul H. and Sachert J.** Fitted empirical reference cross section for K-shell ionization by protons. [Journal] // Atomic Data and Nuclear Data Tables. - 1989. - Vol. 42. - p. 105.
- Paul H. and Sachert J.** Fitted empirical reference cross section for K-shell ionization by protons. [Journal] // Atomic Data and Nuclear Data Tables. - 1989a. - Vol. 42. - p. 105.
- Pawłowski F. [et al.]** Valence electronic structures of Ti, Cr, Fe and Co in some alloys from Kb-to-Ka X-ray intensity ratio studies [Journal] // Nuclear Instruments and Methods B. - 2002. - Vol. 195. - pp. 367-373.
- Petukhov V.P., TERASAWA M. and TÖRÖK I.** High resolution PIXE instrumentation survey. Part II. [Journal]. - Nucl. Inst. and Meth B : [s.n.], 1999. - Vol. 150. - p. 103.

- Pineda C.A. and Peisach M.** K X-ray production from rare earths by high energy protons [Journal] // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B. - 1990a. - Vol. 49. - pp. 10-14.
- Pineda C.A. and Peisach M.** Prompt analysis of heavy elements by high-energy-induced (p, X) reactions [Journal] // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. - North-Holland : [s.n.], 1990. - Vol. 299. - pp. 618-623.
- Pineda C.A. and Peisach M.** Prompt analysis of rare earths by high-energy PIXE [Journal] // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. - 1991. - 2 : Vol. 151. - pp. 387-396.
- Pious J.K. [et al.]** Total K Fluorescence Yields for Fe, Cu, Zn, Ge and Mo [Journal] // J. Phys. B. - 1992. - Vol. 25. - pp. 1155-1160.
- Poncet M. and Engelmann CH.** Contribution a l'étude de l'ionisation des éléments par des protons et des particules alpha de 4 a 30 MeV [Journal] // NUCLEAR INSTRUMENTS AND METHODS. - 1979. - Vol. 159. - pp. 455-464.
- Ponpon J.P.** Detecteurs à semi-conducteurs, principes et materiaux pour la detection de l'imagerie des rayonnements nucleaires [Book Section]. - Paris : ellipses, 2007.
- Ragheb D. [et al.]** Development of a PIXE method at high energy with the ARRONAX cyclotron [Journal] // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. - 2014. - 2 : Vol. 302. - pp. 895-901.
- Ragheb D.** Developpement de la methode PIXE a haute energie aupres du cyclotron ARRONAX [Report]. - France : these, 2014.
- Raj S. [et al.]** Kb to Ka X-ray intensity ratios studies on the changes of valence electronic structures of Ti, V, Cr and Co in their disilicide compounds [Journal] // Nuclear Instruments and Methods B. - 1999. - Vol. 152. - pp. 417-424.
- Raj S. [et al.]** Relative K X-ray intensity studies of the valence electronic structure of 3d transition metals [Journal] // Physical Review B. - 2002. - Vol. 65. - pp. 193105-193108.
- Raj S., Padhi H.C. and Polastik M.** Influence of chemical effect on the Kb-to-Ka X-ray intensity ratios of Cr, Mn and Co in CrSe, MnSe, MnS and CoS. , [Journal] // Nuclear Instruments and Methods B. - 2000. - Vol. 160. - pp. 443-448.
- Ramsay W.D. [et al.]** Atomic K-shell ionization induced by 20–50 MeV protons [Journal] // Physics Letters A. - 1978. - 4 : Vol. 69. - pp. 258-260.
- Richard P. [et al.]** Cu $K\alpha/K\beta$ X-Ray Production from Proton and Oxygen Bombardment [Journal] // Phys rev A 1 1044 1970. - 1970. - Vol. 1. - pp. 1044-1047.
- Şahin M., Demir L. and Budak. G.** Measurements of K shell fluorescence cross section and yields for 5.95 keV photons. [Journal] // Appl. Radiat. Isot. . - 2005. - 1 : Vol. 63. - pp. 141-145.
- Salem S.I. and Krause S.L. Panossian and R.A.** Experimental K and L relative X-ray emission rates [Journal] // Atomic Data and Nuclear Data Tables. - 1974. - Vol. 14. - pp. 91-109.

- Scofield J. H.** Exchange correction of K X-ray emission rates [Journal] // Physical Review A. - 1974a. - 3 : Vol. 9.
- Scofield J. H.** Relativistic Hartree-Slater values of K and L X-ray emission rates [Journal] // Atomic Data and Nuclear Data Tables. - 1974. - Vol. 14. - pp. 121-137.
- Selim Y.S and Abass M. I.** Direct calculation of the total efficiency of cylindrical scintillation detectors for extended circular sources [Journal] // Radiation Physics and Chemistry. - 1996. - Vol. 48. - pp. 23-27.
- Sera K. [et al.]** K-shell ionization of Al and Cu for 0.5—40-MeV-proton bombardment [Journal] // Phys. Rev. A. - 1980. - Vol. 21. - pp. 1412-1418.
- Seven S.** A method for the determination of K shell fluorescence yields using photoionization. [Journal] // J. Quant. Spectrosc. Rad. Transfer. - 2002. - Vol. 74 . - pp. 69-74.
- Şimşek Ö. [et al.]** K shell fluorescence yields for elements with $33 < Z < 53$ using 59.5 photons. [Journal] // Radiat. Phys. Chem.. - 2002a. - Vol. 65. - pp. 27-31.
- Şimşek Ö. [et al.]** Measurement of K shell fluorescence cross section and K-shell fluorescence yields for the atomic region $22 \leq Z \leq 64$ by 59.5 keV photons. [Journal] // J. Radioanal. Nucl.. - 2002b. - Vol. 1. - pp. 143-147.
- Şimşek Ö. [et al.]** Measurement of K shell fluorescence yields of some elements in the atomic range $22 \leq Z \leq 30$ using photoionization. [Journal] // Radiat. Phys. Chem.. - 2000. - Vol. 58. - pp. 207-211.
- Smit Z.** Recent developments of material analysis with PIXE [Journal] // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. - 2005. - Vol. 240. - pp. 258-264.
- Sogut O., Büyükkasap E. and Erdoğan H.** Chemical-effect variation of Kb/Ka X-ray intensity ratios in 3d elements. [Journal] // Radiation Physics and Chemistry. - 2002. - Vol. 64. - pp. 343-348.
- Söğüt. Ö.** Investigation of the K Shell Fluorescence Yields of Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Mo, Ag, Cd, Ba, La, Ce, and their Compounds. [Journal] // Chinese Journal of Physics . - 2010. - 2 : Vol. 48. - pp. 212-221.
- Solé V.A. [et al.]** Measurement of $P_K \omega_K$ in the decay of ^{65}Zn and the K-shell fluorescence yield of copper. [Journal] // Applied Radiation and Isotopes. - 1994. - Vol. 45 . - pp. 941-944.
- SRIM [Online]. - 2015. - <http://www.srim.org/>.
- Takiue M. and Ishikawa H.** K- Fluorescence Yields of Ag and In [Journal] // Nucl. Instr. Meth.. - 1980. - Vol. 173. - pp. 391-394.
- Trocellier Patrick and TROUSLARD Philippe** Spectrométrie de collisions élastiques et de réactions nucléaires. Applications [Journal] // Techniques de l'ingenieur. - 2002. - p. 2561.
- Valotto Gabrio [et al.]** Multivariate analysis of Ion Beam Induced Luminescence spectra of irradiated silver ion-exchanged silicate glasses [Journal] // Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy. - 2012. - Vol. 95. - pp. 533-539.

Yalçın P. Measurement of relative K X-ray intensity ratio following radioactive decay and photoionization [Journal] // Nuclear Instruments and Methods B. - 2007. - Vol. 254. - pp. 182-186.

Yashoda T., Krishnaveni S. and Gowda R. Measurement of K-shell fluorescence yields for the elements in the range $22 < Z < 52$ excited by 14.4 and 122 keV photons [Journal] // Nucl. Instrum. Methods B. - 2005. - Vol. 240. - pp. 607-611.

Yilmaz R., Tunç H. and özkartal A. Measurements of K-shell X-ray production cross sections and fluorescence yields for some elements in the atomic number range $28 < Z < 40$ [Journal] // Radiation Physics and Chemistry. - 2015. - Vol. 112. - pp. 83-87.

Annexe A

Section efficace d'ionisation PWBA

Les processus de diffusions dépendent explicitement du temps. Cependant, dans un traitement numérique des états de diffusion et des états liés, une formulation indépendante du temps est généralement utilisée. En effet, les problèmes d'états liés et de diffusion sont gouvernés par l'équation de Schrödinger dépendante du temps :

$$H. \Psi(r, t) = E. \Psi(r, t) \quad (\text{A.1})$$

Où $H = H_0 + V$ est l'Hamiltonien total du système avec H_0 l'Hamiltonien libre, V le potentiel d'interaction et $\Psi(r, t)$ est la fonction d'onde du système.

On se place dans le système du centre de masse, c'est-à-dire que l'on considère la diffusion par le potentiel $V(r)$ d'une particule unique dont la masse est μ définie comme :

$$\frac{1}{\mu} = \frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2} \quad (\text{A.2})$$

Avec M_1 est la masse de la particule incidente et M_2 est la masse de la cible.

On va considérer les états stationnaires de l'équation de Schrödinger et cette équation admet des solutions d'énergie E bien définies.

$$\psi(r, t) = \varphi(r)e^{-iE.t/\hbar} \quad (\text{A.3})$$

Avec E qui est l'énergie cinétique de particules et $\varphi(r)$ qui est la solution de l'équation de Schrödinger indépendante du temps :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu} \Delta + V(r) \right] \varphi(r) = E\varphi(r) \quad (\text{A.4})$$

Avec

$$E = \frac{\hbar^2 K^2}{2\mu} \text{ et } V(r) = \frac{\hbar^2}{2\mu} U(r) \quad (\text{A.5})$$

Alors

$$[\Delta + K^2 - U(r)]\varphi(r) = 0 \quad (\text{A.6})$$

On définit alors les états stationnaires de diffusion comme étant les états propres de l'Hamiltonien qui vérifient ces conditions et on appelle $\psi_k^{diff}(r)$ représentant l'état stationnaire de diffusion associée à une énergie E qui est donc la superposition d'une onde plane et d'une onde diffusée :

$$\psi_k^{diff}(r) = e^{ikz} + \text{onde diffuse} \quad (\text{A.7})$$

La condition aux limites asymptotiques satisfaite pas la fonction d'onde est :

$$\lim_{r \rightarrow \infty} \psi_k^{diff}(r) = e^{ikz} + f_k(\theta, \varphi) \frac{e^{ikr}}{r} \quad (\text{A.8})$$

Définition de section efficace différentielle

On définit alors la section efficace différentielle de diffusion $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ comme :

$$dn = F_i \frac{d\sigma}{d\Omega} d\Omega \quad (\text{A.9})$$

La probabilité de trouver une particule dans un volume élémentaire dr est :

$$P(r, t)dr = |\psi(r, t)|^2 dr \quad (\text{A.10})$$

Avec $\psi(r, t)$ qui est la fonction d'onde de la particule. Donc la probabilité de trouver une particule dans un volume fixe V est l'intégrale sur dr :

$$\int_V P(r, t)dr = \int_V |\psi(r, t)|^2 dr \quad (\text{A.11})$$

En dérivant par rapport aux temps on obtient :

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t} \int_V P(r, t) dr &= \int_V \left(\psi^* \frac{\partial \psi}{\partial t} + \frac{\partial \psi^*}{\partial t} \psi \right) dr = \frac{i\hbar}{2m} \int_V (\psi^* \nabla^2 \psi + (\nabla^2 \psi^*) \psi) dr \\ &= - \int_V \nabla \cdot J dr\end{aligned}\quad (\text{A.12})$$

Avec $J(\vec{r}, t)$ qui est le courant de probabilité associée à la fonction d'onde ψ :

$$J(\vec{r}, t) = \frac{\hbar}{i2m} (\psi^* \nabla \psi + (\nabla \psi^*) \psi) \quad (\text{A.13})$$

En utilisant le théorème de Green ($\int_V \nabla \cdot J \cdot dr = \int_S J \cdot dS$) on peut écrire :

$$\frac{\partial}{\partial t} \int_V P(r, t) dr = - \int_S J \cdot dS \quad (\text{A.14})$$

L'expression du courant de probabilité $J(\vec{r})$ associée à la fonction d'onde $\varphi(r)$ indépendante du temps :

$$j(\vec{r}) = \frac{1}{\mu} \text{Réal} \left[\varphi^*(\vec{r}) \frac{\hbar}{i} \vec{\nabla} \varphi(\vec{r}) \right] \quad (\text{A.15})$$

Pour le courant incident, on a $\varphi_i(r) = e^{ikz}$ alors $\vec{j}_i = \frac{\hbar k}{\mu} \vec{u}_z$ et pour le courant diffusé dans la région asymptotique :

$$\varphi_d(r) = f_k(\theta, \varphi) \frac{e^{ikr}}{r} \quad (\text{A.16})$$

$$\vec{\nabla}_{\text{sphériques}} = \left[\frac{\partial}{\partial r} \vec{u}_r + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta} \vec{u}_\theta + \frac{1}{r \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \varphi} \vec{u}_\varphi \right] \quad (\text{A.17})$$

Donc

$$\begin{aligned}
\vec{J}_d &= \frac{1}{\mu} \text{Réel} \left[\varphi^*(\vec{r}) \frac{\hbar}{i} \left[\frac{\partial}{\partial r} \vec{u}_r + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta} \vec{u}_\theta + \frac{1}{r \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \varphi} \vec{u}_\varphi \right] \varphi(\vec{r}) \right] \\
&= \frac{1}{\mu} \text{Réel} \left[f_k^*(\theta, \varphi) \frac{e^{-ikr}}{r} \frac{\hbar}{i} \left[\frac{\partial}{\partial r} \vec{u}_r + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta} \vec{u}_\theta \right. \right. \\
&\quad \left. \left. + \frac{1}{r \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \varphi} \vec{u}_\varphi \right] f_k(\theta, \varphi) \frac{e^{ikr}}{r} \right] \\
&= \frac{1}{\mu} \text{Réel} \left[\left(|f_k(\theta, \varphi)|^2 \frac{\hbar}{r^3} (kr + i) \right) \vec{u}_r \right. \\
&\quad \left. + \left(\frac{\hbar}{r^3} f_k^*(\theta, \varphi) \frac{\partial}{\partial \theta} f_k(\theta, \varphi) \right) \vec{u}_\theta \right. \\
&\quad \left. + \left(\frac{\hbar}{r^3} f_k^*(\theta, \varphi) \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \varphi} f(\theta, \varphi) \right) \vec{u}_\varphi \right] \\
&= \frac{1}{\mu} \left(|f_k(\theta, \varphi)|^2 \frac{k\hbar}{r^2} \right) \vec{u}_r \\
&\quad + \left(\frac{\hbar}{r^3} \frac{1}{\mu} \text{Réel} \left[f_k^*(\theta, \varphi) \frac{\partial}{\partial \theta} f_k(\theta, \varphi) \right] \right) \vec{u}_\theta \\
&\quad + \left(\frac{\hbar}{r^3} \frac{1}{\mu} \text{Réel} \left[f_k^*(\theta, \varphi) \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \varphi} f(\theta, \varphi) \right] \right) \vec{u}_\varphi
\end{aligned} \tag{A.18}$$

On peut négliger le terme $\frac{1}{r^3}$ devant $\frac{1}{r^2}$. Le courant de diffusion est :

$$\vec{J}_d = \frac{k\hbar}{\mu r^2} |f_k(\theta, \varphi)|^2 \vec{u}_r \tag{A.19}$$

Par définition, le flux des particules incidentes est proportionnel au courant des particules incidentes par unité de surface alors on peut écrire :

$$F_i = C |\vec{J}_i| \cdot dS = C \frac{\hbar k}{\mu} \tag{9}$$

Par suite, le nombre de particules détectées est proportionnel au courant de particules détectées \vec{J}_d à travers la surface de détecteur dS .

$$dn = C |\vec{J}_d| \cdot dS \tag{A.21}$$

Donc la section efficace différentielle est le nombre de particules diffusées par unité d'angle solide $d\Omega$ par unité de temps et par unité de flux incident :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = |f_k(\theta, \varphi)|^2 \tag{A.22}$$

Une intégration sur l'angle solide, donne la section efficace totale :

$$\sigma = \int |f_k(\theta, \varphi)|^2 d\Omega \quad (\text{A.23})$$

Déterminer l'amplitude de diffusion de 1^{ère} approximation de Born

L'équation aux valeurs propres de l'Hamiltonien H est :

$$[\Delta + K^2 - U(\vec{r})] \psi_k(\vec{r}) = 0 \quad (\text{A.24})$$

Avec $\psi_k(\vec{r})$ qui est une fonction d'onde stationnaire qui vérifie l'équation de Schrödinger.

Alors toute fonction $\psi_k(\vec{r})$ a vérifie l'expression suivante :

$$\psi_k(\vec{r}) = \varphi_0(\vec{r}) + \int d^3r' G(\vec{r} - \vec{r}') U(\vec{r}') \psi_k(\vec{r}') \quad (\text{A.25})$$

où $\varphi_0(\vec{r})$ est une solution de l'équation libre $(\Delta + K^2)\varphi_0(\vec{r}) = 0$ soit égale a e^{ikz} .

On suppose que l'on connait une fonction de Green $G(\vec{r})$ telle que $(\Delta + K^2)G(\vec{r}) = \delta(\vec{r})$. La fonction de Green $G(\vec{r})$ possède deux formes pour vérifier l'équation.

$$G_{\pm}(\vec{r}) = \frac{-1}{4\pi} \frac{e^{\pm ikr}}{r} \quad (\text{A.26})$$

Avec la fonction de Green $G_+(\vec{r})$ qui est appelée fonction de Green d'onde sortante et $G_-(\vec{r})$ qui est appelée fonction de Green d'onde entrante. En appliquant la fonction de Green sortante à l'équation de Schrödinger pour l'onde sortante de diffusion $\psi_k^{diff}(r)$

$$\psi_k^{diff}(r) \xrightarrow{r \rightarrow \infty} e^{ikz} + \int d^3r' G_+(\vec{r} - \vec{r}') U(\vec{r}') \psi_k^{diff}(\vec{r}') \quad (\text{A.27})$$

Dans le comportement asymptotique, la fonction de Green ayant la forme asymptotique.

$$G_+(\vec{r} - \vec{r}') = \frac{-1}{4\pi} \frac{e^{ik(\vec{r}-\vec{r}')}}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \quad (\text{A.28})$$

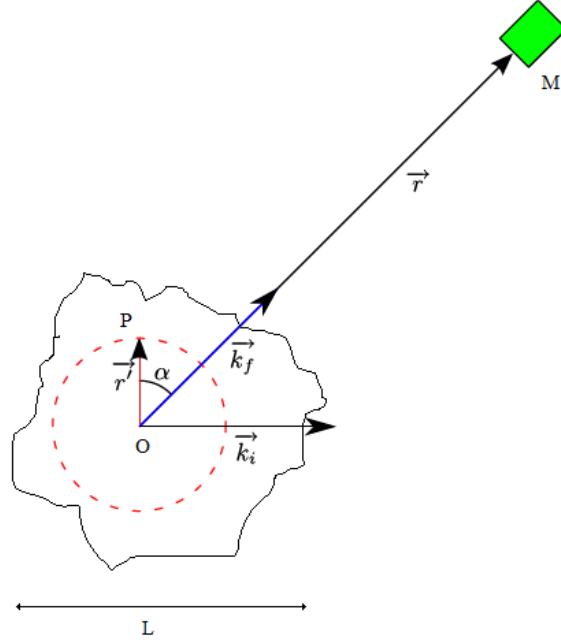


Figure 2.3 Schéma montrant les impulsions initiales et finale.

On remarque que dans la limite des r grands (c'est-à-dire quand le détecteur est loin de la source de diffusion). Le calcul d'approximation de la distance $|\vec{r} - \vec{r}'|$ entre un point M très éloigné de O et un point P situé dans la zone d'action de potentiel avec $r \gg L$ et $r' \leq L$.

L'angle entre MO et MP étant très petit la longueur MP , c'est-à-dire $|\vec{r} - \vec{r}'|$, est à une très bonne approximation égale à la projection de MP sur MO :

$$\begin{aligned}
 |\vec{r} - \vec{r}'| &= \sqrt{|\vec{r} - \vec{r}'|^2} = \sqrt{r^2 + r'^2 - 2\vec{r} \cdot \vec{r}'} \approx \sqrt{r^2 - 2\vec{r} \cdot \vec{r}'} \\
 &= r \left(1 - \frac{2\vec{u} \cdot \vec{r}'}{r} \right)^{\frac{1}{2}} = r \left(1 - \frac{1}{2} \frac{2\vec{u} \cdot \vec{r}'}{r} \right) = r - \vec{u} \cdot \vec{r}' \quad (\text{A.29}) \\
 |\vec{r} - \vec{r}'| &= r - \vec{u} \cdot \vec{r}'
 \end{aligned}$$

Avec \vec{u} qui désigne le vecteur unitaire dans la direction de r , on déduit que, pour r grand :

$$\lim_{r \rightarrow \infty} G_+ (\vec{r} - \vec{r}') = \frac{-1}{4\pi} \frac{e^{ik(r - \vec{u} \cdot \vec{r}')}}{r} = \frac{-1}{4\pi} \frac{e^{ikr}}{r} e^{-ik\vec{u} \cdot \vec{r}'} \quad (\text{A.30})$$

En reportant cette expression dans l'équation de $\psi_k^{diff}(r)$. On obtient le comportement asymptotique de $\psi_k^{diff}(r)$.

$$\psi_k^{diff}(\vec{r}) \xrightarrow{r \rightarrow \infty} e^{ikz} + \frac{-1}{4\pi} \int d^3r' \frac{e^{ikr}}{r} e^{-ik\vec{u}\vec{r}'} U(\vec{r}') \psi_k^{diff}(\vec{r}') \quad (\text{A.31})$$

où $k\vec{u} = \vec{k}_d$ est le vecteur d'onde diffusé dans la direction (θ, φ) et puisque le vecteur d'onde incident \vec{k}_i est suivant l'axe OZ alors $e^{ikz} = e^{i\vec{k}_i\vec{r}}$.

$$\psi_k^{diff}(\vec{r}) \xrightarrow{r \rightarrow \infty} e^{i\vec{k}_i\vec{r}} + \frac{-1}{4\pi} \int d^3r' \frac{e^{ikr}}{r} e^{-ik_d\vec{r}'} U(\vec{r}') \psi_k^{diff}(\vec{r}') \quad (\text{A.32})$$

On peut déduire que l'amplitude est de cette forme :

$$f_k(\theta, \varphi) = -\frac{1}{4\pi} \int d^3r' e^{-ik_d\vec{r}'} U(\vec{r}') \psi_k^{diff}(\vec{r}') \quad (\text{A.33})$$

A partir de l'équation (Eq A.27), on peut écrire que :

$$\psi_k^{diff}(\vec{r}) = e^{i\vec{k}_i\vec{r}} + \int d^3r' G(\vec{r} - \vec{r}') U(\vec{r}') \psi_k^{diff}(\vec{r}') \quad (\text{A.34})$$

Un simple changement de notation r en r' et r' en r'' , on arrive à écrire le terme inconnu $\psi_k^{diff}(\vec{r}')$ en fonction d'un terme connu tel que :

$$\psi_k^{diff}(\vec{r}') = e^{i\vec{k}_i\vec{r}'} + \int d^3r'' G(\vec{r}' - \vec{r}'') U(\vec{r}'') \psi_k^{diff}(\vec{r}'') \quad (\text{A.35})$$

Si l'on reporte cette expression dans l'équation (Eq A.34), on obtient :

$$\begin{aligned} \psi_k^{diff}(\vec{r}) &= e^{i\vec{k}_i\vec{r}} + \int d^3r' G(\vec{r} - \vec{r}') U(\vec{r}') e^{i\vec{k}_i\vec{r}'} \\ &\quad + \int d^3r' \int d^3r'' G(\vec{r} - \vec{r}') U(\vec{r}') G(\vec{r}' - \vec{r}'') \\ &\quad - \vec{r}'') U(\vec{r}'') \psi_k^{diff}(\vec{r}'') \end{aligned} \quad (\text{A.36})$$

Un autre changement de r en r'' et r' en r''' on obtient :

$$\begin{aligned}
\psi_k^{diff}(\vec{r}) &= e^{i\vec{k}_i\vec{r}} + \int d^3r' G(\vec{r} - \vec{r}') U(\vec{r}') e^{i\vec{k}_i\vec{r}'} \\
&+ \int d^3r' \int d^3r'' G(\vec{r} - \vec{r}') U(\vec{r}') G(\vec{r}' - \vec{r}'') U(\vec{r}'') e^{i\vec{k}_i\vec{r}'} \\
&+ \int d^3r' \int d^3r'' \int d^3r''' G(\vec{r} - \vec{r}') U(\vec{r}') G(\vec{r}' - \vec{r}'') \\
&- \vec{r}''') U(\vec{r}'') G(\vec{r}'' - \vec{r}''') U(\vec{r}''') \psi_k^{diff}(\vec{r}''')
\end{aligned} \tag{A.37}$$

On construit ainsi de proche en proche ce que l'on appelle le développement de Born de la fonction d'onde stationnaire de diffusion. Si le potentiel est faible alors les termes successifs du développement sont de plus en plus faibles. En particulier, si on se limite au premier ordre en U, il suffit de remplacer $\psi_k^{diff}(\vec{r}')$ par $e^{i\vec{k}_i\vec{r}'}$ dans l'expression de l'amplitude de diffusion. C'est l'approximation de Born :

$$f_k^{(B)}(\theta, \varphi) = -\frac{1}{4\pi} \int d^3r' e^{i(k_i - k_d)r'} U(r') \tag{A.38}$$

Avec $\vec{q} = \vec{k}_i - \vec{k}_d$ qui est le vecteur d'onde de transfert et $U(r') = \frac{2\mu}{\hbar^2} V(r)$.

La section efficace de diffusion peut alors s'écrire dans l'approximation de Born :

$$\frac{d\sigma^{PWBA}}{d\Omega}(\theta, \varphi) = \frac{\mu^2}{4\pi^2 \hbar^4} \left| \int d^3r e^{iqr} V(r) \right|^2 \tag{A.39}$$

La densité de particules, dans l'ionisation d'un atome par une particule chargée, est proportionnelle à la densité de probabilité de présence $\rho = |\Psi|^2 = \Psi^* \Psi$ et le nombre N de particules entrant dans un volume τ par unité de temps est :

$$N = \frac{d}{dt} \int_{\tau} \rho d\tau \tag{A.40}$$

Soit

$$N = \int_{\tau} \left(\Psi^* \frac{d}{dt} \Psi + \Psi \frac{d}{dt} \Psi^* \right) d\tau \tag{A.41}$$

En utilisant l'équation de Schrödinger (Eq A.1) et en appliquant le théorème d'Ostrogradsky :

$$N = \int_S \vec{j} \cdot \vec{n} dS \tag{A.42}$$

Dans cette équation, s représente la surface qui entoure le volume τ et \vec{n} le vecteur unitaire normal à l'élément de surface dS , \vec{j} étant le courant de particules. Ce courant doit satisfaire l'équation de continuité :

$$\frac{d\rho}{dt} + \vec{\nabla} \cdot \vec{j} = 0 \quad (\text{A.43})$$

Déjà démontre que (Eq A.19) :

$$\vec{j}_d = \frac{k\hbar}{\mu r^2} |f_k(\theta, \varphi)|^2 \vec{u}_r = \frac{\hbar k_d}{\mu r^2} |f_k(\theta, \varphi)|^2 \quad \text{et} \quad \vec{j}_i = \frac{\hbar k}{\mu} \vec{u}_z = \frac{\hbar k_i}{\mu} \quad (\text{A.44})$$

Soit N_d le nombre de particules entrant dans le détecteur, il dépend de l'angle de diffusion et de la surface du détecteur dS .

$$N_d = \frac{\hbar k_d}{\mu r^2} |f_k(\theta, \varphi)|^2 dS = j_i \frac{k_d}{k_i} |f_k(\theta, \varphi)|^2 \quad (\text{A.45})$$

Le rapport $\frac{N_d}{j_i}$ est une quantité infinitésimale, elle sera notée $d\sigma$ et représente la section efficace d'ionisation, différentielle par rapport à $d\Omega$

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{k_d}{k_i} |f_k(\theta, \varphi)|^2 \quad (\text{A.46})$$

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{k_d}{k_i} \frac{\mu^2}{4\pi^2 \hbar^4} \left| \int d^3r e^{iqr} V(r) \right|^2 \quad (\text{A.47})$$

On utilise le potentiel qui décrit l'interaction entre des états électrons éjectés par rapport au centre de masse (Bransden, et al., 2003) :

$$V(R) = \frac{Z_1 e^2}{4\pi \epsilon_0} \int d^3r_2 \phi_{nf}^*(r_2) \left(\frac{1}{R} - \frac{1}{|\vec{R} - \vec{r}_2|} \right) \phi_{ni}(r_2) \quad (\text{A.48})$$

où Z_1 est le numéro atomique de la particule incidente et \vec{R} est le vecteur de position de la particule incidente par rapport à l'atome et \vec{r}_2 est le vecteur de position de l'électron par rapport à la cible, $\phi_{nf}^*(r_2)$ et $\phi_{ni}(r_2)$ sont les fonctions d'onde initiale et finale de l'électron. On peut réduire l'expression de la section efficace différentielle d'ionisation [(Paul, 1984) et (Paul, 1989)]:

$$\begin{aligned}
& d\sigma_{if}^{PWBA}(\theta, \varphi) \\
&= \frac{\mu^2}{4\pi^2 \hbar^4} \frac{v_d}{v_i} \left| \int d^3r_2 d^3R \phi_{nf}^*(r_2) e^{i\vec{q}\vec{R}} \frac{Z_1 e^2}{4\pi\epsilon_0} \left(\frac{1}{R} - \frac{1}{|\vec{R} - \vec{r}_2|} \right) \phi_{ni}(r_2) \right|^2 d\Omega \\
&= \frac{\mu^2}{4\pi^2 \hbar^4} \frac{v_d}{v_i} \left(\frac{Z_1 e^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \left[\left| \int d^3r_2 d^3R \phi_{nf}^*(r_2) e^{i\vec{q}\vec{R}} \left(\frac{1}{R} \right) \phi_{ni}(r_2) \right|^2 \right. \\
&+ \left. \int d^3r_2 d^3R \phi_{nf}^*(r_2) e^{i\vec{q}\vec{R}} \left(-\frac{1}{|\vec{R} - \vec{r}_2|} \right) \phi_{ni}(r_2) \right|^2 \right] d\Omega \tag{A.49} \\
&= \frac{\mu^2}{4\pi^2 \hbar^4} \frac{v_d}{v_i} \left(\frac{Z_1 e^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \left[\left| \delta_{fi} \right. \right. \\
&+ \left. \left. \int d^3r_2 d^3R \phi_{nf}^*(r_2) e^{i\vec{q}\vec{R}} \left(\frac{1}{|\vec{R} - \vec{r}_2|} \right) \phi_{ni}(r_2) \right|^2 \right] d\Omega
\end{aligned}$$

où v_d et v_i sont les vitesses relatives avant et après diffusion.

$$\begin{aligned}
& d\sigma_{if}^{PWBA}(\theta, \varphi) \\
&= \frac{\mu^2}{4\pi^2 \hbar^4} \frac{v_d}{v_i} \left(\frac{Z_1 e^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \left| \int d^3r_2 d^3R \phi_{nf}^*(r_2) e^{i\vec{q}\vec{R}} \frac{1}{|\vec{R} - \vec{r}_2|} \phi_{ni}(r_2) \right|^2 d\Omega \tag{A.50}
\end{aligned}$$

Cette expression peut être réduite à une forme plus simple en intégrant sur les coordonnées de la particule incidente. On utilise l'intégrale de (Bethe, 1930) :

$$\int d^3R e^{i\vec{q}\vec{R}} \frac{Z_1 e^2}{|\vec{R} - \vec{r}|} = \frac{4\pi}{q^2} e^{i\vec{q}\vec{r}} \tag{A.51}$$

Ce qui donne :

$$\begin{aligned}
d\sigma_{if}^{PWBA}(\theta, \varphi) &= \frac{\mu^2}{4\pi^2 \hbar^4} \frac{v_d}{v_i} \left(\frac{Z_1 e^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \left| \int d^3r_2 \phi_{nf}^*(r_2) \frac{4\pi}{q^2} e^{i\vec{q}\vec{r}_2} \phi_{ni}(r_2) \right|^2 d\Omega \\
&= \frac{\mu^2}{4\pi^2 \hbar^4} \frac{v_d}{v_i} \left(\frac{Z_1 e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{4\pi}{q^2} \right)^2 \left| \int d^3r_2 \phi_{nf}^*(r_2) e^{i\vec{q}\vec{r}_2} \phi_{ni}(r_2) \right|^2 d\Omega \tag{A.52} \\
&= \frac{\mu^2}{4\pi^2 \hbar^4} \frac{v_d}{v_i} \left(\frac{Z_1 e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{4\pi}{q^2} \right)^2 \left| \int d^3r_2 \phi_{nf}^*(r_2) e^{i\vec{q}\vec{r}_2} \phi_{ni}(r_2) \right|^2 2\pi \cdot \sin\theta d\theta
\end{aligned}$$

Pour accéder à la section efficace totale de diffusion, il est utile de déterminer au préalable la section efficace différentielle en q , module du vecteur quantité de mouvement transférée \vec{q} .

$$\vec{q} = \vec{k}_i - \vec{k}_d \quad (\text{A.53})$$

$$q^2 = k_i^2 + k_d^2 - 2k_i k_d \cos \theta \quad (\text{A.54})$$

En dérivant à gauche et à droite, on obtient :

$$\sin \theta d\theta = \frac{q}{k_i k_d} dq \quad (\text{A.55})$$

On obtient alors une expression simplement différentielle en q de la section efficace d'ionisation:

$$\begin{aligned} d\sigma_{if}^{PWBA}(\theta, \varphi) &= \frac{\mu^2}{4\pi^2 \hbar^4} \frac{v_d}{v_i} \left(\frac{Z_1 e^2}{4\pi \epsilon_0} \frac{4\pi}{q^2} \right)^2 \left| \int d^3 r_2 \phi_{nf}^*(r_2) e^{i\vec{q}\vec{r}_2} \phi_{ni}(r_2) \right|^2 2\pi \frac{q}{k_i k_d} dq \\ &= 8\pi \left(\frac{1}{4\pi \epsilon_0} \frac{Z_1 e^2}{\hbar v_i} \right)^2 \frac{dq}{q^3} \left| \int d^3 r_2 \phi_{nf}^*(r_2) e^{i\vec{q}\vec{r}_2} \phi_{ni}(r_2) \right|^2 \end{aligned} \quad (\text{A.56})$$

On introduit alors le facteur de forme $F_{if}(q)$ comme étant :

$$F_{if}(q) = \int d^3 r_2 \phi_{nf}^*(r_2) e^{i\vec{q}\vec{r}_2} \phi_{ni}(r_2) \quad (\text{A.57})$$

Ce qui donne finalement :

$$\begin{aligned} d\sigma_{if}^{PWBA}(\theta, \varphi) &= 8\pi \left(\frac{1}{4\pi \epsilon_0} \frac{Z_1 e^2}{\hbar v_i} \right)^2 \frac{dq}{q^3} |F_{if}(q)|^2 \\ &= 4\pi(2j_2 + 1) \left(\frac{1}{4\pi \epsilon_0} \frac{Z_1 e^2}{\hbar v_i} \right)^2 \frac{dq}{q^3} |F_{if}(q)|^2 \end{aligned} \quad (\text{A.58})$$

avec j_2 nombre quantique interne.

D'autre part, la section efficace d'ionisation d'un électron d'une orbitale s ($s = K, L_I, L_{II}, \dots$) d'énergie d'ionisation I_{2s} vers l'état libre d'énergie ε par une particule chargée avec

$$\varepsilon = I_{2s} + T \quad (\text{A.59})$$

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

$$T = \frac{\hbar^2 K^2}{2m_e} \quad (\text{A.60})$$

où K est le vecteur d'onde de la fonction d'onde de l'électron éjecté. La section efficace d'ionisation pour des énergies des électrons entre ε et $\varepsilon + d\varepsilon$ peut se réécrire :

$$d^2\sigma_{\varepsilon s}^{PWBA} = 8\pi(2j_2 + 1) \left(\frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \frac{Z_1 e^2}{\hbar v_i} \right)^2 \frac{dq}{q^3} |F_{\varepsilon s}(q)|^2 d\varepsilon \quad (\text{A.61})$$

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

$$\begin{aligned} \hbar^2 q_{min}^2 &= \hbar^2 (k_i - k_d)^2 = 2\mu(\sqrt{E} - \sqrt{E - \varepsilon})^2 = 2\mu E \left(1 - \sqrt{1 - \frac{\varepsilon}{E}} \right)^2 \\ &= 2\mu E \left(1 - 1 + \frac{\varepsilon}{2E} \right)^2 \approx 2\mu E \left(\frac{\varepsilon}{2E} \right)^2 = \frac{1}{2} \mu \frac{\varepsilon^2}{E} = \frac{1}{2} M_1 \frac{I_{2s}^2}{E_1} \end{aligned} \quad (\text{A.62})$$

$$\begin{aligned} \hbar^2 q_{max}^2 &= \hbar^2 (k_i + k_d)^2 = 2\mu(\sqrt{E} + \sqrt{E - \varepsilon})^2 \\ &= 2\mu E \left(1 + \sqrt{1 - \frac{\varepsilon}{E}} \right)^2 \approx 2\mu E \left(1 + 1 + \frac{\varepsilon}{2E} \right)^2 \approx 8\mu E \end{aligned} \quad (\text{A.63})$$

On introduit maintenant les quantités sans dimensions W , k et Q par les relations suivant :

$$W = \frac{\varepsilon}{Z_{2s}^2 R} \quad , \quad k = a_{2s} K \quad \text{et} \quad Q = a_{2s}^2 q^2 \quad (\text{A.64})$$

où R est la constant de Rydberg ($R=13.6$ eV) et $a_{2s} = a_0/Z_{2s}$ est le rayon effectif de la cible avec a_0 qui est le rayon de Bohr et Z_{2s} qui est la charge électrique effective du noyau de l'atome cible vu par un électron de l'orbital s ($Z_{2K} = Z_2 - 0,3$ et $Z_{2L_i} = Z_2 - 4,15$). La section efficace d'ionisation peut donc être réécrite sous la forme :

$$\sigma_s^{PWBA} = \frac{4\pi(2j_2 + 1)a_0^2 Z_1^2}{Z_{2s}^4} \left(\frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \frac{e^2}{\hbar v_i} \right)^2 Z_{2s}^2 \int_{W_{min}}^{W_{max}} dW \int_{Q_{min}}^{Q_{max}} \frac{dQ}{Q^2} |F_{Ws}(Q)|^2 \quad (\text{A.65})$$

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

$$\theta_s = n_{2s}^2 \frac{I_{2s}}{R \cdot Z_{2s}^2} \quad (\text{A.66})$$

$$\eta_s = \frac{1}{Z_{2s}^2} \left(4\pi\epsilon_0 \frac{\hbar v_i}{e^2} \right)^2 = \frac{m_e E_1}{M_1 Z_{2s}^2 R} \quad (\text{A.67})$$

On obtient finalement l'expression suivante pour la section efficace d'ionisation d'un électron de la couche s par une particule chargée dans l'approximation de Born (Born, et al., 1927) :

$$\sigma_s^{PWBA} = \sigma_{s0} \frac{1}{\eta_s} f_s(\eta_s, \theta_s) \quad (\text{A.68})$$

Avec

$$\sigma_{s0} = \frac{4\pi(2j_2 + 1)a_0^2 Z_1^2}{Z_{2s}^4} \quad (\text{A.69})$$

$$f_s(\eta_s, \theta_s) = \int_{W_{min}}^{W_{max}} dW \int_{Q_{min}}^{Q_{max}} \frac{dQ}{Q^2} |F_{Ws}(Q)|^2 \quad (\text{A.70})$$

$F_{Ws}(Q)$ est le facteur de forme pour la transition entre les états électroniques pour l'électron de l'atome-cible initialement dans l'état s et éjecté avec un transfert d'énergie ϵ . Les facteurs de forme pour $s = K, L_I, L_{II}, \dots$ ont été calculés par (Benka, et al., 1978) en utilisant des fonctions d'ondes hydrogénoïdes.

Les limites d'intégration sont alors en première approximation :

$$Q_{min} = a_{2s}^2 q_{min}^2 = \frac{\mu^2 \eta_s}{m_e^2} \left(1 - \sqrt{1 - \frac{m_e W}{\mu \eta_s}} \right)^2 \quad (\text{A.70})$$

$$Q_{max} = a_{2s}^2 q_{max}^2 = \frac{\mu^2 \eta_s}{m_e^2} \left(1 + \sqrt{1 - \frac{m_e W}{\mu \eta_s}} \right)^2 \quad (\text{A.71})$$

$$W_{min} = \frac{\theta_s}{n_{2s}^2} \quad (\text{A.72})$$

$$W_{min} = \frac{\mu}{m_e} \eta_s \quad (\text{A.73})$$

En utilisant la variable ξ_s qui mesure le temps caractéristique de l'orbitale s par rapport au temps de collision :

$$\xi_s = \frac{2n_{2s}\sqrt{\eta_s}}{\theta_s} \quad (\text{A.74})$$

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

$$\sigma_s^{PWBA} = \sigma_{s0} \frac{1}{\theta_s} F_s(\xi_s, \theta_s) \quad (\text{A.75})$$

Un des effets les plus importants qui a été négligé est la déviation coulombienne de la particule incidente due au noyau de l'atome-cible. En effet, cette interaction empêche toute pénétration profonde de la particule dans les orbitales internes, ce qui réduit évidemment d'autant plus la section efficace d'ionisation que la particule incidente est lente. En effet, on doit aussi tenir compte notamment des corrections venant de la perturbation des orbitales électroniques provoquée par le passage de la particule chargée incidente qui entraîne une augmentation de l'énergie de liaison des électrons.

Annexe B

Dans cette annexe, les informations concernant les sources radioactives sont présentées :

Source	Fe55	Cd109	Am241
Activité (KBq)	49	14	36
Flux (X-ray/seconde dans 4π)	13830	14140	-
Date de fabrication	11/02/2011	11/12/2011	12/12/2008
Temps demi-vie (Jours)	1001,56	461,4	157899

Tableau 3.7 : Caractéristique des sources

Source	Energie (keV)	Intensité (%)	Erreur (%)
$^{55}_{26}\text{Fe}$	5,895	89,2	4,50
	6,49	10,8	4,91
$^{109}_{48}\text{Cd}$	22,1	81,1	3,25
	24,93	13,1	3,21
	25,455	2,23	3
	88,0336	3,57	2,7
$^{241}_{95}\text{Am}$	59,54	35,9	1,11

Tableau 3.8 : Rayonnement de rayons X avec l'intensité pour chaque source à différentes énergies (NND)

Thèse de Doctorat

Mostafa HAZIM

Mesures des sections efficaces d'ionisation de la couche K induites par des protons de haute énergie pour une large plage de numéro atomique

Measurements of K-shell ionization cross sections induced by high energy proton beams over a wide range of atomic number

Résumé

La connaissance des sections efficaces d'ionisation de la couche K est nécessaire pour faire des analyses quantitatives avec la méthode PIXE à haute énergie (HEPIXE) ainsi que pour valider les modèles théoriques développés comme le modèle ECPSSR. Actuellement, il n'y a que peu de données expérimentales disponibles.

C'est dans ce contexte qu'une campagne d'expériences a été menée au cyclotron ARRONAX avec pour objectif de mesurer les sections efficaces dans une large gamme en énergie (de 30 MeV à 68 MeV) et pour une large gamme d'atomes. Afin d'avoir les mesures les plus précises possibles, l'ensemble des paramètres du dispositif expérimental nécessaires à cette mesure comme les efficacités en énergie du détecteur, le faisceau et les cibles, ont été caractérisés avec la plus grande rigueur. Une étude bibliographique a été menée pour choisir les paramètres intrinsèques comme le rendement de fluorescence de la couche K ou les intensités relatives des différentes transitions. Enfin, une expérience à basse énergie (6 MeV/u) a été réalisée dont les résultats sont en bon accord avec les données de la bibliographie, ce qui valide la démarche et les outils utilisés et permet de faire le lien avec les données expérimentales existantes.

Un ensemble cohérent et fiable de nouvelles valeurs de sections efficaces a été mesuré. Les valeurs données par le modèle ECPSSR dans notre gamme d'énergie montrent un écart de moins de 10% pour les atomes lourds et de moins de 20% pour les atomes légers. La prise en compte de l'effet relativiste du projectile, modèle RECPSSR, réduit cet écart surtout pour les éléments lourds.

Mots clés

Méthode d'analyse par ion, Rayon-X, Section efficace d'ionisation, HEPixe, ECPSSR

Abstract

The knowledge of the K-Shell ionization cross sections is necessary to perform quantitative analyzes with the high energy PIXE method (HEPIXE) as well as to validate theoretical models like the the ECPSSR model. Currently, experimental data available are scarce.

Within this context, an experimental campaign has been conducted at the ARRONAX cyclotron with the aim of measuring these cross-sections in a wide energy range (from 30 MeV to 68 MeV) and for a wide range of atoms. In order to obtain the most precise measurements, all the parameters of the experimental devices necessary for these measurements, such as energy efficiencies and geometry of the detector, the beam and the targets, have been characterized accurately. A special care has been made to select the most accurate physical parameters from the literature data, like the K-shell fluorescence yields and the X-rays emission rates. Finally, a low-energy experiment (6 MeV/u) was performed and the results are in good agreement with the bibliographic data validating our approach and our tools. This experiment also allows to link our data to the existing experimental data.

A coherent and reliable set of new cross section data has been measured. The values given by the ECPSSR model in our energy range show a difference of less than 10% for heavy atoms and less than 20% for light atoms. Taking into account the relativistic effect of the projectile, model RECPSSR, reduces this difference especially for heavy elements.

Key Words

Ion beam analysis, X-Ray, Ionization cross section, HEPixe, ECPSSR