



## Thèse

Présentée pour l'obtention du diplôme de

## DOCTORAT EN SCIENCES

Spécialité: Physique

Option: Physique des Rayonnements

## THEME

**Détermination de sections efficaces d'ionisation et de production des rayons X des couches et des raies L pour les éléments atomiques de  $18 \leq Z \leq 92$ : Par impact de protons**

**Présenté Par  
ABASSI Abdelkader**

Soutenu le : 21/03/2023

Devant le jury composé de :

<b>Président</b>	Daoudi Salim	Professeur	(U. Bordj Bou-Arreridj)
<b>Rapporteur</b>	Kahoul Abdelhalim	Professeur	(U. Bordj Bou-Arreridj)
<b>Co-encadreur</b>	Akmoum Khemisti	MCB	(U. Bordj Bou-Arreridj)
<b>Examineur</b>	Latreche Abdelhakim	Professeur	(U. Jijel)
<b>Examineur</b>	Amari Rabie	MCA	(U. M <sup>ed</sup> Boudiaf-M'sila)
<b>Examineur</b>	Baadji Nadjib	Professeur	(U. M <sup>ed</sup> Boudiaf-M'sila)
<b>Invité</b>	Deghfel Bahri	Professeur	(U. M <sup>ed</sup> Boudiaf-M'sila)

# ***Table des matières***

## **TABLE DES MATIERES**

INTRODUCTION GENERALE	01
-----------------------	----

### **CHAPITRE I**

#### *Paramètres de l'atome à la fluorescence X*

I.1. Introduction	05
I.2. Organisation des couches électroniques	05
I.2.1. Les couches électroniques	05
I.2.1.1. Les nombres quantiques	05
I.2.1.2. Les couches K, L M	06
I.2.2. Transitions électroniques permises	06
I.3. Série de raies et Notation de Siegbahn	07
I.3.1. Notation de Siegbahn et notation IUPAC	08
I.4. Loi de Moseley	08
I.5. Le rayonnement	09
I.6. Les rayons X	10
I.7. Interactions photon-matière	10
I.7.1. Excitation	11
I.7.1.1. Excitation et effet photo électrique	11
I.7.1.2. Désexcitation	11
I.8. Fluorescence X	12
I.9. Transitions non-radiatives	13
I.9.1. Illustration de l'effet Auger	15
I.9.2. Transitions de Coster-Kronig	15
I.10. Rendement de fluorescence	16
I.10.1. Transitions de Coster-Kronig et rendement de fluorescence	19
I.11. La probabilité totale	19
I.12. Conclusion	19
Références Bibliographiques	20

### **Chapitre II**

#### *Les Modèles Théoriques : PWBA et ECPSSR*

II.1. Introduction	22
II.2. Section efficace d'ionisation par des particules chargées	23
II.3. Modèles théoriques	23

## ***Table des matières***

---

II.3.1. Modèle PWBA (Plane Wave Born Approximation)	23
II.3.2. Modèle RPWBA-BC (Relativistic Plane Wave Born Approximation – Binding Correction)	23
II.3.3. Modèle SCA (Semi-Classical Approximation)	23
II.3.4. Modèle BEA (Binary Encounter Approximation)	24
II.3.5. Modèle PSSA (Perturbed Stationary State Approximation)	24
II.4. Modèle quantique PWBA	24
II.4.1. Approximation de Born	28
II.5. La théorie ECPSSR	34
II.5.1. L'augmentation de l'énergie de liaison de l'électron atomique	35
II.5.2. Déflexion coulombienne du projectile	36
II.5.3. Effets relativistes	37
II.5.4. Perte d'énergie de l'ion incident	37
II.6. La sections efficaces de production de rayon X	38
II.7. Conclusion	39
Références Bibliographiques	40

## **Chapitre III**

### ***Calcul empirique des sections efficaces de production : des rayons X ( $L\alpha$ , $L\beta$ et $L\gamma$ )***

III.1. Introduction	42
III.2. Base des données des sections efficaces d'ionisation des couches L	43
III.3. Méthode et résultats	47
III.3.1. Méthode de calcul	47
III.3.2. Procédé Collectif	47
III.3.3. Formule tridimensionnelle (Z-Dépendance)	50
III.3.4. Procédé Individuel	53
III.4. Discussion des résultats	58
III.5. Conclusion	65
Références Bibliographiques	66
Conclusion générale	69
Légendes Des Figures et des Tableaux	70

### *Introduction :*

L'étude de l'interaction d'un rayonnement avec les atomes d'une cible et ses implications en physique des matériaux, en physique médicale et dans la technologie des nouveaux matériaux occupe une place importante en physique actuelle. Les effets de l'interaction d'un projectile formé par des particules chargées ou par une onde électromagnétique avec l'ensemble des atomes constituant la cible permettent d'accéder à de nombreuses propriétés sur la structure et le comportement au niveau atomique ou moléculaire de la matière cible.

Historiquement, la mécanique quantique a été fondée sur l'étude des raies observées et qui sont émises par les atomes d'une cible lorsque celle-ci est bombardée par un rayonnement. La description des phénomènes d'émission et d'absorption atomique et subatomique ne peut se faire correctement qu'avec les outils de la théorie quantique.

Lors de la collision entre des particules chargées ou d'un rayonnement électromagnétique avec les atomes cibles, ces derniers se retrouvent dans un état excité. Après un court laps de temps, un atome excité se désexcite et retrouve un état stable par l'émission d'un rayonnement X et dans certains cas et dans certains cas le processus d'ionisation est non radiatif (d'Auger ou de Coster-Kronig [Me.58]). L'analyse de l'émission de rayons X émis suite à un bombardement prend une place de choix dans l'étude et la compréhension du phénomène d'ionisation des couches atomiques. Les scientifiques ont multiplié leurs recherches pour obtenir une grande quantité de données sur l'émission de rayons X de PIXE notamment lors de l'ionisation des couches internes : K, L et M.

Pour étudier l'interaction des particules chargées, des mesures de sections efficaces d'ionisation et de production sont utilisées, qui fournissent la base expérimentale pour développer et examiner les théories les plus importantes décrivant les processus d'ionisation et supprimant l'excitation des couches internes. Avec le développement d'accélérateurs d'ions lourds, il est possible d'étudier les interactions de ces ions avec des couches plus complexes telles que la couche L et M, en raison de la multiplicité et de la diversité des ionisations qui se produisent, ainsi que la complexité des sous-orbitales électroniques avec des ions légers (comme les protons et particules alpha) [Kh.64] a finalement été étudiée par les ions lourds ([Me.83] et [An.87]).

Dans ce travail, nous avons traité des fondements théoriques qui régissent l'interaction entre la matière et les particules chargées (proton), ainsi que les méthodes théoriques de calcul

## *Introduction*

---

des sections efficaces d'ionisation et de production de cette quantité, qui est la méthode de base dans l'étude de ce sujet tout en suivant les étapes ci-dessous :

Dans le premier chapitre, nous avons présenté les concepts théoriques de base du rayonnement, tels que les rayons X, le rayonnement alpha et le rayonnement bêta, qui sont classés en fonction de leur énergie. Puis, nous avons présenté quelques interactions de base entre la matière et le rayonnement, telles que l'interaction entre les photons ( $X, \gamma$ ) avec la matière, l'effet photoélectrique et l'effet Compton. Enfin, nous avons abordé les principes et les conditions des transitions électroniques d'une orbite à l'autre et le calcul du rendement de fluorescence (Rendement de fluorescence et Transitions de Coster-Kronig).

Dans le deuxième chapitre, nous avons présenté une brève introduction au calcul des sections efficaces d'ionisation en approximant PWBA (Plane Wave Born Approximation, Modèle PWBA), ainsi que RPWBA-BC (Relativistic Plane Wave Born Approximation – Binding Correction), puis Modèle SCA ; développé pour aboutir au modèle PSSA (Perturbed Stationary State Approximation) puis à la théorie ECPSSR, qui est la pierre angulaire des calculs théoriques modernes pour le calcul des sections efficaces. Elle a fourni des résultats considérés comme de très bonne précision. Le développement de cette théorie est toujours en cours à ce jour.

Dans le dernier chapitre, nous avons présenté les résultats de calcul des sections efficaces de production des rayons X des raies ( $L\alpha, L\beta$  et  $L\gamma$ ) des éléments de numéro atomique  $50 \leq Z \leq 92$  par des protons d'énergie comprise entre 0.02 MeV et 10 MeV. Ce calcul empirique est basé sur la base de données publiée par (Deghfel et al. (2016) [Deg.16]).

**Vu qu'on a observé un manque de valeurs expérimentales dans la région de numéro atomique  $18 \leq Z \leq 49$ , on s'est limité dans notre étude à la gamme des éléments atomiques  $50 \leq Z \leq 92$ .**

Nous terminera notre manuscrit par une conclusion générale.

### **Références Bibliographiques:**

[An.87] Anthony, JM., Donahue, DJ., 1987. Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. B29: 77

[De.16] Deghfel, B., Kahoul, A., Derradj, I., Bendjedi, A., Khalfallah, F., Sahnoune, Y., Bentabete, A., Nekkab, M., 2016. X-ray spectrum 45, 247–257.

[Me.58] Merzbacher, E., Lewis. H. W., 1958. Handbuch Physik 34.166.

[Me.83] Mehta, R., Duggan, J. L., McDaniel, F. D., Andrews ,M. C., Lapicki ,G., Miller ,P.D., Rayburn, L.A., Zander, A. R., 1983 .Phys. Rev. A 28, 2722.

[Kh.64] Khandelwal ,G. S., Merzbacher, E., 1964.University of North Carolina, Chapel Hill, unpublished report

# **Chapitre I**

## *Paramètres de l'atome à la fluorescence X*



## I.1. Introduction

La structure atomique de la matière est un fait bien établi depuis plus d'un siècle et le mouvement des électrons autour de leurs noyaux pour constituer des atomes est unanimement admis par le grand public.

Lorsque la matière est bombardée par un faisceau de particules ou par une radiation, cette matière cible interagit différemment selon sa composition atomique et le type de particule constituant le projectile. On évoque alors le cas de particules directement ionisantes lorsque le faisceau projectile est composé de particules chargées. Ces dernières interagissent directement avec les électrons des atomes de la cible et provoquent, en général, soit une ionisation de l'atome soit sa désexcitation. Les particules non chargées sont indirectement ionisantes car elles doivent d'abord subir des interactions permettant la création de particules chargées, lesquelles pourront, en seconde étape, ioniser les atomes de la cible.

L'excitation d'un atome provoquée par son interaction avec un faisceau projectile est suivie par le phénomène de désexcitation atomique où l'atome retrouve son état de stabilité. Cette désexcitation est accompagnée par l'émission de rayons X ou par des processus non radiatifs dit d'Auger ou de Coster-Kronig. Les émissions radiatives et non radiatives sont abordées avec plus de détails à la fin du chapitre.

## I.2. Organisation des couches électroniques

### I.2.1. Les couches électroniques

#### I. 2.1.1. Les nombres quantiques

La répartition des électrons d'un atome fait appel à la notion de couche électronique caractérisée par le nombre quantique principal  $n$ . Les électrons de la même couche et possédant le même nombre  $n$  occupent des états quantiques différents caractérisés par deux autres nombres quantiques :  $l$  et  $m$  [Ay.13]. Ces nombres rendent compte du mouvement à trois dimensions des électrons autour de leurs noyaux. Compte tenu du fait que les électrons sont des particules spinorielles, et comme l'exige le principe d'exclusion de Pauli, deux électrons de la même couche peuvent avoir leur nombre azimutal  $l$  et magnétique  $m$  identiques mais dans ce cas leurs états de spin s'opposent. Il n'est pas difficile de montrer que le nombre maximum d'électrons qu'une couche donnée peut contenir est égal à  $2n^2$  [Be.87].

**I.2.1.2. Les couches K, L, M**

- La couche K, correspondant à  $n=1$ , contient deux électrons au maximum de spin opposés.
- La couche L, qui correspond à  $n=2$ , ne peut contenir plus de 8 électrons. Elle est subdivisée en trois sous couches  $L_1, L_2, L_3$
- La couche M, pour  $n=3$ , on définit la couche M avec ses 18 électrons. On la partage en cinq sous-couches  $M_1, M_2, M_3, M_4, M_5$ .
- La couche N est la couche qu'on retrouve pour  $n=4$ . Avec ses 32 électrons, elle est partagée en sept sous couches  $N_1, N_2, N_3, N_4, N_5, N_6, N_7$

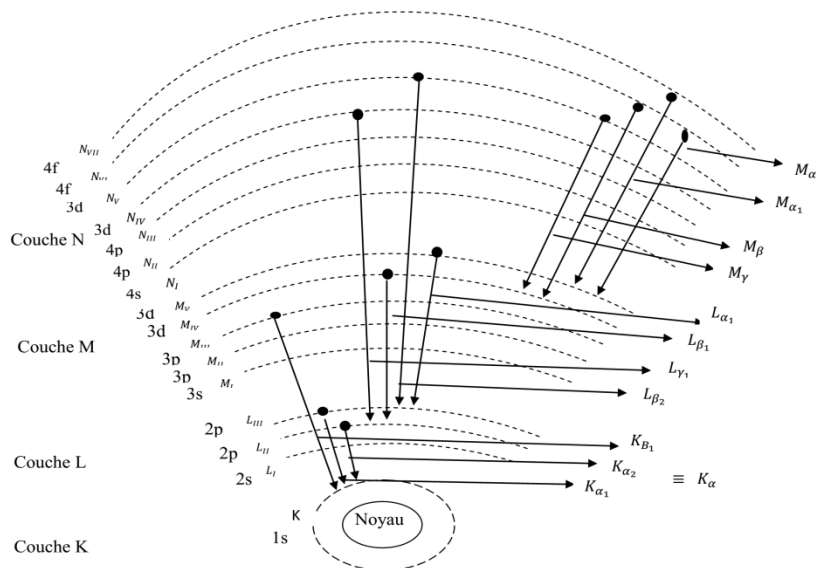
**I.2.2. Transitions électroniques permises**

L'application des postulats de la mécanique quantiques aux phénomènes des transitions électroniques montre l'existence de règles de sélections distinguant les transitions permises de celles qui sont interdites. Le moment cinétique orbital  $l$  et le moment cinétique total  $j$  des électrons de transition doivent satisfaire à des conditions de conservation.

Les règles de sélections auxquelles doit obéir un électron de transition caractérisé par trois nombres quantique  $n, j$  et  $l$  sont données par [Be.15]:

$$\begin{aligned} \Delta n &\neq 0 \\ \Delta l &= \pm 1 \\ \Delta j &= 0, \pm 1 \end{aligned} \tag{I.1}$$

Sur la figure I.1, nous illustrons quelques exemples de transitions électroniques permises.



**Figure I.1:** Niveaux d'énergie et quelques transitions électroniques permises [Be.18].

Tableau I.1: La configuration électronique et le moment angulaire total.

Couche		Sous-couche		Caractéristique de l'électron	
n		l		j	
1	K	0	K	1/2	1s
2	L	0	L <sub>1</sub>	1/2	2s
		1	L <sub>2</sub>	1/2	2p
		1	L <sub>3</sub>	3/2	2p
3	M	0	M <sub>1</sub>	1/2	3s
		1	M <sub>2</sub>	1/2	3p
		1	M <sub>3</sub>	3/2	3p
		2	M <sub>4</sub>	3/2	3d
		2	M <sub>5</sub>	5/2	3d
4	N	0	N <sub>1</sub>	1/2	4s
		1	N <sub>2</sub>	1/2	4p
		1	N <sub>3</sub>	3/2	4p
		2	N <sub>4</sub>	3/2	4d
		2	N <sub>5</sub>	5/2	4d
		3	N <sub>6</sub>	5/2	4f
		3	N <sub>7</sub>	7/2	4f

### I.3. Série de raies et Notation de Siegbahn

L'interaction subie par un électron lié à son atome qui est provoquée par un rayonnement électromagnétique extérieur ou un projectile formé de particules peut conduire à l'ionisation (électron arraché de l'atome) ou l'excitation de l'atome (l'électron passe à un niveau d'énergie supérieur). Lorsque un électron lié d'état énergétique initial  $E_x$  quitte son cortège, un électron d'une couche supérieure  $E_y$  vient combler la place vacante de l'électron [Bo.04]. Ce phénomène, et comme nous le savons, s'accompagne de l'émission d'une raie discrète de fréquence  $\nu$  et d'énergie égale à

$$h\nu = E_Y - E_X = |E_X - E_Y| \quad (I.2)$$

Les séries de raies sont la conséquence d'un réarrangement des électrons des atomes cibles qui interagissent avec une source extérieure.

### I.3.1. Notations de Siegbahn et notation IUPAC (International Union of Pure and Applied Chemistry)

Une notation très commode est utilisée en spectrométrie introduite pour la première fois par **Siegbahn**. Une autre notation est également répandue dans la littérature est dénommée notation IUPAC.

On résume dans ce qui suit la notation de **Siegbahn** [Be.87] et [Kr.79].

Lorsqu'un électron de la couche K est arraché et remplacé par un autre provenant de la couche L, la raie émise est notée  $K_\alpha$ . Dans le cas où l'électron qui arrive sur la couche K arrive de la couche M, la raie correspondante est désignée par les lettres  $K_\beta$  et  $K_\gamma$  et ainsi de suite.

Maintenant, si l'électron arraché était initialement sur la couche L, et si les électrons qui viennent combler la vacance proviennent des couches M, N et O alors les raies émises sont notées par  $L_\alpha$ ,  $L_\beta$  et  $L_\gamma$  respectivement.

Pour différencier les rayons X provenant de ces sous-couches, on rajoute un numéro 1, 2... à côté des indices alpha, beta etc qui se traduit par la notation  $K_{\alpha 1}$ ,  $K_{\alpha 2}$ ,  $K_{\beta 1}$ ,  $K_{\beta 2}$ ,  $L_{\alpha 1}$ ,  $L_{\alpha 2}$  ...

Dans la notation IUPAC on fait apparaître, pour désigner la raie émise, les deux sous-couches mises en jeu, autrement dit, la sous couche vacante qui va accueillir l'électron et la sous couche initiale de cet électron. Une même raie, notée  $K_{\alpha 1}$  en notation de Siegbahn, est désignée par K – L<sub>3</sub> en notation IUPAC

### I.4. Loi de Moseley

L'excitation des atomes étant localisée à des niveaux profonds, Moseley a montré que les liaisons chimiques entre atomes n'ont qu'une très faible influence sur les raies d'émissions X et peuvent être considérées avec une très bonne approximation comme étant indépendantes. En effet, Moseley a montré que la fréquence d'une raie donnée (par exemple  $K_{\alpha 1}$ ) était proportionnelle au carré du nombre atomique, suivant la relation:

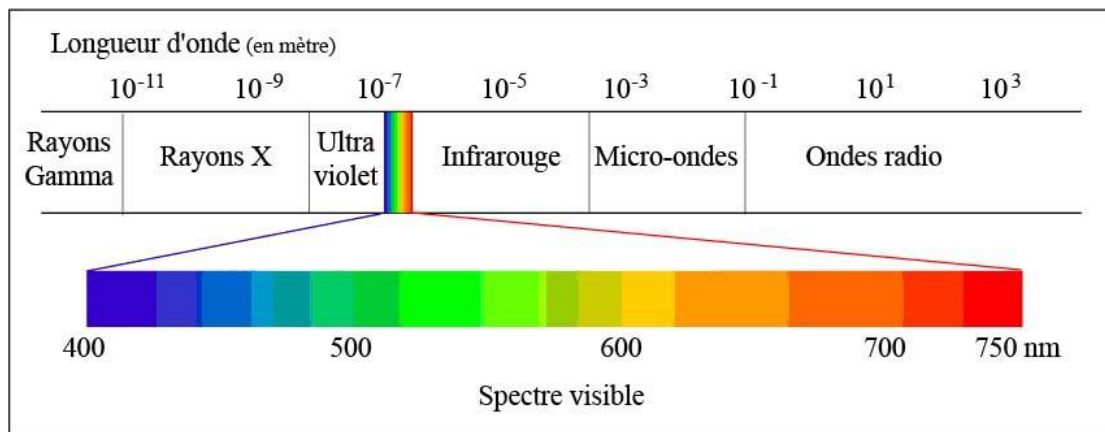
$$\nu = K_1 (Z - K_2)^2 \quad (I.3)$$

Où  $K_1$  et  $K_2$  sont des constantes ayant des valeurs définies pour chaque raie (constantes d'écran) [Be.87].

## I.5. Le rayonnement

On distingue deux types de rayonnements :

- Rayonnement électromagnétique : il est constitué par les ondes électromagnétiques transportant de l'énergie électrique et magnétique. Ce rayonnement couvre tout le spectre électromagnétique depuis les ondes radio avec une énergie faible aux énergies intermédiaires comme les micro-ondes, l'infrarouge, et le visible jusqu'aux rayons gamma avec des énergies très élevées.
- Rayonnement particulaire : il est composé de particules atomiques ou subatomiques. On peut citer les particules alpha et bêta et également les protons, électrons ou neutrons.



*Figure I.2: Les rayonnements électromagnétiques.*

Les rayonnements, qu'ils soient électromagnétique ou corpusculaire, peuvent arracher des électrons des atomes cibles lorsqu'ils arrivent sur une cible avec une énergie élevée. Comme soulevé plus haut, on évoque dans ce cas le rayonnement ionisant. Les particules alpha et bêta et les rayons X et gamma se trouvent parmi ce type de rayonnement. Les rayonnements caractérisés par une énergie qui n'est pas suffisante pour provoquer l'ionisation des atomes, comme les micro-ondes et les ondes radio, ne changent pas la structure des atomes et produisent un rayonnement non ionisant [Be.14].

## I.6. Les rayons X

Les rayons X ont été découverts par le physicien allemand W. Röntgen à Würzburg en 1895. Il baptisa sa découverte par la lettre X, c'est-à-dire : "Rayons X" où le "X" est la lettre utilisée pour désigner une inconnue en Mathématiques.

La découverte de Röntgen a eu un énorme retentissement même au niveau de la population. Le pouvoir des rayons X, de traverser des parois opaques et de révéler l'intérieur du corps humain a semblé magique et merveilleux. Les premières applications ont été orientées vers l'étude des cristaux avec l'espoir de mettre en évidence la constitution atomique des molécules et d'apporter la confirmation de la justesse du nombre d'Avogadro [Be.04].

Les rayons X font partie du spectre électromagnétique. Ce sont des perturbations des champs électriques et magnétiques ambiants qui se propagent avec une longueur d'onde de l'ordre de  $10^{-8}$  à  $10^{-12}$  m avec une énergie comprise entre 40 et  $4 \cdot 10^5$  eV.

L'énergie est transportée sous forme, comme nous le savons, de quanta appelés photons. Les relations de Planck-Einstein permettent d'écrire simplement :

$$\lambda = c \times T = \frac{c}{\nu} \quad (\text{I.4})$$

Où T est la période :  $T = \frac{1}{\nu}$

L'énergie portée par ces photons est donnée par :

$$E = h\nu = h \frac{c}{\lambda} \quad (\text{I.5})$$

## I.7. Interactions photon-matière

Un faisceau de rayons X incident arrive sur une cible de matière avec une énergie  $E_0$  produit, comme nous l'avons vu, soit une excitation soit l'ionisation de l'atome. L'état de l'atome cible après interaction se trouve instable et sa durée de vie est très courte et elle est estimée à environ  $10^{-16}$  s pour un atome isolé.

L'atome revient à son état fondamental par des transitions électroniques en cascade. Chaque transition se traduit par l'émission d'une raie caractéristique [Be.87].

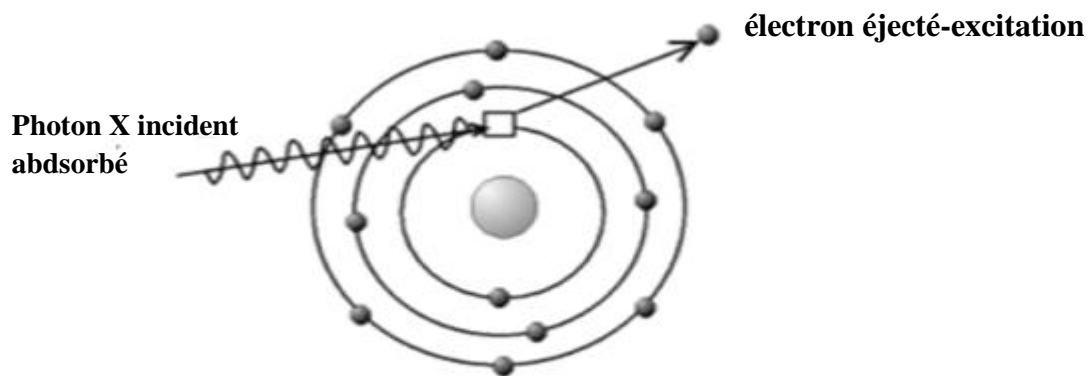
## I.7.1. Excitation

### I.7.1.1. Excitation et effet photo électrique

Les électrons qui forment le cortège électronique autour du noyau dans un atome sont répartis en couches et sous couches atomiques. Les couches les plus proches du cœur de l'atome possèdent une énergie de liaison noyau-électron  $W_x$  plus grande [Be.04].

Lorsque des rayons X incidents avec une énergie  $E_0$  atteignent un atome, ils ont le pouvoir, en raison de l'énergie importante des photons X, d'arracher les électrons les plus profonds (proche du noyau atomique) d'énergie cinétique initiale  $E_c$ . Ce phénomène d'extraction des électrons par un faisceau de photons a été découvert par le physicien Heinrich Hertz en 1887 et porte le nom d'effet photoélectrique. On peut décrire ce phénomène en termes d'énergies comme suit :

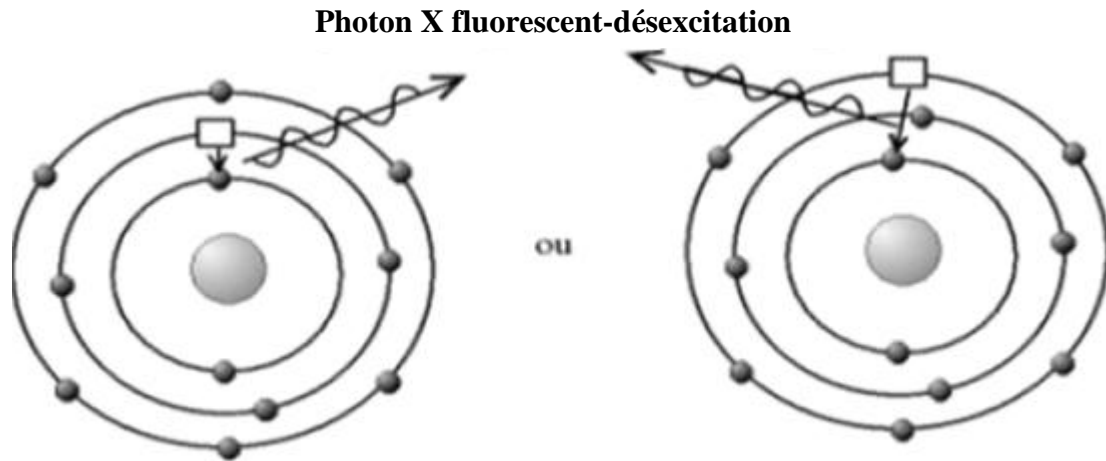
$$E_c \leq E_0 - W_x \quad \text{avec} \quad E_0 \geq W_x \quad (\text{I.6})$$



*Figure I.3 : Ionisation par effet photoélectrique*

### I.7.1.2. Désexcitation

L'état de l'atome ainsi ionisé se trouve dans un état excité. L'état fondamental et stable de l'atome est retrouvé lorsque des transitions d'électrons situés dans les niveaux supérieurs viennent occuper la place libre laissée par l'électron arraché. Nous évoquons la désexcitation de radiative dite également fluorescence lorsque la transition s'accompagne de l'émission d'une raie. Lorsque la désexcitation est non radiative il s'agit dans ce cas d'effet Auger.



*Figure I.4: Déexcitation par émission fluorescente*

### I.8. Fluorescence X

Un électron qui vient des couches extérieures de l'atome pour combler la vacance d'un électron éjecté va perdre son énergie sous forme d'émission d'un photon d'énergie égale à la différence entre l'énergie de la couche périphérique et la couche du cœur. L'énergie de ce photon appartient au domaine des rayons X et chaque atome va libérer des photons lors du processus de déexcitation ayant des énergies propres. Il s'agit alors «d'émission caractéristique» ou de phénomène de Fluorescence X [Be.04].

Dans un analyseur FRX, l'échantillon cible est bombardé par des rayons X incidents. Après l'expérience, on trouve la production d'électrons, de rayons X et de raies caractéristiques de rayons X.

Comme la déexcitation a pour effet l'émission de photons X. Certains photons parmi ces derniers peuvent interagir avec des électrons situés sur les couches internes Y de l'atome mais plus éloignés du noyau et peuvent provoquer l'extraction de ces électrons de la couche Y, c'est l'effet Auger dont nous aborderons en détails lors de la section suivante. La place libre laissée par l'électron arraché sera immédiatement remplie par des électrons venant de couches plus externes X [Ly.01].



La transition de l'électron de sa couche initiale, par exemple, la couche  $L_2$  vers une couche plus profonde K entraîne une modification de son énergie de liaison  $\Delta E$ . La conservation de l'énergie initiale et finale s'exprime par l'égalité

$$\Delta E = E_K - E_{L_2} \quad (\text{I.7})$$

Cette variation de l'énergie se traduit par l'apparition d'un photon X et la transition de l'électron est dite radiative [Ab.04].

## I.9. Transitions non-radiatives

Le photon X de fluorescence, créé suite à la désexcitation de l'atome, possède une probabilité non négligeable d'interagir avec un électron de couches supérieures et de provoquer ainsi un nouvel effet photoélectrique, ce phénomène est connu sous le nom effet Auger.

Il existe un autre type de transitions non radiatives connues sous l'appellation : transitions de Coster- Kronig. Ces transitions se produisent au niveau d'une même couche et met en jeu deux sous-couches.

Nous terminons par un phénomène extrêmement rare appelé transition super Coster-Kronig. Cette transition implique trois électrons : un premier électron arraché suite au bombardement incident, un deuxième qui vient occuper sa place et un troisième produit par désexcitation. Ces trois électrons appartiennent, lors d'une transition super Coster-Kronig, tous à la même couche énergétique [Du.12].

### I.9.1. Illustration de l'effet Auger

Nous avons dans la section précédente abordée l'effet Auger. Nous allons maintenant voir de plus près ce phénomène.

On présente sur la figure (I.6) une illustration d'une transition ABC mettant en jeu trois couches électroniques A, B et C. On suppose qu'un électron de la couche A est éjecté de son atome suite à l'interaction avec un projectile de rayon X ou un faisceau d'électron. L'atome ayant perdu un électron passe vers un état excité qui correspond à l'ionisation de la couche A. l'état fondamental est retrouvé après désexcitation. Dans ce cas, ou bien l'atome émet un photon ou bien un électron Auger est libéré. Dans l'intervalle d'énergie comprise entre 0 et 3 KeV, l'effet Auger est le plus probable. Cet effet se manifeste lorsqu'un électron de la couche B quitte son orbite pour venir vers la couche vacante A. Cette transition de B vers A est alors accompagnée par une perte d'énergie qui sera transférée vers un électron situé sur la couche C et aura pour conséquence son éjection de l'atome. Cet électron est appelé l'électron Auger.

Nous pouvons à ce stade faire le bilan énergétique décrivant l'énergie de l'électron Auger. En effet, l'énergie cinétique de l'électron Auger est donnée par la relation

$$E_{\text{cin}}(\text{ABC}) = E_L(\text{A}) - E_L(\text{B}) - E_L(\text{C}) \quad (\text{I.8})$$

Où  $E_L(\text{A})$  et  $E_L(\text{B})$  représentent les énergies de liaison respectives de l'électron A et de l'électron B.  $E_L(\text{C})$  étant l'énergie nécessaire pour la libération de l'électron se trouvant sur C.

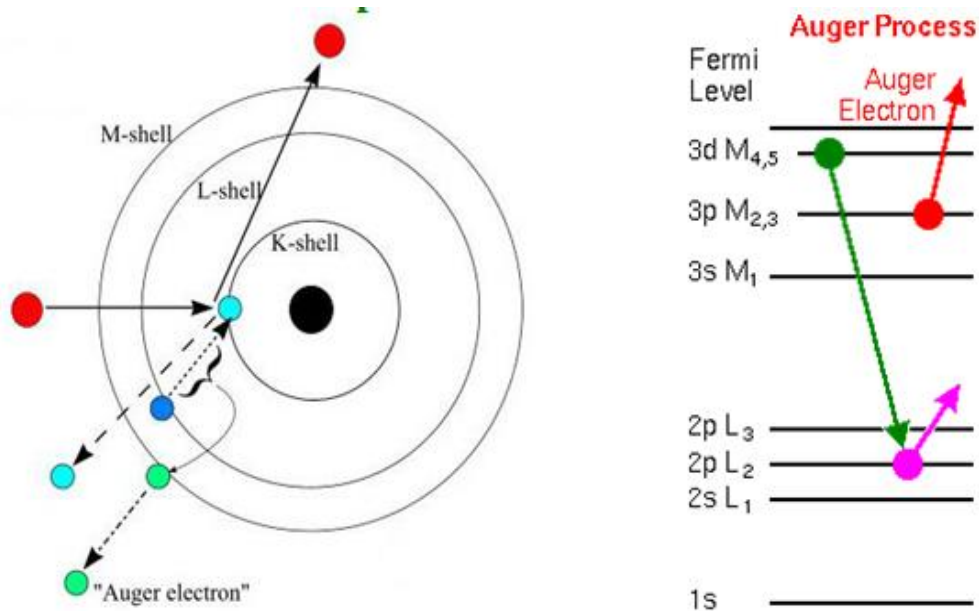


Figure I.5: Représentation schématique d'une transition Auger.

Comme exemple illustratif, nous considérons la transition d'un électron qui se trouve sur la couche  $L_2$  vers une couche K intérieure de l'atome. Cette transition est suivie par l'émission d'un rayonnement X, lequel provoque à son tour l'extraction d'un électron situé sur couche plus externe  $L_3$ . L'énergie cinétique de l'électron Auger émis s'exprime par

$$E_{\text{cin}} = E_K - E_{L_2} - E_{L_3} \quad (\text{I.9})$$

Et ce type de transition est symbolisé par  $KL_2L_3$  [Ab.04].

Nous terminons cette section par une remarque. Pour les éléments de numéro atomique élevé, on observe une plus grande probabilité de présence des transitions du type LMM et MNN qui résultent de l'ionisation des couches L et M [La.97].

### I.9.2. Transitions de Coster-Kronig

Pour les couches plus élevées (L, M, N, ... etc) présentant en effet plusieurs niveaux, une lacune électronique sur les niveaux les plus internes peut être transférée sur un niveau plus externe de la même couche avant qu'une transition radiative ou Auger n'ait lieu. Ces transitions entre deux niveaux d'une même couche sont dites "transitions de Coster-Kronig".

Lorsque les différences d'énergie entre les niveaux impliqués sont élevées, ce qui est le cas des éléments lourds ( $Z > 50$ ), les transitions peuvent être radiatives et conduisent alors à l'émission de rayons X dans le domaine des raies caractéristiques. Du fait de ces transitions, il est donc nécessaire de définir, d'une part, un rendement de fluorescence pour chaque niveau et, d'autre part, une probabilité de transition Coster-Kronig entre les différents niveaux.

### I.10. Rendement de fluorescence

Il s'agit dans cette partie de quantifier le rapport d'émission de photons X par rapport au nombre total de trous en électrons d'un atome. Nous savons que suite à un bombardement par un faisceau, un atome devient ionisé. Le trou laissé sera vite comblé par réarrangement en cascade des électrons des couches supérieures. Lorsqu'un électron arrive de sa couche pour combler une lacune de l'atome ionisé, cela est accompagné de l'émission d'un photon (Fluorescence X) ou bien de la libération d'un électron Auger.

Le rendement de fluorescence  $\omega_K$  pour la couche X est défini comme étant la probabilité pour qu'une lacune électronique créée sur la couche X soit remplie par un électron suivie par l'émission d'un photon X :

$$\omega_K = \frac{N_X}{N} = \frac{N_x}{N} = \frac{N_X}{N_X + N_A} \quad (\text{I.10})$$

Où  $N$  est le nombre initial de lacunes électroniques,  $N_X$  et  $N_A$  sont respectivement le nombre de transitions radiatives et le nombre de transitions Auger.

$$N = N_X + N_A \quad (\text{I.11})$$

Cette définition n'est toutefois correcte que pour la couche K [Be.15].

Nous pouvons également exprimer le rendement de fluorescence, en faisant appel à la notion de section efficace. [Ha.14]:

$$\omega_K = \frac{\sigma_K^X}{\sigma_K} \quad (\text{I.12})$$

Où  $\sigma_K^X$  représente la section efficace de production de photons émis et  $\sigma_K^I$  est la section efficace d'ionisation.

En 1955, une expression empirique a été proposée par Burhop qui permet la détermination de  $\omega_K$  en tenant compte des effets relativistes :

$$\left(\frac{\omega_K}{1-\omega_K}\right)^{1/4} = A + BZ + CZ^3 = p(Z) \tag{I.13}$$

Z étant le numéro atomique et A, B, C sont des coefficients constants.

En 1972, Bambynek affinera le modèle de Burhop en précisant les valeurs des coefficients A, B, C à partir de mesures expérimentales. Le rendement de fluorescence  $\omega_K$  est donc exprimé de manière semi-empirique par :

$$\omega_K = \frac{p^4(Z)}{1+p^4(Z)} \text{ avec } p(Z) = A + BZ + CZ^3 \text{ et } \begin{cases} A = 0.015 \pm 0.01 \\ B = 0.0332 \pm 0.0005 \\ C = -(0.64 \pm 0.07) \cdot 10^{-6} \end{cases} \tag{I.14}$$

L'expression du rendement de fluorescence pour les couches supérieures est plus compliquée car celles-ci sont composées de plusieurs sous-couches.

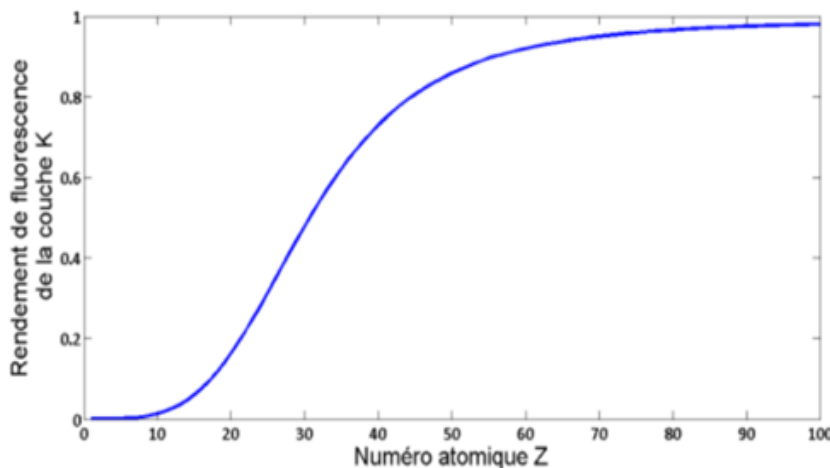


Figure I.6: Le rendement de fluorescence  $\omega$  en fonction du numéro atomique Z pour la couche K [Ha. 14].

### I.10.1. Transitions de Coster-Kronig et rendement de fluorescence

Etant donné une sous couche i appartenant à une couche j (j = K, L, M ...), le rendement de fluorescence de celle-ci s'exprime par :

$$\omega_{ji} = \frac{\sigma_{ji}^X}{\sigma_{ji}^I} \tag{I.15}$$

Le rendement total de la couche j est :

$$\omega_j = \sum_{i=1}^K N_{ji} \omega_{ji} \quad (I.16)$$

Dans l'équation (I.16) les N représentent les sections efficaces relatives d'ionisation de la sous couche i et vérifient la relation

$$\sum_i N_{ji} = 1$$

Les coefficients N s'expriment en fonction des sections efficaces par

$$N_{ji} = \frac{\sigma_{ji}^X}{\sum_i \sigma_{ji}^I} \quad (I.17)$$

En présence de transitions de type Coster-Kronig, le rendement de fluorescence est donné par:

$$\omega_j = \sum_{i=1}^K V_{ji} \omega_{ji} \quad (I.18)$$

Où les  $V_{ji}$  sont les sections efficaces relatives d'ionisation de la sous couche i appartenant à la couche j, en prenant en considération les ionisations provenant des transitions de Coster-Kronig; leur somme est supérieure à 1 et ils sont égaux à :

$$\begin{aligned} V_{j1} &= N_{j1} \\ V_{j2} &= N_{j2} + f_{12}^j N_{j1} \end{aligned} \quad (I.19)$$

$$V_{j3} = N_{j3} + f_{23}^j N_{j2} + (f_{13}^j + f_{12}^j f_{23}^j) N_{j1}$$

Où les  $f_{il}^j$  expriment les probabilités de transitions de Coster-Kronig pour transférer l'ionisation de la sous couche i vers la sous couche l.

Maintenant, détaillons comment ce type de transitions se produit sur une couche, par exemple, la couche L qui est formée de trois niveaux  $L_1, L_2$  et  $L_3$ ; L'ionisation initiale se trouvant en  $L_1$  se déplace en  $L_2$  ou  $L_3$  et l'énergie libérée peut servir à arracher un électron possédant une énergie de liaison inférieure. Les coefficients  $V_{ji}$  sont alors :

$$\begin{aligned} V_{L1} &= N_{L1} \\ V_{L2} &= N_{L2} + f_{12}^L N_{L1} \\ V_{L3} &= N_{L3} + f_{23}^L N_{L2} + (f_{13}^L + f_{12}^L f_{23}^L) N_{L1} \end{aligned} \quad (I.20)$$

Où  $f_{12}, f_{13}$  et  $f_{23}$  sont respectivement les probabilités des transitions Coster-Kronig entre les sous couches  $L_1L_2, L_1L_3$  et  $L_2L_3$ .

De plus, pour un atome dans un état excité et possédant un trou en électron, la largeur totale  $\Gamma_{T_i}$  d'un niveau d'énergie est égale à la somme de largeur de rayonnements radiatifs  $\Gamma_{X_i}$ , la largeur non-radiative  $\Gamma_{a_i}$  et la largeur de Coster-Kronig  $\Gamma_{k_i}$ .

Le rendement de fluorescence vaut alors :

$$\omega_i = \frac{\Gamma_{X_i}}{\Gamma_{T_i}} \tag{I.21}$$

Le rendement relatif à l'effet Auger est égal à

$$a_i = \frac{\Gamma_{a_i}}{\Gamma_{T_i}} \tag{I.22}$$

Et la probabilité de transition Coster-Kronig s'exprime par

$$f_{ik} = \frac{\Gamma_{k_i}}{\Gamma_{T_i}} \tag{I.23}$$

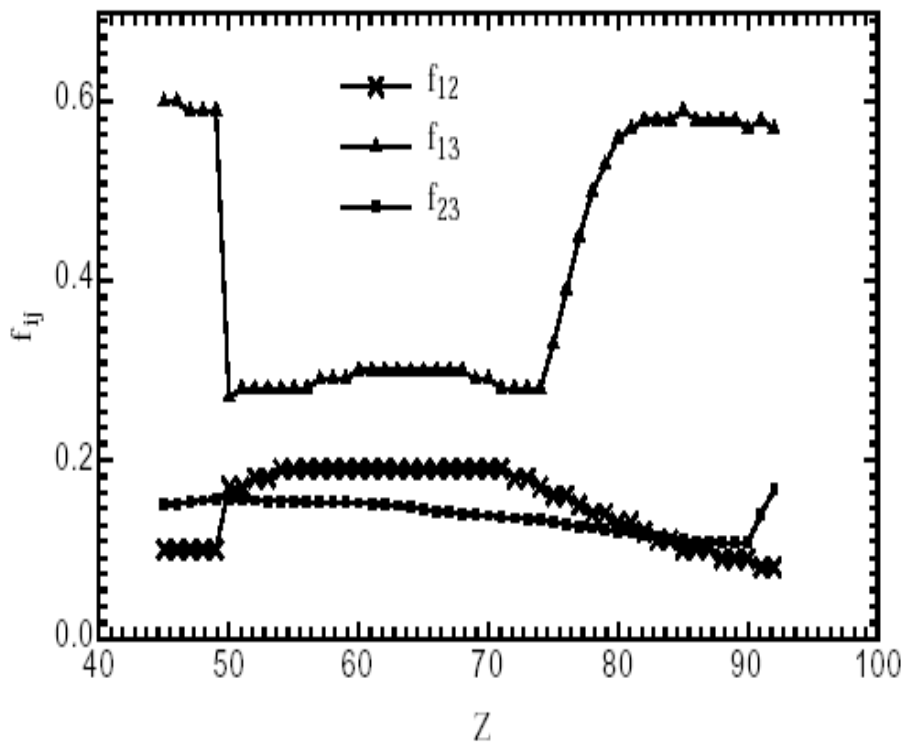


Figure I.7: Transition de Coster-Kronig [St.02].

### I.11. La probabilité totale

La probabilité totale entre les trois paramètres, le rendement de fluorescence, l'effet Auger et les transitions de Coster-Kronig est:

$$\omega_i^k + a_i^k + \sum_{j=i+1}^k f_{ij}^k = 1 \quad (\text{I.24})$$

Avec :

$\omega_i^k$  rendement de fluorescence.

$a_i^k$  rendement d'émission Auger.

$f_{ij}^k$  est le rendement Coster-Kronig [Ba.72].

### I.12. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les phénomènes d'interaction rayonnement-matière et les différentes transitions induites sur la structure énergétique des électrons. Une attention particulière a été accordée aux transitions radiatives et à la détermination du rendement de la fluorescence.

**Références Bibliographiques**

- [Ay.13] Ayadim, M., Habib, J. L., 2013. Chimie Générale, Presses universitaires de Louvain Edition, Paris, 1<sup>o</sup>ct.
- [Be.18] Bendjedi ,A., 2018. Thèse de Doctorat, Université Mohamed Boudiaf - M'sila.
- [Be.87] Benoit, D., Grillon, F., Maurice, F., Ruste,J., Tixier, R., 1987. Spectrométrie de Rayons X, Hoggar Edition, Paris.
- [Be.15] Beladel ,B., 2015. Thèse de Doctorat, Ouargla,
- [Bo.04] Boufas ,S., 2004.Thèse de Magister de l'université Constantine,.
- [Kr.79] Krause, M. O., Phys, J. 1979. Chem. Ref. Data 8,
- [Be.14] Belgium, W. K., 2014. Rayonnements Ionisants, Hans Suijkerbuijk Edition,
- [Be.04] Benslimane, M., 2004.Thèse de Magister de l'université Constantine.
- [Ly.01] Lynch, J., 2001. Analyse Physico-Chimique des Catalyseurs Industriels, Editions TECHNIP, Paris,
- [Ab.04] Ben Abdelouahed, H., 2004. Thèse de Doctorat de l'université de Tunis El Manar,
- [Du.12] Dupuis, T., 2012. Thèse de Doctorat université de Liege,
- [La.97] Landolt ,D., 1997. Corrosion et chimie de surfaces des métaux, PPUR presses polytechniques fédérale de Lausanne Editions, janv,.
- [Ha.14] El Hajjar, D., 2014. Thèse de Doctorat de l'université Nantes Angers le Mans,
- [Ba.72] Bambyenk ,W., Carsemann, B., Fink ,W., Freund, H.U, Mark, H., Swift ,C.D., Price, R.E., Rao, P.V., 1972. Rev. Mod, Phys 44, 716.
- [St.02] Strivay, D., 2002. thèse de Doctorat, Université de Liege,



## **Chapitre II**

### ***Les Modèles Théoriques : PWBA et ECPSSR***

## II.1. Introduction

Pour rendre compte des phénomènes complexes se déroulant lors d'interaction entre le faisceau projectile et la cible « interaction rayonnement-matière », il faut faire appel à la théorie des collisions collectives en mécanique quantique. En général, on ne considère dans un premier temps, que les cas de diffusion élastique sans apparition de nouvelles particules. Autrement dit, les particules présentes formant l'état initial avant l'interaction sont les mêmes particules qu'on retrouve après la collision à l'état final.

La description théorique repose sur certaines hypothèses de départ qui permettent d'établir un premier cadre mathématique simple. Ayant en main, ensuite, un cadre mathématique convenable, on peut l'améliorer par la prise en compte d'autres hypothèses décrivant des effets correctifs (comme les effets relativistes etc...).

Nous commençons par admettre les cinq points suivant :

- (i) Le spin des particules entrant en interaction n'est pas pris en compte.
- (ii) Les particules sont supposées être élémentaires et ne sont pas composées d'autres particules.
- (iii) Ne sont considérés que les diffusions simples en non multiples, c'est-à-dire que la cible est considérée comme étant suffisamment mince.
- (iv) Chaque particule de la cible interagit avec le faisceau incident indépendamment d'autres particules de la cible. Le flux de particules détectés suite à l'interaction sera égal à la somme des flux diffusés par chacune des particules formant la cible.
- (v) Le potentiel décrivant l'interaction entre une particule incidente et celle de la cible est de la forme  $V(r_1 - r_2)$  où  $r_1$  et  $r_2$  sont respectivement les vecteurs positions des particules incidente et cible. De plus, on se place dans le système du centre de masse, c'est-à-dire que l'on considère les diffusions d'une particule unique par le potentiel  $V(r)$  dont la masse est  $\mu$  définie comme :

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

Où  $M_1$  et  $M_2$  désignent les masses des particules incidente et cible. La section efficace différentielle de diffusion  $\sigma(\theta, \varphi)$  prend la forme connue:

$$dn = F_i \sigma(\theta, \varphi) d\Omega \quad (\text{II.2})$$

Avec  $dn$  représente le nombre de particules détectées,  $F_i$ , le flux incident de particules et  $d\Omega$  est l'angle solide de détection. Notons que  $\sigma(\theta, \varphi)$  possède la dimension d'une surface, et elle est appelée "section efficace de diffusion" dans la direction  $(\theta, \varphi)$ . On mesure les sections efficaces en barns.

## II.2. Section efficace d'ionisation par des particules chargées

Les particules chargées comme les protons ou les particules alpha sont souvent utilisées comme projectiles. Différentes valeurs d'énergie sont prises dans un domaine spécifique, soit de 0,5 à 5 MeV pour chaque noyau. Les particules mises en jeu lors de la collision menant à une ionisation sont considérées comme particules ponctuelles [Mo.03] et les modèles théoriques décrivant l'ionisation des couches atomiques profondes tiennent compte de l'interaction coulombienne entre un électron lié à l'atome et le noyau de la particule chargée incidente.

## II. 3. Modèles théoriques

Il existe plusieurs modèles utilisés pour le calcul des sections efficaces d'ionisation :

### II. 3.1. Modèle PWBA (Plane Wave Born Approximation):

Ce modèle a été mis au point par Merzbacher et Lewisen en 1958[Me.58]. L'ionisation d'une couche atomique est obtenue lors de l'interaction coulombienne inélastique entre le projectile et un électron lié de l'atome cible.

### II. 3.2. Modèle RPWBA-BC (Relativistic Plane Wave Born Approximation – Binding Correction) :

Sur la base du modèle précédent, Mukoyama et Sarcadi en 1982 [Mu.82] ont développé ce modèle qui prend en considération la nature relativiste des particules. Pour ce faire, les auteurs utilisent pour la description des électrons des fonctions d'ondes d'hydrogène relativistes.

### II. 3.3. Modèle SCA (Semi-Classical Approximation) :

Aux énergies basses, et si la condition suivante est vérifiée :

$$\frac{2Z_1Z_2e^2}{\hbar V_1} \gg 1 \quad (\text{II.3})$$

Bang en 1959 et Hasteen en 1970 et 1975 ([Ba.59], [Ha.70], [Ha.75]) ont considéré un traitement semi-classique du mouvement du projectile lorsqu'il s'approche du champ du noyau de la cible. La trajectoire de la particule diffusée est hyperbolique et il s'agit alors de la méthode des trajectoires hyperboliques.

### II. 3.4. Modèle BEA (Binary Encounter Approximation)

Ce modèle a été proposé par Garcia et al [Ga.70a], [Ga.70b]. Il est valable notamment pour le cas de projectile d'énergie élevée. La section efficace d'ionisation de la couche K est donnée par l'expression suivante

$$\sigma_K = \left(\frac{Z_1}{I_K}\right)^2 f\left(\frac{E}{\lambda I_K}\right) \quad (\text{II.4})$$

et  $f\left(\frac{E}{\lambda I_K}\right)$  est une fonction donnée par Stanislas en 1973[St.73]

### II. 3.5. Modèle PSSA (Perturbed Stationary State Approximation)

Les fonctions d'onde utilisée dans ce modèle proposé par Basbas et al [Ba.73a][Ba.73b][Be.78] sont des fonctions stationnaires perturbées.

Sur la base de l'approche de Basbas, d'autres auteurs ont apportés des améliorations importantes suivantes :

- Déflexion coulombienne du projectile dans le champ du noyau cible par Brandt et Lapicki [Br.74] et Lapicki et Losonsky [La.79].
- Effets relativistes par Brandt et Lapicki [Br.79].
- Capture d'électrons de l'atome cible par le projectile par Lapicki et Losonsky [La.79].
- Variation de l'énergie du projectile dans le champ du noyau cible [Br.81] et G. Lapicki et A.R.Zander [La.81] et G. Lapicki [La.87].

Les détails mathématiques de chacun des effets correctifs précédents sont développés dans les sections suivantes. Les améliorations apportées au modèle PSSA ont conduit au fameux modèle ECPSSR que nous aborderons en détails plus loin.

## II. 4. Modèle quantique PWBA

Pour décrire cette interaction, nous utilisons la théorie des perturbations au premier ordre qui est basée sur les hypothèses suivantes :

- i) La vitesse  $v_1$  du projectile est inférieure (ou égale) à la vitesse  $v_2$  de l'électron lié à l'atome.  $v_1 \leq v_2$

Cette hypothèse s'exprime en fonction de l'énergie par :

$$\Delta E = \frac{4MmE}{(M+m)^2} \gg \frac{4m}{M} E \gg I_n \quad (\text{II.5})$$

$I_n$  : est l'énergie d'ionisation atomique.

$E$  et  $M$  : sont l'énergie et la masse du projectile.

$m$  : est la masse de l'électron concerné.

$\Delta E$  : représente l'énergie transférée dans une collision à un électron au repos.

- ii) La longueur d'onde associée à la particule incidente est inférieure à l'unité en unités atomiques :

$$\lambda(= \hbar/Mv_1) \ll 1 \tag{II.6}$$

En unité coulombienne  $\frac{Z_1 Z_2 e^2}{\hbar v_1} \ll 1$  soit  $v_1 \gg Z_1 v_0$ .

$Z_1, Z_2$  représentent, respectivement, le numéro atomique du projectile et de l'atome cible.

On considère, dans ce qui suit, la collision d'une particule incidente de masse  $M_1$  et de charge  $Z_1$  avec une particule de masse  $M_2$  et de charge  $Z_2$ .

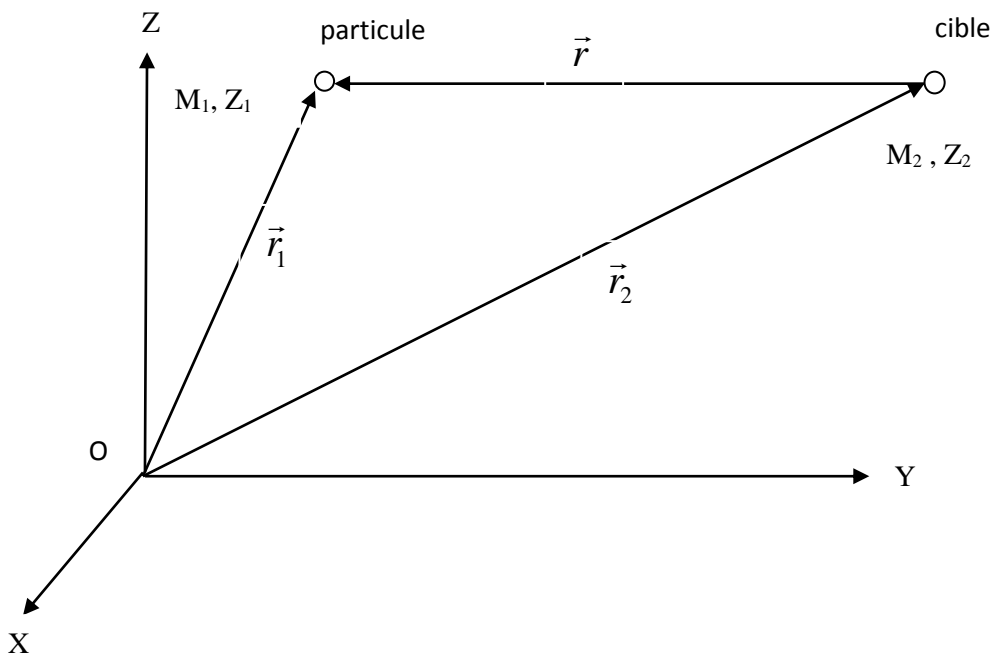


Figure II.1 : Interaction Particule-cible

Nous devons résoudre l'équation de Schrödinger tout d'abord pour ensuite déterminer la section efficace de diffusion.

L'Hamiltonien du système s'écrit :

$$H = -\frac{\hbar^2}{2M_1} \nabla_1^2 - \frac{\hbar^2}{2M_2} \nabla_2^2 + V(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) \tag{II.7}$$

$V(\vec{r}_1 - \vec{r}_2)$  étant le potentiel coulombien d'interaction. Dans le système du centre de masse, il s'écrit:

$$H = -\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla^2 + V(\vec{r}) \quad (\text{II.8})$$

Où  $\vec{r} = (\vec{r}_1 - \vec{r}_2)$  est la distance relative entre les deux particules et  $\mu$  désigne la masse réduite

$$\mu = \frac{M_1 M_2}{M_1 + M_2} \quad (\text{II.9})$$

Pour résoudre l'équation de Schrödinger, on considère les états stationnaires de cette équation.

L'équation de Schrödinger dépendante du temps est extrêmement difficile à traiter, nous considérons les états stationnaires de la particule diffusée :

$$\psi(\vec{r}) = \varphi(\vec{r}) e^{\frac{iEt}{\hbar}} \quad (\text{II.10})$$

Où  $E$  est l'énergie de la particule diffusée et  $\varphi(\vec{r})$  n'est autre que la solution de l'équation de Schrödinger indépendante du temps et elle obéit comme nous le savons à l'équation aux valeurs propres suivante:

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2\mu} \Delta + V(\vec{r}) \right] \varphi(\vec{r}) = E \varphi(\vec{r}) \quad (\text{II.11})$$

On pose, à cette étape:

$$E = \frac{\hbar^2 k^2}{2\mu} \quad (\text{II.12})$$

et pour le potentiel coulombien

$$V(\vec{r}) = \frac{\hbar^2}{2\mu} U(\vec{r}) \quad (\text{II.13})$$

L'équation de Schrödinger prend alors la forme

$$[\Delta + k^2 - U(\vec{r})] \varphi(\vec{r}) = 0 \quad (\text{II.14})$$

Maintenant, on s'intéresse d'abord au cas où l'interaction est absente, c'est-à-dire  $U = 0$ .

Dans ce cas, la particule incidente est libre et sa fonction d'onde s'écrit comme une onde plane :

$$\varphi_i(\vec{r}) = e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}} \quad (\text{II.15})$$

Et :

$$[\Delta + k_i^2] \varphi_i(\vec{r}) = 0 \quad (\text{II.16})$$

On introduit la fonction de Green  $G(\vec{r}, \vec{r}')$ , définie par la relation :

$$[\Delta + k^2]G(\vec{r} - \vec{r}') = \delta(\vec{r} - \vec{r}') \quad (\text{II.17})$$

Et on arrive à la solution de l'équation de Schrödinger avec l'interaction qui s'écrit, en tenant compte de la relation précédente, de cette manière :

$$\varphi(\vec{r}) = \varphi_i(\vec{r}) + \int G(\vec{r} - \vec{r}')U(\vec{r}')\varphi(\vec{r}')d\vec{r}' \quad (\text{II.18})$$

la détermination de la fonction de Green solution de l'équation (II.17) est donnée par [Sa.94]:

$$G(\vec{r} - \vec{r}') = -\frac{e^{ik_i|\vec{r}-\vec{r}'|}}{4\pi|\vec{r} - \vec{r}'|} \quad (\text{II.19})$$

Et en tenant compte de la relation vérifiée par la fonction de Dirac

$$\Delta\left(\frac{1}{4\pi|\vec{r} - \vec{r}'|}\right) = -\delta(\vec{r} - \vec{r}') \quad (\text{II.20})$$

L'insertion de l'équation (II.20) dans (II.19) et (II.18), conduit à l'expression de la fonction  $\varphi(\vec{r})$

$$\varphi(\vec{r}) = \varphi_i(\vec{r}) - \frac{\mu}{2\pi\hbar^2} \int \frac{e^{ik_i|\vec{r}-\vec{r}'|}}{|\vec{r} - \vec{r}'|} V(\vec{r}')\varphi(\vec{r}')d\vec{r}' \quad (\text{II.21})$$

On remarque clairement que la fonction d'onde  $\varphi(\vec{r})$  inconnue est exprimée en termes d'équation intégrale  $\varphi(\vec{r})$ .

Maintenant, nous allons voir de plus près la forme (II.21). Commençons par approximer la distance relative de cette manière :

$$\left\{ \begin{array}{l} |\vec{r} - \vec{r}'| = [r^2 - r'^2 - 2\vec{r}\vec{r}']^{1/2} = r \left[ 1 + \frac{r'^2}{r^2} - \frac{2\vec{r}\vec{r}'}{r^2} \right]^{1/2} \approx r \left[ 1 - \frac{\vec{r}\vec{r}'}{r^2} \right] \\ \vec{k}_f = k_i \frac{\vec{r}}{r} \end{array} \right. \quad (\text{II.22})$$

Qu'on peut alors réécrire

$$\frac{e^{ik_i|\vec{r}-\vec{r}'|}}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \approx \frac{e^{ik_i r}}{r} e^{-ik_i \frac{\vec{r}\vec{r}'}{r}} \quad (\text{II.23})$$

Et on arrive à l'expression de la fonction d'onde  $\varphi(\vec{r})$  :

$$\varphi(\vec{r}) = \varphi_i(\vec{r}) - \frac{\mu}{2\pi\hbar^2} \frac{e^{ik_i r}}{r} \int e^{-i\vec{k}_f \vec{r}'} V(\vec{r}')\varphi(\vec{r}')d\vec{r}' \quad (\text{II.24})$$

Nous définissons maintenant les états stationnaires de diffusion comme étant les états propres de l'Hamiltonien du système, et on prend la forme bien connue formé par les deux termes suivant :

$$\varphi(\vec{r}) = e^{i\vec{k}_i \vec{r}} + f \frac{e^{ik_i r}}{r} \quad (\text{II.25})$$

avec

$$f = -\frac{\mu}{2\pi\hbar^2} \int e^{-i\vec{k}_f \vec{r}'} V(\vec{r}') \varphi(\vec{r}') d\vec{r}' = -\frac{1}{4\pi} \int e^{-i\vec{k}_f \vec{r}'} U(\vec{r}') \varphi(\vec{r}') d\vec{r}' \quad (\text{II.26})$$

Lorsque la particule incidente s'éloigne suffisamment de la cible après l'interaction, elle peut être considérée comme libre et on admet que son amplitude varie selon l'inverse de la distance radiale  $r$  et que la diffusion n'est pas isotrope. Autrement dit, on pose les deux hypothèses suivantes :

(i) Dans une direction définie par  $(\theta, \varphi)$  donnée, sa dépendance radiale est en  $\frac{e^{ikr}}{r}$ .

(ii) La diffusion est supposée non isotrope, ce qui conduit à une amplitude de diffusion qui dépend de  $(\theta, \varphi)$ .

Le comportement de la fonction d'onde loin du centre de la collision prend, en définitive, la forme suivante:

$$\varphi(\vec{r}) = e^{i\vec{k}_i \vec{r}} + f_k(\theta, \varphi) \frac{e^{ik_i r}}{r} \quad (\text{II.27})$$

où  $f_k(\theta, \varphi)$  est l'amplitude de diffusion.

### II. 4.1. Approximation de Born:

La résolution analytique de l'équation intégrale (II.24) n'est pas possible. Toutefois, on peut trouver une solution approximative :

#### 1<sup>ère</sup> Approximation :

$$\varphi(\vec{r}) = \varphi_i(\vec{r}) - \frac{\mu}{2\pi\hbar^2} \int \frac{e^{ik_i |\vec{r} - \vec{r}'|}}{|\vec{r} - \vec{r}'|} V(\vec{r}') \varphi(\vec{r}') d\vec{r}' \quad (\text{II.28})$$

#### 2<sup>ème</sup> Approximation :



$$\begin{aligned} \varphi(\vec{r}) = \varphi_i(\vec{r}) - \frac{\mu}{2\pi\hbar^2} \int \frac{e^{ik_i|\vec{r}-\vec{r}'|}}{|\vec{r}-\vec{r}'|} V(\vec{r}')\varphi(\vec{r}')d\vec{r}' + \\ \left(\frac{\mu}{2\pi\hbar^2}\right)^2 \int \frac{e^{ik_i|\vec{r}-\vec{r}'|}}{|\vec{r}-\vec{r}'|} V(\vec{r}') \frac{e^{ik_i|\vec{r}'-\vec{r}''|}}{|\vec{r}'-\vec{r}''|} V(\vec{r}'')\varphi(\vec{r}'')d\vec{r}'d\vec{r}'' \end{aligned} \quad (\text{II.29})$$

**3<sup>eme</sup> Approximation :**

$$\begin{aligned} \varphi(\vec{r}) = \varphi_i(\vec{r}) - \frac{\mu}{2\pi\hbar^2} \int \frac{e^{ik_i|\vec{r}-\vec{r}'|}}{|\vec{r}-\vec{r}'|} V(\vec{r}')\varphi(\vec{r}')d\vec{r}' + \\ \left(\frac{\mu}{2\pi\hbar^2}\right)^2 \int \frac{e^{ik_i|\vec{r}-\vec{r}'|}}{|\vec{r}-\vec{r}'|} V(\vec{r}') \frac{e^{ik_i|\vec{r}'-\vec{r}''|}}{|\vec{r}'-\vec{r}''|} V(\vec{r}'')\varphi(\vec{r}'')d\vec{r}'d\vec{r}'' - \\ \left(\frac{\mu}{2\pi\hbar^2}\right)^3 \int \frac{e^{ik_i|\vec{r}-\vec{r}'|}}{|\vec{r}-\vec{r}'|} V(\vec{r}') \frac{e^{ik_i|\vec{r}'-\vec{r}''|}}{|\vec{r}'-\vec{r}''|} V(\vec{r}'') \frac{e^{ik_i|\vec{r}''-\vec{r}'''}|}{|\vec{r}''-\vec{r}'''}| V(\vec{r}''')\varphi(\vec{r}''')d\vec{r}'d\vec{r}''d\vec{r}''' \end{aligned} \quad (\text{II.30})$$

L'approximation de Born stipule que l'état propre exact dans l'équation intégrale est remplacé par une onde plane. Cette approximation amène à considérer :

$$f_k(\theta, \varphi) = -\frac{1}{4\pi} \int e^{-k_f r} U(r) e^{ik_i r} d^3 r = -\frac{\mu}{2\pi\hbar^2} \langle \psi_f | V | \psi_i \rangle \quad (\text{II.31})$$

Où  $k_i$  est le vecteur d'onde incident.

Où

$$f_k(\theta, \varphi) = -\frac{\mu}{2\pi\hbar^2} \int \phi_f^*(\vec{r}_2) W(\vec{r}_2) \phi_i(\vec{r}_2) d\vec{r}_2 \quad (\text{II.32})$$

et  $W(\vec{r}_2) = \int \phi_f^*(\vec{r}_1) V(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) \phi_i(\vec{r}_1) d\vec{r}_1$

Pour condition, le rayon orbital est grand comparativement à la distance minimale d'approche (par exemple la couche M) le potentiel d'interaction entre l'ion incident et l'électron atomique on pose :

$$V(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) \approx -\frac{Z_1 e^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} \quad (\text{II.33})$$

Donc :

$$W(\vec{r}_2) = -Z_1 e^2 \int \frac{e^{iq(\vec{r}_1 - \vec{r}_2)} e^{iq\vec{r}_2}}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 = -4\pi Z_1 e^2 \frac{e^{iq\vec{r}_2}}{q^2} \quad (\text{II.34})$$

et  $\vec{q} = \vec{k}_i - \vec{k}_f$

ce qui conduit à une expression de  $f_k(\theta, \varphi)$

$$f_k(\theta, \varphi) = -\frac{2Z_1 e^2 \mu F_s(q)}{\hbar^2 q^2} \quad (\text{II.35})$$

Où  $F_s(q) = \int \phi_f^*(\vec{r}_2) e^{i\vec{q}\vec{r}_2} \phi_i(\vec{r}_2) d\vec{r}_2$

La section efficace de diffusion  $\sigma(\theta, \varphi)$  dans l'équation (II.2) se transforme en :

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

Où  $\frac{d\sigma(\theta, \varphi)}{d\Omega}$  est dite section efficace différentielle de diffusion, et dépend en général des angles  $\theta$  et  $\varphi$ .

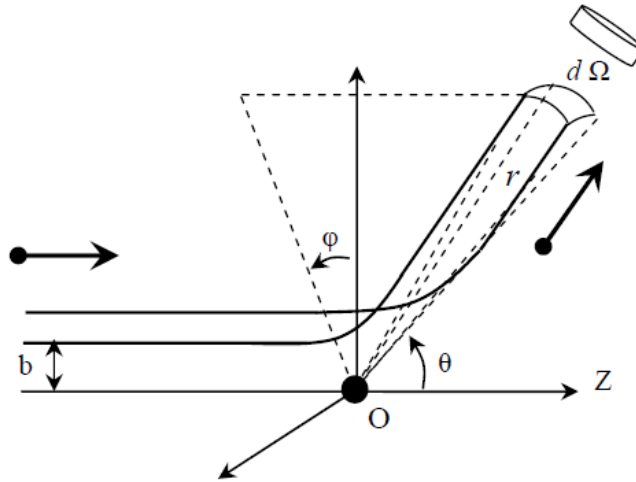


Figure II.2: processus de diffusion [Ba,09].

L'intégration sur l'angle solide  $d\Omega$  mène à la section efficace totale

$$\sigma = \int \frac{d\sigma(\theta, \varphi)}{d\Omega} d\Omega \quad (\text{II.36})$$

La densité de courant de probabilité associé à l'équation Schrödinger indépendante du temps s'écrit B. Held [He.91]:

$$\vec{J} = \frac{\hbar}{2\mu i} (\phi^* \vec{\nabla} \phi - \phi \vec{\nabla} \phi^*) \quad (\text{II.37})$$

Le Laplacien est donné en coordonnées sphérique par :

$$\vec{\nabla} = \frac{\partial}{\partial r} \vec{e}_r + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta} \vec{e}_\theta + \frac{1}{r \sin(\theta)} \frac{\partial}{\partial \varphi} \vec{e}_\varphi \quad (\text{II.38})$$

Les particules incidente sont considérées comme quasiment libre et sont modélisée ainsi par des ondes planes  $e^{i\vec{k}_i \vec{r}}$ , le courant incident devient simplement

$$\vec{J}_i = \frac{\hbar}{2\mu i} \left( e^{-i\vec{k}_i \vec{r}} \vec{\nabla} e^{i\vec{k}_i \vec{r}} - e^{i\vec{k}_i \vec{r}} \vec{\nabla} e^{-i\vec{k}_i \vec{r}} \right) = \frac{\hbar}{\mu} \vec{k}_i \quad (\text{II.39})$$

Et, comme discuté plus haut, la fonction d'onde diffusée ayant pour forme

$\varphi(\vec{r}) = f_k(\theta, \varphi) \frac{e^{ik_i r}}{r}$ , on peut alors calculer la densité de courant diffusée

$$\begin{aligned} J_{dr} &= \frac{\hbar \vec{k}_f}{\mu} \frac{1}{r^2} |f(\theta, \varphi)|^2 \\ J_{d\theta} &= \frac{\hbar}{\mu} \frac{1}{r^3} \text{Re} \left[ \frac{1}{i} f^*(\theta, \varphi) \frac{\partial}{\partial \theta} f(\theta, \varphi) \right] \\ J_{d\varphi} &= \frac{\hbar}{\mu} \frac{1}{r^3 \sin(\theta)} \text{Re} \left[ \frac{1}{i} f^*(\theta, \varphi) \frac{\partial}{\partial \varphi} f(\theta, \varphi) \right] \end{aligned} \quad (\text{II.40})$$

Donc,  $J_d$  prend la forme [He.91]

$$J_d \approx \frac{\hbar \vec{k}_f}{\mu} \frac{1}{r^2} |f(\theta, \varphi)|^2 + O\left(\frac{1}{r^3}\right) \quad (\text{II.41})$$

Ayant en possession l'expression des courants incident et diffusé, on peut à cette étape évaluer la section efficace différentielle de diffusion:

$$\frac{d\sigma(\theta, \varphi)}{d\Omega} = \frac{J_d}{J_i} r^2 d\Omega = \frac{k_f}{k_i} |f(\theta, \varphi)|^2 d\Omega \quad (\text{II.42})$$

La section efficace différentielle dans l'approximation de Born est donnée par :

$$d^2\sigma = \frac{k_f}{k_i} \left( \frac{\mu}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \left| \langle \psi_f | U | \psi_i \rangle \right|^2 d\Omega \quad (\text{II.43})$$

On peut aussi écrire que :

$$d^2\sigma = 8\pi Z_1^2 \left( \frac{e^2}{\hbar V_1} \right)^2 \frac{dq}{q^3} |F_s(q)|^2 d\varepsilon \quad (\text{II.44})$$

Avec :  $\vec{q} = \vec{k}_i - \vec{k}_f \Rightarrow q^2 = k_f^2 + k_i^2 - 2k_i k_f \cos(\theta)$ ,

$V_1$  indique la vitesse de la particule incidente. On introduit, à cette étape, les variables sans dimensions

$$W Z_{2S} R = \varepsilon = T + I_S \quad (\text{II.45})$$

$$K = a_s k \text{ et } Q = (a_s q)^2 \quad (\text{II.46})$$

où  $a_s = \frac{a_0}{Z_{2S}}$  désigne le rayon de la couche atomique considérée,

$T = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}$ , représente l'énergie cinétique de l'électron libéré suite à l'ionisation.

$I_S = \frac{Z_{2S}^2 R}{n^2} \theta_S$ , est l'énergie d'ionisation.

La section efficace d'ionisation prend alors la forme :

$$\sigma_s^{PWBA}(\eta_s, \theta_s) = \frac{\sigma_{0S}}{\eta_s} \int_{W_{\min}}^{W_{\max}} dW \int_{Q_{\min}}^{Q_{\max}} |F_{W,S}(Q)|^2 \frac{dQ}{Q^2} \quad (\text{II.47})$$

où :

$$\eta_s = \frac{m_e E}{M_1 Z_{2S}^2 R} = \frac{1}{Z_{2S}^2} \left( \frac{\hbar V_1}{e^2} \right)^2 \quad (\text{II.48})$$

et

$$\sigma_{0S} = 8\pi a_0^2 \frac{Z_1^2}{Z_{2S}^4} \quad (\text{II.49})$$

On introduit

$$f_s(\eta_s, \theta_s) = \int_{W_{\min}}^{W_{\max}} dW \int_{Q_{\min}}^{Q_{\max}} |F_{W,S}(Q)|^2 \frac{dQ}{Q^2} \quad (\text{II.50})$$

$F_{W,S}(Q)$  est le facteur de forme pour la transition entre les états électroniques de l'atome cible initialement dans l'état S et éjecté avec un transfert d'énergie  $\varepsilon$ .

Les facteurs de forme pour S = K, L1, L2 et L3 ont été calculé par Benka et Kropf [Be.78].

La condition nécessaire pour sa validité est :

$$\begin{aligned} 10^{-3} &\leq \eta_K / \theta_K^2 \leq 10^2 & \text{et } 0.4 &\leq \theta_K < 3 \\ 10^{-4} &\leq \eta_{L_1} / \theta_{L_1}^2 \leq 10^2 & \text{et } 0.2 &\leq \theta_{L_1} < 2.7 \\ 10^{-4} &\leq \eta_{L_2} / \theta_{L_2}^2 \leq 10^2 & \text{et } 0.2 &\leq \theta_{L_2} < 2.7 \end{aligned}$$

✓

$$|F_{W,K}(Q)|^2 \frac{dQ}{Q^2} = 2^7 A(Q, k) \left( 1 + 1/3 \frac{W}{Q} \right) dQ \quad (\text{II.51})$$

$$\begin{aligned} |F_{W,L_1}(Q)|^2 \frac{dQ}{Q^2} &= 2^4 A(Q,k) \frac{dQ}{Q} [Q^5 - Q^4(7/4 + 11/3 W) \\ &+ Q^3(1/2 + 11/3W + 14/3W^2) + Q^2(1/4 - 11/6W^2 - 2W^3) \\ &+ Q(1/15W + 1/30W^2 - 1/3W^3 - 1/3W^4) + 1/4W^4 + 1/3W^5] \end{aligned} \quad (II.52)$$

$$\begin{aligned} |F_{W,L_2}(Q)|^2 \frac{dQ}{Q^2} &= 2^4 A(Q,k) \frac{dQ}{Q} [3/4Q^4 - Q^3W + Q^2(1/4 - 1/6W - 1/6W^2) \\ &+ Q(1/30W + 17/45W^2 + 1/3W^3) + 1/18W^3 + 1/12W^4] \end{aligned} \quad (II.53)$$

$$|F_{W,L_3}(Q)|^2 = 2|F_{W,L_2}(Q)|^2 \quad (II.54)$$

Ou

$$A(Q,k) = \frac{\exp\left[-(2/k)\arctan\frac{2k/n}{Q-W+2/n^2}\right]}{1 - \exp(-2\pi/k)} \times [(Q-W)^2 + (2/n)^2 Q]^{-(2n+1)} \quad (II.55)$$

Et

$$W = k^2 + 1/n^2 \quad (II.56)$$

La conservation de l'énergie permet de borner les valeurs du vecteur d'onde transféré q

$$(\sqrt{E} - \sqrt{E - \varepsilon})^2 \leq \frac{\hbar^2}{2\mu} q^2 \leq (\sqrt{E} + \sqrt{E - \varepsilon})^2 \quad (II.57)$$

Qu'on peut réécrire

$$\begin{aligned} q_{\min}^2 &= \frac{2\mu}{\hbar^2} (\sqrt{E} - \sqrt{E - \varepsilon})^2 \\ q_{\max}^2 &= \frac{2\mu}{\hbar^2} (\sqrt{E} + \sqrt{E - \varepsilon})^2 \end{aligned} \quad (II.58)$$

Les bornes d'intégration  $Q_{\min}$ ,  $Q_{\max}$ ,  $W_{\min}$ ,  $W_{\max}$  sont déterminées pour une couche quelconque S par :

$$\begin{aligned} Q_{\min} &= \left(\frac{\mu}{m}\right)^2 \eta_S \left[1 - \left(1 - \frac{mW}{M\eta_S}\right)^{\frac{1}{2}}\right]^2 \\ Q_{\max} &= \left(\frac{\mu}{m}\right)^2 \eta_S \left[1 + \left(1 - \frac{mW}{M\eta_S}\right)^{\frac{1}{2}}\right]^2 \\ W_{\max} &= \left(\frac{\mu}{m}\right) \eta_S \\ W_{\min} &= \left(\frac{\theta_S}{n^2}\right) \end{aligned} \quad (II.59)$$

On termine cette section par la remarque suivante : les valeurs théoriques de la section efficace d'ionisation de la couche L pour une cible bombardée par des protons, dans l'approximation de Born, divergent fortement avec les valeurs expérimentales, particulièrement pour des particules incidentes de faible énergie. Le modèle ECPSSR a été proposé afin de corriger les écarts constatés avec le modèle PWBA.

## II. 5. La théorie ECPSSR

- ✓ Brandt et Lapicki ([Br.66], [Br.79] et [Br.81]) ont proposé ce modèle en tenant compte des effets non considérés dans le modèle PWBA. L'approche de Brandt et Lapicki prend en compte les quatre effets suivants lors de la diffusion
- ✓ l'augmentation de l'énergie de liaison des électrons-cibles (PSS)
- ✓ la déflexion coulombienne du projectile dans le champ du noyau-cible (C)
- ✓ les effets relativistes (R)
- ✓ la perte d'énergie subie par la particule incidente (E)

### II. 5.1. L'augmentation de l'énergie de liaison de l'électron atomique

Au cours de la collision induisant l'extraction d'un électron, les états de l'atome cible sont perturbés lors du passage des particules incidentes chargées. Dans la situation de basse énergie, les états stationnaires de l'électron cible lié à son atome peuvent être considérés comme ceux d'une molécule diatomique avec une distance internucléaire changeante. Quand  $Z_1 \ll Z_2$ , lorsque les états électroniques s'approchent d'un atome de numéro atomique  $Z_1 + Z_2$ , il est décrit comme approximation de Born [Ba.73b].

Une augmentation de l'énergie de liaison des électrons atomiques a pour conséquence une diminution de la section efficace d'ionisation

$$\sigma_s^{\text{PSS}} = \sigma_s^{\text{PWBA}}(\eta_s, \zeta_s \theta_s) \quad (\text{II.60})$$

où  $\zeta_s$  représente un facteur de correction de l'énergie de liaison de la couche S.

Ce facteur a été calculé numériquement par Basbas et al. [Ba.73a] et Cohen et al. [Co.85].

Comme décrit dans ce travail, nous avons utilisé le facteur présenté par Cohen et al. [Co.85] connu avant :

$$\zeta_s = 1 + \left( \frac{2Z_1}{Z_{2s}\theta_s} \right) (g_s - h_s) \quad (\text{II.61})$$

Pour la couche L, les fonctions  $g_s$  et  $h_s$  sont données par :

$$g_{L1} = \left( \frac{1 + 9\xi_S + 31\xi_S^2 + 49\xi_S^3 + 162\xi_S^4 + 63\xi_S^5 + 18\xi_S^6 + 1.97\xi_S^7}{(1 + \xi_S)^9} \right) \quad (\text{II.62})$$

$$g_{L2,L3} = \left( \frac{1 + 10\xi_S + 45\xi_S^2 + 102\xi_S^3 + 331\xi_S^4 + 6.7\xi_S^5 + 58\xi_S^6 + 7.8\xi_S^7 + 0.888\xi_S^8}{(1 + \xi_S)^{10}} \right) \quad (\text{II.63})$$

$$h_S = \frac{2S}{\theta_S \xi_S^3} I \left( \frac{C_S S}{\xi_S} \right) \quad (\text{II.64})$$

où  $\xi_S = \left( \frac{2V_1}{\theta_S V_{2S}} \right)$  est la vitesse réduite du projectile.

$$V_{2S} = \frac{Z_{2S}}{S} .$$

avec :  $C_{L1} = 1.50$  et  $C_{L2} = C_{L3} = 1.25$ .

la fonction  $I(x_S)$  est donnée par :

$$I(x) = \begin{cases} 2 \frac{e^{-2x}}{x^{1.6}} & 3 \leq x < 11. \\ e^{-2x} \left( 0.031 + 0.21x^{\frac{1}{2}} + 0.005x - 0.069x^{\frac{3}{2}} + 0.324x^2 \right)^{-1} & 0.035 \leq x < 3. \\ \frac{3}{4} \pi \left[ \ln \left( \frac{1}{x^2} \right) - 1 \right] & 0 < x < 0.035. \end{cases} \quad (\text{II.65})$$

où  $x = \frac{C_S S}{\xi_S}$ .

## II. 5.2. Déflexion coulombienne du projectile

Lors de la collision, la répulsion coulombienne entre les noyaux incidents et l'atome cible deviennent non négligeables notamment aux basses énergies. Les sections efficaces pouvant varier de plusieurs ordres si un tel phénomène est omis comme dans le cas de l'approximation de Born. Une manière de tenir compte de cette répulsion entre noyaux projectile et atome cible est de considérer les trajectoires des particules diffusées non linéaire mais des trajectoires hyperboliques.

On introduit ainsi un coefficient  $C(dq_{0s})$  qui représente la correction coulombienne [Ba.73a] et [Br.74] :

$$C_S(dq_{0S}) = vE_{v+1} \left( \frac{2\pi d q_{0S}}{z_S(1+z_S)} \right) \quad (\text{II.66})$$

où  $E_m(y)$  est l'intégrale exponentielle d'ordre  $m$  définie par :

$$E_m(y) = \frac{e^{-y}}{(y+m)} \left[ 1 + \frac{m}{(y+m)^2} + \frac{m(m-2y)}{(y+m)^4} + \frac{m(6y^2-8my+m^2)}{(y+m)^6} + \dots \right] \quad (\text{II.67})$$

$d = \left( \frac{2Z_1 Z_2 e^2}{\mu V_1^2} \right)$ , est la distance minimale d'approche du projectile du noyau cible.

$q_{0S} = \left( \frac{\omega_{2S}}{V_1} \right)$ , est le moment minimal transféré à l'électron durant la collision et  $\mu$  est la masse réduite du système.

où  $z_S$ , argument désigne le rapport entre la perte d'énergie de la particule projectile et son énergie cinétique, et il s'exprime de cette manière [Ba.73]:

$$z_S = \sqrt{1 - \frac{4}{\mu \zeta_S \theta_S} \left( \frac{\zeta_S}{\xi_S} \right)^2} = \sqrt{1 - \frac{4\zeta_S}{\mu \xi_S^2 \theta_S}} \quad (\text{II.68})$$

L'expression de la section efficace devient

$$\sigma_S^{CPWBA} = C_S(d q_{0S}) \sigma_S^{PWBA}(\eta_S, \theta_S) \quad (\text{II.69})$$

### II. 5.3. Effets relativistes

Dans le cas de la couche M, surtout dans les atomes lourds, les électrons des orbites internes ont pour masse relativiste [Ca.77], [Br.79], [La81]:

$$m_S^R(\xi_S) = \left[ 1 + \beta Y_S^2 \right]^{\frac{1}{2}} + Y_S \quad (\text{II.70})$$

Où on montre que le paramètre  $\beta$  varie lentement, ( $\beta = 1.1$ ) [Br.79].

avec :

$$Y_{L_1} = \frac{0.4 \left( \frac{Z_{2S}}{C} \right)^2}{S \xi_{L_1}} \quad (\text{II.71})$$

$$Y_{L_2, L_3} = \frac{0.15 \left( \frac{Z_{2S}}{C} \right)^2}{\xi_{L_2, L_3}} \quad (\text{II.72})$$

La section efficace d'ionisation  $\sigma_S^{PWBAR}$  s'exprime ainsi:



$$\sigma_S^{PWBAR} = \sigma_S^{PWBA} (m_S^R(\xi_S) \eta_S, \theta_S) \quad (\text{II.73})$$

### II. 5.4. Perte d'énergie de l'ion incident

La dernière correction apportée à l'approximation de Born rend compte de la perte d'énergie de la particule incidente. En étudiant de près l'effet de la déflexion coulombienne ([La.80] et [Br.74]) traité précédemment, nous pouvons dire que :

$$\sigma_S^{EPWBA} = f_S(z_S) \sigma_S^{PWBA} \quad (\text{II.74})$$

Ou

$$f_S = f_S(z_S) = 2^{-\nu} (\nu - 1)^{-1} \left[ (\nu z_S - 1)(1 + z_S)^\nu + (\nu z_S + 1)(1 - z_S)^\nu \right] \quad (\text{II.75})$$

On arrive enfin à l'expression de la section efficace d'ionisation dans la théorie ECPSSR:

$$\sigma_S^{ECPSSR} = \nu E_{\nu+1} \left( \frac{2\pi d q_{0S} \xi_S}{z_S (1 + z_S)} \right) \sigma_S^{PWBA} (m_K^R(\xi_S) \eta_S, \zeta_K \theta_K) \quad (\text{II.76})$$

## II.6. La sections efficaces de production de rayon X

La section efficace de production d'un rayon X donné est définie par le produit de la section efficace d'ionisation de la couche considérée  $\sigma_I$  par le rendement de fluorescence  $\omega$  [Du.12] :

$$\sigma_X = \sigma_I \omega \quad (\text{II-77})$$

Les sections efficaces de production des raies  $L$ , et les sections efficaces d'ionisation sont liées par une relation simple faisant intervenir les rendements de fluorescence des sous couches  $L_1, L_2, L_3$ , les probabilités de Coster-Kronig et les taux d'émission de rayons X pour les différentes transitions [Ka.06].

La section efficace de production des raies principales  $L_\alpha, L_\beta, L_\gamma$  sera calculée à partir relations ci-dessous :

$$\begin{aligned}\sigma_{L\alpha} &= [(f_{13} + f_{12}f_{23})\sigma_{L1} + f_{23}\sigma_{L2} + \sigma_{L3}]\omega_3 F_{3\alpha} \\ \sigma_{L\beta} &= [\omega_1 F_{1\beta} + f_{12}\omega_2 F_{2\beta}(f_{13} + f_{12}f_{23})\omega_3 F_{3\alpha}]\sigma_{L1} + (\omega_2 F_{2\beta} + f_{23}\omega_3 F_{3\beta})\sigma_{L2} + \omega_3 F_{3\alpha}\sigma_{L3} \\ \sigma_{L\gamma} &= (\omega_1 F_{1\gamma} + f_{12}\omega_2 F_{2\gamma})\sigma_{L1} + \omega_2 F_{2\gamma}\sigma_{L2}\end{aligned}\quad (\text{II-78})$$

Avec :  $f_{ij}$  ( $i = 1,2$  et  $j = 2,3$ ) représente les probabilités de transition de Coster-Kronig.

$F_{iy}$  ( $y = \alpha, \beta, \gamma$ ) indique le taux d'émission de rayons X:

$$F_{iy} = \frac{\Gamma_{iy}}{\Gamma_i} \quad (\text{II.79})$$

Où  $\Gamma_i$  dénote la probabilité d'une transition électronique vers le niveau  $L_i$  et  $\Gamma_{iy}$  est la probabilité de l'émission d'un rayon  $L_y$  ( $y = \alpha, \beta, \gamma$ ) : pour  $F_{3\alpha} = \frac{\Gamma_{3\alpha}}{\Gamma_3}$ ,  $\Gamma_3$  est la probabilité d'une transition électronique vers le niveau  $L_3$  entraînant l'émission d'un rayon X et  $\Gamma_{3\alpha}$  est la probabilité de l'émission d'un rayon  $X_{L\alpha}$ , c'est-à-dire des transitions  $L_3 \rightarrow M_5$  et  $L_3 \rightarrow M_4$ , conduisant à l'émission des raies  $L_{\alpha 1}$  et  $L_{\alpha 2}$  respectivement [Ka.06].

On peut ainsi dire que :

$$\begin{aligned}\Gamma_{1\beta} &= \Gamma_1(M_2, M_3 \rightarrow L_1) + \Gamma_1(M_4, M_5 \rightarrow L_1) \\ \Gamma_{1\gamma} &= \Gamma_1(N_2, N_3 \rightarrow L_1) + \Gamma_1(O_2, O_3 \rightarrow L_1) \\ \Gamma_{2\beta} &= \Gamma_2(M_4 \rightarrow L_2) + \Gamma_2(M_3 \rightarrow L_2) \\ \Gamma_{2\gamma} &= \Gamma_2(N_1 \rightarrow L_2) + \Gamma_2(N_4 \rightarrow L_2) + \Gamma_2(O_1, O_4 \rightarrow L_2) \\ \Gamma_{3\alpha} &= \Gamma_3(M_4 \rightarrow L_3) + \Gamma_3(M_5 \rightarrow L_3) \\ \Gamma_{3\beta} &= \Gamma_3(N_1 \rightarrow L_3) + \Gamma_3(N_4 \rightarrow L_3) + \Gamma_3(N_5 \rightarrow L_3) + \Gamma_3(O_1 \rightarrow L_3) + \Gamma_3(O_4, O_5 \rightarrow L_3)\end{aligned}\quad (\text{II-80})$$

Avec :

$\Gamma_{1\beta}$  et  $\Gamma_{1\gamma}$  désignent les probabilités de l'émission X pour  $(M_2, M_3, M_4, M_5)$ ,  $(N_2, N_3)$  et  $(O_2, O_3)$  vers  $L_1$ .

$\Gamma_{2\beta}$  et  $\Gamma_{2\gamma}$  sont les probabilités de l'émission X pour  $(M_3, M_4)$ ,  $(N_1, N_4)$  et  $(O_1, O_4)$  vers  $L_2$ .

$\Gamma_{3\alpha}$  et  $\Gamma_{3\beta}$  sont les probabilités de l'émission X pour  $(M_4, M_5)$ ,  $(N_1, N_4, N_5)$  et  $(O_1, O_4, O_5)$  vers  $L_3$ .

## **II.7. Conclusion**

Dans ce chapitre nous avons passé en revue les différents modèles décrivant l'interaction rayonnement – matière (hypothèses, approximation, limites de validité...) pour la détermination des sections efficaces. Les améliorations successives apportées à ces modèles jusqu'au célèbre modèle de la théorie ECPSSR ont été discutées.

Ce dernier modèle est utilisé pour la détermination de la section efficace d'ionisation ensuite pour la section de production de rayons X.

**Références Bibliographiques**

- [Ba.09] Bahri, Deghfel., 2009. Thèse de Doctorat, Université Ferhat Abbas Sétif, N° 14.
- [Ba.59] Bang, J., Hasteen, J.M., Dan, K., Vidensk, Selsk, 1959. Mat. Phys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 31 ,N°13.
- [Ba.73a] Basbas, G., Brandt, W., Laubert ,R., 1973. Phys. Rev. A 7, 983.
- [Ba.73b] Basbas ,G., Brandt ,W., Ritchie, R.H., 1973. Phys. Rev. A7,1971.
- [Be.78] Benka, O., Kropf ,A., 1978 ,Atom Data Nucl. Data Tables 22 , 219.
- [Br.66] Brandt,W., Laubert ,R., Sellin, I., 1966, Phys. Rev. 151, 56.
- [Br.74] Brandt, W., Lapicki ,G., 1974. Phys.Rev. A10, 474.
- [Br.79] Brandt, W., Lapicki, G., 1979. Phys. Rev. A20, 465.
- [Br.81] Brandt,W., Lapicki ,G., 1981. Phys. Rev. A 23, 1717-1729.
- [Ca.77] Caruso, E., Cesati, A., 1977, Phys. Rev. A15, 432.
- [Ha.70] Hansteen ,J. M., Mosebek ,O.P., 1790. Z. Phys. 234,281.
- [Ha.75] Hansteen, J. M., Mosebek, O.P., 1975. Adv. Atom. and Mol. Phys.11,299.
- [Ga.70a] Garcia, J. D., 1970. Phys. Rev. A1, 280.
- [Ga.70b] Garcia, J. D., 1970, Phys. Rev. A1, 1402.
- [St.73] Stanislas, W., 1973. Thèse doctorat de 3eme cycle Grenoble.
- [Sa.94] Sakurai, J. J., 1994. Modern Quantum Mechanics, Addison-Wesley Publishing Company.
- [He.91] Held ,B., 1991. Physique atomique, Edition MASSON.
- [La.79] Lapicki, G., Losonsky ,W., 1977. Phys. Rev. A15 , 896.
- [La.79] Lapicki, G., Losonsky,W., 1979. Phys. Rev. A20, 481.
- [La.80] Lapicki, G., Laubert, R., Brandt ,W., 1980. Phys. Rev. A22, 1889.
- [La.81] Lapicki, G., Zander, A.R., 1981. Phys. Rev. A23, 2072.
- [La.87] Lapicki, G., Phys, J., 1987. B 20.L 633.
- [Mu.58] Merzbacher ,E., Lewis ,H.W., 1958. Encyclopedia of physics Vol.34 Springer Verlag Berlin. 166.
- [Mu.82] Mukoyama ,T., Sarkadi, L., 1982. Phys. Rev. A25 ,1411.
- [Du.12] Thomas .Dupuis, 2012. Thèse doctorat de 3eme cycle.
- [Ka.06] Kahoul, A., 2006. Thèse doctorat setif.

## **Chapitre III**

### ***Calcul empirique des sections efficaces de production***

#### ***Des rayons X ( $L\alpha$ , $L\beta$ et $L\gamma$ )***

### III.1. Introduction :

L'étude des collisions particules chargées -atomes cible repose sur la détermination de certains paramètres fondamentaux liés aux phénomènes de collisions. Parmi ces paramètres essentiels, on peut citer le calcul des sections efficaces de production de rayons X, la connaissance des rendements de fluorescence, la détermination des probabilités de transfert de lacunes et des rapports d'intensité des différents éléments cibles.

Nous tenons à souligner l'importance particulière de l'émission de rayons X induite par les particules (PIXE). Lors de l'étude et de l'analyse d'échantillons par PIXE, l'un des facteurs essentiels est la section efficace de production de rayons X ou la section efficace d'ionisation.

Pour rendre compte théoriquement du processus d'ionisation des couches internes de la cible bombardée par des projectiles formés de particules chargées, on fait appel dans la littérature à plusieurs modèles dont le plus élaboré est le modèle ECPSSR [Br.79]. Sur le plan expérimental, les sections efficaces de production de rayons X et les sections efficaces d'ionisation disponibles présentent une dispersion importante aux basses énergies des protons [Deg.16]; [Der.16]. Les données expérimentales montrent des différences appréciables en comparaison avec les prédictions théoriques. Aucun des modèles théoriques utilisés ne parvient à rendre compte de manière satisfaisante des mesures expérimentales obtenues pour toutes les énergies et tous les numéros atomiques [Re.96]; [Ka.05]; [Ne.06]. Comme conséquence, plusieurs groupes ont effectué des études basées sur les calculs empiriques et semi-empiriques de l'ionisation de la couche L et les sections efficaces de production de rayons X à partir, non seulement des bases de données expérimentales mais également de modèles théoriques existants [Miy.88]; [So.93]; [Or.94a]; [Or.94b]; [Re.96]; [St.02]; [La.09]; [Šm.14]; [La.18]; [La.20].

Dans le but d'apporter des éléments de réponses à la divergence des résultats et pour mieux cerner la problématique, notre groupe s'est intéressé à l'ionisation des couches L des éléments. Nous avons proposé une formule semi-empirique et empirique pour calculer les sections efficaces de production de rayons X (pour les trois raies  $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$ ) pour les éléments avec  $50 \leq Z \leq 92$  pour les protons d'énergie comprise entre 0,5 et 3,0 MeV.

Benjedi et al. (2015) ont utilisé la compilation expérimentale existante (jusqu'en 2014) pour une large gamme d'éléments ( $40 \leq Z \leq 92$ ) bombardés par des protons (jusqu'à 10,0

MeV) pour déduire les sections efficaces totales empiriques d'ionisation de la couche L et de production de rayons X. Des formules semi-empiriques décrivant la section efficace d'ionisation et de production de rayons X pour les éléments ( $18 \leq Z \leq 92$ ) ont été déterminées dans le même groupe [Der.16].

En 2016, notre groupe [Deg.16] a proposé une relation incluant également une dépendance avec le numéro atomique  $Z$  de la cible en plus de la dépendance de l'énergie, fournissant les sections efficaces semi-empiriques collectives et individuelles de production de rayons X  $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$ . Les sections efficaces semi-empiriques  $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$  [Deg.16] ont été déduites en ajustant les données expérimentales disponibles normalisées à leurs valeurs théoriques correspondantes. D'autre part, les sections efficaces de production de rayons X empiriques par l'ajustement direct des données expérimentales ont été déterminées.

Dans ce chapitre, les sections efficaces empiriques de production de rayons X des raies  $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$  par impact de protons pour les éléments de numéros atomiques allant de 50 à 92 seront évaluées en adoptant la méthodologie suivante :

Dans une première étape, une formule d'interpolation collective est développée pour calculer les sections efficaces.

Ensuite, une seconde formule est proposée en introduisant la dépendance au numéro atomique de la cible, notée « Z-dépendance ».

Dans une troisième étape, un traitement individuel des données disponibles relatives à chaque élément est effectué à fin de déterminer les sections efficaces empiriques de ces trois raies.

Nous concluons notre étude en effectuant une comparaison et une discussion entre les trois formules empiriques rapportées dans ce travail et d'autres travaux antérieurs ou bien ceux de la littérature.

### **III.2. Base des données des sections efficaces d'ionisation des couches L:**

Dans le but de déterminer les paramètres nécessaires au calcul empirique, nous avons utilisé principalement des compilations de Miranda et Lapicki [Mi.14]. Nous avons également fait appel à des données extraites à partir d'autres travaux [Mi.13]; [Zh.13]; [Mo.14]. Pour

chacune des raies  $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$ , le nombre atomique  $Z$  est respectivement compris entre  $39 \leq Z \leq 92$ ,  $40 \leq Z \leq 92$  et pour la dernière raie  $47 \leq Z \leq 92$ .

La base de données expérimentale totale des sections efficaces obtenue comporte 12821 valeurs pour la section efficace de production de rayons X (4584 pour  $L\alpha$ , 4223 pour  $L\beta$  et 4043 pour  $L\gamma$ ) de la couche L. Pour obtenir des sections efficaces de production empiriques homogènes et fiables des raies  $L$  et améliorer la qualité d'interpolation, nous introduisons un critère de dispersion sur les données expérimentales existantes. Ce critère consiste à adopter les données expérimentales pour lesquelles le rapport  $S = \sigma_{\text{exp}} / \sigma_{\text{eCPSSR}}$  variant dans l'intervalle [0.5-1.5]. Ce critère est utilisé par plusieurs auteurs pour rejeter les données expérimentales qui s'inscrivent loin des calculs ECPSSR [Ka.05] , [Ro.93]; [Pu.82]; [Ab.12].

Le tableau III.1 indique le nombre de données expérimentales disponibles (et rejetées) des sections efficaces de production des raies L induites par des protons d'énergie allant de 0.02 Mev à 10.0 Mev. En conséquence, un certain nombre de données est supprimé, à savoir 322, 595 et 504 pour les raies  $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$ . Ces données rejetées représentent respectivement 7.02%, 14.09%, 12.46%, des données initiales. Ce rejet a une influence négligeable sur le calcul final. La distribution de ces données en fonction du numéro atomique de la cible est présentée sur la Figure. III.4 ainsi que les données rejetées.



**Tableau III.1** Nombre total de données expérimentales des sections efficaces de production  $N^X$  des trois raies et les valeurs rejetées  $N_R^X$  [Deg.16].

Z	Les sections efficaces de production de rayonX					
	$L_\alpha$		$L_\beta$		$L_\gamma$	
	$N^X$	$N_R^X$	$N^X$	$N_R^X$	$N^X$	$N_R^X$
Z=39, Y	40	02	40	03	-	-
Z=40, Zr	52	00	52	01	11	00
Z=41, Nb	21	29	50	34	27	00
Z=42, Mo	50	02	50	20	41	00
Z=43, Tc	-	-	-	-	-	-
Z=44, Ru	-	-	-	-	-	-
Z=45, Rh	47	08	47	18	40	00
Z=46, Pd	58	19	51	43	18	00
Z=47, Ag	121	06	117	68	59	00
Z=48, Cd	49	04	45	27	45	06
Z=49, In	100	02	100	60	75	25
Z=50, Sn	131	25	128	05	119	09
Z=51, Sb	72	02	66	02	62	04
Z=52, Te	82	06	82	20	74	08
Z=53, I	49	00	49	00	49	00
Z=54, Xe	-	-	-	-	-	-
Z=55, Cs	48	00	43	00	40	03
Z=56, Ba	79	00	79	00	79	00
Z=57, La	138	02	138	04	138	02
Z=58, Ce	114	00	105	00	105	03
Z=59, Pr	116	20	116	07	116	10
Z=60, Nd	179	21	179	24	162	16
Z=61, Pm	-	-	-	-	-	-
Z=62, Sm	129	06	100	06	100	10
Z=63, Eu	96	09	79	08	90	08
Z=64, Gd	137	11	125	09	137	15
Z=65, Tb	121	14	121	15	121	106
Z=66, Dy	172	09	169	13	160	10
Z=67, Ho	128	08	128	19	120	17
Z=68, Er	157	24	154	31	145	28
Z=69, Tm	67	00	64	07	64	01
Z=70, Yb	185	12	138	18	202	43
Z=71, Lu	80	16	80	17	71	13
Z=72, Hf	70	07	67	10	67	12
Z=73, Ta	154	01	147	04	154	08
Z=74, W	195	14	154	16	154	16
Z=75, Re	18	00	18	01	18	00
Z=76, Os	25	00	25	00	25	00
Z=77, Ir	56	00	56	00	56	01
Z=78, Pt	93	00	93	05	93	06
Z=79, Au	349	09	322	11	322	13
Z=80, Hg	57	00	56	01	56	04
Z=81, Tl	33	00	33	01	33	03
Z=82, Pb	288	18	229	29	267	34
Z=83, Bi	190	03	179	27	179	38
Z=84, Po	-	-	-	-	-	-
Z=85, At	-	-	-	-	-	-
Z=86, Rn	-	-	-	-	-	-
Z=87, Fr	-	-	-	-	-	-
Z=88, Ra	-	-	-	-	-	-
Z=89, Ac	-	-	-	-	-	-
Z=90, Th	97	02	58	01	58	08
Z=91, Pa	-	-	-	-	-	-
Z=92, U	112	11	91	10	91	24

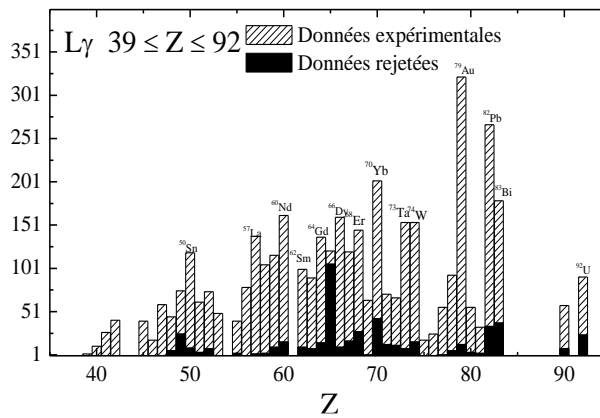
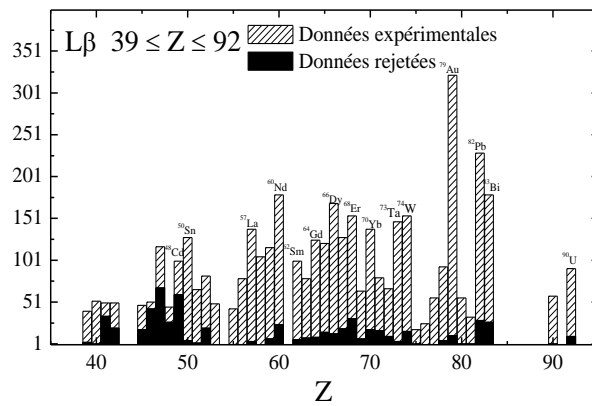
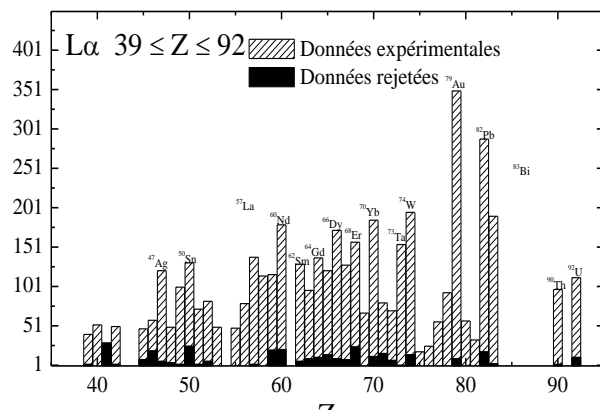


Figure III.1: Distribution des valeurs expérimentales de la section efficace de production  $L_\alpha$ ,  $L_\beta$  et  $L_\gamma$  en fonction du numéro atomique Z [Deg.16].

### III.3. Méthodologie et résultats :

#### III.3.1. Méthode de calcul :

Motivé par les travaux antérieurs qui ont été réalisés par notre groupe de recherche sur les sections efficaces de production [Ka.06]; [Ne.06]; [Ka.08a]; [Ka.08b]; [Ka.11]; [Ab.12]; [Deg.09]; [Deg.10]; [Deg.13a]; [Deg.13b]; [Deg.14a]; [Deg.14b]; [Deg.15]; [Deg.16]; [Be.15], [Be.17]; [Der.16] obtenus sur la base du modèle d'approximation de l'onde plane de Born (PWBA) [Kh.66], il est possible d'ajuster les sections efficaces calculées avec n'importe quel élément atomique à n'importe quelle énergie de la particule en utilisant une loi d'échelle pour une couche L.

Nous proposons alors, les différentes procédures empiriques pour déduire les sections efficaces de production de rayons X des raies  $L_\alpha$ ,  $L_\beta$  et  $L_\gamma$  par impact de proton. En s'appuyant sur la base de données utilisée dans les travaux antérieurs [Deg.16], nous présentons de nouveaux paramètres pour le calcul empirique relatif aux raies L, des sections efficaces de production de rayons X pour les cibles de numéro atomique variant de 50 à 92.

Dans le but d'améliorer la qualité de l'interpolation, nous avons comme mentionné précédemment, introduit un critère de dispersion relatif aux données expérimentales et théorique. Les calculs réalisés sont obtenus à partir d'un programme numérique développé par le groupe du Pr. Kahoul fondé sur la base du modèle théorique ECPSSR [Br.79] ; [Br.81] (voir aussi [De.16]).

#### III.3.2. Procédé Collectif

Dans cette partie cle, nous calculons les sections efficaces empiriques de production de rayons X par ajustement direct des données expérimentales [Deg.16] pour les trois raies Ly ( $y = \alpha, \beta, \gamma$ ). Une des manières de présenter toutes les données expérimentales est le tracé de  $\ln(\sigma_{\text{exp}}^x U_L^2 / \bar{\omega}_L)$  en fonction de  $\ln(E/\lambda U_L)$  qui conduit à une courbe "universelle", où  $\sigma_{\text{exp}}$  est la section efficace expérimentale de production de rayons X, avec  $(E/\lambda U_L)$  est l'énergie normalisée du proton, E étant l'énergie du proton en keV,  $\lambda$  est le rapport de la masse du proton à la masse de l'électron,  $U_L$  est l'énergie de liaison moyenne de la couche L définie par  $U_L = \frac{1}{4}(U_{L1} + U_{L2} + 2U_{L3})$  et  $U_{Li}$  représente l'énergie de liaison des électrons de la sous-couche Li ( $i = 1,2,3$ ) en keV,  $\bar{\omega}$  est le rendement de fluorescence moyen de la couche L

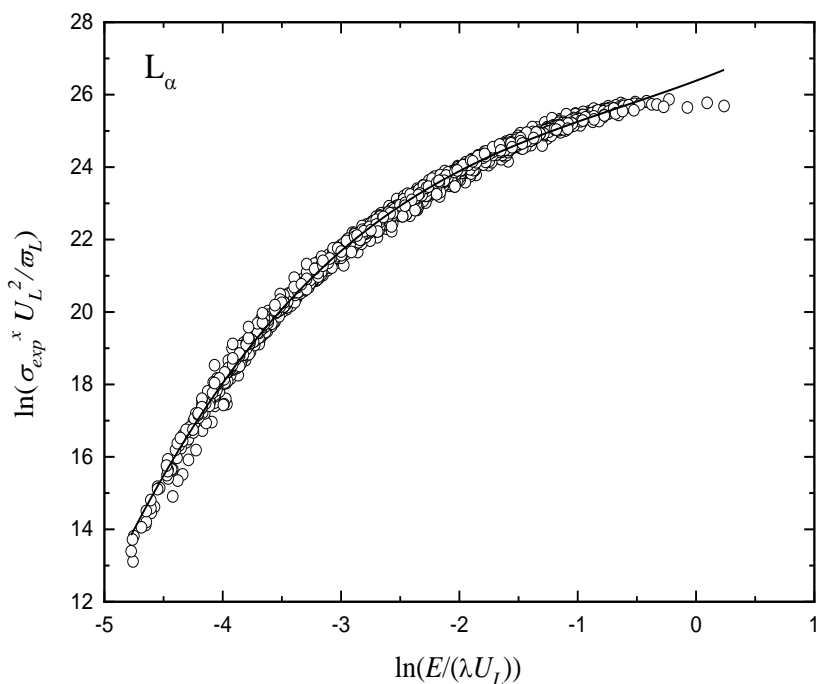
[Hu.94]. Dans les Fig. III.(2-4) nous avons montré l'évolution de tous les points  $(\ln(E/\lambda U_L), \ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \bar{\omega}_L))$  par impact de proton correspondant aux éléments  $50 \leq Z \leq 92$  pour les raies  $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$  respectivement. Le caractère universel des sections efficaces de production pour les protons nous permet de dériver des sections efficaces empiriques plus précises. Ensuite, l'ensemble des données expérimentales réduites  $(\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \bar{\omega}_L))$  est ajusté par une fonction de décroissance exponentielle du premier ordre donnée par :

$$\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \bar{\omega}_L) = r_0 + r_1 e^{-r \ln(E/\lambda U_L)} \quad (\text{III.1})$$

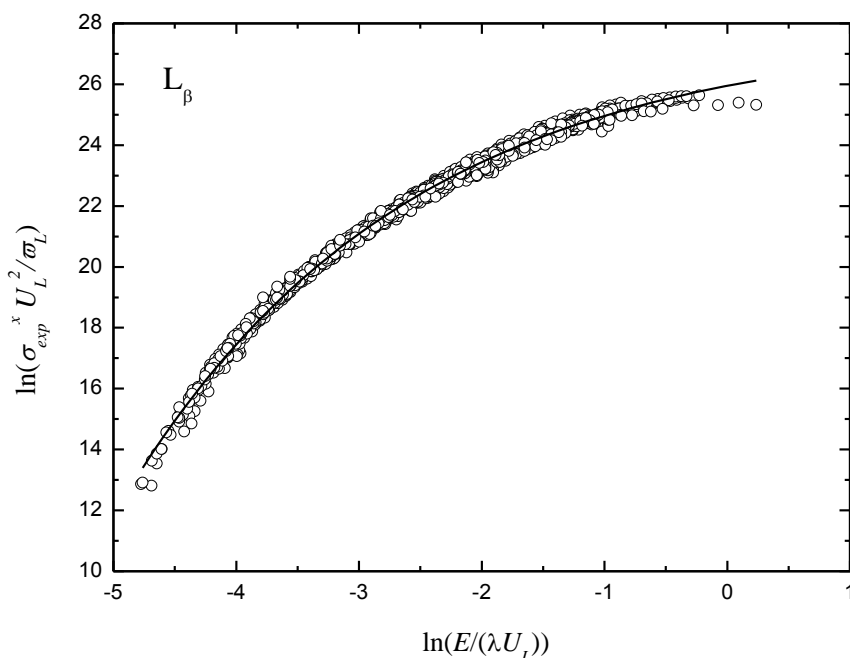
Les données de chaque raie sont ajustées avec cette fonction analytique pour obtenir de nouveaux paramètres d'interpolation (voir tableau III.2). Les résultats d'ajustement sont présentés dans les Fig. III. (2-4) avec des lignes pleines.

**Tableau III.2 .** Coefficients pour déduire les sections efficaces de production empiriques  $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$  pour les éléments avec  $50 \leq Z \leq 92$  par impact de protons en utilisant la formule collective (Eq. III.1).

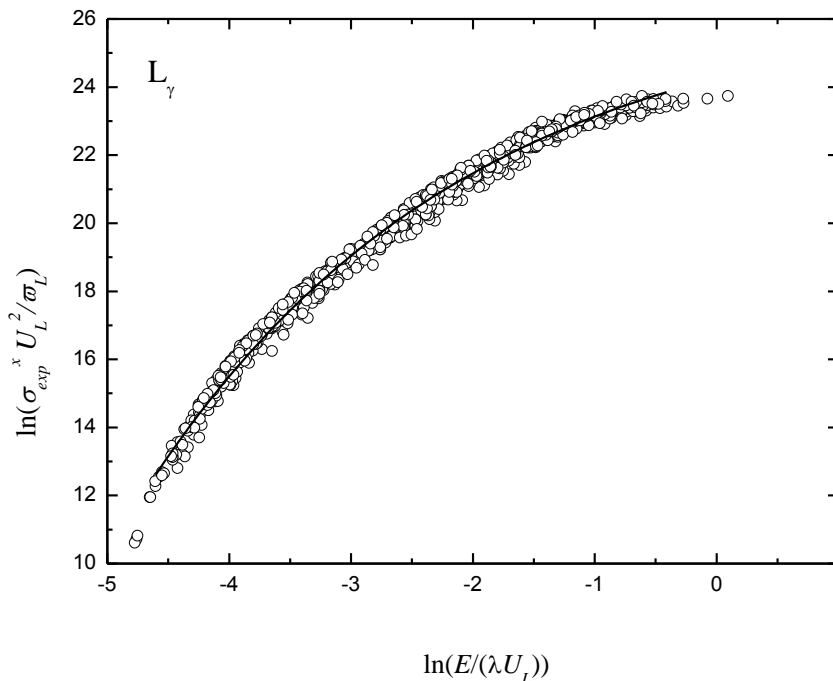
Line	$r$	$r_0$	$r_1$
$L\alpha$	0.49143	27.39298	-1.30869
$L\beta$	0.43538	27.75294	-1.8056
$L\gamma$	0.37904	26.73573	-2.46773



**Figure III.2.** Évolution des sections efficaces collectives de production de rayons X de la raie  $L_\alpha$   $\ln(\sigma_{\text{exp}}^x U_L^2 / \omega_L)$  en fonction de l'énergie normalisée des protons  $\ln(E/\lambda U_L)$ . Les ajustements collectifs sont également représentés par des lignes pleines



**Figure III.3 :** Évolution des sections efficaces collectives de production de rayons X des raies  $L_\alpha$ ,  $L_\beta$ ,  $L_\gamma$  en fonction de l'énergie normalisée des protons . Les ajustements collectifs sont également représentés par des lignes pleines.



**Figure III.4.** Évolution des sections efficaces collectives de production de rayons X de la raie  $L\gamma$   $\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \bar{\omega}_L)$  en fonction de l'énergie normalisée des protons  $\ln(E/\lambda U_L)$ . Les ajustements collectifs sont également représentés par des lignes pleines.

### III.3.3. Formule tridimensionnelle (Z-Dépendance)

Dans les articles [Deg.13]; [Deg.15]; [Deg.16] nous avons déduit une nouvelle section efficace semi-empirique en introduisant la dépendance au numéro atomique de la cible, notée « Z-dépendance ». Par analogie au cas semi-empirique, nous généralisons la formule (III.1) pour les raies L ( $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$ ) au cas empirique.

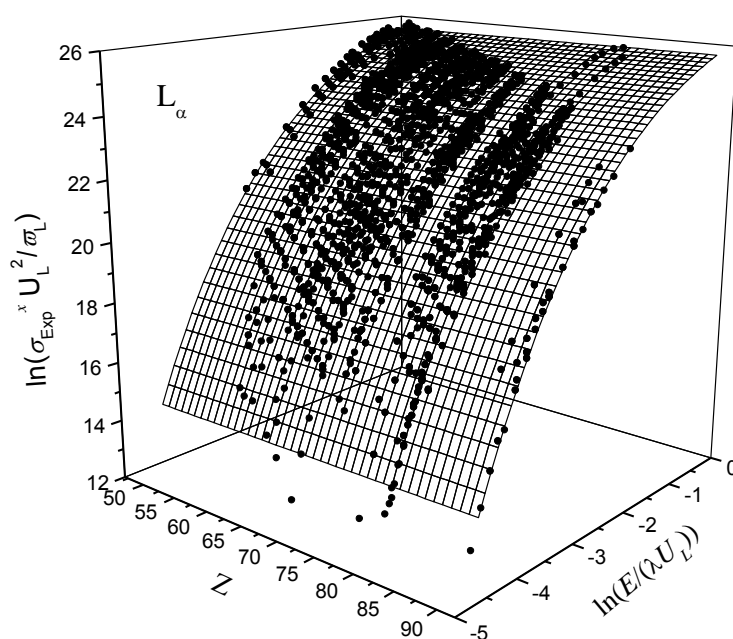
L'évolution des données expérimentales réduites  $\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \bar{\omega}_L)$  (avec le même nombre de données expérimentales utilisées dans la formule (III.1)) est présenté sur les figures III.5 à III.7 en fonction de l'énergie normalisée des protons ( $\ln(E/\lambda U_L)$ ) et du numéro atomique de la cible ( $Z$ ) pour les trois raies  $L\alpha$ ,  $L\beta$ ,  $L\gamma$ . Nous suggérons, dans ce travail, la dépendance linéaire par rapport au numéro atomique de la distribution des sections efficaces de production de rayons X expérimentales (voir Figs. III.(5-7)). Puis la fonction précédente (formule (III.1)) devient :

$$\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \bar{\omega}_L) = (r_2 + r_3 Z) \left[ r_0 + r_1 e^{-r \ln(E/\lambda U_L)} \right] \tag{III.2}$$

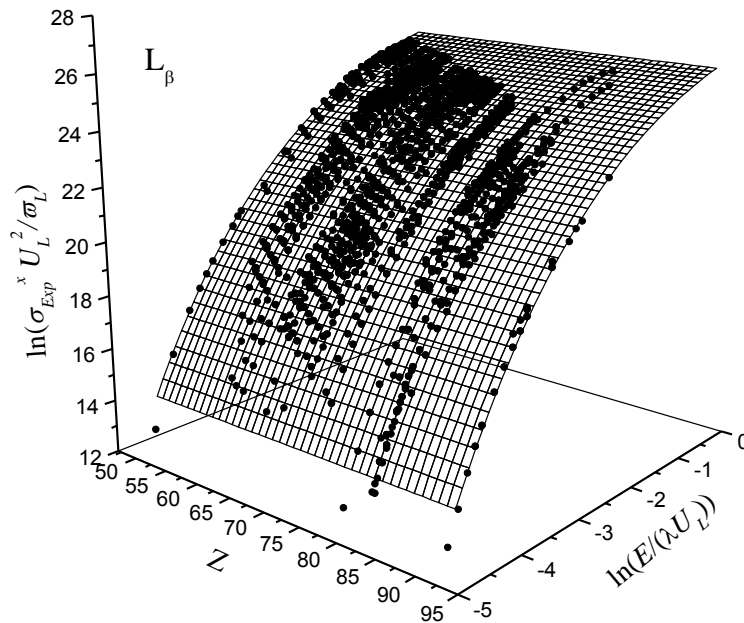
Où  $Z$  est le numéro atomique de la cible. Les coefficients d'ajustement ( $r$ ,  $r_0$ ,  $r_1$ ,  $r_2$  et  $r_3$ ) pour la procédure de la  $Z$ -dépendance sont également présentés dans le tableau III.3. Les ajustements de dépendance  $Z$  ( $\ln(\sigma_{\text{exp}}^x U_L^2 / \omega_L)$ ,  $\ln(E/\lambda U_L)$ ,  $Z$ ) sont représentés par une surface dans les Fig. III.(5-7) pour les trois raies  $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$ .

**Tableau III.3.** Coefficients pour déduire les sections efficaces de production empiriques  $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$  pour les éléments  $50 \leq Z \leq 92$  par impact de protons en utilisant la formule de la  $Z$ -dépendance (Eq. III.2).

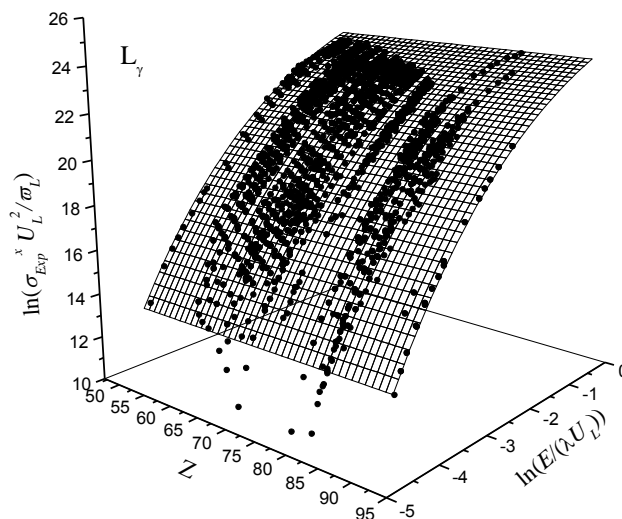
Line	$r$	$r_0$	$r_1$	$r_2$	$r_3$
$L\alpha$	0.486802	5.20871	-0.254844	5.23576	5.15596E-4
$L\beta$	0.436747	5.26346	-0.339991	5.28019	1.76907E-4
$L\gamma$	0.374536	5.14756	-0.486612	5.16944	6.55873E-4



**Figure III.5.** Évolution des sections efficaces collectives de production de rayons X de la raie  $L\alpha$   $\ln(\sigma_{\text{exp}}^x U_L^2 / \omega_L)$  en fonction de l'énergie normalisée des protons  $\ln(E/\lambda U_L)$  et du numéro atomique de la cible  $Z$ . Les ajustements de dépendance  $Z$  sont également représentés par la surface.



**Figure III.6.** Évolution des sections efficaces collectives de production de rayons X de la raie  $L\beta$   $\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \omega_L)$  en fonction de l'énergie normalisée des protons  $\ln(E/\lambda U_L)$  et du numéro atomique de la cible  $Z$ . Les ajustements de dépendance  $Z$  sont également représentés par la surface.



**Figure III.7.** Évolution des sections efficaces collectives de production de rayons X de la raie  $L\gamma$   $\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \omega_L)$  en fonction de l'énergie normalisée des protons  $\ln(E/\lambda U_L)$  et du numéro atomique de la cible ( $Z$ ). Les ajustements de dépendance  $Z$  sont également représentés par la surface.



### III.3.4. Procédé Individuel

Compte tenu du lien de la collision avec le numéro atomique de la cible, nous proposons que les données soient traitées séparément pour étudier la différence entre l'ajustement global des éléments  $50 \leq Z \leq 92$  (Eqs. (III.1) et (III.2)) et ceux obtenus lorsque chaque élément est traité séparément. Comme précédemment, le critère de rejet des données expérimentales, dont le rapport  $S = \sigma_{\text{exp}} / \sigma_{\text{ECPSSR}}$  varie dans une fourchette de 0,5 à 1,5, est toujours en vigueur pour travailler dans les mêmes conditions. Nos calculs sont faits pour tous les éléments pour lesquels des données expérimentales pour  $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$  existent. Notons qu'il n'y a pas de données expérimentales notamment dans la région  $84 \leq Z \leq 89$  pour les trois raies  $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$ . Cette absence de données expérimentales est dûe au fait qu'elles sont difficiles à manipuler et peu disponibles [Mi.13]. Nos résultats sont présentés pour quelques éléments sélectionnés à savoir  $^{50}\text{Sn}$ ,  $^{56}\text{Ba}$ ,  $^{62}\text{Sm}$ ,  $^{68}\text{Er}$ ,  $^{71}\text{Lu}$ ,  $^{74}\text{W}$ ,  $^{79}\text{Au}$ ,  $^{82}\text{Pb}$  et  $^{92}\text{U}$ , à titre d'illustration. Pour ces 9 éléments représentatifs, nous avons montré dans les Figs. III.(8–10) l'évolution des données expérimentales réduites  $\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \bar{\omega}_L)$  en fonction de l'énergie normalisée des protons  $\ln(E/\lambda U_L)$  pour les trois raies  $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$  respectivement. Nous rapportons les sections efficaces empiriques basées sur la formule (III.1) en ajustant les mêmes données expérimentales pour toutes les cibles  $50 \leq Z \leq 92$  séparément, selon l'expression suivante :

$$\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \bar{\omega}_L) = r_{0z} + r_{1z} e^{-r_z \ln(E/\lambda U_L)} \quad (\text{III.3})$$

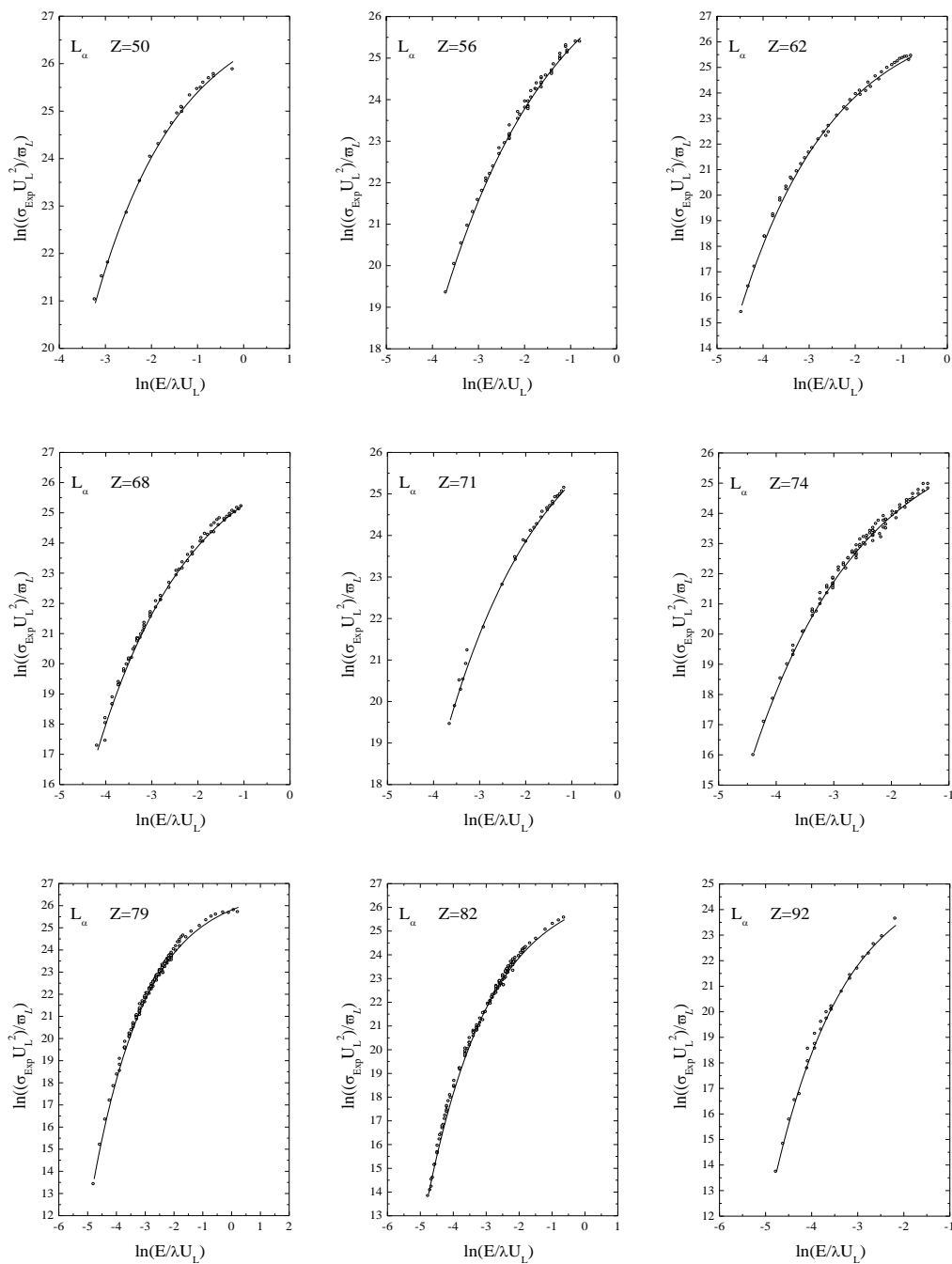
Les résultats d'ajustement sont également représentés sur les Fig. III.8, III.9 et III.10. L'ensemble des coefficients  $r_z$ ,  $r_{0z}$  et  $r_{1z}$  pour tous les éléments sont présentés dans le tableau III.4 pour les trois raies  $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$ .

L'erreur quadratique moyenne ( $\epsilon_{\text{RMS}}$ ) est une grandeur fréquemment utilisée pour vérifier la qualité et la précision de l'ajustement et mesurer la différence entre les valeurs réellement observées (valeurs expérimentales) et celles prédites par un modèle (semi-empirique). Pour chaque élément et chaque raie, l'écart total de  $N$  données expérimentales ( $\sigma_{\text{exp}}$ ) par rapport à leurs valeurs ajustées correspondantes ( $\sigma_{\text{emp1,2,3}}$ ) est exprimé en termes d'erreur quadratique moyenne ( $\epsilon_{\text{RMS}}$ ) à l'aide de la formule suivante :

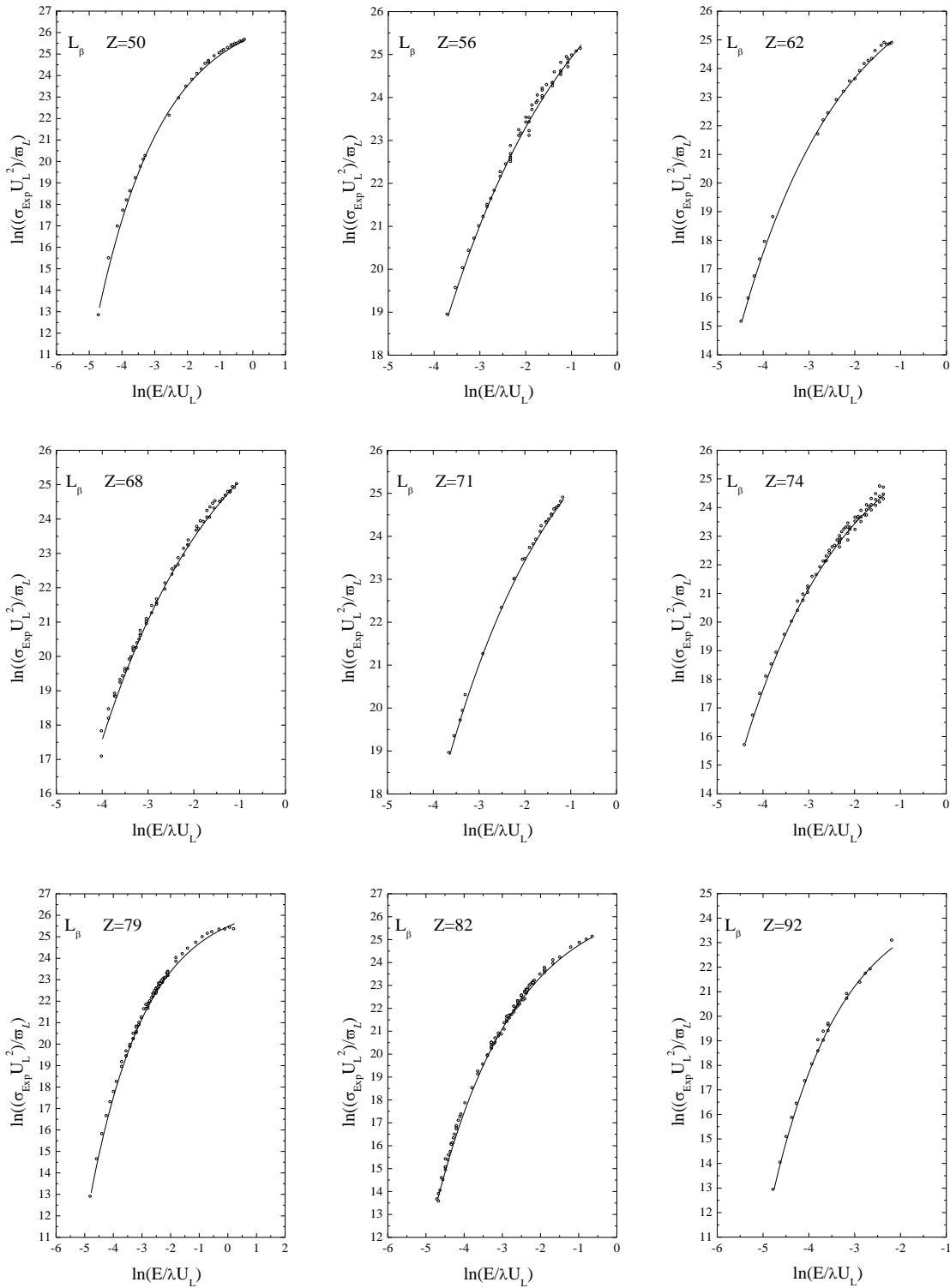
$$\epsilon_{\text{RMS}} = \left[ \sum_{j=1}^N \frac{1}{N} \left( \frac{\sigma_j(\text{exp}) - \sigma_j(\text{emp})}{\sigma_j(\text{emp})} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (\text{III.4})$$

**Tableau III.4.** Coefficients pour déduire les sections efficaces empiriques  $L_\alpha$ ,  $L_\beta$  et  $L_\gamma$  pour les éléments avec  $50 \leq Z \leq 92$  par impact de protons en utilisant la formule individuelle (Eq. III.3).

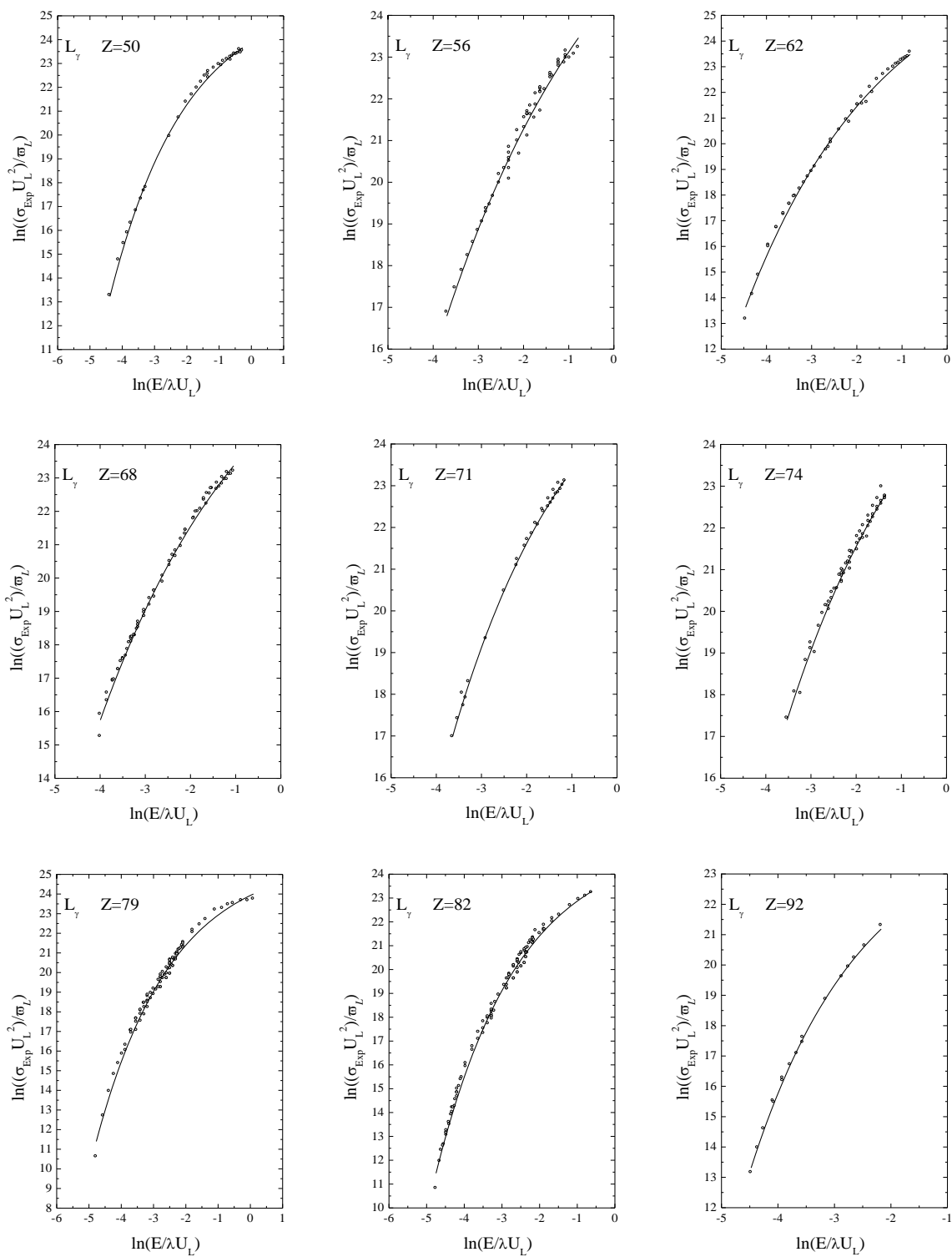
Z	$L_\alpha$			$L_\beta$			$L_\gamma$		
	$r_{0z}$	$r_{1z}$	$r_z$	$r_{0z}$	$r_{1z}$	$r_z$	$r_{0z}$	$r_{1z}$	$r_z$
50	27.29238	-1.10069	0.54384	27.15622	-1.33371	0.50094	25.85293	-1.95639	0.42579
51	27.30055	-1.12516	0.53595	27.28692	-1.30002	0.52775	25.14364	-1.17478	0.56743
52	27.03909	-0.93058	0.58734	27.09716	-1.16730	0.55301	25.17752	-1.23628	0.54860
53	26.64732	-0.6899	0.69406	27.37005	-1.46587	0.48187	24.94983	-1.03871	0.60301
55	26.90449	-0.78078	0.70802	26.91826	-0.97556	0.66745	23.99913	-0.20116	1.50112
56	28.15901	-1.93612	0.40878	28.98710	-2.88760	0.33845	29.31647	-4.77090	0.26108
57	27.69414	-1.52447	0.46365	28.22513	-2.24113	0.38931	28.40781	-3.90177	0.29492
58	27.93168	-1.74779	0.43071	29.27983	-3.03615	0.33379	28.22190	-3.70446	0.30511
59	27.11912	-1.05852	0.54169	27.71865	-1.69769	0.45054	26.87713	-2.52885	0.37418
60	27.08092	-1.03561	0.55234	27.72798	-1.75058	0.44705	26.60512	-2.31024	0.39543
62	27.30136	-1.28802	0.49303	27.90415	-1.73536	0.44640	27.77593	-3.28865	0.32708
63	27.94217	-1.59114	0.46079	28.51756	-2.21926	0.40504	30.27321	-5.31338	0.25238
64	28.07437	-1.78315	0.43241	29.52230	-3.13361	0.33486	30.78265	-5.75807	0.24033
65	27.21926	-1.15479	0.52307	27.96901	-1.88302	0.43239	27.69491	-3.10672	0.34205
66	27.98931	-1.74594	0.43270	29.64522	-3.26415	0.32443	29.88401	-5.03043	0.25812
67	27.42668	-1.31745	0.49252	27.87101	-1.79798	0.44015	26.55841	-2.22542	0.40180
68	27.48878	-1.36393	0.48533	28.79327	-2.54116	0.37122	29.29283	-4.42717	0.27997
69	27.81434	-1.62063	0.44694	29.17974	-2.87838	0.34525	30.3466	-5.43055	0.24437
70	26.84506	-0.98988	0.54693	28.33767	-2.23919	0.39357	26.28982	-2.11182	0.40793
71	27.73712	-1.56132	0.45536	28.60639	-2.40693	0.38301	27.44975	-2.85866	0.35657
72	25.90818	-0.56521	0.66089	-	-	-	-	-	-
73	26.89118	-1.02422	0.53726	27.41400	-1.68995	0.43736	27.70939	-3.2019	0.33631
74	27.06871	-1.11405	0.52186	27.46697	-1.65414	0.44577	28.30938	-3.60819	0.31383
77	27.72559	-1.59234	0.44493	-	-	-	-	-	-
78	27.82911	-1.63157	0.44151	26.79969	-1.34751	0.48105	25.79791	-1.74145	0.45993
79	26.82114	-1.01593	0.53668	26.65499	-1.17972	0.51185	25.81035	-1.88348	0.42633
80	26.99356	-1.15835	0.50705	29.02346	-2.73179	0.35638	30.67051	-5.58579	0.24715
81	26.46058	-0.86843	0.56454	26.81358	-1.31102	0.48998	24.38015	-1.0829	0.52310
82	27.00861	-1.10627	0.52017	26.98976	-1.38108	0.48307	25.39656	-1.6036	0.45522
83	26.94006	-1.11549	0.51179	28.22029	-2.23245	0.38808	32.74707	-7.38988	0.21021
90	26.64867	-1.02556	0.52460	-	-	-	-	-	-
92	25.59514	-0.54000	0.64879	24.97234	-0.51762	0.66078	24.69027	-1.15541	0.51112



**Figure III.8.** Évolution des sections efficaces individuelles de production de rayons X de la raie  $L_\alpha$ ,  $\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \omega_L)$  en fonction de l'énergie normalisée des protons  $\ln(E/\lambda U_L)$  pour 50Sn, 56Ba, 62Sm, 68Er, 71Lu, 74W, 79Au, 82Pb et 92U. Les ajustements individuels sont également représentés par des lignes pleines



**Figure III.9.** Évolution des sections efficaces individuelles de production de rayons X de la raie  $L\beta$   $\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \omega_L)$  en fonction de l'énergie normalisée des protons  $\ln(E/\lambda U_L)$  pour 50Sn, 56Ba, 62Sm, 68Er, 71Lu, 74W, 79Au, 82Pb et 92U. Les ajustements individuels sont également représentés par des lignes pleines.



**Figure III.10.** Évolution des sections efficaces individuelles de production de rayons X de la raie  $L_\gamma$ ,  $\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \overline{\omega}_L)$  en fonction de l'énergie normalisée des protons  $\ln(E/\lambda U_L)$  pour  $50\text{Sn}$ ,  $56\text{Ba}$ ,  $62\text{Sm}$ ,  $68\text{Er}$ ,  $71\text{Lu}$ ,  $74\text{W}$ ,  $79\text{Au}$ ,  $82\text{Pb}$  et  $92\text{U}$ . Les ajustements individuels sont également représentés par des lignes pleines.

### III.4. Discussion des résultats :

Nous commençons par noter que le nombre de données expérimentales utilisées pour obtenir les trois formules ((III.1), (III.2) et (III.3)) est suffisant pour produire un ajustement satisfaisant, et toutes les figures (Figs. III.(2-10)) sont présentées afin de souligner la répartition différente des données dans chaque cas. Aussi, nous avons noté que la dispersion des données expérimentales est en partie due au fait que les données sont tirées de diverses références et sources et par conséquent mesurées dans des conditions expérimentales différentes. Il faut souligner que les équations d'ajustement (III.1), (III.2) et (III.3) et leurs coefficients associés ne sont valables que dans la région des données expérimentales utilisées [Deg.16]. Toute application des formules obtenues en dehors des plages correspondantes pourrait donner des sections efficaces erronées. Les valeurs de l'erreur quadratique moyenne ( $\varepsilon_{\text{RMS}}$ ) sont présentées sur la Fig. III.11 ((a), (b) et (c)) pour les procédures collectives, de dépendance en Z et individuelles pour les trois raies  $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$  en fonction du numéro atomique Z. Si l'on considère les erreurs d'ajustement comme des précisions sur les résultats déduits, l'examen des Fig. III.11 (a), (b) et (c) montre que :

- En comparant les deux premières approches développées dans ce travail (Eqs. (III.1) et (III.2)), on remarque que les valeurs de l'erreur liées à la procédure de Z-dépendance sont généralement soit inférieures à celles liées à la procédure collective (on observe un écart relatif léger entre eux) dans la plupart des éléments de l'étain à l'uranium pour les trois raies  $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$ . La déduction de la section efficace de production de rayons X (Eqs. (III.1) ou (III.2)) conduit au même résultat avec de quelques pourcentages (0,27%-0,48% pour  $L\alpha$ , 0,38%-3,13% pour  $L\beta$  et 0,96%-2,06% pour  $L\gamma$ ). Ceci est valable même si les deux formules sont basées uniquement sur les valeurs expérimentales via l'ajustement des données expérimentales réduites ( $\ln(\sigma_{\text{exp}}^{\text{X}} U_{\text{L}}^2 / \overline{\omega_{\text{L}}})$ ) par une fonction de décroissance exponentielle du premier ordre. Notons que l'absence du paramètre Z dans la première formule (Eq. (III.1)) ajoute une erreur supplémentaire pour la déduction des sections efficaces de production de rayons X. Par conséquent, l'ajout du numéro atomique dans la formule empirique réduira l'erreur. Les mêmes résultats ont été observés lors du calcul de la section efficace de production semi-empirique dans l'article (Daghfel et al. (2016)). Les valeurs rapportées par les deux approches varient comme suit : pour les formules collectives (Eq. (III.1)) : 14,75%-18,94% pour  $L\alpha$ , 14,25%-18,32% pour  $L\beta$ , 14,75%-19,79% pour  $L\gamma$  . pour la formule de la Z-

dépendance (Eq. (III.2)), le traitement varie de la manière suivante : 14,68%-18,89% pour  $L\alpha$ , 14,71%-18,29% pour  $L\beta$ , 14,61%-19,39% pour  $L\gamma$ .

- Une comparaison entre les sections efficaces de production déduites de la formule (III.3), d'une part, et celles déduites des formules (III.1) et (III.2), d'autre part, pour tous les éléments de  ${}_{50}\text{Sn}$  à  ${}_{92}\text{U}$ , permet d'indiquer que : pour déterminer une section efficace fiable, l'idéal est d'effectuer l'ajustement des données expérimentales pour chaque élément séparément. Ceci est interprété par les valeurs maximales des erreurs quadratiques moyennes ( $\epsilon_{\text{RMS}}$ ) qui ne dépassent pas les 12% notamment pour les deux raies  $L\alpha$  et  $L\beta$ , sauf pour quelques cas isolés (13,07% pour  ${}_{57}\text{La}$ , 16,71% pour  ${}_{65}\text{Tb}$ , 15,99% pour  ${}_{67}\text{Ho}$  et 16,87% pour  ${}_{92}\text{U}$  pour  $L\alpha$  ; 14,26% pour  ${}_{57}\text{La}$ , 17,18% pour  ${}_{65}\text{Tb}$ , 15,13% pour  ${}_{67}\text{Ho}$  14,25% pour  ${}_{74}\text{W}$ , 14,38% pour  ${}_{80}\text{Hg}$  14,72% pour  ${}_{83}\text{Bi}$  et 15,23% pour  ${}_{92}\text{U}$  pour  $L\beta$ ). Pour la raie  $L\gamma$ , en général, on peut affirmer que les erreurs quadratiques moyennes ( $\epsilon_{\text{RMS}}$ ) pour les procédures collectives et de Z-dépendance sont supérieures aux valeurs de l'ajustement individuel ( $\epsilon_{\text{RMS}}^{(\text{Eq.1})}$ ,  $\epsilon_{\text{RMS}}^{(\text{Eq.2})} > \epsilon_{\text{RMS}}^{(\text{Eq.3})}$ ), mais la situation est moins satisfaisante et les erreurs sont plus poncées (allant de 14,21 % à 21,59 % pour les 14 éléments : 16,57 % pour  ${}_{56}\text{Ba}$ , 15,21 % pour  ${}_{57}\text{La}$ , 15,67 % pour  ${}_{59}\text{Pr}$ , 14,97 % pour  ${}_{60}\text{Nd}$ , 14,92 % pour  ${}_{62}\text{Sm}$ , 14,21 % pour  ${}_{64}\text{Gd}$ , 16,62 % pour  ${}_{65}\text{Tb}$ , 15,95% pour  ${}_{67}\text{Ho}$ , 17,79% pour  ${}_{70}\text{Yb}$ , 17,85% pour  ${}_{78}\text{Pt}$ , 18,89% pour  ${}_{79}\text{Au}$ , 20,84% pour  ${}_{80}\text{Hg}$ , 15,49% pour  ${}_{82}\text{Pb}$  et 21,59% pour  ${}_{83}\text{Bi}$ ). Cela est dû au fait que  $L\alpha$  et  $L\beta$  sont les raies les plus proéminentes (intenses) et, par conséquent, les sections efficaces de production correspondantes sont mesurées avec une meilleure précision par rapport aux lignes  $L\gamma$ .

De plus, nous présentons nos résultats des sections efficaces empiriques des procédures collectives, de Z-dépendance et individuelles (Eqs. (III.1), (III.2) et (III.3)) pour quelques éléments sélectionnés, à savoir  ${}_{56}\text{Ba}$ ,  ${}_{66}\text{Dy}$ ,  ${}_{74}\text{W}$ ,  ${}_{79}\text{Au}$  et  ${}_{82}\text{Pb}$ . Ainsi, les rapports aux calculs ECPSSR des sections efficaces de production de rayons X empiriques de Strivay et Weber (2002) [St.02] et ceux déduits des équations. (III.1), (III.2) et (III.3) en fonction de l'énergie du proton, sont présentés dans les Fig. III.(12-14) pour les trois raies  $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$ . De l'examen des figures précitées et par comparaison de la section efficace déduite des trois procédés décrits ici avec d'autres travaux théoriques et expérimentaux, on remarque que :

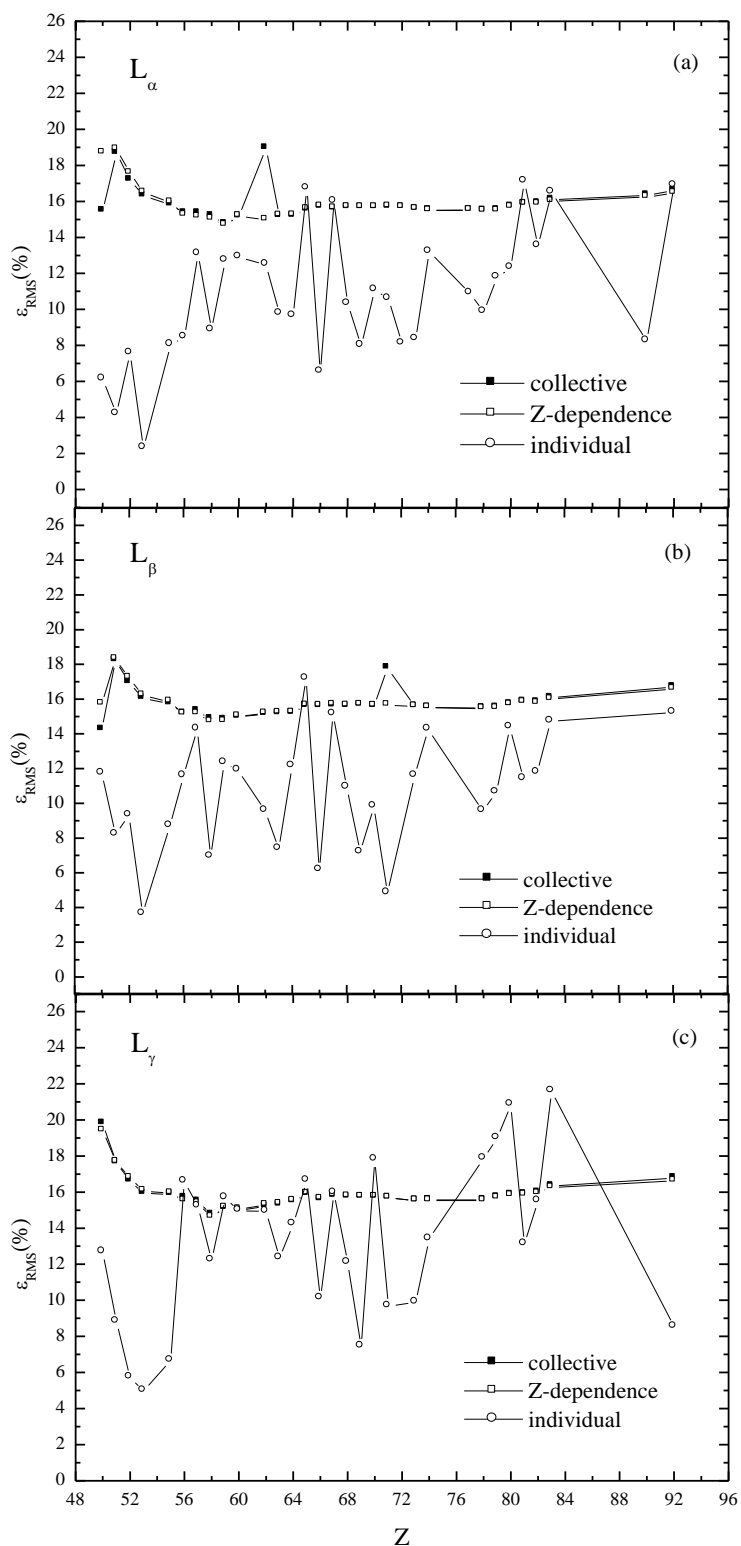
- **Pour  $L\alpha$**  : En étudiant les résultats obtenus par l'ajustement global et individuel (c'est-à-dire les formules (III.1), (III.2) et (III.3)), on observe que les valeurs déduites de la formule (III.3) coïncident très bien avec les valeurs théoriques sur toute la gamme d'énergie utilisée pour les deux éléments  ${}_{56}\text{Ba}$ ,  ${}_{66}\text{Dy}$ ,  ${}_{79}\text{Au}$  et  ${}_{82}\text{Pb}$ . Aussi, l'accord entre nos sections efficaces empiriques et celles de Strivay et Weber (2002) [St.02] est excellent pour toute la gamme de l'énergie du

proton pour les éléments  $_{56}\text{Ba}$ ,  $_{66}\text{Dy}$ ,  $_{74}\text{W}$ ,  $_{79}\text{Au}$  et  $_{82}\text{Pb}$ . Pour le calcul théorique aux basses énergies ( $E < 0,5\text{MeV}$ ), On remarque que nos résultats de sections efficaces déduits des trois formules et les valeurs obtenues par Strivay sont moins satisfaisantes

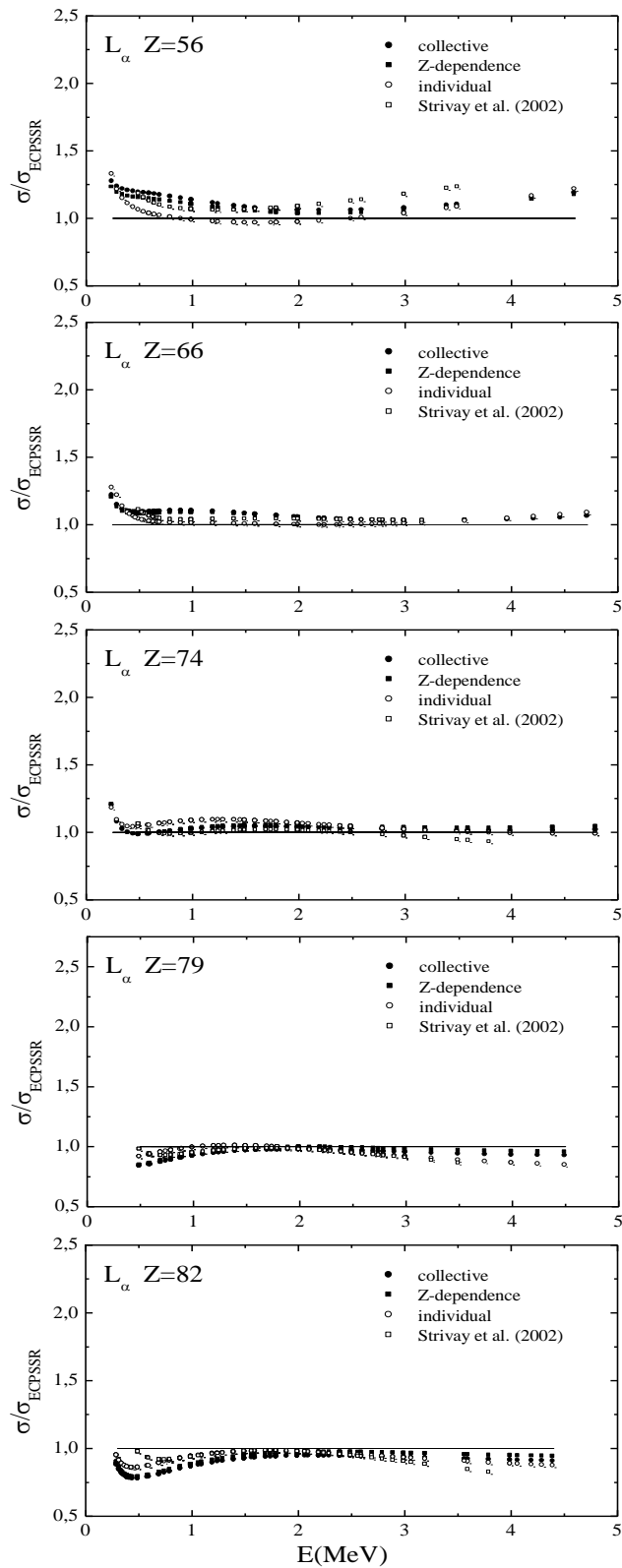
- **Pour la raie  $L\beta$**  : La situation est similaire à celle de la raie  $L\alpha$  pour les sections efficaces empiriques. L'accord entre les trois ensembles de sections efficaces empiriques et les résultats du modèle l'ECSSR est tout à fait satisfaisant. Pour les cinq éléments  $_{56}\text{Ba}$ ,  $_{66}\text{Dy}$ ,  $_{74}\text{W}$ ,  $_{79}\text{Au}$  et  $_{82}\text{Pb}$  l'accord entre notre section efficace de production  $L\beta$  empirique et celles de Strivay et Weber (2002) [St.02], est bon. Dans ce cas, l'écart entre nos sections efficaces empiriques  $L\beta$  (formules (III.1), (III.2) et (III.3)) et les résultats de Strivay et Weber [St.02] est d'environ 12% dans le pire des cas.

- **Pour la raie  $L\gamma$**  : Les résultats sont moins satisfaisants car des écarts importants sont observés pour tous les éléments  $_{56}\text{Ba}$ ,  $_{66}\text{Dy}$ ,  $_{74}\text{W}$ ,  $_{79}\text{Au}$  et  $_{82}\text{Pb}$ , que ce soit pour nos résultats ou pour les résultats de Strivay et Weber (2002) [St.02]. Néanmoins, les valeurs déduites par la procédure individuelle sont plus proches des valeurs théoriques pour l'ensemble des cinq éléments.

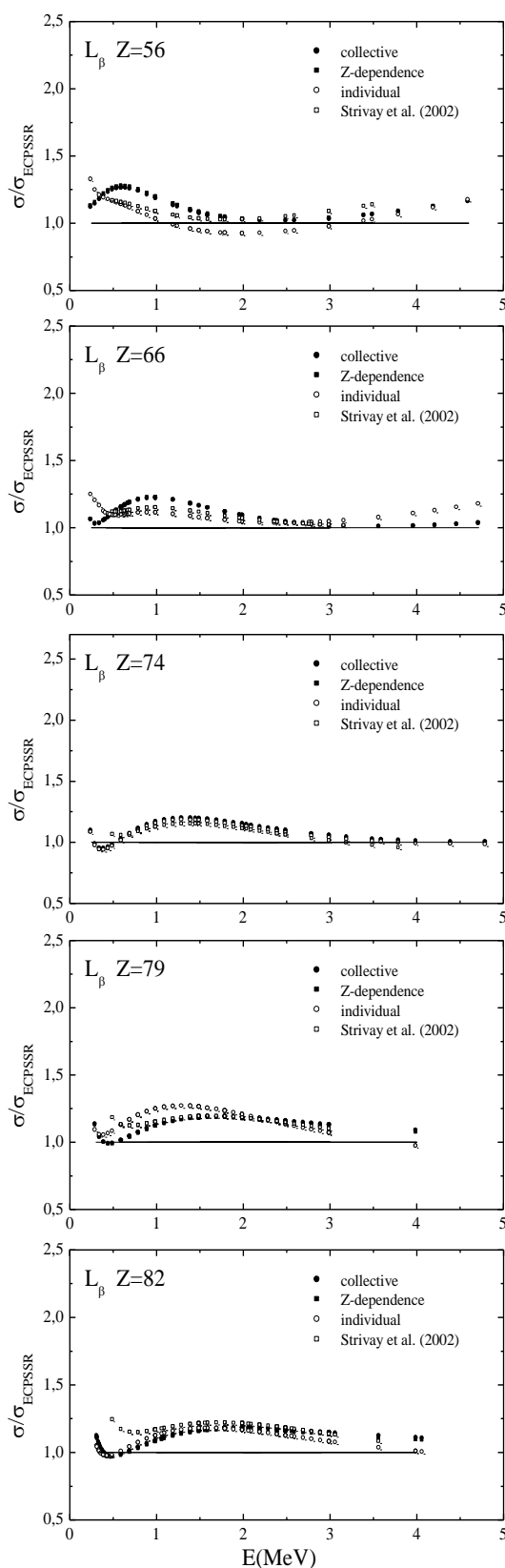




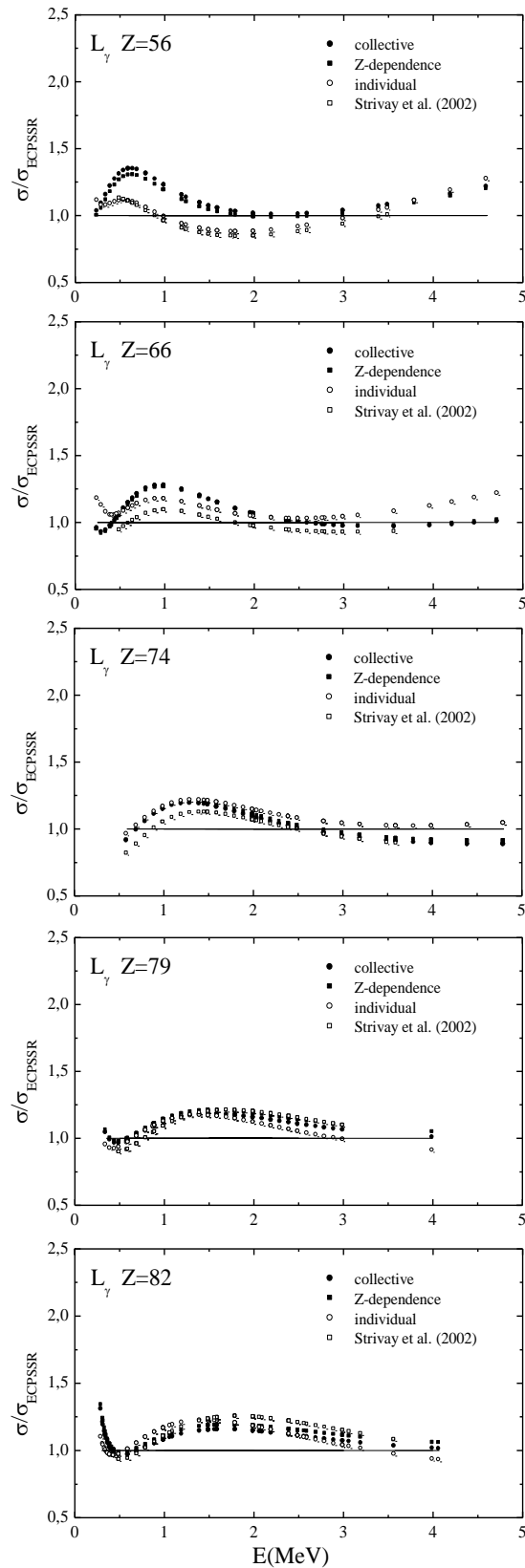
**Figure III.11.** Erreur quadratique moyenne ( $\epsilon_{RMS}$ ) des procédures collectives, Z-dépendance et individuelles pour les raies  $L_{\alpha}$  (a),  $L_{\beta}$  (b) et  $L_{\gamma}$  (c) en fonction du numéro atomique de la cible (Z).



**Figure III.12.** Sections efficaces empiriques de production de rayons  $X L_{\alpha}$  déduites de l'Eq. (III.1) (collectif), eq. (III.2) (dépendance en  $Z$ ), eq. (III.3) (individuel) et ceux de Strivay et Weber [25] pour des éléments sélectionnés ( $^{56}\text{Ba}$ ,  $^{66}\text{Dy}$ ,  $^{74}\text{W}$ ,  $^{79}\text{Au}$  et  $^{82}\text{Pb}$ ) en fonction de l'énergie du proton. Toutes ces sections efficaces sont normalisées à leurs calculs ECPSSR correspondants.



**Figure III.13.** Sections efficaces empiriques de production de rayons  $X L_{\beta}$  déduites de l'Eq. (III.1) (collectif), eq. (III.2) (dépendance en Z), eq. (III.3) (individuel) et ceux de Strivay et Weber [25] pour des éléments sélectionnés (56Ba, 66Dy, 74W, 79Au et 82Pb) en fonction de l'énergie du proton. Toutes ces sections efficaces sont normalisées à leurs calculs ECPSSR correspondants.



**Figure III.14.** Sections efficaces empiriques de production de rayons  $X L\gamma$  déduites de l'Eq. (III.1) (collectif), eq. (III.2) (dépendance en Z), eq. (III.3) (individuel) et celles de Strivay et Weber (2002) pour des éléments sélectionnés (56Ba, 66Dy, 74W, 79Au et 82Pb) en fonction de l'énergie du proton. Toutes ces sections efficaces sont normalisées à leurs calculs ECPSSR correspondants.

**III.5. Conclusion**

Dans ce chapitre, nous avons présenté la méthodologie adoptée et la démarche suivie pour le calcul des sections efficaces de production des rayons X. Les résultats obtenus par les calcul empirique et semi empirique avec les divers ajustements apportés ont été présentés discutés et comparés à ceux de la littérature.

Un bon accord de nos résultats et une concordance appréciable avec ceux d'autres auteurs sur une grande plage d'éléments de numéro atomique  $Z$  compris entre 50 et 92.

**Références Bibliographiques :**

- [Ab.12] Abdellatif, A., Kahoul, A., Deghfel, B., Nekkab, M., Medjadi, D.E., 2012. *Radiat. Phys. Chem.* 81, 499-505.
- [Be.16] Bendjedi, A., Deghfel, B., Kahoul, A., Derradj, I., Khalfallah, F., Sahnoune, Y., Bentabet, A., Nekkab, M., 2016. *Radiat. Phys. Chem.* 117, 128–134.
- [Be.17] Bendjedi, A., Deghfel, B., Derradj, I., Kahoul, A., Khalfallah, F., Sahnoune, Y., Bentabet, A., Nekkab, M., 2017. *Act. Phys. Pol. A* 131, 13-15.
- [Br.79] Brandt, W., Lapicki, G., 1979. *Phys. Rev. A* 20, 465-480.
- [Br.81] Brandt, W., Lapicki, G., 1981. Energy-loss effect in inner-shell Coulomb ionization by heavy charged particles. *Phys. Rev. A* 23, 1717-1729.
- [Deg.09] Deghfel, B., Nekkab, M., Kahoul, A., 2009. M X-ray production cross sections for heavy elements by proton impact. *X-ray spectrum.* 38, 399-406.
- [Deg.10] Deghfel, B., Kahoul, A., Nekkab, M., 2010. *X-ray spectrum.* 39, 296-301.
- [Deg.13a] Deghfel, B., Kahoul, A., Kerai, S., Saadaoui, M., Dechoucha, S., Nekkab, M., 2013a. *Radiat. Phys. Chem.* 92, 32-36.
- [Deg.13b] Deghfel, B., Kahoul, A., Heraiz, S., Belouadah, N., Nekkab, M., 2013b. *Radiat. Phys. Chem.* 85, 89-94.
- [Deg.14a] Deghfel, B., Kahoul, A., Nekkab, M., 2014a. *J. Radiat. Res. Appl. Sci.* 7, 512-518.
- [Deg.14b] Deghfel, B., Kahoul, A., Nekkab, M., 2014b. *J. Radiat. Res. Appl. Sci.* 607-613.
- [Deg.15] Deghfel, B., Khalfallah, F, Kahoul A, Nekkab, M. 2015. *Turk. J. Phys.* 39, 302-308.
- [Deg.16] Deghfel, B., Kahoul, A., Derradj, I., Bendjedi, A., Khalfallah, F., Sahnoune, Y., Bentabete A., Nekkab, M., 2016. A review. *X-ray spectrum.* 45, 247–257.
- [Der.16] Derradj, I., Kahoul, A., Deghfel, B., Bendjedi, A., Khalfallah, F., Sahnoune, Y., Bentabet, A., Nekkab, M., 2016. *Radiat. Phys. Chem.* 121, 81–86.

- [Hu.94] Hubbell, J.H., Trehan, P.N., Singh, N., Chand, B., Mehta, D., Garg, M.L., Garg, R.R., Singh, S., Puri, S., 1994. *J. Phys. Chem. Ref. Data* 23, 339–364.
- [Ka.05] Kahoul, A, Nekab, M., 2005. *Methods Phys. Res. B.* 234, 412-418.
- [Ka.08a] Kahoul, A., Nekkab, M., Deghfel, B., 2008a. *X-ray spectrum.* 37, 536-543.
- [Ka.08b] Kahoul, A., Nekkab, M., Deghfel, B., 2008b. *Methods Phys. Res. B.* 266, 4969–4975.
- [Ka.11] Kahoul, A., Deghfel, B., Abdellatif, A., Nekkab, M., 2011. *Radiat. Phys. Chem.* 80, 1300–1311.
- [La.09] Lapicki, G., 2009. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 42, 145204-10.
- [La.18] Lapicki, G., Miranda, J., 2018. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B.* 414, 184-189.
- [La.20] Lapicki, G., 2020. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B.* 467, 123-129.
- [Mi.13] Miranda, J., Murillo, G., Mendez, B., Lopez-Monroy, J., Aspiazu, J., Villasenor, P., Pineda, J.C., Reyes-Herrera, J., 2013. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B.* 316, 113-122.
- [Mi.14] Miranda, J and Lapicki, G. *At. Data Nucl. Data Tables* 100 (2014) 651.
- [Miy.88] Miyagawa, Y., Nakamura S., Miyagawa, S., 1988. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B.* 30, 115-122.
- [Mo.14] Mohan, H, Jain, A.K, Kaur, M, Singh, P.S, Sharma, S. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B332* (2014) 103.
- [Ne.06] Nekab, M., Kahoul, A., 2006. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B.* 245, 395.
- [Or.94a] Orlic, I., 1994. 87, 285-292.
- [Or.94b] Orlic, I., Sow, C.H., Tang, S.M., 1994. *Int. J. PIXE* 4, 217-230.
- [Re.96] Reis, M.A., Jesus, A. P., 1996. *Atom. Data Nucl. Data Tables* 63, 1-55.

- [Ro.93] Rodriguez-Fernandez, L., Miranda, J., Oliver, A., Cruz, F., Pegueros, J.R., 1993. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 75, 49-53.
- [Šm.14] Šmit, Z., Lapicki, G., 2014. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 47, 055203-7.
- [So.93] Sow, C.H., Orlic, I., Loh K. K., Tang, S. M., 1993. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 75, 58-62.
- [St.02] Strivay, D., Weber, G., 2002. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 190, 112-116.
- [Pu.82] Paul, H. *Nucl. Instrum. Methods* 192(1982) 11.
- [Zh.13] Zhou, X, Zhao, Y, Cheng, R , Wanga, Y, Lei, Y, Wang, X, Sun, Y. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B*299(2013) 61.



### *Conclusion générale*

Dans ce travail, nous avons présenté les résultats des calculs des sections efficaces par les modèle théoriques ECPSSR et de production des trois raies principales ( $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$ ) des éléments de numéro atomique  $50 \leq Z \leq 92$  par des protons d'énergie comprise entre 0.02 MeV et 10 MeV . Nous avons également rapporté les sections efficaces empiriques de production de rayons X ( $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$ ) avec leurs paramètres d'ajustement correspondants pour les éléments précédents par impact de proton.

Selon notre étude, nous avons remarqué que les valeurs  $L\alpha$  et  $L\beta$  obtenues avec la formule d'interpolation individuelle sont en bon accord avec les valeurs théoriques sur toute la gamme de l'énergie utilisée, particulièrement pour les grandes valeurs énergétiques. Elles deviennent moins précises pour les basses énergies notamment pour un ensemble de paramètres où l'ajustement pour chaque élément est adopté séparément. En considérant l'erreur quadratique moyenne comme critère de précision des sections efficaces déduites, nous pouvons conclure que les sections efficaces empiriques décrites par l'ajustement individuel donnent une meilleure résultat concordance des données expérimentales que celles déduites à partir de l'ensemble des données expérimentales (collectives ou Z-dépendance).

A la lumière des résultats cette étude, nous avons présenté un nouveau pack de coefficients, pour les sections efficaces de production de rayons X. Cet ensemble de coefficients sera d'une grande utilité pour toute personne qui effectue des recherches dans le domaine des processus d'ionisation des couches atomiques internes ou bien qui s'intéresse aux phénomènes connexes tels que l'analyse PIXE.

Malgré les améliorations incorporées dans la théorie ECPSSR, des écarts persistent entre les données expérimentales et les prévisions théoriques surtout à basse énergie du proton. Ceci nous a conduit à adopter des méthodes empiriques et semi-empiriques pour lever la disparité des résultats et apporter des éléments de réponses.

# *Légendes Des Figures et des Tableaux*

**LEGENDES DES FIGURES ET DES TABLEAUX**

**Tableaux :**

<b>Tableau I.1:</b> La configuration électronique et le moment angulaire total	07
<b>Tableau III.1:</b> Nombre total de données expérimentales des sections efficaces de productions $N^X$ des trois raies et les valeurs rejetées $N_R^X$	45
<b>Tableau III.2 :</b> Coefficients pour déduire les sections efficaces de production empiriques $L_\alpha$ , $L_\beta$ et $L_\gamma$ pour les éléments avec $50 \leq Z \leq 92$ par impact de protons en utilisant la formule collective (Eq. III.1)	48
<b>Tableau III.3 :</b> Coefficients pour déduire les sections efficaces de production empiriques $L_\alpha$ , $L_\beta$ et $L_\gamma$ pour les éléments $50 \leq Z \leq 92$ par impact de protons en utilisant la formule de la Z-dépendance	51
<b>Tableau III.4 :</b> Coefficients pour déduire les sections efficaces empiriques $L_\alpha$ , $L_\beta$ et $L_\gamma$ pour les éléments avec $50 \leq Z \leq 92$ par impact de protons	54

**Figures :**

<b>Figure I.1:</b> Niveaux d'énergie et quelque transition électronique permise.	06
<b>Figure I.2:</b> Les rayonnements électromagnétiques.	09
<b>Figure I.3 :</b> Ionisation par effet photoélectrique	11
<b>Figure I.4:</b> Désexcitation par émission fluorescente	12
<b>Figure I.5:</b> Représentation schématique d'une transition Auger	14
<b>Figure I.6:</b> Le rendement de fluorescence $\omega$ en fonction du numéro atomique $Z$ pour la couche K	16
<b>Figure I.7:</b> Transition de Coster-Kronig	18
<b>Figure II.1 :</b> Interaction Particule-cible	25
<b>Figure II.2:</b> processus de diffusion	30
<b>Figure III.1:</b> Distribution des valeurs expérimentales de la section efficace de production $L_\alpha$ , $L_\beta$ et $L_\gamma$ en fonction du numéro atomique $Z$	46
<b>Figure III.2.</b> Évolution des sections efficaces collectives de production de rayons X de la raie $L_\alpha$ $\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \omega_L)$ en fonction de l'énergie normalisée des protons $\ln(E/\lambda U_L)$ . Les ajustements collectifs sont également représentés par des lignes pleines.	49

- Figure III.3.** Évolution des sections efficaces collectives de production de rayons X de la raie  $L\beta$   $\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \omega_L)$  en fonction de l'énergie normalisée des protons  $\ln(E/\lambda U_L)$ . Les ajustements collectifs sont également représentés par des lignes pleines. 49
- Figure III.4.** Évolution des sections efficaces collectives de production de rayons X de la raie  $L\gamma$   $\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \omega_L)$  en fonction de l'énergie normalisée des protons  $\ln(E/\lambda U_L)$ . Les ajustements collectifs sont également représentés par des lignes pleines. 50
- Figure III.5.** Évolution des sections efficaces collectives de production de rayons X de la raie  $L\alpha$   $\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \omega_L)$  en fonction de l'énergie normalisée des protons  $\ln(E/\lambda U_L)$  et du numéro atomique de la cible  $Z$ . Les ajustements de dépendance  $Z$  sont également représentés par la surface. 51
- Figure III.6.** Évolution des sections efficaces collectives de production de rayons X de la raie  $L\beta$   $\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \omega_L)$  en fonction de l'énergie normalisée des protons  $\ln(E/\lambda U_L)$  et du numéro atomique de la cible  $Z$ . Les ajustements de dépendance  $Z$  sont également représentés par la surface. 52
- Figure III.7.** Évolution des sections efficaces collectives de production de rayons X de la raie  $L\gamma$   $\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \omega_L)$  en fonction de l'énergie normalisée des protons  $\ln(E/\lambda U_L)$  et du numéro atomique de la cible ( $Z$ ). Les ajustements de dépendance  $Z$  sont également représentés par la surface. 52
- Figure III.8.** Évolution des sections efficaces individuelles de production de rayons X de la raie  $L\alpha$ ,  $\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \omega_L)$  en fonction de l'énergie normalisée des protons  $\ln(E/\lambda U_L)$  pour 50Sn, 56Ba, 62Sm, 68Er, 71Lu, 74W, 79Au, 82Pb et 92U. Les ajustements individuels sont également représentés par des lignes pleines 55
- Figure III.9.** Évolution des sections efficaces individuelles de production de rayons X de la raie  $L\beta$   $\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \omega_L)$  en fonction de l'énergie normalisée des protons  $\ln(E/\lambda U_L)$  pour 50Sn, 56Ba, 62Sm, 68Er, 71Lu, 74W, 79Au, 82Pb et 92U. Les ajustements individuels sont également représentés par des lignes pleines. 56
- Figure III.10.** Évolution des sections efficaces individuelles de production de rayons X de la raie  $L\gamma$ ,  $\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \omega_L)$  en fonction de l'énergie normalisée des

protons  $\ln(E/\lambda U_L)$  pour  $^{50}\text{Sn}$ ,  $^{56}\text{Ba}$ ,  $^{62}\text{Sm}$ ,  $^{68}\text{Er}$ ,  $^{71}\text{Lu}$ ,  $^{74}\text{W}$ ,  $^{79}\text{Au}$ ,  $^{82}\text{Pb}$  et  $^{92}\text{U}$ . Les ajustements individuels sont également représentés par des lignes pleines

57

**Figure III.11.** Erreur quadratique moyenne ( $\varepsilon_{\text{RMS}}$ ) des procédures collectives, Z-dépendance et individuelles pour les raies  $L\alpha$  (a),  $L\beta$  (b) et  $L\gamma$  (c) en fonction du numéro atomique de la cible (Z).

61

**Figure III.12.** Sections efficaces empiriques de production de rayons X  $L\alpha$  déduites de l'Eq. (III.1) (collectif), éq. (III.2) (dépendance en Z), éq. (III.3) (individuel) et ceux de Strivay et Weber[25] pour des éléments sélectionnés ( $^{56}\text{Ba}$ ,  $^{66}\text{Dy}$ ,  $^{74}\text{W}$ ,  $^{79}\text{Au}$  et  $^{82}\text{Pb}$ ) en fonction de l'énergie du proton. Toutes ces sections efficaces sont normalisées à leurs calculs ECPSSR correspondants.

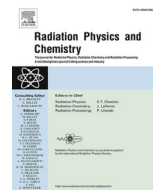
62

**Figure III.13.** Sections efficaces empiriques de production de rayons X  $L\beta$  déduites de l'Eq. (III.1) (collectif), éq. (III.2) (dépendance en Z), éq. (III.3) (individuel) et ceux de Strivay et Weber [25] pour des éléments sélectionnés ( $^{56}\text{Ba}$ ,  $^{66}\text{Dy}$ ,  $^{74}\text{W}$ ,  $^{79}\text{Au}$  et  $^{82}\text{Pb}$ ) en fonction de l'énergie du proton. Toutes ces sections efficaces sont normalisées à leurs calculs ECPSSR correspondants.

63

**Figure III.14.** Sections efficaces empiriques de production de rayons X  $L\gamma$  déduites de l'Eq. (III.1) (collectif), éq. (III.2) (dépendance en Z), éq. (III.3) (individuel) et celles de Strivay et Weber (2002) pour des éléments sélectionnés ( $^{56}\text{Ba}$ ,  $^{66}\text{Dy}$ ,  $^{74}\text{W}$ ,  $^{79}\text{Au}$  et  $^{82}\text{Pb}$ ) en fonction de l'énergie du proton. Toutes ces sections efficaces sont normalisées à leurs calculs ECPSSR correspondants.

64



# Universal empirical fit to $L\alpha$ , $L\beta$ and $L\gamma$ x-ray production cross section by protons impact within updated experimental data: Three dimensional (Z-dependence), collective and individual formulae

A. Abassi<sup>a,b</sup>, K. Akmoum<sup>a,b</sup>, A. Kahoul<sup>a,b,\*</sup>, S. Daoudi<sup>a,b</sup>, B. Deghfel<sup>c,d</sup>, Y. Kasri<sup>e</sup>, I. Derradj<sup>a,b</sup>, A. Bendjedi<sup>a,b</sup>, A. Hamidani<sup>a,b</sup>, K. Meddouh<sup>a,b</sup>, Y. Sahnoune<sup>a,b</sup>

<sup>a</sup> Department of Matter Sciences, Faculty of Sciences and Technology, Mohamed El Bachir El Ibrahimi University, Bordj-Bou-Arreidj, 34030, Algeria

<sup>b</sup> Laboratory of Materials Physics, Radiation and Nanostructures (LPMRN), University of Mohamed El Bachir El Ibrahimi, Bordj-Bou-Arreidj, 34030, Algeria

<sup>c</sup> Department of Physics, Faculty of Sciences, University of Mohamed Boudiaf, 28000, M'sila, Algeria

<sup>d</sup> Laboratory of Materials Physics and Their Applications, Physics Department, Faculty of Sciences, University of Mohamed Boudiaf, 28000, M'sila, Algeria

<sup>e</sup> Theoretical Physics Laboratory, Physics Department, University of Bejaia, 6000, Algeria

## ARTICLE INFO

### Keywords:

Empirical L x-ray cross section  
ECPSSR  
Z-dependence

## ABSTRACT

The aim of this contribution is to investigate the different empirical procedures to deduce the L lines x-ray production cross sections for a wide range of elements ( $50 \leq Z \leq 92$ ) by proton impact. The data base which relies on different compilations available in the literature, is used from three different aspects, to deduce a new empirical production cross sections of the main x-ray lines  $L\alpha$ ,  $L\beta$  and  $L\gamma$ . One, the data are fitted collectively by analytical functions to calculate the empirical cross sections. Second, three dimensional empirical L-shell x-ray production cross sections have been deduced by introducing the dependence of the universal trend of the updated experimental data on the atomic number of the target, noted as "Z-dependence". Third, these experimental data can be presented in a single curve depending on a scaling law extracted from studies in the most familiar theories of collision (PWBA). Then, a first order exponential decay function was used to fit very well the existing database of the main x-ray lines  $L\alpha$ ,  $L\beta$  and  $L\gamma$  cross sections for elements from  $_{50}\text{Sn}$  to  $_{90}\text{U}$ . Generally, the deduced production cross sections obtained by fitting the available experimental data for each element separately give the most reliable values than those obtained by a global fit. At last, a comparison is made between the three empirical formula reported in this work, those obtained using the ECPSSR model and other earlier works.

## 1. Introduction

The theoretical, experimental and analytical methods for the calculation of x-ray production cross sections, fluorescence yields, vacancy transfer probabilities and intensity ratios of different elements are very important because of the large number of their applications in various areas of physical chemistry, medical research and treatments (such as cancer therapy) and industrial irradiation processing. During the last decades, the study of phenomena occurring in collisions between charged particles and target atoms has grown to a field of increasing interest in both its theoretical and experimental aspects. This growing interest is due to the wide applicability of Particle Induced x-ray Emission (PIXE) in many fields. When performing sample analysis by PIXE,

one of the essential factors is the x-ray production cross section or the ionization cross section on which relies a great extent of the quantitative PIXE analysis. There are different theoretical approaches developed to describe the inner shell ionization process by charged particles, namely the plan wave Born approximation (PWBA) (Merzbacher and Lewis (1958); Khandelwal and Merzbacher (1966a, 1966b)), the semiclassical approximation (SCA) (Garcia (1970)), and the classical approach, known as the binary-encounter approximation (BEA) (Choi (1973)) and the ECPSSR model (Brandt and Lapicki (1979, 1981)), which is the most advanced approach based on the PWBA theory to account for energy (E) loss and Coulomb (C) deflection of the projectile and the perturbed stationary state (PSS) and relativistic (R) nature of the target's inner-shell. The available experimental L x-ray production and

\* Corresponding author. Department of Matter Sciences, Faculty of Sciences and Technology, Mohamed El Bachir El Ibrahimi University, Bordj-Bou-Arreidj, 34030, Algeria.

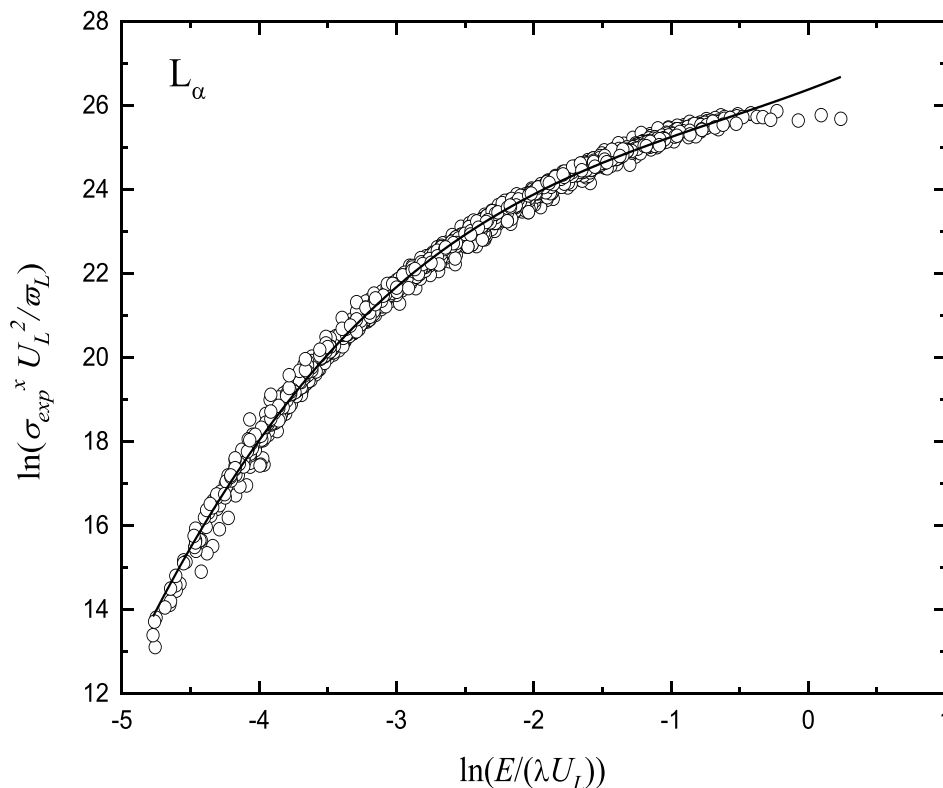
E-mail addresses: [a.kahoul@univ-bba.dz](mailto:a.kahoul@univ-bba.dz), [ka\\_abdelhalim@yahoo.fr](mailto:ka_abdelhalim@yahoo.fr) (A. Kahoul).

<https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2021.109823>

Received 15 December 2020; Received in revised form 28 September 2021; Accepted 4 October 2021

Available online 7 October 2021

0969-806X/© 2021 Elsevier Ltd. All rights reserved.



**Fig. 1.** Evolution of the collective  $L\alpha$  x-ray production cross sections  $\ln(\sigma_{\text{exp}}^x U_L^2 / \omega_L)$  as a function of the normalized proton energy  $\ln(E/\lambda U_L)$ . The collective fits are also represented by full lines.

ionization cross sections present generally a significant spread at low proton energies ((Deghfel et al., 2016), (Derradj et al., 2016)). Also, experimental data show appreciable differences when compared with the theoretical predictions and none of the present theories gives satisfactory predictions that agree with experimental data at all energies and all atomic numbers (Reis and Jesus (1996); Kahoul and Nekab (2005); Nekab and Kahoul (2006)). This motivated several workers to perform empirical and semi-empirical calculation on L-shell ionization and x-ray production cross sections from existing databases and theoretical models (Miyagawa et al. (1988); Sow et al. (1993); Orlic (1994); Orlic et al. (1994); Reis and Jesus (1996); Strivay and Weber (2002); Lapicki (2009); Šmit and Lapicki (2014); Lapicki and Miranda (2018); Lapicki (2020)). For this purpose and to get more insight into this subject, our group has become interested in the ionization of the L shells of the elements with atomic numbers above 50. In our first paper (Kahoul and Nekab (2005)), we have calculated semiempirical and empirical ionization cross sections of L1, L2 and L3 subshells for elements with atomic numbers 71–80 for protons of 0.5–3.0 MeV. In 2006 (Nekab and Kahoul (2006)), we have proposed a semi-empirical and empirical formulae to calculate L x-ray production cross sections (for the three x-rays lines  $L\alpha$ ,  $L\beta$ ,  $L\gamma$ ) for elements with  $50 \leq Z \leq 92$  for protons of 0.5–3.0 MeV. Bendjedi et al. (2016) used the existing experimental compilation (till 2014) for a wide range of elements ( $40 \leq Z \leq 92$ ) by proton impact (up to 10.0 MeV) to deduce the total empirical L shell ionization and x-ray production cross sections. A semi-empirical formulae for both ionization and x-ray production cross section for a wide range of elements ( $18 \leq Z \leq 92$ ) were determined in the same group (Derradj et al., 2016). Recently, our group (Deghfel et al. (2016)) propose a Z-dependence, collective and individual semi-empirical cross sections of the  $L\alpha$ ,  $L\beta$  and  $L\gamma$  x-ray production and  $L_1$ ,  $L_2$  and  $L_3$  ionization cross sections for a wide range of elements by proton impact. The semi-empirical  $L\alpha$ ,  $L\beta$  and  $L\gamma$  cross sections (Deghfel et al., 2016) were deduced by fitting the available experimental data normalized to their corresponding theoretical values. On the other hand, we define the empirical L X-ray production cross

sections by the direct fitting of the experimental data. We continue in the same subject, we report in the present contribution on the determination of the empirical  $L\alpha$ ,  $L\beta$  and  $L\gamma$  x-ray production cross sections by proton impact for elements with atomic numbers ranging from 50 to 92. First, we propose an analytical formula for the collective fit for elements with  $50 \leq Z \leq 92$  for  $L\alpha$ ,  $L\beta$  and  $L\gamma$  to calculate the x-ray production cross sections by proton impact. Then, we propose a second formula by introducing the dependence on the atomic number of the target, noted as “Z-dependence”. Finally, the data are also fitted separately (individual) by analytical formula to deduce empirical L x-ray production cross sections. We conclude our study by performing a comparison between the three empirical formulae reported in this work and other earlier works.

## 2. Computational method

Motivated by the previous works (Kahoul and Nekab (2005); Nekab and Kahoul (2006); Kahoul et al. (2008a, 2008b, 2011); Abdellatif (2012); Deghfel et al. (2009, 2010, 2013a, 2013b, 2014a, 2014b, 2015, 2016); Bendjedi et al. (2016, 2017); Derradj et al. (2016)) which were performed by our research group for ionization and production cross sections in which the experimental data according to the plane wave Born approximation (PWBA) model (Khandelwal and Merzbacher (1966)), it is possible to fit the cross sections obtained with any atomic element at any particle energy using a scaling law for a L-shell. We propose, in the present work, the different empirical procedures to deduce the L lines x-ray production cross sections by proton impact. Based on the database used in our earlier work (Deghfel et al. (2016)), we present new parameters for the calculation of empirical  $L\alpha$ ,  $L\beta$  and  $L\gamma$  x-ray production cross sections for targets with atomic number from 50 to 92. To produce a consistent and reliable empirical L x-ray production cross sections and enhance the quality of interpolation, we introduce the dispersion criterion on the existing experimental data for x-ray production cross sections. This criterion is fixed within an interval of

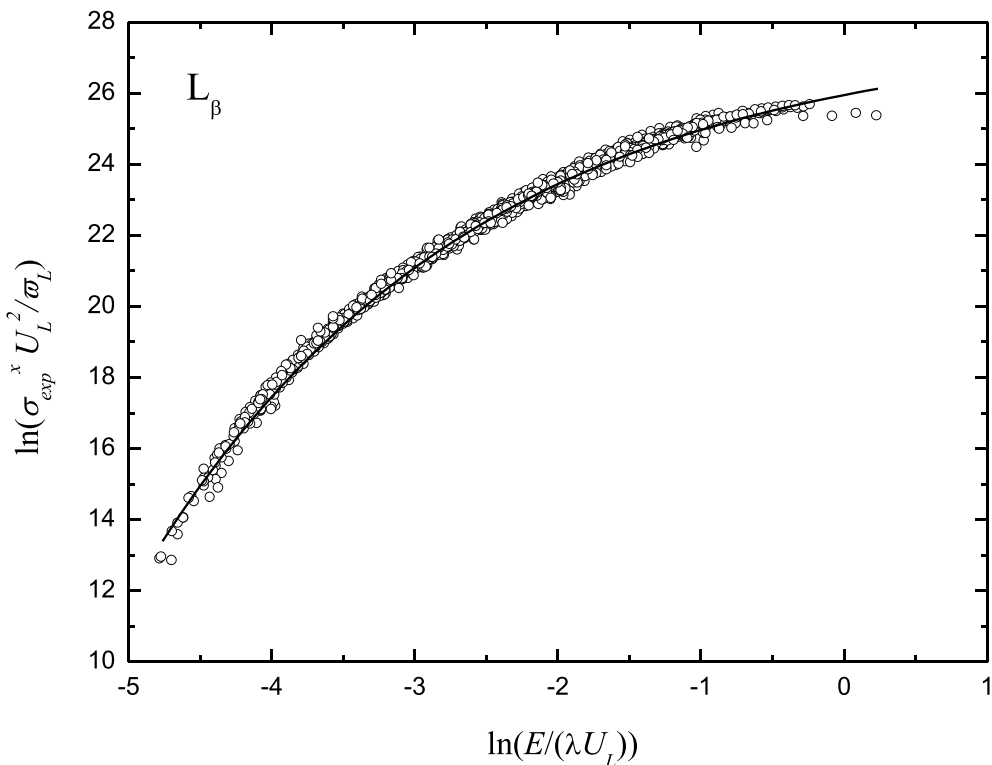


Fig. 2. Evolution of the collective  $L\beta$  x-ray production cross sections  $\ln(\sigma_{exp}^x U_L^2 / \omega_L)$  as a function of the normalized proton energy  $\ln(E/\lambda U_L)$ . The collective fits are also represented by full lines.

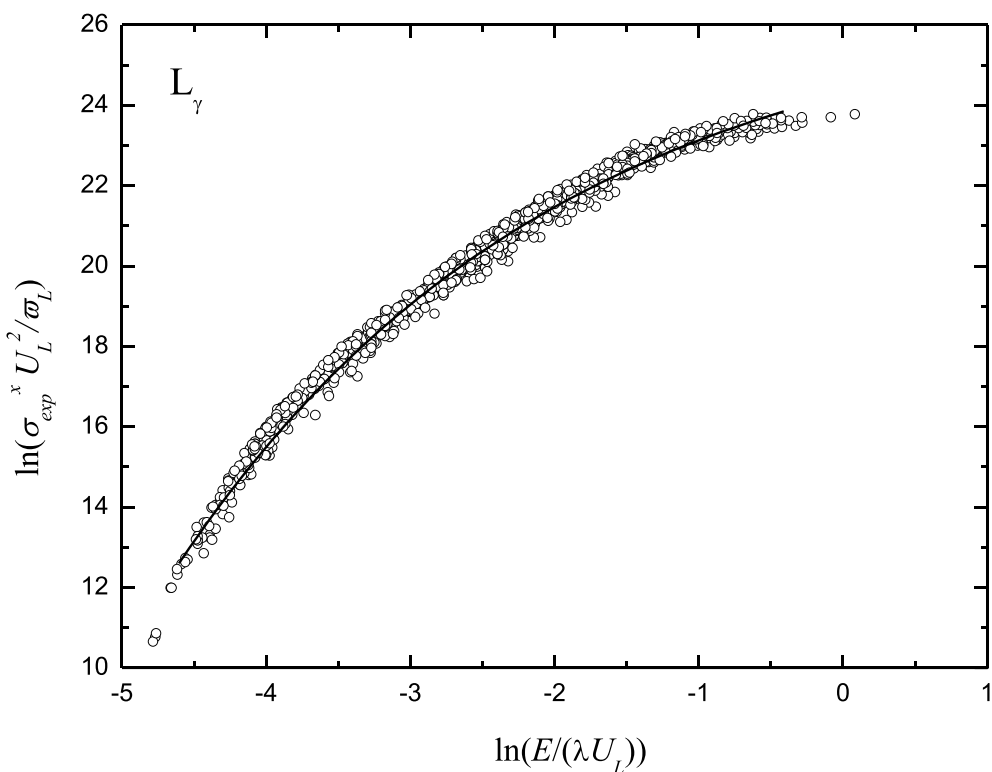


Fig. 3. Evolution of the collective  $L\gamma$  x-ray production cross sections  $\ln(\sigma_{exp}^x U_L^2 / \omega_L)$  as a function of the normalized proton energy  $\ln(E/\lambda U_L)$ . The collective fits are also represented by full lines.

[0.5–1.5] from the corresponding calculated values. Therefore, we only consider the experimental data ( $\sigma_{exp}$ ) for which the ratio  $S = \sigma_{exp} / \sigma_{ECPSSR}$  varies within the range of 0.5–1.5, where  $\sigma_{ECPSSR}$  refers to

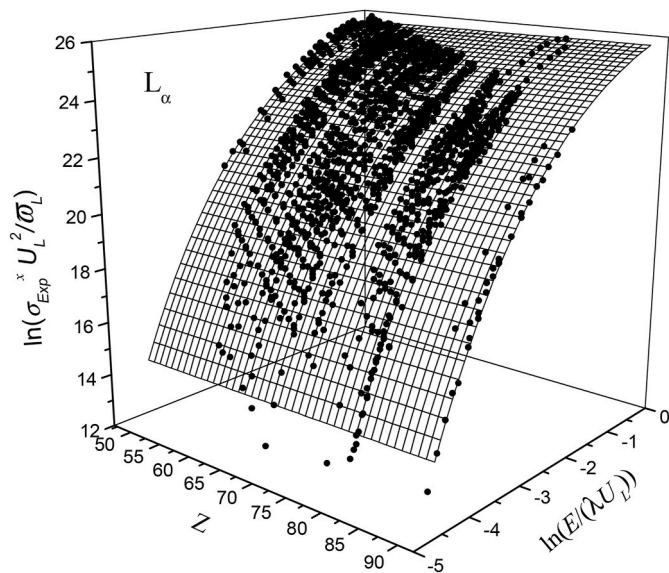
our theoretical L x-ray production cross sections (Deghfel et al. (2016)). The theoretical calculations are performed by using a computer program we developed within the ECPSSR model of Brandt and Lapicki (1979,



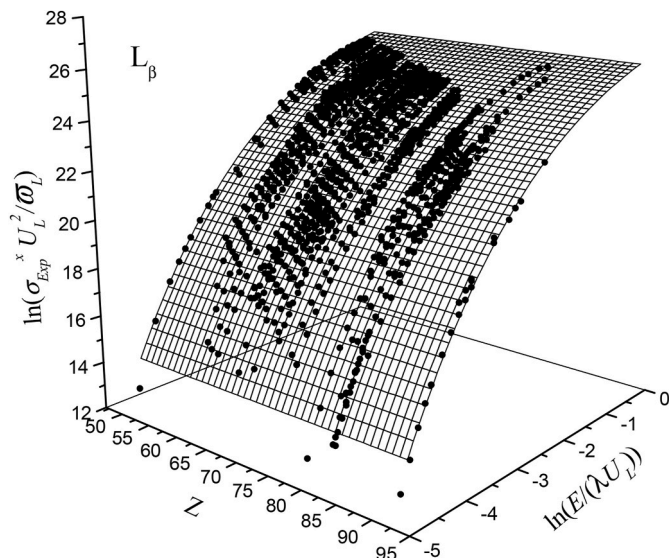
**Table 1**

Coefficients to deduce the  $L_{\alpha}$ ,  $L_{\beta}$  and  $L_{\gamma}$  empirical production cross sections for elements with  $50 \leq Z \leq 92$  by proton impact using collective formula (Eq. (1)).

Line	$r$	$r_0$	$r_1$
$L_{\alpha}$	0.49143	27.39298	-1.30869
$L_{\beta}$	0.43538	27.75294	-1.8056
$L_{\gamma}$	0.37904	26.73573	-2.46773

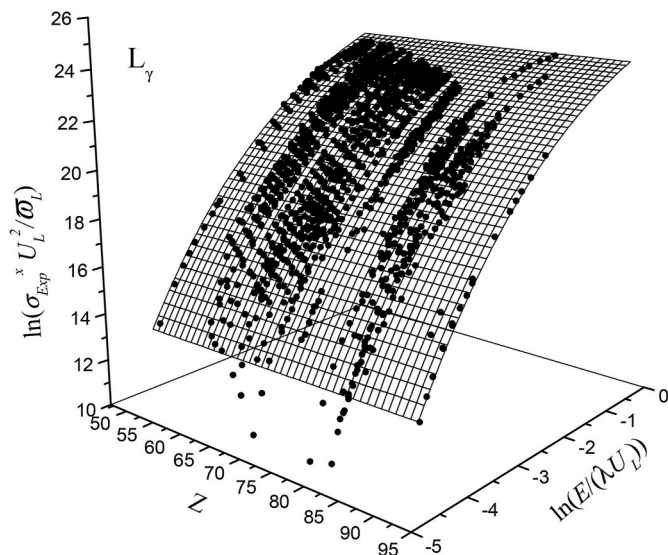


**Fig. 4.** Evolution of the collective  $L_{\alpha}$  x-ray production cross sections  $\ln(\sigma_{\text{exp}}^x U_L^2 / \bar{\omega}_L)$  as a function of the normalized proton energy  $\ln(E/\lambda U_L)$  and the atomic number of the target ( $Z$ ). The  $Z$ -dependence fits are also represented by surface.



**Fig. 5.** Evolution of the collective  $L_{\beta}$  x-ray production cross sections  $\ln(\sigma_{\text{exp}}^x U_L^2 / \bar{\omega}_L)$  as a function of the normalized proton energy  $\ln(E/\lambda U_L)$  and the atomic number of the target ( $Z$ ). The  $Z$ -dependence fits are also represented by surface.

1981) (see also Deghfel et al. (2016)). This criterion is used by several authors to reject experimental data which fit far from the ECPSSR calculations (Nekab and Kahoul (2006); Kahoul et al. (2008); Abdellatif



**Fig. 6.** Evolution of the collective  $L_{\gamma}$  x-ray production cross sections  $\ln(\sigma_{\text{exp}}^x U_L^2 / \bar{\omega}_L)$  as a function of the normalized proton energy  $\ln(E/\lambda U_L)$  and the atomic number of the target ( $Z$ ). The  $Z$ -dependence fits are also represented by surface.

**Table 2**

Coefficients to deduce the  $L_{\alpha}$ ,  $L_{\beta}$  and  $L_{\gamma}$  empirical production cross sections for elements with  $50 \leq Z \leq 92$  by proton impact using  $Z$ -dependence formula (Eq. (2)).

Line	$r$	$r_0$	$r_1$	$r_2$	$r_3$
$L_{\alpha}$	0.486802	5.20871	-0.254844	5.23576	5.15596E-4
$L_{\beta}$	0.436747	5.26346	-0.339991	5.28019	1.76907E-4
$L_{\gamma}$	0.374536	5.14756	-0.486612	5.16944	6.55873E-4

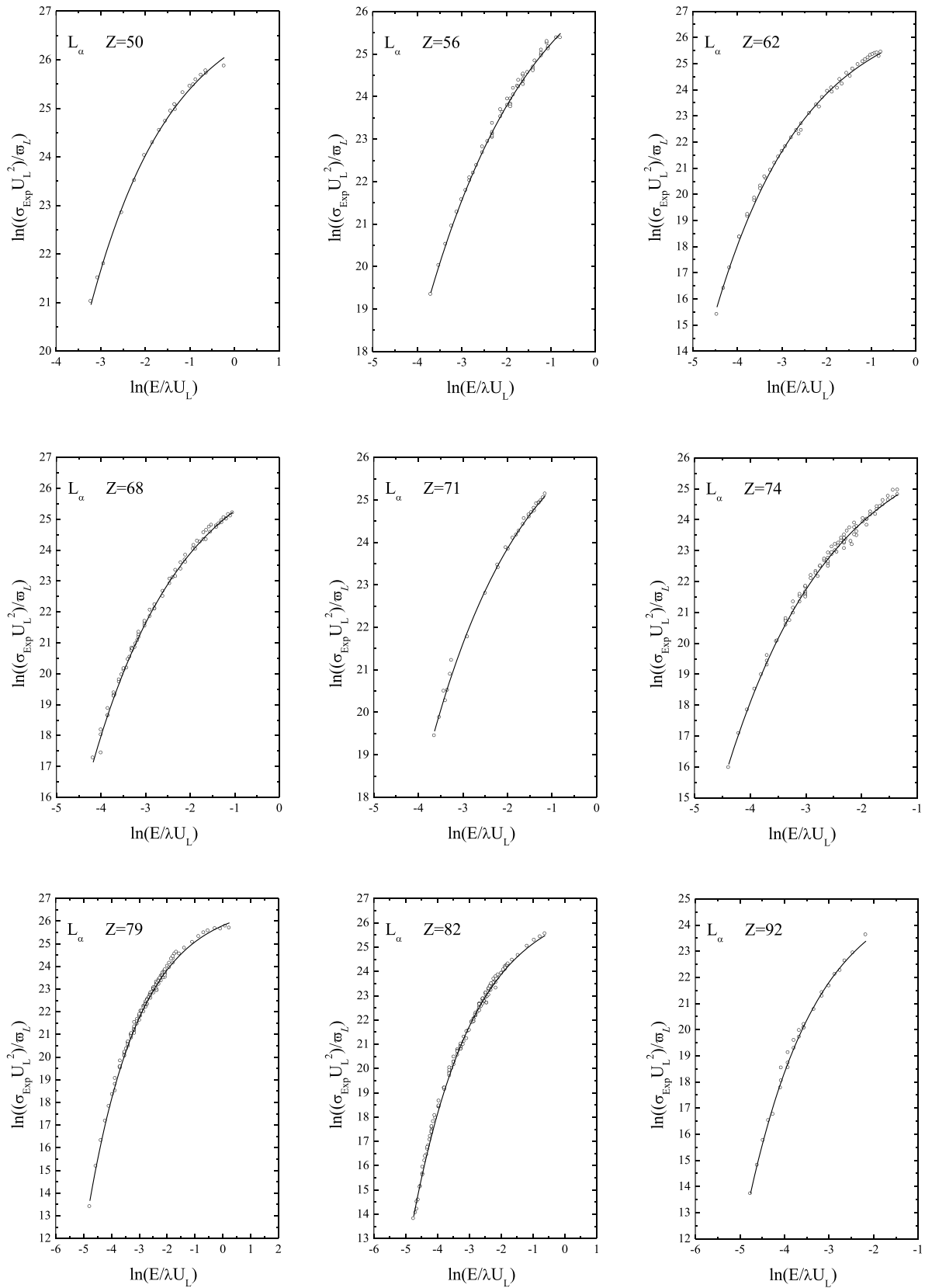
(2012); Deghfel et al. (2013, 2016); Bendjedi et al. (2016); Derradj et al. (2016)).

**2.1. Collective fit**

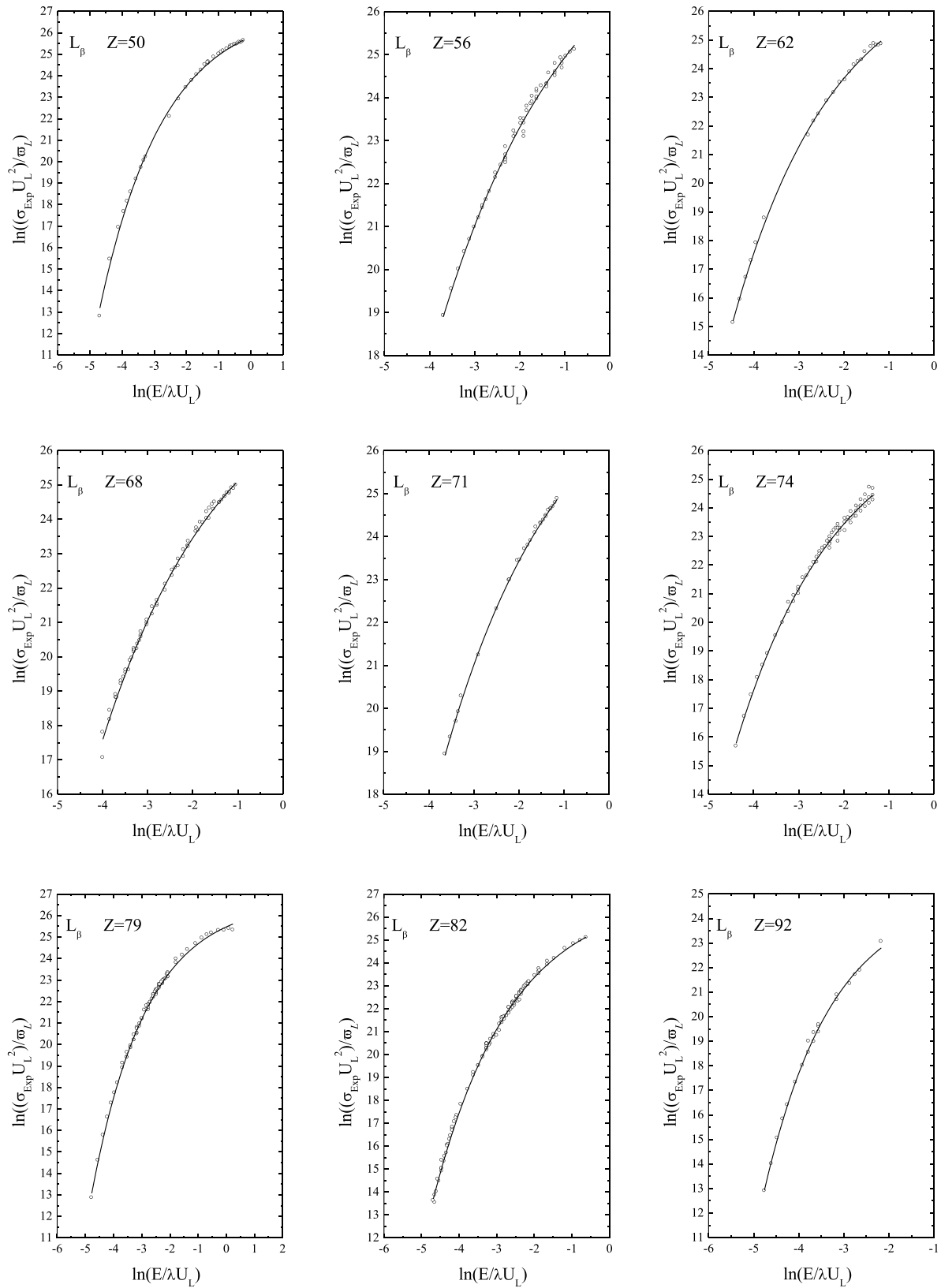
In the first part of this paper, we calculate the empirical L x-ray production cross sections by the direct fitting of the experimental data (Deghfel et al. (2016)) for each  $L_y$  ( $y = \alpha, \beta, \gamma$ ) line. A single way to present all the experimental data is the plot of  $\ln(\sigma_{\text{exp}}^x U_L^2 / \bar{\omega}_L)$  versus  $\ln(E/\lambda U_L)$  which leads to a “universal” curve, where  $\sigma_{\text{exp}}$  is the experimental  $L_{\alpha}$ ,  $L_{\beta}$  and  $L_{\gamma}$  x-ray production cross section,  $(E/\lambda U_L)$  is the normalized proton energy,  $E$  is the proton energy in keV,  $\lambda$  is the ratio of proton mass to electron mass,  $U_L$  is the average L-shell binding energy defined by  $U_L = \frac{1}{4}(U_{L1} + U_{L2} + 2U_{L3})$  and  $U_{Li}$  the Li ( $i = 1, 2, 3$ ) subshell electron binding energy in keV,  $\bar{\omega}_L$  is the average L-shell fluorescence yields (Hubbell et al. (1994)). In Figs. 1–3 we shown the evolution of all points  $(\ln(E/\lambda U_L), \ln(\sigma_{\text{exp}}^x U_L^2 / \bar{\omega}_L))$  by proton impact corresponding to the elements in the range  $50 \leq Z \leq 92$  for  $L_{\alpha}$ ,  $L_{\beta}$  and  $L_{\gamma}$  respectively. Universal character of production cross sections for protons allows us to derive more accurate empirical cross sections. Then, the set of the reduced experimental data  $(\ln(\sigma_{\text{exp}}^x U_L^2 / \bar{\omega}_L))$  is fitted by a first order exponential decay function as:

$$\ln(\sigma_{\text{exp}}^x U_L^2 / \bar{\omega}_L) = r_0 + r_1 e^{-r \ln(E/\lambda U_L)} \quad (1)$$

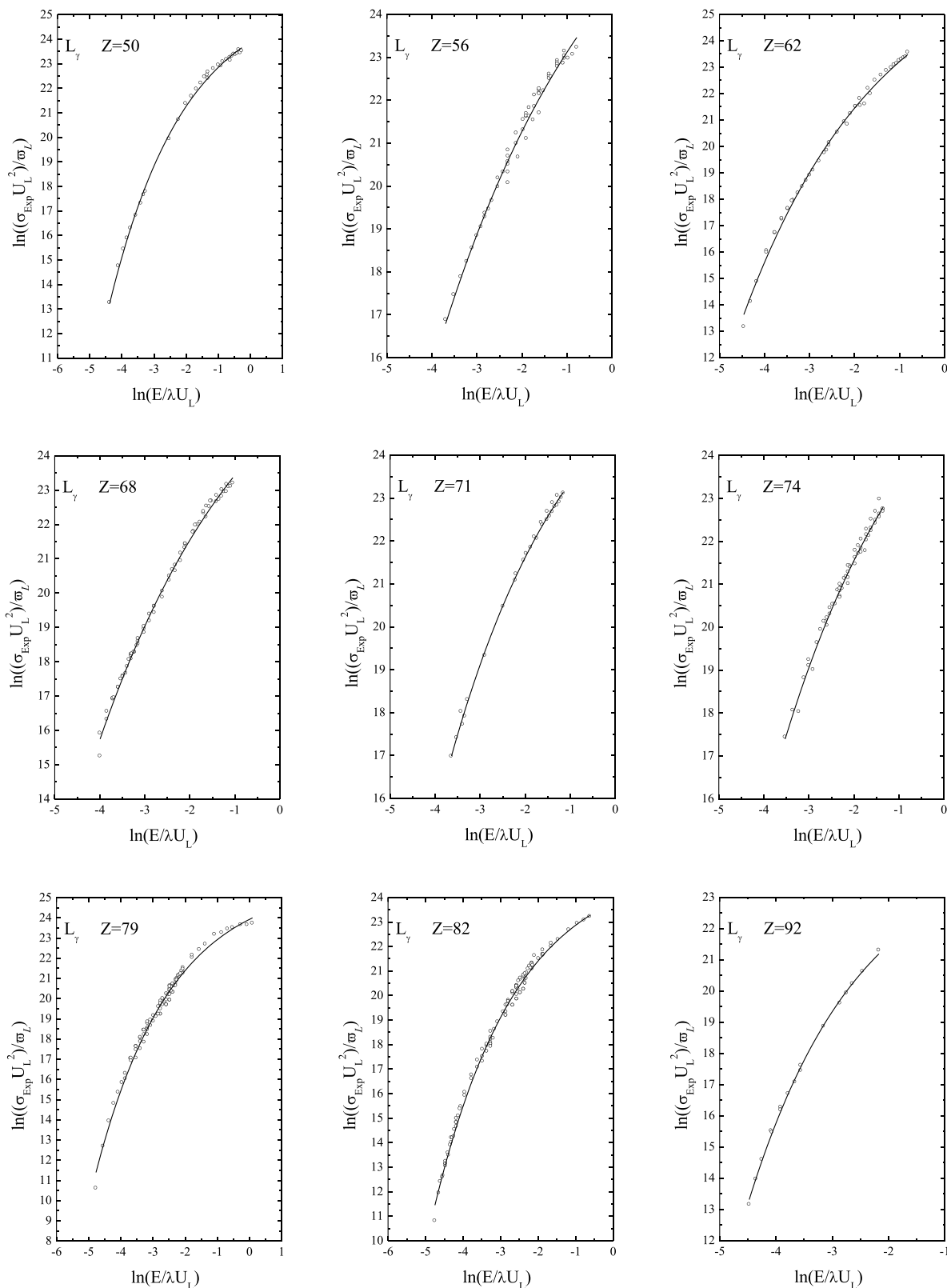
The data of each line are fitted with this analytical function to obtain a new set of parameters  $r$ ,  $r_0$  and  $r_1$  (see Table 1). The fitting results are presented in Figs. 1–3 with full lines.



**Fig. 7.** Evolution of the individual  $L_\alpha$  x-ray production cross sections  $\ln(\sigma_{Exp}^x U_L^2/\omega_L)$  as a function of the normalized proton energy  $\ln(E/\lambda U_L)$  for  $_{50}\text{Sn}$ ,  $_{56}\text{Ba}$ ,  $_{62}\text{Sm}$ ,  $_{68}\text{Er}$ ,  $_{71}\text{Lu}$ ,  $_{74}\text{W}$ ,  $_{79}\text{Au}$ ,  $_{82}\text{Pb}$  and  $_{92}\text{U}$ . The individual fits are also represented by full lines.



**Fig. 8.** Evolution of the individual  $L\beta$  x-ray production cross sections  $\ln(\sigma_{\text{exp}}^x U_L^2 / \omega_L)$  as a function of the normalized proton energy  $\ln(E/\lambda U_L)$  for  $_{50}\text{Sn}$ ,  $_{56}\text{Ba}$ ,  $_{62}\text{Sm}$ ,  $_{68}\text{Er}$ ,  $_{71}\text{Lu}$ ,  $_{74}\text{W}$ ,  $_{79}\text{Au}$ ,  $_{82}\text{Pb}$  and  $_{92}\text{U}$ . The individual fits are also represented by full lines.



**Fig. 9.** Evolution of the individual  $L_\gamma$  x-ray production cross sections  $\ln(\sigma_{exp}^x U_L^2/\bar{\sigma}_L)$  as a function of the normalized proton energy  $\ln(E/\lambda U_L)$  for  $^{50}\text{Sn}$ ,  $^{56}\text{Ba}$ ,  $^{62}\text{Sm}$ ,  $^{68}\text{Er}$ ,  $^{71}\text{Lu}$ ,  $^{74}\text{W}$ ,  $^{79}\text{Au}$ ,  $^{82}\text{Pb}$  and  $^{92}\text{U}$ . The individual fits are also represented by full lines.

**Table 3**Coefficients to deduce the  $L_{\alpha}$ ,  $L_{\beta}$  and  $L_{\gamma}$  empirical cross sections for elements with  $50 \leq Z \leq 92$  by proton impact using individual formula (Eq. (3)).

Z	$L_{\alpha}$			$L_{\beta}$			$L_{\gamma}$		
	$r_{0z}$	$r_{1z}$	$r_z$	$r_{0z}$	$r_{1z}$	$r_z$	$r_{0z}$	$r_{1z}$	$r_z$
50	27.29238	-1.10069	0.54384	27.15622	-1.33371	0.50094	25.85293	-1.95639	0.42579
51	27.30055	-1.12516	0.53595	27.28692	-1.30002	0.52775	25.14364	-1.17478	0.56743
52	27.03909	-0.93058	0.58734	27.09716	-1.16730	0.55301	25.17752	-1.23628	0.54860
53	26.64732	-0.6899	0.69406	27.37005	-1.46587	0.48187	24.94983	-1.03871	0.63031
55	26.90449	-0.78078	0.70802	26.91826	-0.97556	0.66745	23.99913	-0.20116	1.50112
56	28.15901	-1.93612	0.40878	28.98710	-2.88760	0.33845	29.31647	-4.77090	0.26108
57	27.69414	-1.52447	0.46365	28.22513	-2.24113	0.38931	28.40781	-3.90177	0.29492
58	27.93168	-1.74779	0.43071	29.27983	-3.03615	0.33379	28.22190	-3.70446	0.30511
59	27.11912	-1.05852	0.54169	27.71865	-1.69769	0.45054	26.87713	-2.52885	0.37418
60	27.08092	-1.03561	0.55234	27.72798	-1.75058	0.44705	26.60512	-2.31024	0.39543
62	27.30136	-1.28802	0.49303	27.90415	-1.73536	0.44640	27.77593	-3.28865	0.32708
63	27.94217	-1.59114	0.46079	28.51756	-2.21926	0.40504	30.27321	-5.31338	0.25238
64	28.07437	-1.78315	0.43241	29.52230	-3.13361	0.33486	30.78265	-5.75807	0.24033
65	27.21926	-1.15479	0.52307	27.96901	-1.88302	0.43239	27.69491	-3.10672	0.34205
66	27.98931	-1.74594	0.43270	29.64522	-3.26415	0.32443	29.88401	-5.03043	0.25812
67	27.42668	-1.31745	0.49252	27.87101	-1.79798	0.44015	26.55841	-2.22542	0.40180
68	27.48878	-1.36393	0.48533	28.79327	-2.54116	0.37122	29.29283	-4.42717	0.27997
69	27.81434	-1.62063	0.44694	29.17974	-2.87838	0.34525	30.3466	-5.43055	0.24437
70	26.84506	-0.98988	0.54693	28.33767	-2.23919	0.39357	26.28982	-2.11182	0.40793
71	27.73712	-1.56132	0.45536	28.60639	-2.40693	0.38301	27.44975	-2.85866	0.35657
72	25.90818	-0.56521	0.66089	-	-	-	-	-	-
73	26.89118	-1.02422	0.53726	27.41400	-1.68995	0.43736	27.70939	-3.2019	0.33631
74	27.06871	-1.11405	0.52186	27.46697	-1.65414	0.44577	28.30938	-3.60819	0.31383
77	27.72559	-1.59234	0.44493	-	-	-	-	-	-
78	27.82911	-1.63157	0.44151	26.79969	-1.34751	0.48105	25.79791	-1.74145	0.45993
79	26.82114	-1.01593	0.53668	26.65499	-1.17972	0.51185	25.81035	-1.88348	0.42633
80	26.99356	-1.15835	0.50705	29.02346	-2.73179	0.35638	30.67051	-5.58579	0.24715
81	26.46058	-0.86843	0.56454	26.81358	-1.31102	0.48998	24.38015	-1.0829	0.52310
82	27.00861	-1.10627	0.52017	26.98976	-1.38108	0.48307	25.39656	-1.6036	0.45522
83	26.94006	-1.11549	0.51179	28.22029	-2.23245	0.38808	32.74707	-7.38988	0.21021
90	26.64867	-1.02556	0.52460	-	-	-	-	-	-
92	25.59514	-0.54000	0.64879	24.97234	-0.51762	0.66078	24.69027	-1.15541	0.51112

## 2.2. Three dimensional (Z-Dependence) formula

In our recent papers ((Deghfel et al. (2013, 2015; 2016)) we have deduced a new semi-empirical cross sections by introducing the dependence on the atomic number of the target, noted as "Z-dependence" (pointing out that we are the first to propose this new treatment of the experimental data). With the same treatment, we generalize the formula (1) for the L line ( $L_{\alpha}$ ,  $L_{\beta}$  and  $L_{\gamma}$ ). So, the evolution of the reduced experimental data  $\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \bar{\omega}_L)$  (with the same number of experimental data used in the formula (1)) is presented in Figs. 4–6 as a function of the normalized proton energy ( $\ln(E/\lambda U_L)$ ) and the atomic number of the target (Z) for the three x-rays lines  $L_{\alpha}$ ,  $L_{\beta}$ ,  $L_{\gamma}$ . We suggest, in this work, the linear dependence on the atomic number of the distribution of the measured L x-ray production cross sections (see Figs. 4–6). Then the previous function (formula (1)) becomes:

$$\ln\left(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \bar{\omega}_L\right) = (r_2 + r_3 Z) [r_0 + r_1 e^{-r \ln(E/\lambda U_L)}] \quad (2)$$

where Z is the atomic number of the target. The fitting coefficients ( $r$ ,  $r_0$ ,  $r_1$ ,  $r_2$  and  $r_3$ ) for the Z-dependence procedure are also presented in Table 2. The Z-dependence fits ( $\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \bar{\omega}_L)$ ,  $\ln(E/\lambda U_L)$ , Z) are represented by a surface in Figs. 4–6 for the three lines  $L_{\alpha}$ ,  $L_{\beta}$  and  $L_{\gamma}$ .

## 2.3. Individual fit

Taking into account the dependence of the collision on the atomic number of the target, we propose that the data may be treated separately to study the difference between the global fit of the elements  $50 \leq Z \leq 92$  (Eq. (1) and (2)) and those obtained when each element is fitted separately. As previously, the rejection criterion of the experimental data, for which the ratio  $S = \sigma_{\text{exp}} / \sigma_{\text{ECPSSR}}$  varies within their angle of 0.5–1.5, is

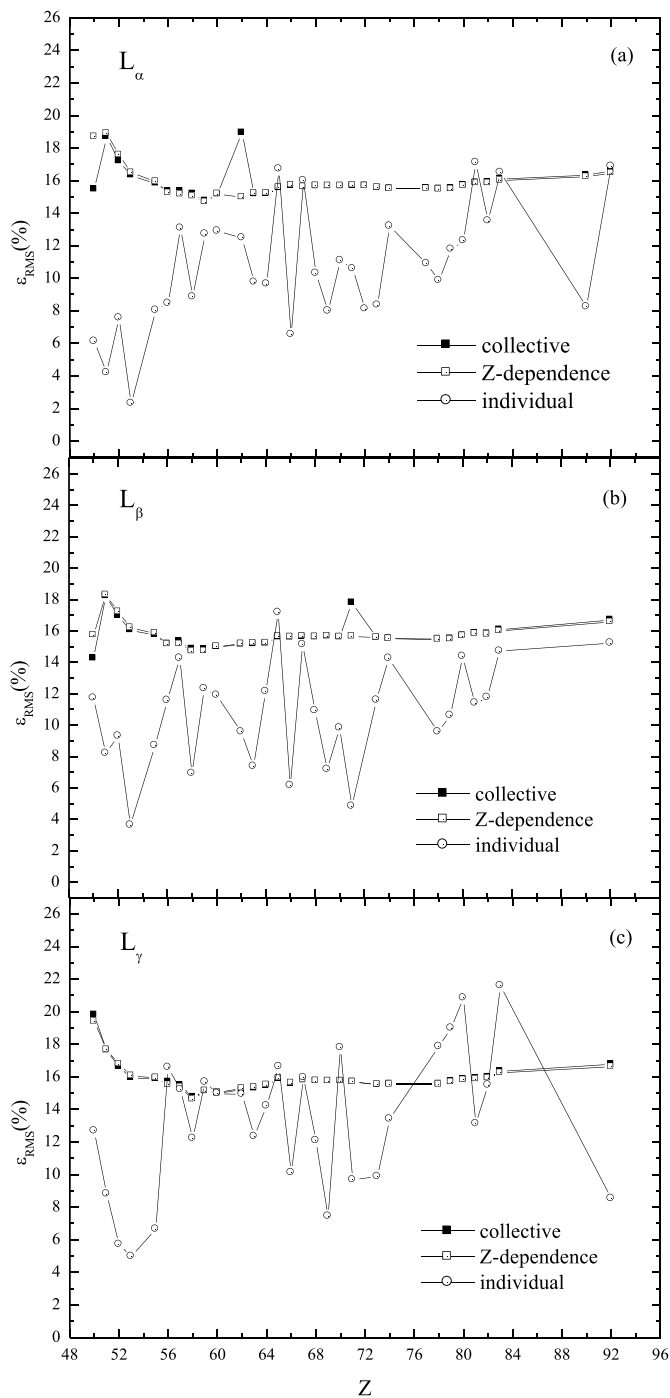
still going on for the sake of working in the same conditions. Our calculations are done for all elements for which experimental data for  $L_{\alpha}$ ,  $L_{\beta}$  and  $L_{\gamma}$  exist. We note that there are no experimental data namely in the region  $84 \leq Z \leq 89$  for the three lines  $L_{\alpha}$ ,  $L_{\beta}$  and  $L_{\gamma}$ . The lack of these experimental data is due to the fact that they are difficult to handle and not readily available (Miranda et al. (2013)). Our results are presented for some selected elements namely  $^{50}\text{Sn}$ ,  $^{56}\text{Ba}$ ,  $^{62}\text{Sm}$ ,  $^{68}\text{Er}$ ,  $^{71}\text{Lu}$ ,  $^{74}\text{W}$ ,  $^{79}\text{Au}$ ,  $^{82}\text{Pb}$  and  $^{92}\text{U}$ , as an illustration. For these 9 representative elements, we showed in Figs. 7–9 the evolution of the reduced experimental data  $\ln(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \bar{\omega}_L)$  as a function of the normalized proton energy ( $\ln(E/\lambda U_L)$ ) for the three lines  $L_{\alpha}$ ,  $L_{\beta}$  and  $L_{\gamma}$  respectively. We report the empirical cross sections based on formula (1) by fitting the same experimental data for all targets  $50 \leq Z \leq 92$  separately, according to the following expression:

$$\ln\left(\sigma_{\text{exp}}^X U_L^2 / \bar{\omega}_L\right) = r_{0z} + r_{1z} e^{-r_z \ln(E/\lambda U_L)} \quad (3)$$

The fitting results are also shown in Figs. 7–9. The set of coefficients  $r_z$ ,  $r_{0z}$  and  $r_{1z}$  for all elements are presented in Table 3 for the three x-rays lines  $L_{\alpha}$ ,  $L_{\beta}$  and  $L_{\gamma}$ .

The root-mean-square error ( $\epsilon_{\text{RMS}}$ ) is a frequently used quantity to check the quality and accuracy of the fit and measure the difference between values actually observed (experimental values) and those predicted by a model (semi-empirical). For each element and each x-ray line, the total deviation of N experimental data ( $\sigma_{\text{exp}}$ ) from their corresponding fitted values ( $\sigma_{\text{emp1,2,3}}$ ) is expressed in terms of the root-mean-square error ( $\epsilon_{\text{RMS}}$ ) using the following expression:

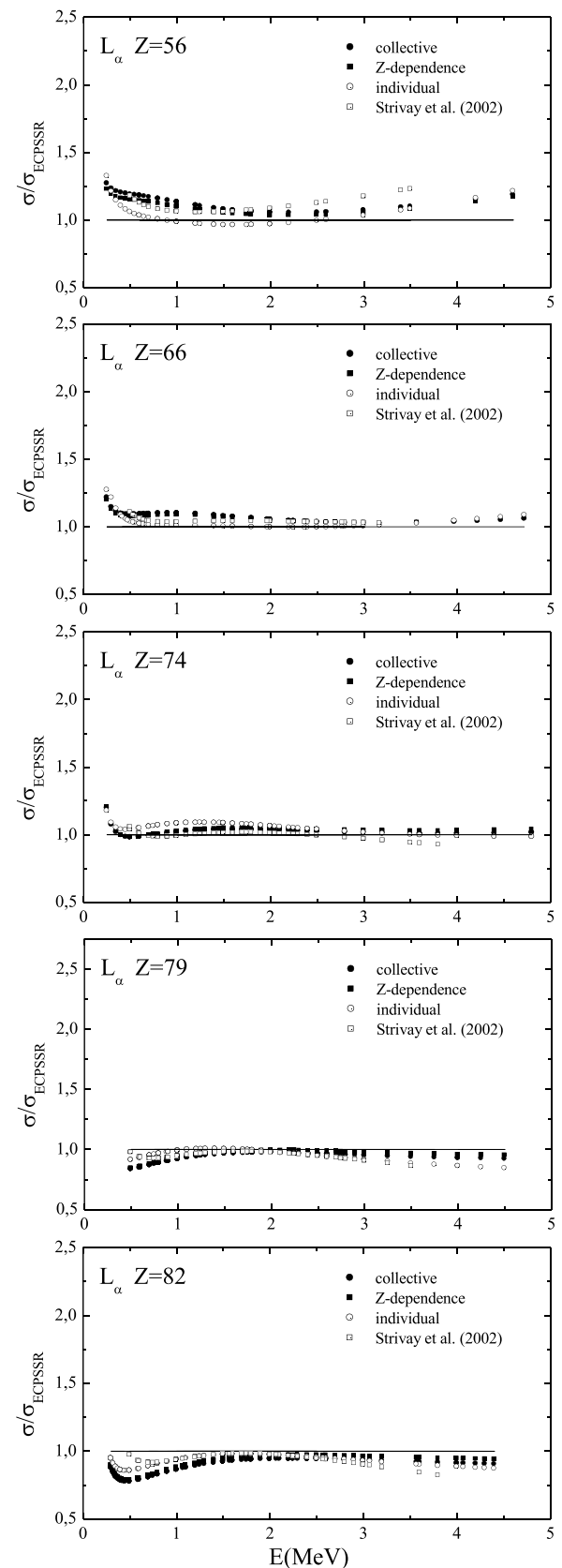
$$\epsilon_{\text{RMS}} = \left[ \sum_{j=1}^N \frac{1}{N} \left( \frac{\sigma_j(\text{exp}) - \sigma_j(\text{emp})}{\sigma_j(\text{emp})} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (4)$$



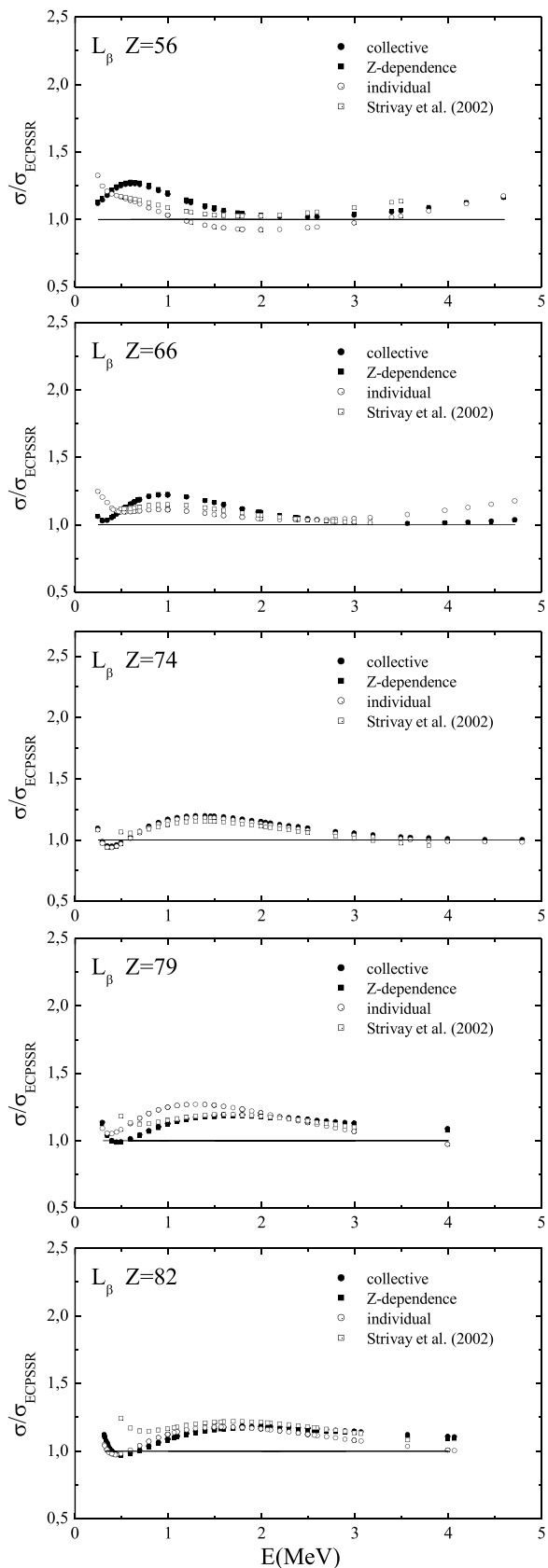
**Fig. 10.** Root-mean-square error ( $\epsilon_{RMS}$ ) of collective, Z-dependence and individual procedures for  $L_\alpha$  (a),  $L_\beta$  (b) and  $L_\gamma$  (c) lines as a function of the atomic number of the target (Z).

### 3. Discussion of results

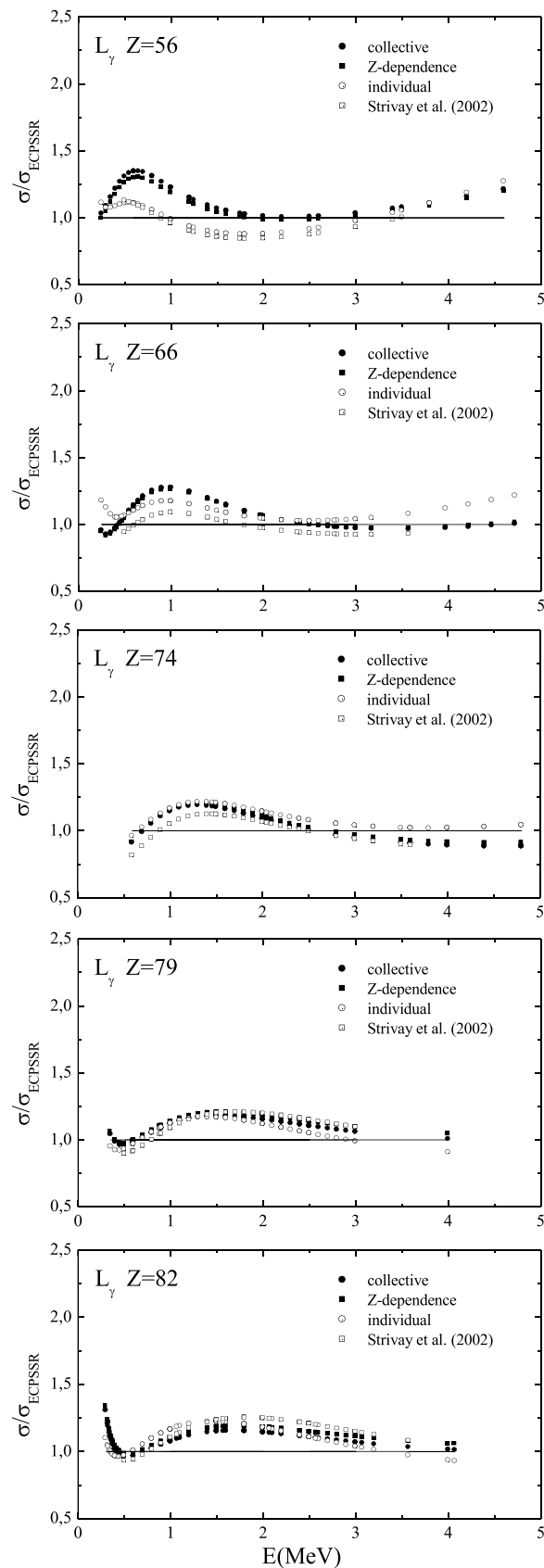
We noted that the number of experimental data of each formulae ((1), (2) and (3)) should be sufficient to produce a satisfactory fitting, and all figures (Figs. 1–9) is presented in order to point out the different spread of the data in each case. Also, we noted that the scatter of the experimental data is partly due to the fact that the data are taken from various references and sources and consequently measured in different experimental conditions. It must be emphasized that the fitting equations (1)–(3) and their associated coefficients are only valid in the region of the used experimental data (Deghfel et al. (2016)). Any extension of



**Fig. 11.** Empirical  $L_\alpha$  x-ray production cross sections deduced from Eq. (1) (collective), Eq. (2) (Z-dependence), Eq. (3) (individual) and those of Strivay and Weber<sup>[25]</sup> for selected elements ( $_{56}\text{Ba}$ ,  $_{66}\text{Dy}$ ,  $_{74}\text{W}$ ,  $_{79}\text{Au}$  and  $_{82}\text{Pb}$ ) as a function of the proton energy. All these cross sections are normalized to their corresponding ECPSSR calculations.



**Fig. 12.** Empirical  $L_{\beta}$  x-ray production cross sections deduced from Eq. (1) (collective), Eq. (2) (Z-dependence), Eq. (3) (individual) and those of Strivay and Weber<sup>[25]</sup> for selected elements ( $_{56}\text{Ba}$ ,  $_{66}\text{Dy}$ ,  $_{74}\text{W}$ ,  $_{79}\text{Au}$  and  $_{82}\text{Pb}$ ) as a function of the proton energy. All these cross sections are normalized to their corresponding ECPSSR calculations.



**Fig. 13.** Empirical  $L_{\gamma}$  x-ray production cross sections deduced from Eq. (1) (collective), Eq. (2) (Z-dependence), Eq. (3) (individual) and those of Strivay and Weber (2002) for selected elements ( $_{56}\text{Ba}$ ,  $_{66}\text{Dy}$ ,  $_{74}\text{W}$ ,  $_{79}\text{Au}$  and  $_{82}\text{Pb}$ ) as a function of the proton energy. All these cross sections are normalized to their corresponding ECPSSR calculations.

the fittings outside the corresponding ranges might give erroneous cross sections. The values of the root-mean-square error ( $\epsilon_{RMS}$ ) are presented in Fig. 10 ((a), (b) and (c)) for both collective, Z-dependence and individual procedures for the three x-rays lines  $L\alpha$ ,  $L\beta$  and  $L\gamma$  as a function of the atomic number Z. If we consider the fitting errors as accuracies on the deduced results, the examination of the Fig. 10 (a), (b) and (c) needs some comments:

- By comparing the two first approaches developed in this work (Eq. (1) and (2)), we notice that the values of the error related to the Z-dependence procedure are generally either less than those related to collective procedure (light relative deviation is observed between them) in most elements from Tin to Uranium for the three x-rays lines  $L\alpha$ ,  $L\beta$  and  $L\gamma$  and the deduction of the L x-ray production cross section in any way (Eq. (1) or (2)) leads to the same result within few percents (0.27%–0.48% for  $L\alpha$ , 0.38%–3.13% for  $L\beta$  and 0.96%–2.06% for  $L\gamma$ ). This is true despite the fact that the two formulae are based only on the experimental values via the fitting of the of the reduced experimental data ( $\ln(\sigma_{exp}^x U_L^2 / \bar{\omega}_L)$ ) by a first order exponential decay function, but the lack of parameter Z (the atomic number) in the first formula (Eq. (1)) adds an additional error for the deduction of the L x-ray production cross sections. Consequently, adding the atomic number in the empirical formula will reduce the error. The same results are observed for the calculation of the semi-empirical production cross section in our recent paper (see Deghfel et al. (2016)). The values of  $\epsilon_{RMS}$  reported by the two approaches vary as: for the collective formulae (Eq. (1)): 14.75%–18.94% for  $L\alpha$ , 14.25%–18.32% for  $L\beta$ , 14.75%–19.79% for  $L\gamma$  and for Z-dependence treatment (Eq. (2)) 14.68%–18.89% for  $L\alpha$ , 14.71%–18.29% for  $L\beta$ , 14.61%–19.39% for  $L\gamma$ .
- A comparison between the production cross sections deduced from formula (3), on the one hand, and those deduced from formulae (1) and (2), on the other, for all elements from  $_{50}\text{Sn}$  to  $_{92}\text{U}$ , enables us to indicate that, to determine a reliable cross section, the ideal situation is to perform the fitting of the experimental data for each element separately. This is interpreted by a maximum values of the root-mean-square errors ( $\epsilon_{RMS}$ ) that does not exceed the 12% namely for the two lines  $L\alpha$  and  $L\beta$ , except some isolated cases (13.07% for  $_{57}\text{La}$ , 16.71% for  $_{65}\text{Tb}$ , 15.99% for  $_{67}\text{Ho}$  and 16.87% for  $_{92}\text{U}$  for  $L\alpha$ ; 14.26% for  $_{57}\text{La}$ , 17.18% for  $_{65}\text{Tb}$ , 15.13% for  $_{67}\text{Ho}$  14.25% for  $_{74}\text{W}$ , 14.38% for  $_{80}\text{Hg}$  14.72% for  $_{83}\text{Bi}$  and 15.23% for  $_{92}\text{U}$  for  $L\beta$ ). For the  $L\gamma$  line, in general it can be stated that the root-mean-square errors ( $\epsilon_{RMS}$ ) for both collective and Z-dependence procedures are higher than the values for the individual fit ( $\epsilon_{RMS}^{(Eq.1)}$ ,  $\epsilon_{RMS}^{(Eq.2)}$  >  $\epsilon_{RMS}^{(Eq.3)}$ ), but the situation is less satisfied and the spread of the data is more pronounced ( $\epsilon_{RMS}$  ranging from 14.21% up to 21.59% for 14 elements: 16.57% for  $_{56}\text{Ba}$ , 15.21% for  $_{57}\text{La}$ , 15.67% for  $_{59}\text{Pr}$ , 14.97% for  $_{60}\text{Nd}$ , 14.92% for  $_{62}\text{Sm}$ , 14.21% for  $_{64}\text{Gd}$ , 16.62% for  $_{65}\text{Tb}$ , 15.95% for  $_{67}\text{Ho}$ , 17.79% for  $_{70}\text{Yb}$ , 17.85% for  $_{78}\text{Pt}$ , 18.89% for  $_{79}\text{Au}$ , 20.84% for  $_{80}\text{Hg}$ , 15.49% for  $_{82}\text{Pb}$  and 21.59% for  $_{83}\text{Bi}$ ). This is due to the fact that  $L\alpha$  and  $L\beta$  are the most prominent L x-ray lines and consequently the corresponding production cross sections are measured with better accuracy by comparison to the  $L\gamma$  lines.

In addition, we present our results of the empirical cross sections from both collective, Z-dependence and individual procedures (Eq. (1), (2) and (3)) for selected elements, namely  $_{56}\text{Ba}$ ,  $_{66}\text{Dy}$ ,  $_{74}\text{W}$ ,  $_{79}\text{Au}$  and  $_{82}\text{Pb}$ . So, ratios to the ECPSSR calculations of the empirical L x-ray production cross sections of Strivay and Weber (2002) and those deduced from Eqs. (1)–(3) as a function of the proton energy, are presented in Figs. 11–13 for the three lines  $L\alpha$ ,  $L\beta$  and  $L\gamma$  respectively. From the examination of the above-mentioned figures and by comparison of the cross section deduced from the three procedures described here with other theoretical and experimental works, we notice that:

- For  $L\alpha$ : By investigation of the results obtained by the global and individual fit (i.e. formulae (1), (2) and (3)), we observe that the values deduced from the formula (3) coincide very well with the theoretical values over the whole energy range used for both elements  $_{56}\text{Ba}$ ,  $_{66}\text{Dy}$ ,  $_{79}\text{Au}$  and  $_{82}\text{Pb}$ . Also, the agreement between our empirical cross sections and those of Strivay and Weber (2002) is excellent for the whole range of the proton energy for both elements  $_{56}\text{Ba}$ ,  $_{66}\text{Dy}$ ,  $_{74}\text{W}$ ,  $_{79}\text{Au}$  and  $_{82}\text{Pb}$  whereas our cross sections results deduced from the three formulae and Strivay's values are less satisfactory with the theoretical calculation at low energies ( $E < 0.5$  MeV).
- For  $L\beta$  line: The situation is similar to that of the  $L\alpha$  line for the empirical cross sections. The agreement between the three sets of empirical cross sections and the ECPSSR results is quite satisfactory. Also, for the five elements  $_{56}\text{Ba}$ ,  $_{66}\text{Dy}$ ,  $_{74}\text{W}$ ,  $_{79}\text{Au}$  and  $_{82}\text{Pb}$  the agreement between our empirical L $\alpha$  production cross section and those of Strivay and Weber (2002), is good. In this case the deviation between our  $L\beta$  empirical cross sections (formulae (1), (2) and (3)) and the results of Strivay and Weber<sup>[11]</sup> of is about 12% in the worst case.
- For  $L\gamma$  line: The results are less satisfactory as large discrepancies are observed for all elements  $_{56}\text{Ba}$ ,  $_{66}\text{Dy}$ ,  $_{74}\text{W}$ ,  $_{79}\text{Au}$  and  $_{82}\text{Pb}$ , either for our results or for the results of Strivay and Weber (2002). With the maintains that the values deduced by the individual procedure are closer to the theoretical values for all the five elements.

#### 4. Conclusion

In this contribution, we report the empirical  $L\alpha$ ,  $L\beta$  and  $L\gamma$  x-ray production cross sections with their corresponding fitting parameters for elements with atomic numbers ( $50 \leq Z \leq 92$ ) by proton impact. The deduced empirical cross sections present a good compromise to the theoretical values for the whole range of proton energies used, especially for a set of parameters where the fitting for each element is separately adopted. By considering the root-mean-square error ( $\epsilon_{rms}$ ) as a criterion of the accuracy of the deduced cross sections, we can safely conclude that the empirical cross sections described by Eq. (3) give a better representation of the experimental data than those deduced using the whole range of experimental data (collective or Z-dependence). Finally, a new set of coefficients, for L x-ray production cross sections, is proposed, in the present manuscript, to workers in the field of atomic inner-shell ionization processes and related phenomena such as PIXE analysis, where accurate values are needed.

#### Declaration of competing interest

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

#### References

- Abdellatif, A., Kahoul, A., Deghfel, B., Nekkab, M., Medjadi, D.E., 2012. Analytical formulas for calculation of K X-ray production cross sections by alpha ions. *Radiat. Phys. Chem.* 81, 499–505.
- Bendjedj, A., Deghfel, B., Kahoul, A., Derradj, I., Khalfallah, F., Sahnoune, Y., Bentabet, A., Nekkab, M., 2016. L-shell fluorescence yields and total ionization and x-ray production cross sections for elements with  $40 \leq Z \leq 92$ . *Radiat. Phys. Chem.* 117, 128–134.
- Bendjedj, A., Deghfel, B., Derradj, I., Kahoul, A., Khalfallah, F., Sahnoune, Y., Bentabet, A., Nekkab, M., 2017. Empirical L shell fluorescence yields for elements with  $40 \leq Z \leq 92$ . *Acta Phys. Pol., A* 131, 13–15.
- Brandt, W., Lapicki, G., 1979. L-shell Coulomb ionization by heavy charged particles. *Phys. Rev. A* 20, 465–480.
- Brandt, W., Lapicki, G., 1981. Energy-loss effect in inner-shell Coulomb ionization by heavy charged particles. *Phys. Rev. A* 23, 1717–1729. Khandelwal, G.S., Merzbacher E. 1966a. Stopping Power of M Electrons. *Phys. Rev.* 144, 349–352.
- Choi, B.H., 1973. Cross section for M-shell ionization in heavy atoms by collision of simple heavy charged particles. *Phys. Rev. A* 7, 2056–2062.



- Deghfel, B., Nekkab, M., Kahoul, A., 2009. M X-ray production cross sections for heavy elements by proton impact. *X-ray spectrum* 38, 399–406.
- Deghfel, B., Kahoul, A., Nekkab, M., 2010. New semi-empirical formulas for calculation of K-shell ionization cross sections of elements from beryllium to uranium by proton impact. *X-ray spectrum* 39, 296–301.
- Deghfel, B., Kahoul, A., Kerai, S., Saadaoui, M., Dechoucha, S., Nekkab, M., 2013a. Z-dependence and collective analysis of M x-ray production cross sections for a wide range of elements ( $60 < Z < 90$ ) by proton impact. *Radiat. Phys. Chem.* 92, 32–36.
- Deghfel, B., Kahoul, A., Heraiz, S., Belouadah, N., Nekkab, M., 2013b. M x-ray production cross sections of heavy elements for low and high proton energy. *Radiat. Phys. Chem.* 85, 89–94.
- Deghfel, B., Kahoul, A., Nekkab, M., 2014a. Hafnium to thorium M-shell X-ray production cross sections by proton impact. *J. Radiat. Res. Appl. Sci.* 7, 512–518.
- Deghfel, B., Kahoul, A., Nekkab, M., 2014b. Proton induced K-shell ionization cross sections for a wide range of elements ( $4 < Z < 92$ ) within ECPSSR theory and updated experimental data. *J. Radiat. Res. Appl. Sci.* 607–613.
- Deghfel, B., Khalfallah, F., Kahoul, A., Nekkab, M., 2015. Empirical M X-ray production cross sections for heavy elements by proton impact within Z-dependence analysis. *Turk. J. Phys.* 39, 302–308.
- Deghfel, B., Kahoul, A., Derradj, I., Bendjedi, A., Khalfallah, F., Sahnoune, Y., Bentabet, A., Nekkab, M., 2016. Three dimensional (Z-dependence), collective and individual semi-empirical formulae for L X-ray production and ionization cross section by protons impact within corrected ECPSSR theory and updated experimental data: a review. *X-ray spectrum* 45, 247–257.
- Derradj, I., Kahoul, A., Deghfel, B., Bendjedi, A., Khalfallah, F., Sahnoune, Y., Bentabet, A., Nekkab, M., 2016. L-shell cross section within corrected ECPSSR theory and updated experimental data. *Radiat. Phys. Chem.* 121, 81–86.
- García, J.D., 1970. Inner-shell ionizations by proton impact. *Phys. Rev. A* 1, 280–285.
- Hubbell, J.H., Trehan, P.N., Singh, N., Chand, B., Mehta, D., Garg, M.L., Garg, R.R., Singh, S., Puri, S., 1994. A review, bibliography, and tabulation of K, L, and higher atomic shell X-ray fluorescence yields. *J. Phys. Chem. Ref. Data* 23, 339–364.
- Kahoul, A., Nekkab, M., 2005. L1, L2 and L3 subshell ionization cross sections for elements with for protons of 0.5 to 3.0 MeV. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 234, 412–418.
- Kahoul, A., Nekkab, M., Deghfel, B., 2008a. Semi-empirical and empirical formulas for calculation of K-shell ionization cross sections by proton impact: a comparison. *X-ray spectrum* 37, 536–543.
- Kahoul, A., Nekkab, M., Deghfel, B., 2008b. Empirical K-shell ionization cross-sections of elements from 4Be to 92U by proton impact. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 266, 4969–4975.
- Kahoul, A., Deghfel, B., Abdellatif, A., Nekkab, M., 2011. New procedure calculation of K-shell ionization cross sections by proton impact. *Radiat. Phys. Chem.* 80, 1300–1311.
- Khandelwal, G.S., Merzbacher, E., 1966. Characteristic X-ray production in atomic L-M Subshells. *Phys. Rev.* 151, 12–13.
- Lapicki, G., 2009. Evaluation of cross sections for L $\alpha$  x-ray production by up to 4 MeV protons in representative elements from silver to uranium. *J. Phys. B Atom. Mol. Opt. Phys.* 42, 145204–145210.
- Lapicki, G., Miranda, J., 2018. Universal empirical fit to L-shell X-ray production cross sections in ionization by protons. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 414, 184–189.
- Lapicki, G., 2020. The status of theoretical L-shell x-ray production cross sections by protons based on their revised universal empirical fit. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 467, 123–129.
- Merzbacher, E., Lewis, H.W., 1958. X-ray production by heavy charged particles. *Handbook der Physik* 34, 166–192.
- Miranda, J., Murillo, G., Mendez, B., Lopez-Monroy, J., Aspiazua, J., Villasenor, P., Pineda, J.C., Reyes-Herrera, J., 2013. Measurement of L X-ray production cross sections by impact of proton beams on Hf, Ir, and Tl. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 316, 113–122.
- Miyagawa, Y., Nakamura, S., Miyagawa, S., 1988. Analytical formulas for ionization cross sections and coster-kronig corrected fluorescence yields of the L1, L2, and L3 subshells. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 30, 115–122.
- Nekkab, M., Kahoul, A., 2006. Semi-empirical and empirical L X-ray production cross sections for elements with for protons of 0.5 - 3.0 MeV. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 245, 395.
- Orlic, I., 1994. Present status of the experimental L-shell ionization cross sections for light ion impact, 87, pp. 285–292.
- Orlic, I., Sow, C.H., Tang, S.M., 1994. Semiempirical formulas for calculation of L subshell ionization cross sections. *Int. J. PIXE* 4, 217–230.
- Reis, M.A., Jesus, A.P., 1996. Semiempirical approximation to cross sections for L X-ray production by proton impact. *Atom. Data nucl. Data Tables* 63, 1–55.
- Šmit, Z., Lapicki, G., 2014. Energy loss in the ECPSSR theory and its calculation with exact integration limits. *J. Phys. B Atom. Mol. Opt. Phys.* 47, 55203–55207.
- Sow, C.H., Orlic, I., Loh, K.K., Tang, S.M., 1993. New parameters for the calculation of L subshell ionization cross sections. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 75, 58–62.
- Strivay, D., Weber, G., 2002. An empirical formula for L line X-ray production cross-section of elements from Ag to U for protons below 3.5 MeV. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 190, 112–116.

## Abstract

We have presented in this work the results of the calculations of the ionization cross sections of the L subshells (L1, L2 and L3) and of the X-rays production cross section of the three lines ( $L\alpha$ ,  $L\beta$  and  $L\gamma$ ) by impact of protons of the atomic elements. The theoretical calculation is based on the ECPSSR model, while the calculation of empirical cross sections is based on the use of the experimental values. A close and comparative study of the different empirical analytical formulae was then carried out. This analysis focused on three aspects of the problem: collective examination of the atomic elements, three-dimensional examination (by introducing the dependence on the atomic number of the target Z, denoted "Z-dependence") and individual examination of each element separately. From the study presented in this work, we can conclude that the empirical cross sections described by the individual fitting give a better representation of the cross sections than those deduced from the whole experimental data (collective or Z-dependence).

## Résumé

Nous avons présenté dans ce travail les résultats des calculs des sections efficaces d'ionisation des sous-couches L (L1, L2 et L3) et de production des rayons X des raies L ( $L\alpha$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$ ) par impacte de protons des éléments atomiques. Le calcul théorique est basé sur le modèle ECPSSR, tandis que le calcul des sections efficaces empiriques repose sur l'utilisation des valeurs expérimentales. Une étude de près et comparative des différentes formules analytiques empirique a été ensuite réalisée. Cette analyse a porté sur trois aspects du problème : examen collectif des éléments atomiques, examen à trois dimensions (en introduisant la dépendance au numéro atomique de la cible Z, notée « Z-dépendance ») et examen individuel de chaque élément séparément. D'après l'étude présentée dans ce travail, nous pouvons conclure que les sections efficaces empiriques décrites par l'ajustement individuel donnent une meilleure représentation des sections efficaces que celles déduites à partir de l'ensemble des données expérimentales (collectives ou Z-dépendance).

## ملخص

لقد قدمنا في هذا العمل نتائج حسابات المقاطع العرضية للتأين للمدارات الجزئية (L1 و L2 و L3) و المقاطع العرضية لإنتاج الأشعة السينية للخطوط ( $L\alpha$  و  $L\beta$  و  $L\gamma$ ) بتأثير البروتونات لمجموعة من العناصر الذرية. يعتمد الحساب النظري على النموذج ECPSSR ، بينما يعتمد حساب المقاطع العرضية المحاكاتية على استخدام القيم التجريبية. ثم أجريت دراسة ومقارنة للصيغ التحليلية المحاكاتية المختلفة. ركز هذا التحليل على ثلاثة جوانب من المشكلة: الفحص الجماعي للعناصر الذرية ، والفحص ثلاثي الأبعاد (من خلال إدخال الاعتماد على العدد الذري Z للهدف) والفحص الفردي لكل عنصر على حدة. من الدراسة المقدمة في هذا العمل ، يمكننا أن نستنتج أن المقاطع العرضية التجريبية الموصوفة بواسطة التركيب الفردي تعطي تمثيلاً أفضل للمقاطع العرضية من تلك المستخلصة من البيانات التجريبية بأكملها (الاعتماد الجماعي أو الاعتماد الثلاثي على Z)