



Mémoire de fin d'études

PRESENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLOME DE : Master

Filière : Physique
Option : Physique des Matériaux

THÈME :

Calcul du rapport d'intensité de l'émission des rayons X $\left(\frac{I_{Ll}}{I_{L\alpha}}\right)$
des éléments atomiques de $39 \leq Z \leq 94$: Approche semi-empirique

Préparé par : BENDJEDI Imene

Soutenu le : 02/06/2026

Devant le jury :

Président :	KHALFALLAH Farid	MCA	Université de BBA
Rapporteur :	KAHOUL AbdelHalim	Pr	Université de BBA
Co-rapporteur :	ZIDI Amina	Docteur	Université de BBA
Examineur :	DAOUDI Salim	Pr	Université de BBA
Examineur :	KOUSSA Walid	MCB	Université de BBA

Année Universitaire 2025-2026

Remerciements

Avant tout, je remercie Allah le Tout-Puissant de m'avoir accordé la force, la patience et la volonté nécessaires pour mener à bien ce travail. Louange à Lui pour toutes Ses bénédictions.

J'adresse mes sincères remerciements à mon encadreur, **Pr. KAHOUL Abdelhalim**, pour son accompagnement bienveillant, ses précieux conseils scientifiques, son soutien constant et sa patience tout au long de la réalisation de ce mémoire. Ses orientations ont été d'une valeur inestimable pour l'aboutissement de ce travail.

J'adresse également mes sincères remerciements à **Mlle. ZIDI Amina**, pour son aide précieuse, sa disponibilité et le soutien qu'elle m'a apporté tout au long de ce travail.

Je tiens également à remercier **Dr. KHALFALLAH Farid** pour l'honneur qu'il m'a fait en acceptant de présider le jury de soutenance.

Mes remerciements s'adressent également à **Pr. DAOUDI Salim** et **Dr. KOUSSA Walid** pour avoir accepté d'examiner et d'évaluer ce travail, ainsi que pour leurs remarques constructives et leurs précieuses observations.

Je remercie également l'ensemble des enseignants du département de physique pour leur contribution à ma formation académique et scientifique tout au long de mon parcours universitaire.

Je n'oublie pas de remercier mes collègues et amis pour leur soutien moral, leurs encouragements et les agréables moments partagés tout au long de ces années d'études.

Enfin, j'exprime ma profonde gratitude à ma famille, qui a toujours constitué mon plus grand soutien, par son amour inconditionnel, sa patience et ses encouragements permanents.

Merci à tous.

Dédicace

Je dédie ce modeste travail à mes chers parents, pour leur amour inconditionnel, leurs sacrifices et leurs encouragements qui m'ont portée jusqu'ici.

À toute ma famille, pour leur soutien et leur présence à chaque étape de ce parcours.

À mes amies et collègues, pour les moments partagés et la solidarité.

À tous ceux qui ont cru en moi.

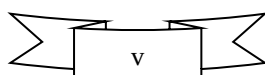
Table des matières

Introduction générale	1
 <u>Chapitre I</u> : Rappels théoriques : interaction des rayonnements avec la matière	
I.1 Introduction.....	3
I.2 Définition de la matière	3
I.3 L'atome.....	3
I.3.1 L'atome dans la mécanique quantique.....	6
I.3.2 Transitions électroniques :	7
I.3.3 Règles de sélection :.....	8
I.4 Les rayonnements	8
I.4.1 Classification des rayonnements.....	9
I.4.1.1 Rayonnement particulaire (corpusculaire).....	9
I.4.1.2 Rayonnement électromagnétique	9
I.4.2 Les rayons γ	10
I.4.3 Les rayons X	10
I.5 Interaction du rayonnement électromagnétique avec la matière	11
I.5.1 L'effet photoélectrique.....	11
I.5.2 L'effet Compton.....	12
I.5.3 La création de paires	13
I.6 L'atténuation du rayonnement dans la matière.....	15
I.6.1 Loi d'atténuation.....	16
I.6.1.1 Coefficient d'atténuation.....	16
I.6.1.2 Atténuation et mécanismes d'interaction.....	16
I.6.1.3 Couche de demi-atténuation (CDA).....	17
I.7 Sections efficaces de production des rayons X.....	17
I.7.1 Dynamique des transitions électroniques.....	18
I.8 Processus radiatif	19
I.8.1 La fluorescence X	19
I.8.1.1 Principe de la fluorescence X.....	20
I.8.2 Processus de relaxation non radiatifs	21
I.8.2.1 Effet Auger.....	21
I.8.2.2 Transitions de Coster-Kronig	22
I.9 Nomenclature et notations des raies X	22

I.10 Rapport des intensités d'émission des rayons X.....	23
I.10.1 Largeurs radiative et non radiative	24
I.10.2 Calcul des rapports d'intensité.....	25
I.11 Références bibliographiques	26

Chapitre II : Calcul semi-empirique du rapport des intensités d'émission de rayons X $\left(\frac{I_{Ll}}{I_{L\alpha}}\right)$

II.1 Introduction	28
II.2 Base de données	29
II.3 Calcul semi-empirique	29
II.4 Résultats et discussion	31
II.5 Références bibliographiques	37
Conclusion générale.....	38



Liste des figures

Figure I.1: La structure de l'atome.....	4
Figure I.2: Représentation de la notation nucléaire d'un élément chimique.	5
Figure I.3: Répartition des électrons dans les couches électroniques de l'atome.	6
Figure I.4: Les rayonnements électromagnétiques (Abbassi, 2023).	10
Figure I.5: Représentation schématique de l'effet photoélectrique (Benhalouche, 2014).	12
Figure I.6: Représentation schématique de la diffusion Compton (Benhalouche, 2014).	13
Figure I.7: Représentation schématique du phénomène de production de paires (Adnan, 2014).	14
Figure I.8: Zones de dominance de l'effet photoélectrique, de la diffusion Compton et de la production de paires en fonction du numéro atomique Z du matériau et de l'énergie du photon (Benissaad, 2023).	15
Figure I.9: Représentation d'atténuation dans la matière et absorption de photon (Zidi, 2021)	15
Figure I.10: Principe de fluorescence des rayons X	20
Figure I.11: Représentation schématique d'une transition Auger (Meddah, 2021).	22
 Figure II.1: Distribution de R en fonction du numéro atomique Z	 31
Figure II.2: Comparaison nos semi-empiriques du rapport d'intensité I_{L1} / I_{La} avec les données théoriques de Scofield. (1974) les résultats ajustés de Salem <i>et al.</i> , (1974), et les résultats expérimentaux de Rao <i>et al.</i> , (1971), Ertuğrul, (1997), Öz <i>et al.</i> , 2004, Akman <i>et al.</i> , (2015) et Alqadi <i>et al.</i> , (2023), en fonction du numéro atomique Z	34

Listes des tableaux

Tableau I.1: Les nombres quantiques associés aux couches et sous-couches électroniques.	7
Tableau I.2: Correspondance entre les raies désignées selon les notations de Siegbahn, de l'IUPAC et de la configuration électronique (Ec) (Zidi <i>et al.</i> , 2024).....	23
Tableau II.1: Rapports d'intensité ($I_{L\beta} / I_{L\alpha}$) semi-empiriques (ce travail), ainsi que théoriques, empiriques et expérimentaux (autres travaux), pour les éléments de $39 \leq Z \leq 94$	32

Introduction générale

L'étude des interactions entre le rayonnement et la matière occupe une place essentielle dans le développement de la physique moderne, en particulier dans le domaine de la physique atomique. Cette discipline, développée à partir du XIX^e siècle, s'intéresse à la structure de l'atome, à l'organisation des niveaux d'énergie électroniques ainsi qu'aux différents phénomènes résultant des transitions électroniques. Les avancées réalisées dans ce domaine ont permis une meilleure compréhension des propriétés atomiques et ont conduit au développement de nombreuses applications scientifiques, industrielles et médicales.

L'atome est constitué d'un noyau central autour duquel gravitent des électrons répartis sur différentes couches électroniques (K, L, M, N, ...), chacune correspondant à des niveaux d'énergie quantifiés. Les électrons des couches internes sont fortement liés au noyau, tandis que ceux des couches externes possèdent des énergies plus élevées. Lorsqu'un atome interagit avec un rayonnement électromagnétique ou avec des particules énergétiques, des transitions électroniques peuvent se produire, donnant lieu à plusieurs phénomènes physiques tels que l'ionisation, l'absorption et l'émission des rayons X.

Parmi les techniques d'analyse les plus importantes reposant sur ces phénomènes figure la fluorescence X, largement utilisée pour l'identification et la caractérisation des éléments chimiques. Lorsqu'un électron d'une couche interne est éjecté sous l'effet d'un rayonnement incident, une lacune électronique est créée. Cette lacune est ensuite comblée par un électron provenant d'une couche supérieure, entraînant l'émission d'un photon X caractéristique de l'élément considéré. Les énergies et les intensités de ces émissions constituent des paramètres fondamentaux en spectroscopie des rayons X.

L'étude des paramètres atomiques associés aux émissions X, tels que les probabilités de transition, les rendements de fluorescence, les sections efficaces de production et les rapports d'intensité des raies caractéristiques, joue un rôle essentiel dans l'interprétation des spectres X et dans la compréhension des interactions rayonnement-matière. Parmi ces paramètres, les rapports d'intensité des raies de la couche L présentent un intérêt particulier en raison de la complexité des transitions électroniques impliquées et de leur sensibilité à la structure atomique des éléments lourds.

Cependant, la détermination expérimentale de ces grandeurs demeure souvent difficile en raison des incertitudes de mesure, de la complexité des structures atomiques et de la disponibilité limitée de certaines données expérimentales. Pour cette raison, les approches semi-empiriques constituent une alternative importante permettant d'estimer ces paramètres à partir de données expérimentales et de modèles théoriques, notamment les valeurs théoriques de Scofield.

Dans ce contexte, le présent travail porte sur l'étude et la modélisation semi-empirique du rapport d'intensité des émissions des rayons X $\left(\frac{I_{Ll}}{I_{L\alpha}}\right)$ pour des éléments dont le numéro atomique appartient à l'intervalle $39 \leq Z \leq 94$. L'objectif principal de cette étude est d'établir une relation semi-empirique fiable permettant de décrire l'évolution de ce rapport en fonction du numéro atomique, tout en comparant les résultats obtenus aux données disponibles dans la littérature.

Ce mémoire est organisé en deux chapitres :

- Le premier chapitre présente les notions fondamentales relatives à la physique atomique, aux interactions rayonnement-matière ainsi qu'aux mécanismes d'émission des rayons X, en particulier ceux associés à la couche L.
- Le deuxième chapitre est consacré à la méthodologie adoptée, au calcul des valeurs semi-empiriques du rapport d'intensité $\left(\frac{I_{Ll}}{I_{L\alpha}}\right)$, ainsi qu'à l'analyse et à la comparaison des résultats obtenus avec les données de la littérature.

Enfin, une conclusion générale résume les principaux résultats obtenus et met en évidence les perspectives envisagées pour des travaux futurs dans le domaine de la spectroscopie des rayons X.

Chapitre I :

Rappels théoriques : interaction des rayonnements avec la matière

I.1 Introduction

L'interaction du rayonnement avec la matière représente un domaine fondamental de la physique atomique, en particulier dans l'étude des rayons X. Les mécanismes d'interaction dépendent de l'énergie du rayonnement incident ainsi que de la structure électronique des atomes.

À l'échelle macroscopique, ces interactions se traduisent par des phénomènes tels que l'absorption et la diffusion du rayonnement, accompagnés d'effets physiques comme l'ionisation et l'excitation des atomes. À l'échelle microscopique, elles impliquent essentiellement les électrons des différentes couches électroniques, notamment ceux de la couche L, qui jouent un rôle important dans les processus d'émission des rayons X caractéristiques.

Ainsi, le rayonnement X constitue un outil d'analyse particulièrement efficace pour l'exploration de la structure de la matière à travers l'étude des transitions électroniques et des phénomènes d'interaction rayonnement-matière.

Dans ce chapitre, nous présentons les bases théoriques des interactions du rayonnement avec la matière ainsi que les mécanismes d'émission des rayons X.

I.2 Définition de la matière

La matière est définie comme toute substance possédant une masse et occupant un volume dans l'espace. Elle est constituée d'unités fondamentales appelées atomes, qui représentent les éléments de base de toutes les substances. Ces atomes peuvent s'associer entre eux pour former des molécules, à l'origine de la diversité des formes de la matière.

Selon les conditions de température et de pression, la matière peut exister sous différents états physiques, notamment solide, liquide et gazeux. Elle peut également subir des transformations physiques ou chimiques, tout en respectant la loi de conservation de la masse.

I.3 L'atome

La matière est constituée d'unités élémentaires appelées atomes, qui représentent les constituants fondamentaux des éléments chimiques. Chaque atome correspond à la plus petite entité capable de conserver les propriétés chimiques d'un élément. Les différents éléments chimiques se

distinguent par leur structure interne, leur masse atomique ainsi que par leurs propriétés physico-chimiques, qui dépendent essentiellement de leur structure électronique et nucléaire.

L'atome est constitué de deux parties principales :

- **Le noyau** : situé au centre de l'atome, il est composé de protons et de neutrons, appelés collectivement nucléons.

Les protons portent une charge électrique positive, tandis que les neutrons sont électriquement neutres. La masse du proton et celle du neutron sont voisines et valent approximativement $1.67 \times 10^{-27} \text{Kg}$.

- **Les électrons** : ce sont des particules de charge électrique négative qui gravitent autour du noyau sur différentes couches électroniques. Leur masse est beaucoup plus faible que celle des nucléons et vaut environ $9.109 \times 10^{-31} \text{Kg}$.

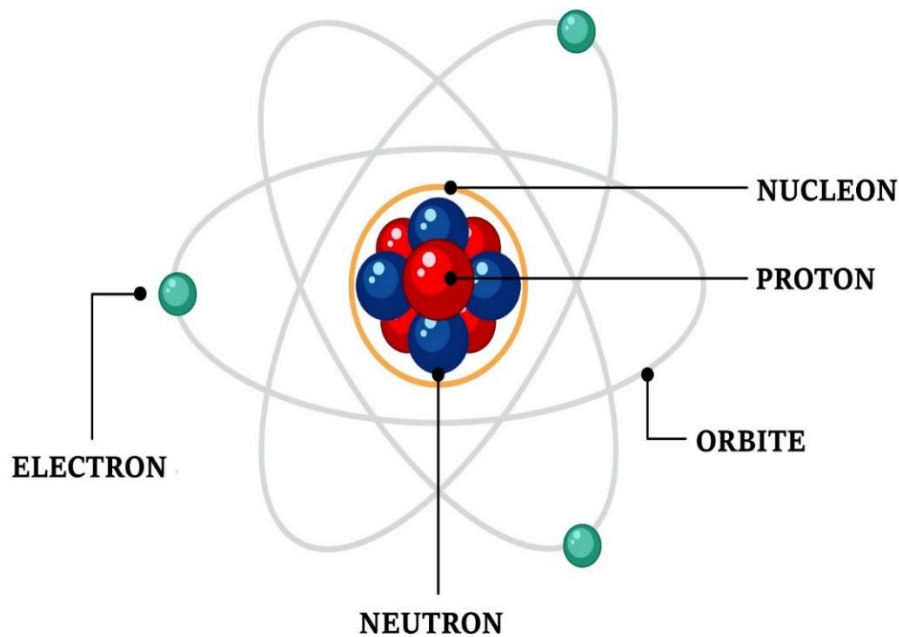


Figure I.1: La structure de l'atome (Bouarissa, 2024).

La représentation symbolique d'un atome de symbole X, dont le noyau contient Z protons et A nucléons, est donnée par la notation suivante :

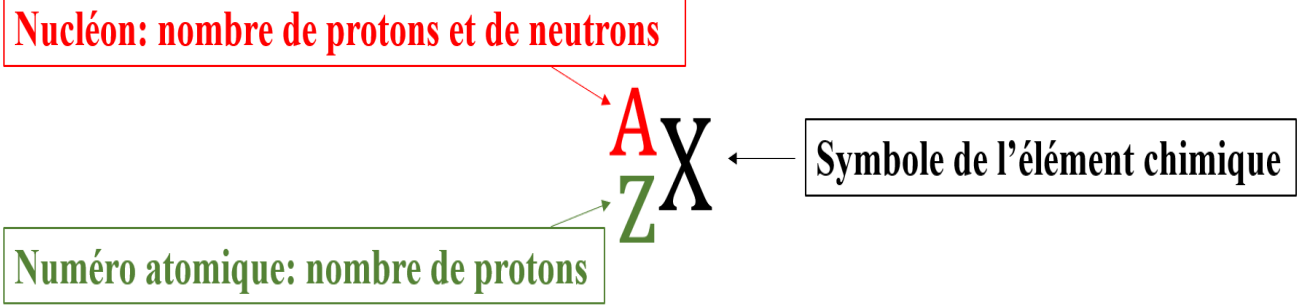


Figure I.2: Représentation de la notation nucléaire d'un élément chimique.

L'atome constitue l'unité fondamentale de la matière et représente l'élément de base de toute structure matérielle. Il est formé d'un noyau central autour duquel gravitent des électrons répartis sur différents niveaux d'énergie appelés couches électroniques (K, L, M, N, ...).

Au sein de l'atome, les électrons ne possèdent pas les mêmes énergies. Ils se distribuent suivant différents niveaux énergétiques selon une organisation bien définie appelée configuration électronique. Chaque couche électronique ne peut contenir qu'un nombre limité d'électrons, conformément au principe d'exclusion de Pauli. Le nombre maximal d'électrons pouvant être contenus dans une couche de nombre quantique principal n est donné par la relation :

$$N_{MAX} = 2n^2 \quad (I.1)$$

Où N_{MAX} représente la capacité maximale de la couche électronique considérée (Benissad, 2023).

Ainsi, les principales couches électroniques possèdent les capacités suivantes :

- Couche K ($n = 1$) : 2 électrons
- Couche L ($n = 2$) : 8 électrons
- Couche M ($n = 3$) : 18 électrons
- Couche N ($n = 4$) : 32 électrons



Figure I.3: Répartition des électrons dans les couches électroniques de l'atome.

I.3.1 L'atome dans la mécanique quantique

Un atome est constitué d'un noyau central autour duquel gravitent des électrons répartis sur différents niveaux d'énergie. La description de l'état quantique d'un électron dans l'atome repose sur quatre nombres quantiques, chacun fournissant une information précise sur ses propriétés et sa localisation.

Le nombre quantique principal n définit le niveau d'énergie principal ou la couche électronique occupée par l'électron. Il ne peut prendre que des valeurs entières strictement positives ($n = 1, 2, 3, \dots$). Lorsque la valeur de n augmente, l'électron se trouve en moyenne plus éloigné du noyau et possède une énergie plus élevée.

Le nombre quantique azimutal (l), également appelé nombre quantique secondaire ou orbital, caractérise la sous-couche électronique ainsi que la forme de l'orbitale atomique. Pour une valeur donnée de n , il peut prendre toutes les valeurs entières comprises entre 0 et $(n - 1)$. Par exemple, pour $n = 3$, les valeurs possibles de l sont 0, 1 et 2.

Le nombre quantique magnétique (m_l) décrit l'orientation spatiale de l'orbitale dans laquelle se trouve l'électron. Ses valeurs varient entre $-l$ et $+l$, y compris zéro. Ainsi, pour $l = 1$, les valeurs possibles de m_l sont -1 , 0 ou $+1$.

Le nombre quantique de spin (m_s) représente le moment cinétique intrinsèque de l'électron, appelé spin. Il ne peut prendre que deux valeurs possibles : $m_s = +\frac{1}{2}$ ou $m_s = -\frac{1}{2}$.

Ces quatre nombres quantiques permettent de décrire complètement l'état quantique d'un électron au sein de l'atome (Benattia., 2023).

Tableau I.1: Les nombres quantiques associés aux couches et sous-couches électroniques.

n	Couche	l	Sous-couche	m_l	m_s	Nombres d'électrons
1	K	0	s	0	$\pm 1/2$	2
2	L	0	s	0	$\pm 1/2$	8
		1	p	-1, 0, +1	$\pm 1/2$	
3	M	0	s	0	$\pm 1/2$	18
		1	p	-1, 0, +1	$\pm 1/2$	
		2	d	-2,-1,0,+1,+2	$\pm 1/2$	
4	N	0	s	0	$\pm 1/2$	32
		1	p	-1, 0, +1	$\pm 1/2$	
		2	d	-2,-1,0, +1,+2	$\pm 1/2$	
		3	f	-3,...,0,...,+3	$\pm 1/2$	

I.3.2 Transitions électroniques :

Lorsqu'un atome est soumis à une perturbation extérieure, telle que l'impact d'une particule chargée ou l'absorption d'un rayonnement suffisamment énergétique, un électron lié au noyau peut acquérir une énergie suffisante pour quitter sa couche électronique. Ce phénomène, appelé ionisation, entraîne la création d'une lacune électronique dans le niveau d'énergie considéré.

L'atome ainsi ionisé devient instable et tend à retrouver un état d'équilibre par réorganisation de sa structure électronique. Un électron provenant d'un niveau d'énergie supérieur E_Y vient alors combler cette vacance située sur un niveau d'énergie inférieur E_X . Cette transition électronique s'accompagne de l'émission d'un photon dont l'énergie est égale à la différence entre les deux niveaux d'énergie impliqués :

$$h\nu = E_Y - E_X \tag{I.2}$$

Où h représente la constante de Planck et ν la fréquence du photon émis.

Ainsi, les échanges d'énergie au sein de l'atome sont quantifiés, ce qui signifie que seules certaines valeurs d'énergie bien déterminées sont autorisées. Par conséquent, les photons émis donnent naissance à un spectre discontinu constitué de raies caractéristiques propres à chaque élément chimique, traduisant les différentes transitions électroniques possibles (Bouarissa, 2024).

I.3.3 Règles de sélection :

Les transitions électroniques responsables de l'émission des rayons X ne se produisent pas de manière arbitraire. Elles obéissent à des règles fondamentales issues de la mécanique quantique, appelées règles de sélection, qui déterminent les transitions autorisées entre les différents niveaux d'énergie atomiques.

Ces règles imposent des conditions sur la variation des nombres quantiques associés à l'électron en transition. Elles s'écrivent généralement sous la forme :

$$\Delta n \geq 1$$

$$\Delta l = \pm 1$$

$$\Delta j = 0, \pm 1 \text{ (avec la transition } 0 \leftrightarrow 0 \text{)}$$

Où :

- n est le nombre quantique principale.
- l est le nombre quantique orbital associé au moment angulaire orbital.
- j représente le nombre quantique du moment angulaire total.

Ces règles découlent principalement de la conservation du moment angulaire lors des transitions électroniques. Elles permettent de distinguer les transitions permises des transitions interdites et jouent un rôle essentiel dans l'interprétation des spectres atomiques ainsi que dans l'identification des éléments chimiques à partir de leurs raies caractéristiques.

I.4 Les rayonnements

Le rayonnement désigne un mode de transfert d'énergie dans l'espace ou à travers un milieu, sous forme d'ondes électromagnétiques ou de particules. Il constitue un phénomène fondamental en physique, décrit par les lois de l'électromagnétisme et de la mécanique quantique.

L'interaction du rayonnement avec la matière dépend de sa nature et de son énergie. Les rayonnements de haute énergie, tels que les rayons X ou γ , peuvent provoquer l'ionisation ou l'excitation des atomes, entraînant des modifications de leur structure électronique par des mécanismes tels que l'effet photoélectrique ou la diffusion Compton.

Grâce à leur pouvoir de pénétration, certains rayonnements traversent les tissus biologiques et y déposent de l'énergie. Cette propriété est largement exploitée en imagerie médicale pour visualiser les structures internes du corps. Par ailleurs, leur capacité à induire des altérations

cellulaires, notamment au niveau de l'ADN, est utilisée en radiothérapie pour le traitement des tumeurs.

Ainsi, le rayonnement joue un rôle central dans de nombreux domaines scientifiques, notamment en physique, en médecine et en technologie.

I.4.1 Classification des rayonnements

Les rayonnements peuvent être classés selon leur nature en deux grandes catégories : les rayonnements particuliers et les rayonnements électromagnétiques.

I.4.1.1 Rayonnement particulaire (corpusculaire)

Ils sont constitués de particules matérielles, atomiques ou subatomiques, telles que les particules α (alpha), β (bêta), ainsi que les protons, neutrons et électrons.

Selon leur énergie, les rayonnements particuliers peuvent interagir avec la matière et provoquer une ionisation, c'est-à-dire l'arrachement d'électrons des atomes. Dans ce cas, ils sont qualifiés de rayonnements ionisants, comme les particules α et β , ainsi que les protons et les neutrons.

Certains rayonnements particuliers de faible énergie peuvent toutefois produire uniquement des phénomènes d'excitation sans entraîner d'ionisation de la matière

I.4.1.2 Rayonnement électromagnétique

Les rayonnements électromagnétiques correspondent à une propagation d'énergie sous forme d'ondes caractérisées par des champs électrique et magnétique oscillants.

Ils couvrent l'ensemble du spectre électromagnétique, allant des ondes radio de faible énergie, aux micro-ondes, à l'infrarouge et au domaine visible, jusqu'aux rayons X et aux rayons γ de haute énergie.

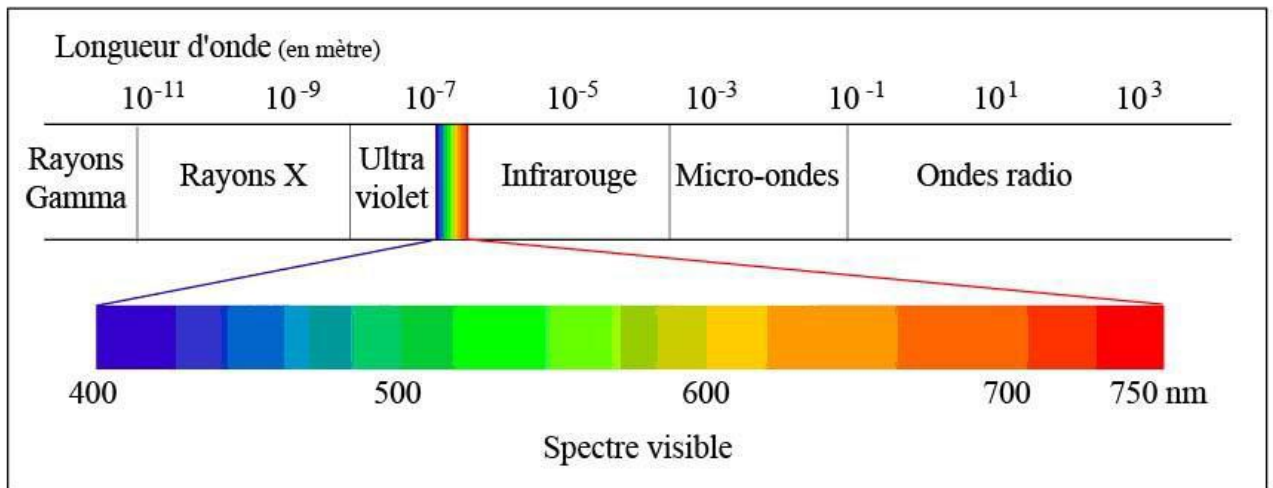


Figure I.4: Les rayonnements électromagnétiques (Abassi, 2023).

I.4.2 Les rayons γ

Les rayons gamma constituent un rayonnement électromagnétique de très haute énergie, se distinguant des rayons X principalement par leur origine nucléaire. Ils sont émis lors de transitions énergétiques au sein du noyau atomique, lorsque celui-ci passe d'un état excité à un état plus stable.

L'émission des rayons γ accompagne généralement plusieurs phénomènes nucléaires, tels que la désintégration radioactive (α ou β suivie d'une émission γ), ainsi que les réactions de fission et de fusion nucléaire. Ces rayonnements présentent des longueurs d'onde extrêmement faibles et des fréquences très élevées, ce qui leur confère un fort pouvoir de pénétration.

En raison de leur énergie élevée et de leurs interactions avec la matière, les rayons gamma sont utilisés dans diverses applications, notamment en radiothérapie, en médecine nucléaire, ainsi que dans des procédés industriels tels que la stérilisation et le contrôle non destructif (Zidi, 2021).

I.4.3 Les rayons X

Les rayons X sont un rayonnement électromagnétique de haute énergie, caractérisé par une fréquence élevée et une faible longueur d'onde. Leur découverte remonte à 1895, par le physicien allemand Wilhelm Conrad Röntgen, lors de ses expériences sur les tubes à décharge. Il mit en évidence un rayonnement invisible capable de traverser certains matériaux opaques et d'impressionner des plaques photographiques.

La production des rayons X repose principalement sur deux mécanismes physiques :

- Le rayonnement de freinage, résultant du ralentissement des électrons accélérés au voisinage des noyaux atomiques.

- Le rayonnement caractéristique, émis lors des transitions électroniques entre couches internes après ionisation de l'atome.

Ces propriétés confèrent aux rayons X un fort pouvoir de pénétration et une capacité d'ionisation de la matière, ce qui justifie leur utilisation en imagerie médicale, en cristallographie et en analyse des matériaux (Abassi, 2023).

L'énergie d'un photon de rayonnement électromagnétique est donnée par la relation de Planck :

$$E = h\nu \quad (I.3)$$

Où :

- E : énergie du photon
- h : constante de Planck
- ν : fréquence du rayonnement

I.5 Interaction du rayonnement électromagnétique avec la matière

Lorsque le rayonnement électromagnétique traverse un milieu matériel, il interagit avec celui-ci selon différents mécanismes dépendant de son énergie. Ces interactions sont à l'origine de phénomènes d'absorption et de diffusion, qui jouent un rôle fondamental dans de nombreux domaines scientifiques et techniques, notamment en physique, en imagerie et en dosimétrie.

I.5.1 L'effet photoélectrique

Dans ce phénomène, un photon transfère la totalité de son énergie à un électron lié, provoquant son éjection de l'atome. L'effet photoélectrique prédomine pour les faibles énergies du rayonnement incident et dans les matériaux à numéro atomique élevé. L'énergie cinétique de l'électron émis dépend de l'énergie du photon incident ainsi que de l'énergie de liaison de l'électron dans l'atome.

La conservation de l'énergie s'écrit :

$$W_c = E - W_l \quad (I.4)$$

- W_c : énergie cinétique de l'électron
- E : énergie du photon incident
- W_l : énergie de liaison de l'électron

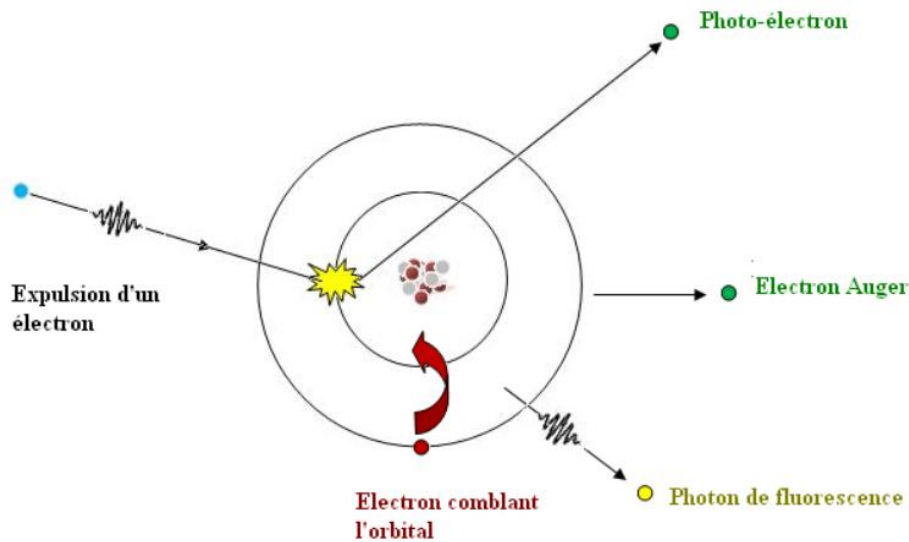


Figure I.5: Représentation schématique de l'effet photoélectrique (Benhalouche, 2014).

I.5.2 L'effet Compton

L'effet Compton résulte de l'interaction entre un photon incident et un électron libre ou faiblement lié. Lors de cette collision, le photon est diffusé avec une énergie inférieure à son énergie initiale, tandis qu'une partie de cette énergie est transférée à l'électron sous forme d'énergie cinétique. Ce phénomène met en évidence le caractère corpusculaire du rayonnement électromagnétique.

La conservation de l'énergie s'exprime par la relation :

$$E_{\gamma} = h\nu' + E_c \quad (I.5)$$

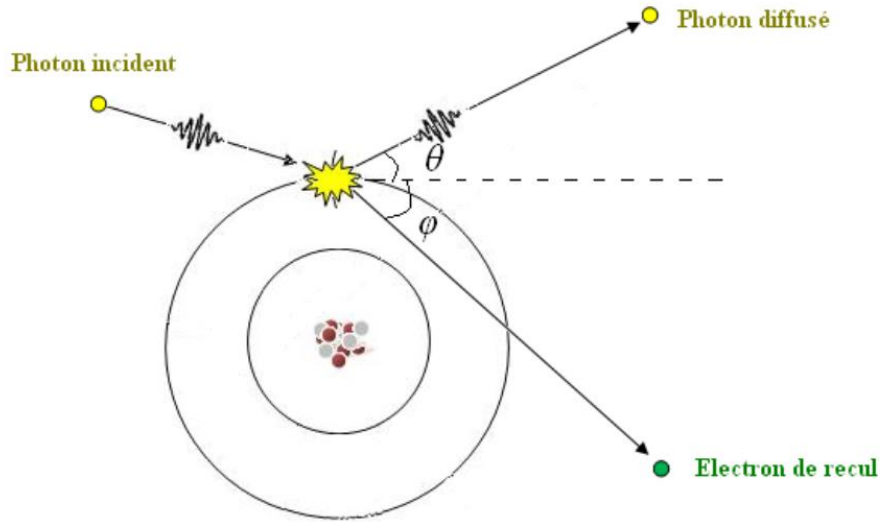


Figure I.6: Représentation schématique de la diffusion Compton (Benhalouche, 2014).

I.5.3 La création de paires

La création de paires est un phénomène qui se produit lorsqu'un photon de haute énergie interagit avec le champ électrique d'un noyau atomique et se transforme en une paire électron–positron. Ce processus constitue l'un des mécanismes fondamentaux d'interaction du rayonnement avec la matière à très haute énergie.

Pour que cette transformation soit possible, l'énergie du photon incident doit être supérieure ou égale à l'énergie de masse au repos totale de la paire électron–positron, soit 1.022 MeV. Cette valeur représente le seuil énergétique minimal nécessaire à la création de paires.

La conservation de l'énergie s'écrit :

$$h\nu = E_{e^-} + E_{e^+} \quad (\text{I.6})$$

Dans le cas limite du seuil énergétique :

$$h\nu = m_{e^-}c^2 + m_{e^+}c^2 \quad (\text{I.7})$$

Ici, E_{e^-} et E_{e^+} désignent respectivement les énergies relativistes totales de l'électron et du positron.

Après sa création, le positron ne reste généralement pas stable dans la matière. Lorsqu'il rencontre un électron, les deux particules s'annihilent mutuellement, entraînant leur disparition et la production de deux photons gamma émis en sens opposés. Chacun de ces photons possède une énergie de 0.511 MeV, correspondant à l'énergie de masse au repos de l'électron ou du positron (voir figure I.7).

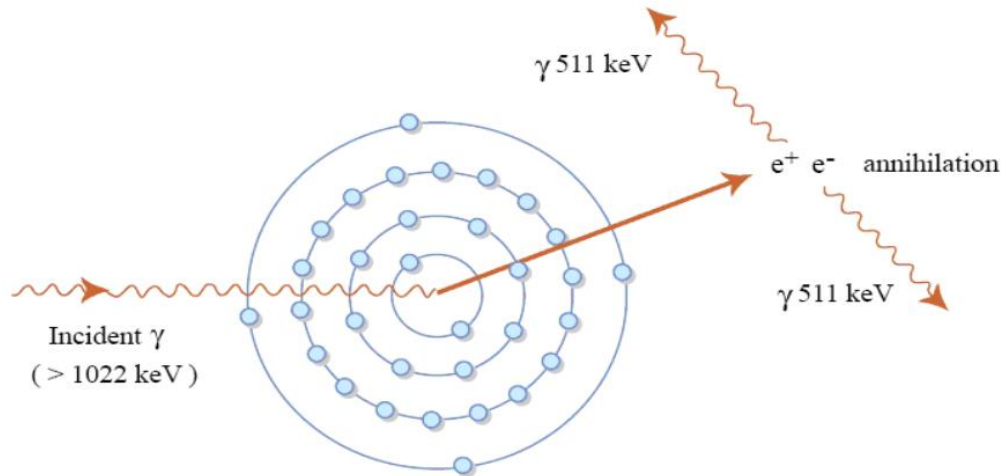


Figure I.7: Représentation schématique du phénomène de production de paires (Adnan, 2014).

Les interactions entre un photon et la matière dépendent principalement de l'énergie du photon et du type de matériau traversé. Selon ces conditions, un mécanisme d'interaction devient plus probable que les autres.

La figure I.8 compare les trois principaux processus d'interaction sur une large gamme d'énergies, de quelques dizaines de keV à plusieurs centaines de MeV. À basse énergie, l'effet photoélectrique est le plus fréquent, surtout dans les matériaux à numéro atomique élevé. En augmentant l'énergie, la diffusion Compton prend progressivement le relais et domine sur une grande partie du domaine intermédiaire. À très haute énergie, lorsque le photon dépasse 1.022 MeV, la création de paires devient possible et peut alors jouer un rôle important.

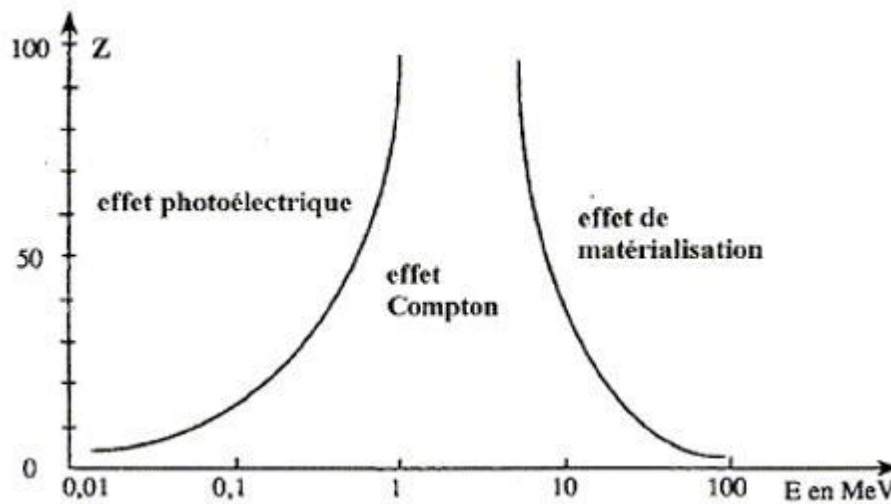


Figure I.8: Zones de dominance de l'effet photoélectrique, de la diffusion Compton et de la production de paires en fonction du numéro atomique Z du matériau et de l'énergie du photon (Benissaad, 2023).

I.6 L'atténuation du rayonnement dans la matière

Lors de sa traversée d'un milieu matériel, un rayonnement voit son intensité diminuer progressivement en raison des interactions avec la matière. Cette atténuation est décrite par un coefficient d'atténuation, qui dépend des propriétés du matériau ainsi que de l'énergie du rayonnement. Ce coefficient global traduit l'ensemble des mécanismes d'interaction responsables de cette diminution.

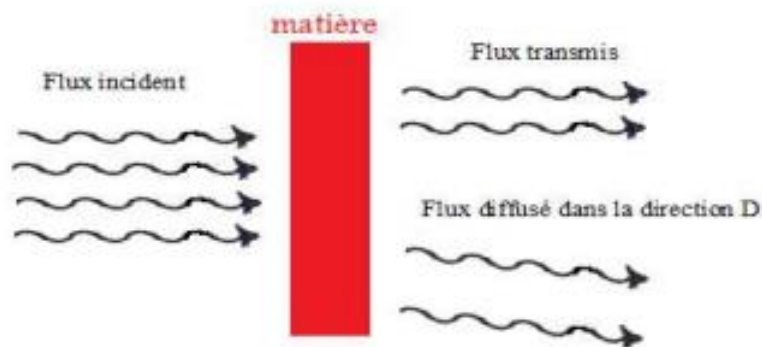


Figure I.9: Représentation d'atténuation dans la matière et absorption de photon (Zidi, 2021).

I.6.1 Loi d'atténuation

L'interaction la plus fondamentale entre les photons et la matière se traduit par une diminution progressive de l'intensité du faisceau au cours de sa propagation dans un milieu absorbant. Dans le cas d'un faisceau monoénergétique traversant une épaisseur de matériau, cette atténuation dépend des propriétés du milieu et de l'énergie des photons incidents.

I.6.1.1 Coefficient d'atténuation

Contrairement aux électrons, qui interagissent fréquemment avec la matière et perdent rapidement leur énergie dès les premières collisions, les photons présentent une probabilité d'interaction relativement faible. Ainsi, un photon peut traverser une certaine épaisseur de matériau sans subir d'interaction. À titre d'exemple, un photon d'énergie égale à 1 MeV possède une probabilité importante de traverser 1 cm de germanium sans interaction.

Dans ce contexte, la propagation des photons n'est pas décrite de manière continue ; on introduit alors la notion de libre parcours moyen, correspondant à la distance moyenne parcourue par un photon d'énergie donnée avant sa première interaction dans le milieu.

L'atténuation d'un faisceau photonique est caractérisée par le coefficient d'atténuation linéique μ , qui représente la probabilité globale d'interaction dans un matériau donné. Pour un faisceau monoénergétique traversant une épaisseur x , l'intensité transmise I est reliée à l'intensité initiale I_0 par la relation :

$$I(x) = I_0 e^{-\mu x} \quad (\text{I.8})$$

où μ désigne le coefficient d'atténuation linéique total. Celui-ci est directement relié au libre parcours moyen λ , défini comme la distance moyenne parcourue avant interaction (Zidi, 2021):

$$\lambda = \frac{1}{\mu} \quad (\text{I.9})$$

I.6.1.2 Atténuation et mécanismes d'interaction

L'atténuation d'un faisceau de photons dans la matière résulte de plusieurs mécanismes d'interaction. Chaque processus est associé à un coefficient spécifique, et le coefficient d'atténuation total correspond à la somme de ces différentes contributions :

$$\mu = \tau + \sigma + \pi \quad (\text{I.10})$$

Où τ représente la contribution de l'effet photoélectrique, σ celle de la diffusion Compton et π celle de la création de paires.

En pratique, on utilise fréquemment le coefficient d'atténuation massique, défini comme le rapport du coefficient d'atténuation linéique à la masse volumique du matériau. Il s'exprime en cm^2/g , contrairement au coefficient linéique exprimé en cm^{-1} .

I.6.1.3 Couche de demi-atténuation (CDA)

La couche de demi-atténuation (CDA) correspond à l'épaisseur de matériau nécessaire pour réduire l'intensité d'un rayonnement à 50 % de sa valeur initiale. Elle est reliée au coefficient d'atténuation linéique par la relation :

$$\text{CDA} = \frac{\ln 2}{\mu} \quad (\text{I.11})$$

Ainsi, plus le coefficient μ est élevé, plus la CDA est faible, ce qui traduit une meilleure capacité d'atténuation du matériau. Cette notion est particulièrement importante en physique des rayonnements, notamment en radiothérapie et en imagerie médicale, où le contrôle de l'absorption et de la diffusion est essentiel.

I.7 Sections efficaces de production des rayons X

La probabilité de production d'un rayonnement X caractéristique est décrite par une grandeur physique appelée section efficace de production. Cette grandeur traduit la capacité d'un atome à émettre un rayonnement X après ionisation d'une sous-couche électronique interne. Elle dépend principalement de deux mécanismes fondamentaux :

- La probabilité d'ionisation de la sous-couche considérée.
- La probabilité de relaxation radiative de la lacune créée.

La section efficace de production peut ainsi s'écrire sous la forme :

$$\sigma_X = \sigma_i \omega \quad (\text{I.12})$$

Où :

- σ_i est la section efficace d'ionisation de la sous-couche i .
- ω est le rendement de fluorescence associé à cette sous-couche.

Dans le cas des sous-couches de la série L, l'intensité des raies caractéristiques dépend non seulement du processus d'ionisation initiale, mais également de plusieurs mécanismes de relaxation atomique. Parmi ces mécanismes figurent notamment les transitions de Coster–Kronig, responsables du transfert

de lacunes entre les sous-couches L_1 , L_2 et L_3 , ainsi que les probabilités d'émission radiative associées aux différentes transitions électroniques.

Par conséquent, l'évaluation des sections efficaces des raies L_L , L_α , L_β , L_γ nécessite une modélisation tenant compte des contributions combinées des différentes sous-couches ionisées, des probabilités de transition de Coster–Kronig ainsi que des probabilités d'émission radiative.

Les sections efficaces de production des différentes raies de la série L sont données par :

$$\sigma_{L\alpha} = [\sigma_{L3} + \sigma_{L2}f_{23} + \sigma_{L1}(f_{13} + f_{12}f_{23})]\omega_3F_{3\alpha} \quad (I.13)$$

$$\sigma_{L\beta} = [\sigma_{L3} + \sigma_{L2}f_{23} + \sigma_{L1}(f_{13} + f_{12}f_{23})]\omega_3F_{3\beta}[\sigma_{L2} + \sigma_{L1}f_{12}]\omega_2F_{2\beta} + \sigma_{L1}\omega_1F_{1\beta} \quad (I.14)$$

$$\sigma_{L\gamma} = [\sigma_{L2} + \sigma_{L1}f_{12}]\omega_2F_{2\gamma} + \sigma_{L1}\omega_1F_{1\gamma} \quad (I.15)$$

$$\sigma_{L1} = [\sigma_{L3} + \sigma_{L2}f_{23} + \sigma_{L1}(f_{13} + f_{12}f_{23})]\omega_3F_{31} \quad (I.16)$$

Où :

- f_{ij} représente les probabilités de transition de Coster-Kronig ;
- F_{iy} désigne le taux d'émission radiative de la raie L_y à partir de la sous-couche L_i .

Le taux d'émission radiative est défini par :

$$F_{iy} = \frac{\Gamma_{iy}}{\Gamma_i} \quad (I.17)$$

Où :

- Γ_i est la largeur radiative totale théorique de la sous-couche L_i .
- Γ_{iy} représente la probabilité de transition radiative correspondant à l'émission de la raie L_y .

I.7.1 Dynamique des transitions électroniques

L'émission des rayons X caractéristiques résulte de transitions électroniques impliquant des électrons provenant des couches externes M, N et O vers les sous-couches internes de la série L. Chaque famille de raies correspond à un ensemble de transitions électroniques spécifiques contribuant à l'intensité totale du rayonnement émis.

Les probabilités de transition radiative associées aux différentes raies peuvent être exprimées comme suit (Tıraşoğlu, 2001) :

Pour les transitions vers la sous-couche L_1 :

$$\Gamma_{1\beta} = \Gamma_1(M_2, M_3 \rightarrow L_1) + \Gamma_1(M_4, M_5 \rightarrow L_1) \quad (I.18)$$

$$\Gamma_{1\gamma} = \Gamma_1(N_2, N_3 \rightarrow L_1) + \Gamma_1(O_2, O_3 \rightarrow L_1) \quad (I.19)$$

Pour les transitions vers la sous-couche L_2 :

$$\Gamma_{2\eta} = \Gamma_2(M_1 \rightarrow L_2) \quad (I.20)$$

$$\Gamma_{2\beta} = \Gamma_2(M_4 \rightarrow L_2) + \Gamma_2(M_3 \rightarrow L_2) \quad (I.21)$$

$$\Gamma_{2\gamma} = \Gamma_2(N_1 \rightarrow L_2) + \Gamma_2(N_4 \rightarrow L_2) + \Gamma_2(O_1, O_4 \rightarrow L_2) \quad (I.22)$$

Pour les transitions vers la sous-couche L_3 :

$$\Gamma_{3l} = \Gamma_3(M_1 \rightarrow L_3) \quad (I.23)$$

$$\Gamma_{3\alpha} = \Gamma_3(M_4 \rightarrow L_3) + \Gamma_3(M_5 \rightarrow L_3) \quad (I.24)$$

$$\Gamma_{3\beta} = \Gamma_3(N_1 \rightarrow L_3) + \Gamma_3(N_4 \rightarrow L_3) + \Gamma_3(N_5 \rightarrow L_3) + \Gamma_3(O_1 \rightarrow L_3) + \Gamma_3(O_4, O_5 \rightarrow L_3) \quad (I.25)$$

Avec :

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

$\Gamma_{2\beta}, \Gamma_{2\eta}$ et $\Gamma_{2\gamma}$: les probabilités de l'émission X pour $(M_1, M_3, M_4, N_1, N_4, O_1 \text{ et } O_4)$ vers L_2 .

$\Gamma_{3\alpha}, \Gamma_{3l}$ et $\Gamma_{3\beta}$: les probabilités de l'émission X pour $(M_1, M_4, M_5, N_1, N_4, N_5, O_1, O_4 \text{ et } O_5)$ vers L_3 .

I.8 Processus radiatif

I.8.1 La fluorescence X

La fluorescence est un phénomène physique utilisé comme méthode d'analyse non destructive permettant d'identifier et de quantifier les éléments chimiques présents dans un matériau. Elle repose sur la capacité de certains atomes ou molécules à absorber un rayonnement incident, puis à réémettre une partie de l'énergie sous forme d'un rayonnement de plus faible énergie, généralement associé à une plus grande longueur d'onde.

Ce phénomène est provoqué par une excitation externe, généralement due à un rayonnement ultraviolet, un laser ou des rayons X. Après absorption de l'énergie, les électrons passent à des états

excités instables, puis reviennent spontanément à des niveaux d'énergie plus bas en émettant un rayonnement appelé fluorescence (Benattia, 2023).

I.8.1.1 Principe de la fluorescence X

La fluorescence X repose sur l'interaction entre un rayonnement X incident de haute énergie et les atomes constituant le matériau étudié. Lorsque l'échantillon est irradié, les photons incidents peuvent ioniser les couches électroniques internes des atomes en éjectant des électrons fortement liés. Cette ionisation crée des lacunes électroniques dans les couches internes.

Afin de rétablir l'équilibre énergétique de l'atome, ces lacunes sont rapidement comblées par des électrons provenant de couches électroniques plus externes. Le passage d'un électron d'un niveau énergétique supérieur vers un niveau inférieur s'accompagne alors d'une libération d'énergie sous forme d'un photon X caractéristique de l'élément chimique considéré.

L'énergie du photon émis correspond à la différence d'énergie entre les deux niveaux électroniques impliqués dans la transition :

$$E = E_i - E_f \quad (I.26)$$

Où E_i représente l'énergie du niveau initial et E_f celle du niveau final.

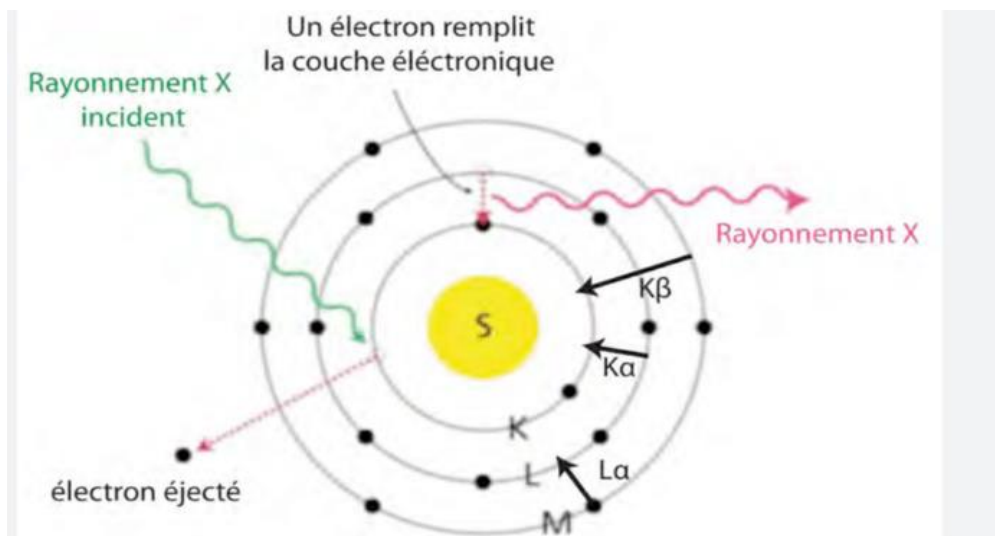


Figure I.10: Principe de fluorescence des rayons X.

Cette figure illustre le principe de la fluorescence X, où un électron d'une couche interne est éjecté sous l'effet d'un rayonnement incident, suivi d'une transition électronique accompagnée de l'émission d'un rayonnement X caractéristique (Benattia, 2023).

I.8.2 Processus de relaxation non radiatifs

Les processus de relaxation non radiatifs se caractérisent par l'absence d'émission de photons lors de la désexcitation atomique. L'énergie d'excitation est alors transférée au milieu environnant sous forme d'énergie cinétique ou thermique, à travers des interactions collisionnelles entre particules voisines. Ces mécanismes conduisent ainsi à une dissipation locale de l'énergie sans émission de rayonnement électromagnétique.

I.8.2.1 Effet Auger

L'effet Auger est un processus fondamental de désexcitation électronique non radiative, qui survient après la création d'une lacune dans une couche électronique interne d'un atome. Lorsqu'un électron provenant d'un niveau énergétique supérieur vient combler cette vacance, l'énergie libérée peut être transférée à un second électron au lieu d'être émise sous forme de rayonnement X caractéristique. Ce second électron est alors éjecté de l'atome et prend le nom d'électron Auger.

Dans le cas de transitions impliquant des sous-couches d'un même niveau énergétique, notamment au sein de la couche L, ce mécanisme peut conduire à la création simultanée de deux lacunes électroniques dans différentes sous-couches (2s, 2p), traduisant la complexité des phénomènes de relaxation électronique.

Pour les éléments de faible numéro atomique ($Z \leq 31$), le processus Auger prédomine généralement sur l'émission radiative, en raison de la faible probabilité de fluorescence X.

Les électrons Auger possèdent une très faible profondeur d'échappement dans les solides, limitée à quelques nanomètres. Leur énergie cinétique, directement liée aux différences d'énergie entre niveaux électroniques, constitue une signature caractéristique de l'élément chimique étudié.

Cette propriété est exploitée en spectroscopie électronique Auger (AES), une technique d'analyse de surface à haute résolution largement utilisée pour la caractérisation chimique des couches superficielles, notamment dans les domaines de la corrosion, de la catalyse et des interfaces.

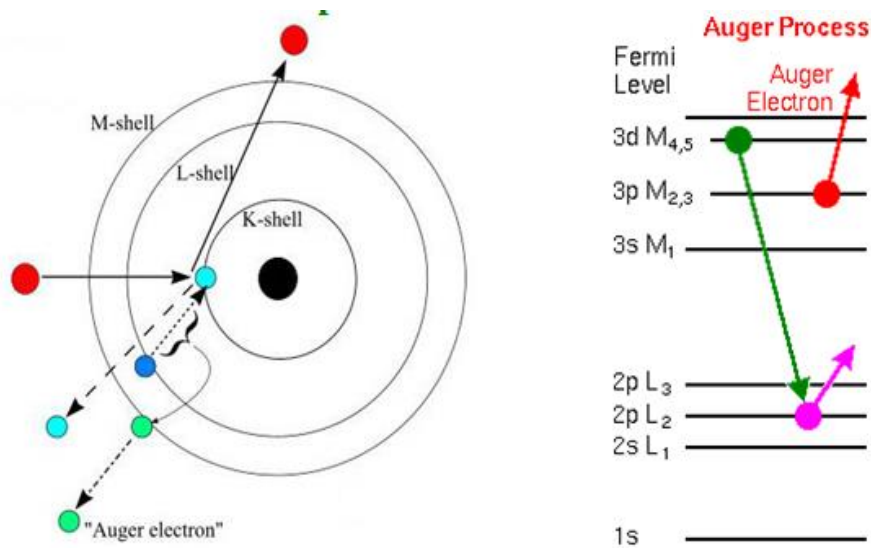


Figure I.11: Représentation schématique d'une transition Auger (Derradj, 2019).

I.8.2.2 Transitions de Coster-Kronig :

Dans les couches électroniques comportant plusieurs sous-niveaux, telles que les couches L et M, des mécanismes supplémentaires de relaxation peuvent apparaître. Une lacune électronique peut ainsi être transférée d'une sous-couche à une autre au sein d'une même couche électronique, sans émission immédiate de rayonnement.

Ces mécanismes, appelés transitions de Coster-Kronig, influencent fortement la dynamique de désexcitation électronique. Ils peuvent également favoriser l'émission de rayonnements X caractéristiques lorsque les différences d'énergie entre sous-couches deviennent suffisamment importantes, phénomène particulièrement marqué pour les éléments de numéro atomique élevé ($Z > 50$).

I.9 Nomenclature et notations des raies X

Les raies de rayons X sont désignées selon trois systèmes de notation : Siegbahn, IUPAC et configuration électronique. Chacun identifie la même transition d'une manière différente. La notation de Siegbahn est la plus ancienne et la plus utilisée en spectroscopie ; la notation IUPAC est plus standardisée et systématique ; quant à la notation de configuration électronique, elle précise explicitement les sous-couches quantiques impliquées.

Une transition radiative se produit lorsqu'un électron d'une sous-couche d'énergie supérieure vient combler une lacune dans une sous-couche d'énergie inférieure, en émettant un photon de rayons X. Par exemple, la raie $L\alpha_2$ en notation Siegbahn correspond à la transition $L_3 \rightarrow M_4$ en notation IUPAC, soit $2p_{3/2} \rightarrow 3d_{3/2}$ en configuration électronique : un électron de la sous-couche $3d_{3/2}$ occupe une lacune dans la sous-couche $2p_{3/2}$.

Cette correspondance entre les trois notations facilite la comparaison entre les données expérimentales, les calculs théoriques et les paramètres atomiques tabulés. Le tableau ci-après illustre l'ensemble des transitions radiatives entre les couches électroniques, annotées selon les trois systèmes de notation.

Tableau I.2: Correspondance entre les raies désignées selon les notations de Siegbahn, de l'IUPAC et de la configuration électronique (Ec) (Zidi et al., 2024).

Siegbahn		IUPAC	EC
L_α	$L_{\alpha 1}$	$L_3 - M_5$	$2p_{3/2} - 3d_{5/2}$
	$L_{\alpha 2}$	$L_3 - M_4$	$2p_{3/2} - 3d_{3/2}$
L_β	$L_{\beta 1}$	$L_2 - M_4$	$2p_{1/2} - 3d_{3/2}$
	$L_{\beta 2}$	$L_3 - N_5$	$2p_{3/2} - 4d_{5/2}$
	$L_{\beta 3}$	$L_1 - M_3$	$2s_{1/2} - 3p_{3/2}$
	$L_{\beta 4}$	$L_1 - M_2$	$2s_{1/2} - 3p_{1/2}$
	$L_{\beta 5}$	$L_3 - O_4$	$2p_{3/2} - 5d_{3/2}$
	$L_{\beta 5}$	$L_3 - O_5$	$2p_{3/2} - 5d_{5/2}$
	$L_{\beta 6}$	$L_3 - N_1$	$2p_{3/2} - 4s_{1/2}$
	$L_{\beta 7}$	$L_3 - O_1$	$2p_{3/2} - 5s_{1/2}$
	$L_{\beta 7'}$	$L_3 - N_{6(7)}$	$2p_{3/2} - 4f_{5/2(7/2)}$
	$L_{\beta 9}$	$L_1 - M_5$	$2s_{1/2} - 3d_{5/2}$
	$L_{\beta 10}$	$L_1 - M_4$	$2s_{1/2} - 3d_{3/2}$
	$L_{\beta 15}$	$L_3 - N_4$	$2p_{3/2} - 4d_{3/2}$
	$L_{\beta 17}$	$L_2 - M_3$	$2p_{1/2} - 3p_{3/2}$
L_γ	$L_{\gamma 1}$	$L_2 - N_4$	$2p_{1/2} - 4d_{3/2}$
	$L_{\gamma 2}$	$L_1 - N_2$	$2s_{1/2} - 4p_{1/2}$
	$L_{\gamma 3}$	$L_1 - N_3$	$2s_{1/2} - 4p_{3/2}$
	$L_{\gamma 4}$	$L_1 - O_3$	$2s_{1/2} - 5p_{3/2}$
	$L_{\gamma 4'}$	$L_1 - O_2$	$2s_{1/2} - 5p_{1/2}$
	$L_{\gamma 5}$	$L_2 - N_1$	$2p_{1/2} - 4s_{1/2}$
	$L_{\gamma 6}$	$L_2 - O_4$	$2p_{1/2} - 5d_{3/2}$
	$L_{\gamma 8}$	$L_2 - O_1$	$2p_{1/2} - 5s_{1/2}$
	$L_{\gamma 8'}$	$L_2 - N_{6(7)}$	$2p_{1/2} - 4f_{5/2(7/2)}$
	$L_{\gamma 8'}$		
L_I	L_I	$L_3 - M_1$	$2p_{3/2} - 3s_{1/2}$

I.10 Rapport des intensités d'émission des rayons X

Le rapport d'intensité des raies caractéristiques correspond au rapport entre les intensités de deux raies d'émission X issues de transitions électroniques différentes. Il constitue un paramètre spectroscopique important permettant de caractériser les probabilités relatives des transitions radiatives au sein de l'atome.

Dans la série L, les rapports d'intensité sont généralement établis à partir des principales familles de raies caractéristiques, telles que L_I , L_α , L_β , L_γ . Ces rapports dépendent essentiellement des

probabilités de transition radiative, de la structure électronique de l'atome ainsi que des mécanismes de relaxation atomique intervenant après la création d'une lacune électronique.

Dans le cadre de cette étude, une attention particulière est portée au rapport $\left(\frac{I_{Ll}}{I_{La}}\right)$ utilisé comme paramètre principal d'analyse pour l'interprétation des transitions électroniques et des processus de désexcitation atomique.

I.10.1 Largeurs radiative et non radiative :

L'interaction d'un rayonnement électromagnétique ou corpusculaire avec la matière peut provoquer l'ionisation des couches électroniques internes de l'atome, entraînant ainsi la création d'une lacune électronique. L'atome se retrouve alors dans un état excité et instable. Afin de retrouver sa configuration électronique fondamentale, cette lacune est rapidement comblée par un électron provenant d'une couche externe, dans un temps de l'ordre de 10^{-15} à 10^{-17} s.

Ce réarrangement électronique s'accompagne d'une libération d'énergie pouvant se produire selon deux mécanismes :

- Un processus radiatif, correspondant à l'émission de rayons X caractéristiques.
- Un processus non radiatif, associé principalement à l'effet Auger et aux transitions de Coster–Kronig.

La largeur totale Γ , représentant l'incertitude énergétique de l'état excité, est reliée à la durée de vie moyenne τ par la relation suivante (Guerra *et al.*, 2015) :

$$\Gamma_{X_i, a_i} = \frac{\hbar}{\tau} \quad (\text{I.27})$$

Où Γ_{X_i} représente la largeur radiative et Γ_{a_i} la largeur non radiative.

La largeur radiative d'un niveau atomique i est donnée par (Guerra *et al.*, 2015) :

$$\Gamma_i^R = \hbar \sum_j W_{ij} \quad (\text{I.28})$$

Où W_{ij} désigne la probabilité de transition radiative du niveau initial i vers les différents niveaux finaux possibles j .

Dans le cas d'une lacune initiale située dans une sous-couche n , composée de plusieurs niveaux caractérisés par le moment angulaire total J_i , la largeur radiative moyenne de cette sous-couche est obtenue par sommation statistique des largeurs partielles associées aux différentes transitions possibles (Guerra *et al.*, 2015) :

$$\Gamma_{Sn}^R = \frac{\sum_i \sum_j (2j+1) \Gamma_{ij}^R}{\sum_i (2J_i+1)} \quad (\text{I.29})$$

Où Γ_{ij}^R représente la largeur radiative partielle correspondant à la transition d'un trou situé dans la sous-couche ionisée vers une sous-couche supérieure $j > n$.

I.10.2 Calcul des rapports d'intensité

Les rapports d'intensité des raies caractéristiques permettent d'évaluer la contribution relative des différentes transitions électroniques dans le spectre d'émission des rayons X. Dans cette étude, les rapports sont établis à partir des principales familles de raies de la série L, notamment L_l , L_α , L_β , L_γ , selon les notations de Siegbahn et de l'IUPAC.

Théoriquement, le calcul des rapports d'intensité peut être effectué selon deux méthodes.

La première méthode est basée sur les transitions électroniques associées aux différentes raies caractéristiques et sur les probabilités de transition radiative correspondantes. Les rapports sont alors exprimés à l'aide des notations spectroscopiques de Siegbahn et de l'IUPAC.

Le rapport $\frac{I_{Ll}}{I_{L\alpha}}$, utilisé dans ce travail comme paramètre principal d'analyse, est donné par :

$$\left(\frac{I_{Ll}}{I_{L\alpha}}\right) = \frac{\sum_{i'}(2J_{i'} + 1)\omega_{i'}[\sum_{j_3} W_{ij_3}^R(L_3M_1)]}{\sum_i(2J_i + 1)\omega_i[\sum_{j_1} W_{ij_1}^R(L_3M_5) + \sum_{j_2} W_{ij_2}^R(L_3M_4)]} \quad (I.30)$$

La seconde méthode consiste à déduire les rapports d'intensité à partir des sections efficaces théoriques de production des raies X. Dans ce cas, le rapport entre deux raies I_{Li} et I_{Lj} est exprimé par la relation suivante (Dogan, 2015) :

$$\frac{I_{Li}}{I_{Lj}} = \frac{\sigma_{Li}}{\sigma_{Lj}} \quad (I.31)$$

Où I_{Li} et I_{Lj} représentent les intensités des raies considérées, tandis que σ_{Li} et σ_{Lj} désignent les sections efficaces de production correspondantes.

Ces rapports dépendent directement des probabilités de transition radiative, des sections efficaces de production ainsi que des configurations électroniques impliquées dans les différentes transitions atomiques.

I.11 Références bibliographiques :

Abassi, A. (2023). Détermination de sections efficaces d'ionisation et de production des rayons X des couches K et des raies L pour les éléments atomiques de $18 \leq Z \leq 92$ par impact de protons (thèse de doctorat, université Mohamed el Bachir el Ibrahimi, Bordj Bou Arreridj, Algérie).

Bachen, I. (2025). Calcul des sections efficaces de la fluorescence X (XRFCs) des raies L et M de l'or (^{79}Au). (Mémoire de master, université Mohamed el Bachir el Ibrahimi, Bordj Bou Arreridj, Algérie).

Benattia, A. (2023). Contribution à l'étude des paramètres d'absorption de la couche K des éléments atomiques ; le rapport de saut J_K . (Mémoire de master, université Mohamed el Bachir el Ibrahimi, Bordj Bou Arreridj, Algérie).

Benissad, M. (2023). Etude du rapport des intensités d'émission des rayons X ($L\gamma/L\alpha$) : évaluation précise pour certains éléments de transitions (2^{ème} et 3^{ème} série). (Mémoire de master, université Mohamed el Bachir el Ibrahimi, Bordj Bou Arreridj, Algérie).

Bouarissa, M. (2024). Détermination du facteur de saut d'absorption de couche K (J_K) dans le cas des lanthanides ($57 \leq Z \leq 71$). (Mémoire de master, université Mohamed el Bachir el Ibrahimi, Bordj Bou Arreridj, Algérie).

Derradj, I. (2019). Calcul des paramètres de la fluorescence X des couches atomiques internes pour des éléments de numéros atomiques $6 \leq Z \leq 99$, (Thèse de doctorat, Université Mohamed Boudiaf - M'sila, Algérie)

Doğan, M., Cengiz, E., Nas, A., Tıraşoğlu, E., Kantekin, H., & Aylıkçı, V. (2015). "L shell X-ray fluorescence parameters of Pb in phthalocyanine complexes". Appl. Radiat. Isot. 104, 43-48.

Guerra M., Sampaio J. M., Madeira T. I., Parente F., Indelicato P., Marques J. P., Santos J. P., Hoszowska J., Dousse J.-Cl., Loperetti L., Zeeshan F., Müller M., Unterumsberger R., Beckhoff B. (2015), Phys. Rev.A 92 ,022507.

Omer Haitham Adnan,(2014) Measurement the Radioactivity of Some Local and Imported Oil Products for Al-Dora Refinery Using Gamma Spectroscopy, mémoire de Master en physique faculté des sciences, University Al-Mustansiriyah,

Benhalouche,S,(2014), Simulation Monte Carlo GATE en radiothérapie pour des faisceaux complexes et dynamiques en IMRT, thèse de doctorat, université de Bretagne occidentale.

Tıraşoğlu, E., Çevik, U., Ertuğral, B., Atalay, Y., & Kopya, A. İ. (2001) Measurements of L_I , $L\alpha$, $L\eta$, $L\beta$ and $L\gamma$ X-ray fluorescence cross-sections in $70 \leq Z \leq 92$ elements excited by 59.543 keV photons-. Radiation Physics and Chemistry, 60(1-2), 11-16.

Zidi, A. (2021). Calcul du rapport d'intensité d'émission des rayons X ($K\beta/K\alpha$) des éléments lourds, mémoire de master, Université Mohamed El Bachir El Ibrahimi –Bordj Bou Arreridj.

Zidi, A, A., Kahoul, J.P., Marques, S., Daoudi, J.M., Sampaio, F., Parente, A., Hamidani, S., Croft, A., Favalli, Y., Kasri, K., Amari., & B., Berkani. (2024). "Investigating empirical and theoretical

calculations for intensity ratios of L-Shell X-ray transitions in atoms with $39 \leq Z \leq 94$ ". J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. 275, 147473.

Chapitre II:

Calcul semi-empirique du rapport des intensités d'émission de rayons X ($\frac{I_{Ll}}{I_{L\alpha}}$)

II.1 Introduction

Les rapports d'intensité des raies de rayons X constituent des paramètres fondamentaux en spectroscopie nucléaire et en physique atomique. Leur détermination précise a suscité un intérêt considérable dans plusieurs domaines scientifiques, donnant lieu à de nombreuses études expérimentales et théoriques ainsi qu'à leur compilation dans diverses bases de données et synthèses bibliographiques spécialisées. L'analyse systématique de ces grandeurs pour les éléments du tableau périodique représente aujourd'hui un axe de recherche important, notamment avec le développement des méthodes théoriques et semi-empiriques de modélisation.

L'importance de ces rapports d'intensité réside principalement dans leurs nombreuses applications en analyse élémentaire non destructive. Ils interviennent dans des domaines variés tels que la physique médicale, la chimie des surfaces, les sciences de l'environnement, le contrôle des matières nucléaires et des garanties associées, ainsi que dans plusieurs secteurs industriels de haute technologie (Zidi *et al.*, 2024).

Les interactions électroniques au sein des atomes, impliquant les différentes couches électroniques (K, L, M, N, ...), conduisent à des transitions radiatives et non radiatives accompagnées de la formation de lacunes électroniques et de l'émission de rayons X caractéristiques. L'intensité de ces émissions dépend de plusieurs paramètres atomiques fondamentaux, notamment des probabilités de transition et des mécanismes de relaxation atomique.

Dans ce travail, nous nous intéressons au rapport d'intensité $I_{Ll}/I_{L\alpha}$, caractéristique de la couche L, pour les éléments dont le numéro atomique est compris entre $Z = 39$ et $Z = 94$, couvrant ainsi les métaux de transition et les éléments lourds. L'étude repose sur une approche semi-empirique combinant des modèles théoriques à des ajustements fondés sur des données expérimentales disponibles dans la littérature.

Ce rapport d'intensité joue un rôle essentiel en spectroscopie des rayons X et en physique atomique, notamment pour l'étude de la structure électronique des atomes et l'interprétation des spectres X caractéristiques. L'objectif principal de ce travail est de proposer une détermination fiable et cohérente du rapport ($\frac{I_{Ll}}{I_{L\alpha}}$) sur une large gamme de numéros atomiques.

II.2 Base de données

Plusieurs études expérimentales ont été consacrées à la détermination des rapports d'intensité des raies X associées à la couche L pour différents éléments du tableau périodique. Ces travaux, réalisés par divers auteurs et sous différentes conditions expérimentales, ont permis d'accumuler un ensemble important de données rapportées dans la littérature scientifique.

Dans ce contexte, la base de données exploitée dans le présent travail s'appuie sur une compilation expérimentale récente publiée par Zidi *et al.*, (2024). Cette compilation regroupe des mesures obtenues dans des expériences de fluorescence X induite par excitation photonique et concerne l'ensemble de dix rapports d'intensité associés aux transitions de la couche L.

Dans le cadre de cette étude, seule la série de données relative au rapport d'intensité $\left(\frac{I_{LL}}{I_{L\alpha}}\right)$ a été retenue pour l'analyse et la modélisation. Pour ce rapport spécifique, la base de données comprend 619 points de données expérimentales, extraits de 66 articles scientifiques publiés entre 1971 et 2023, couvrant les éléments dont le numéro atomique s'étend de $Z = 39$ à $Z = 94$. Toutefois, les valeurs expérimentales rapportées par Aylikci *et al.*, (2015) ont été exclues du jeu de données final en raison de leur dispersion relativement importante, susceptible d'introduire des écarts significatifs dans les procédures d'interpolation et d'ajustement. Cette sélection permet d'améliorer la cohérence statistique de l'ensemble des données utilisées et d'obtenir des estimations plus fiables du rapport d'intensité étudié.

II.3 Calcul semi-empirique

L'étude des interactions entre le rayonnement et la matière occupe une place importante en physique atomique, notamment en raison du rôle fondamental des rapports d'intensité des raies de rayons X dans l'analyse des propriétés atomiques et électroniques des éléments. Ces paramètres fournissent des informations précieuses exploitées dans de nombreux domaines scientifiques et technologiques. Toutefois, la détermination précise des rapports d'intensité associés à la couche L demeure relativement complexe, en raison des difficultés expérimentales et de l'insuffisance de données fiables pour certains éléments, particulièrement ceux de numéro atomique élevé.

Afin de surmonter ces limitations, une approche semi-empirique a été adoptée dans ce travail. Cette méthode repose sur la combinaison des données expérimentales disponibles avec les valeurs théoriques calculées par Scofield. (1974), dans le but d'établir une relation analytique décrivant l'évolution du rapport d'intensité en fonction du numéro atomique Z .

Le présent travail porte sur l'estimation semi-empirique du rapport d'intensité des raies de rayons X $\left(\frac{I_{Ll}}{I_{L\alpha}}\right)$ pour les éléments dont le numéro atomique est compris entre $39 \leq Z \leq 94$. Les données exploitées proviennent de différentes études expérimentales rapportées dans la littérature. Dans un premier temps, un rapport normalisé R a été défini afin de comparer les valeurs expérimentales aux valeurs théoriques de Scofield. (1974) :

$$R = \frac{(I_{Ll}/I_{L\alpha})_{\text{Exp}}}{(I_{Ll}/I_{L\alpha})_{\text{thé}}} \quad (\text{II.1})$$

Où $(I_{Ll}/I_{L\alpha})_{\text{Exp}}$ représente les valeurs expérimentales du rapport d'intensité et $(I_{Ll}/I_{L\alpha})_{\text{thé}}$ les valeurs théoriques calculées par Scofield. (1974).

Le rapport R a ensuite été représenté en fonction du numéro atomique Z comme le montre la figure (II.1), puis ajusté par interpolation polynomiale afin d'obtenir une fonction correctrice $f(Z)$, donnée par :

$$f(Z) = -0.35497 + 0.09349 \times Z - 0.0017 \times Z^2 + 9.25302 \times 10^{-6} \times Z^3 \quad (\text{II.2})$$

Les valeurs semi-empiriques du rapport d'intensité ont finalement été obtenues en multipliant cette fonction correctrice par les valeurs théoriques de Scofield. (1974) :

$$\left(\frac{I_{Ll}}{I_{L\alpha}}\right)_{\text{s-emp}} = f(Z) \times \left(\frac{I_{Ll}}{I_{L\alpha}}\right)_{\text{thé}} \quad (\text{II.3})$$

Cette approche permet d'améliorer l'accord entre les prédictions théoriques et les résultats expérimentaux, tout en fournissant une estimation fiable du rapport d'intensité sur une large gamme de numéros atomiques.

Un résumé des résultats semi-empiriques du rapport d'intensité est présenté dans le tableau (II.1).

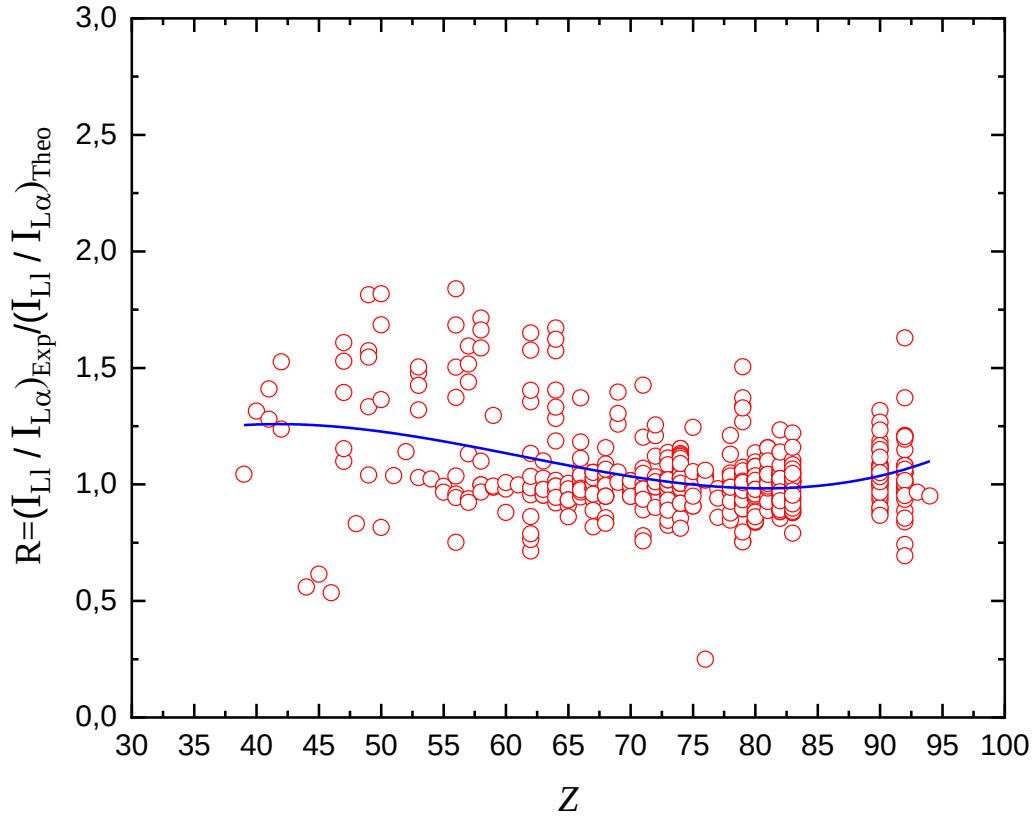


Figure II.1: Distribution de R en fonction du numéro atomique Z .

II.4 Résultats et discussion :

Les résultats du calcul semi-empirique du rapport d'intensité $I_{Ll}/I_{L\alpha}$ pour les éléments de la région $39 \leq Z \leq 94$ sont présentés dans le tableau II.1. Ce tableau regroupe les valeurs théoriques de Scofield. (1974), les résultats empiriques de Salem *et al.*, (1974), ainsi que les données expérimentales reportées par Rao *et al.*, (1971), Ertuğrul. (1997), Öz *et al.*, (2004), Akman *et al.*, (2015) et Alqadi *et al.*, (2023). L'ensemble de ces données permet d'établir une base de comparaison complète et cohérente avec les résultats obtenus dans ce travail.

Chapitre II : Calcul semi-empirique du rapport des intensités d'émission de rayons X
 $(I_{Ll}/I_{L\alpha})$

Tableau II.1: Rapports d'intensité ($I_{Ll} / I_{L\alpha}$) semi-empiriques (ce travail), ainsi que théoriques, empiriques et expérimentaux (autres travaux), pour les éléments de $39 \leq Z \leq 94$.

Z, Élément	Ce travail	Autres travaux						
		Théorique	Empirique	Expérimental				
	Semi-empirique	Scofield. 1974	Salem <i>et al.</i> , 1974	Rao <i>et al.</i> , 1971	Ertuğrul. 1997	Öz <i>et al.</i> , 2004	Akman <i>et al.</i> , 2015	Alqadi <i>et al.</i> , 2023
Z=39, Y	0.0493	0.0393	-	-	-	-	-	-
Z=40, Zr	0.0488	0.0388	0.042	-	-	-	-	-
Z=41, Nb	0.0482	0.0383	-	-	-	-	-	-
Z=42, Mo	0.0478	0.038	0.04	-	-	-	-	-
Z=43, Tc	0.0474	0.0377	-	-	-	-	-	-
Z=44, Ru	0.0471	0.0375	0.0385	-	-	-	-	-
Z=45, Rh	0.0469	0.0374	-	-	-	-	-	-
Z=46, Pd	0.0467	0.0374	0.037	-	-	-	-	-
Z=47, Ag	0.0464	0.0373	-	-	-	-	-	-
Z=48, Cd	0.0462	0.0373	0.0366	-	-	-	-	-
Z=49, In	0.0462	0.0375	-	-	-	-	-	-
Z=50, Sn	0.0459	0.0374	0.036	-	-	-	-	-
Z=51, Sb	0.0458	0.0376	-	-	-	-	-	-
Z=52, Te	0.0457	0.0377	0.036	-	-	-	-	-
Z=53, I	0.0456	0.0379	-	-	-	-	-	-
Z=54, Xe	0.0455	0.0381	0.036	-	-	-	-	-
Z=55, Cs	0.0454	0.0383	-	-	-	-	-	-
Z=56, Ba	0.0453	0.0386	0.0362	-	-	-	-	-
Z=57, La	0.0453	0.0389	-	-	0.0359	-	-	-
Z=58, Ce	0.0451	0.0391	0.0368	-	0.0378	-	-	-
Z=59, Pr	0.0452	0.0395	-	-	0.0392	-	-	-
Z=60, Nd	0.0451	0.0398	0.0372	-	0.0401	-	-	-
Z=61, Pm	0.045	0.0401	-	-	-	-	-	-
Z=62, Sm	0.0451	0.0406	0.0374	-	0.0388	-	-	-
Z=63, Eu	0.045	0.0409	-	-	0.0392	-	-	-
Z=64, Gd	0.0451	0.0413	0.0378	-	0.04	-	-	0.039
Z=65, Tb	0.0452	0.0418	-	0.038	0.042	-	-	0.039
Z=66, Dy	0.0453	0.0423	0.0383	-	0.0422	0.044	-	-
Z=67, Ho	0.0454	0.0428	-	-	0.0439	0.045	-	-
Z=68, Er	0.0454	0.0432	0.039	-	0.044	0.047	-	0.041
Z=69, Tm	0.0455	0.0437	-	-	0.0441	-	-	-
Z=70, Yb	0.0458	0.0443	0.0402	0.043	0.0446	-	0.042	-
Z=71, Lu	0.046	0.0449	-	-	0.0451	-	-	-
Z=72, Hf	0.0463	0.0455	0.0413	-	-	0.047	-	-
Z=73, Ta	0.0466	0.0461	-	0.044	-	-	0.047	0.041
Z=74, W	0.047	0.0468	0.0428	-	0.0471	0.047	0.049	0.047
Z=75, Re	0.0473	0.0474	-	-	0.0469	-	-	0.05
Z=76, Os	0.0478	0.0481	0.045	-	-	-	-	-
Z=77, Ir	0.0484	0.0489	-	0.042	-	-	-	-
Z=78, Pt	0.0489	0.0496	0.0462	0.048	-	-	-	-
Z=79, Au	0.0495	0.0503	-	-	0.0514	-	-	-
Z=80, Hg	0.0502	0.0511	0.0483	-	0.0502	-	0.049	0.05
Z=81, Tl	0.0508	0.0518	-	0.046	0.0515	0.052	0.054	-
Z=82, Pb	0.0526	0.0527	0.0502	0.049	0.0549	-	0.05	0.065
Z=83, Bi	0.0535	0.0535	-	0.05	0.0562	0.054	0.057	0.051
Z=84, Po	0.0545	0.0544	0.0522	-	-	-	-	-
Z=85, At	0.0557	0.0552	-	-	-	-	-	-
Z=86, Rn	0.057	0.0562	0.054	-	-	-	-	-
Z=87, Fr	0.0583	0.0571	-	-	-	-	-	-
Z=88, Ra	0.0608	0.058	0.0563	-	-	-	-	-
Z=89, Ac	0.0624	0.059	-	-	-	-	-	-
Z=90, Th	0.0641	0.06	0.0588	-	0.0712	0.062	0.063	-
Z=91, Pa	0.0661	0.061	-	-	-	-	-	-
Z=92, U	0.0682	0.062	0.0611	0.061	0.0712	-	0.059	-
Z=93, Np	0.0693	0.0631	-	0.061	-	-	-	-
Z=94, Pu	0.0705	0.0642	0.063	0.061	-	-	-	-

Afin d'évaluer la validité et la précision de l'approche semi-empirique adoptée, les résultats calculés ont été confrontés aux données théoriques, empiriques et expérimentales disponibles dans la littérature. L'évolution du rapport d'intensité en fonction du numéro atomique Z est ainsi représentée sur la figure II.2.

Dans le but d'assurer une évaluation quantitative rigoureuse de l'accord entre les résultats obtenus et les données de référence, l'écart relatif (DR) a été utilisé comme critère de comparaison. Ce paramètre permet de quantifier l'écart entre les valeurs expérimentales et les valeurs calculées. Il est défini par l'expression suivante :

$$DR(\%) = \left| \left((I_{Li}/I_{Lj})_{\text{exp}} - (I_{Li}/I_{Lj})_{\text{calc}} \right) / (I_{Li}/I_{Lj})_{\text{calc}} \right| \times 100. \quad (\text{II.4})$$

Où $(I_{Li}/I_{Lj})_{\text{exp}}$ désigne le rapport d'intensité expérimental et $(I_{Li}/I_{Lj})_{\text{calc}}$ celui obtenu par le modèle semi-empirique développé dans cette étude. Cet indicateur constitue un outil essentiel pour l'évaluation de la fiabilité et de la robustesse de la méthode proposée.

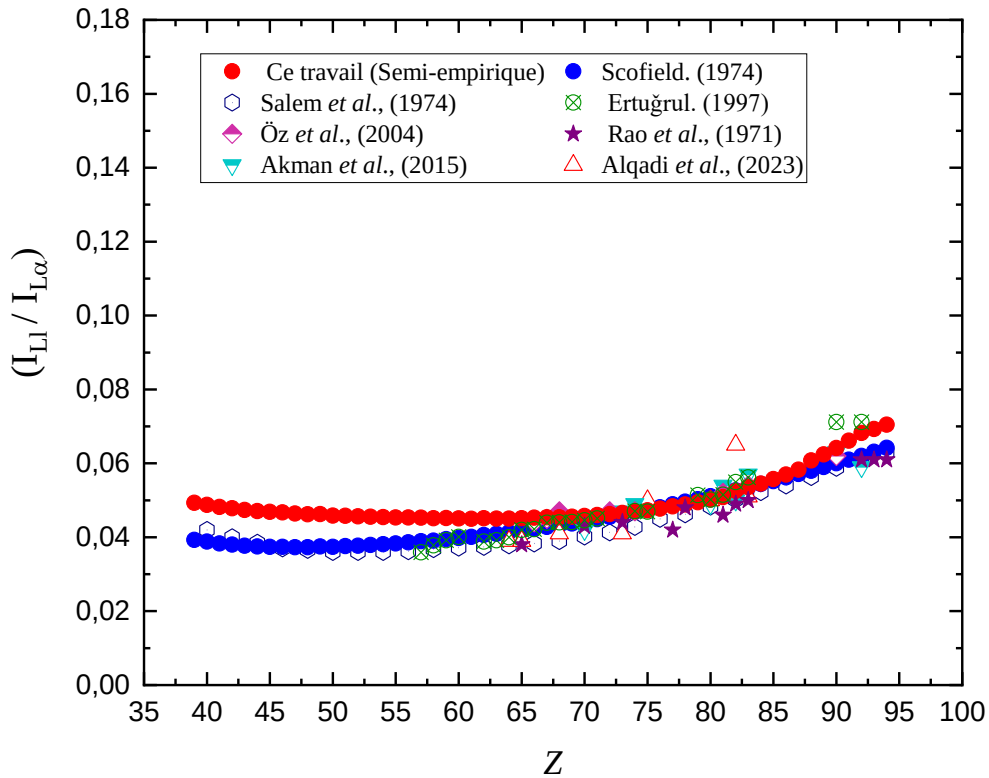


Figure II.2: Comparaison nos résultats semi-empiriques du rapport d'intensité $I_{L\beta} / I_{L\alpha}$ avec les données théoriques de Scofield. (1974) les résultats ajustés de Salem *et al.*, (1974), et les résultats expérimentaux de Rao *et al.*, (1971), Ertuğrul. (1997), Öz *et al.*, 2004, Akman *et al.*, (2015) et Alqadi *et al.*, (2023), en fonction du numéro atomique Z.

Afin de valider les résultats obtenus dans ce travail, une comparaison systématique a été effectuée avec les données publiées par Scofield. (1974), Salem *et al.*, (1974), Ertuğrul. (1997), Öz *et al.*, (2004), Rao *et al.*, (1971), Akman *et al.*, (2015) et Alqadi *et al.*, (2023). De manière générale, un accord satisfaisant est observé, avec de légères divergences pour certaines plages de numéros atomiques, comme détaillé ci-dessous.

➤ Comparaison avec Scofield. (1974)

La comparaison avec les valeurs théoriques de Scofield. (1974) porte sur l'ensemble des 56 éléments de la plage $39 \leq Z \leq 94$. Pour les éléments de faible numéro atomique ($39 \leq Z \leq 55$), les écarts relatifs sont élevés, variant de 15.64 % à 20.54 %. Cette divergence importante s'explique par le fait que les valeurs de Scofield. (1974) sont purement théoriques (calculs Hartree-Fock relativistes), tandis que notre approche semi-empirique incorpore des corrections basées sur des données expérimentales.

Dans la région intermédiaire ($56 \leq Z \leq 72$), les écarts diminuent progressivement, passant d'environ 14.79 % à 1.73 %, reflétant une convergence croissante entre les deux approches. Pour les éléments

de numéro atomique élevé ($73 \leq Z \leq 94$), les écarts sont très faibles, variant de 0 % (^{83}Bi) à un maximum d'environ 9.09 % pour ^{92}U . Plusieurs éléments présentent des écarts quasi nuls : ^{74}W (0.43 %), ^{75}Re (0.21 %), ^{82}Pb (0.19 %), ^{84}Po (0.18 %).

➤ **Comparaison avec Salem *et al.*, (1971)**

La comparaison avec Salem *et al.* (1971) porte sur 28 éléments (données disponibles pour les Z pairs de 39 à 94). Pour les éléments de faible numéro atomique ($39 \leq Z \leq 57$), les écarts sont très élevés, compris entre 13.93 % et 21.57 %. Ces écarts importants reflètent la différence de nature entre l'approche empirique de Salem *et al.*, (1974) et notre méthode semi-empirique, notamment pour les terres rares légères.

Dans la région intermédiaire (Z de 58 à 79), les écarts diminuent progressivement de 18.40 % à 5.52 %. Pour les éléments lourds ($80 \leq Z \leq 94$), un bon accord est observé avec des écarts de 3.75 % à 10.64 %.

➤ **Comparaison avec Rao *et al.*, (1971)**

La comparaison avec les données expérimentales de Rao *et al.*, (1971) est limitée à 11 éléments dans la plage $39 \leq Z \leq 94$. Les écarts présentent une forte variabilité, de 1.84 % (^{78}Pt) à 13.48 % (^{94}Pu). Des écarts plus modérés sont obtenus pour ^{70}Yb (6.11 %), ^{73}Ta (5.58 %), ^{82}Pb (6.84 %) et ^{83}Bi (6.54 %). L'écart moyen est de 9.23 %, ce qui témoigne d'un accord globalement acceptable, compte tenu des incertitudes expérimentales propres aux mesures de Rao *et al.*, (1971).

➤ **Comparaison avec Ertuğrul. (1997)**

La comparaison avec Ertuğrul. (1997) couvre 23 éléments dans la plage $57 \leq Z \leq 92$. Les résultats montrent une dispersion notable selon la région considérée. Pour les terres rares ($57 \leq Z \leq 64$), les écarts sont élevés : ^{57}La (20.75 %), ^{58}Ce (16.19 %), ^{59}Pr (13.27 %), ^{60}Nd (11.09 %), ^{62}Sm (13.97 %), ^{63}Eu (12.89 %), ^{64}Gd (11.31 %). Pour les éléments de la région $65 \leq Z \leq 75$, les écarts diminuent significativement, entre 0.21 % (^{74}W) et 7.08 % (^{65}Tb). Un excellent accord est obtenu pour ^{80}Hg (0 %), ^{81}Tl (1.38 %), ^{74}W (0.21 %) et ^{75}Re (0.85 %). Pour les actinides ^{90}Th et ^{92}U , les écarts sont de 11.08 % et 4.40 % respectivement.

➤ **Comparaison avec Öz *et al.*, (2004)**

La comparaison avec Öz *et al.*, (2004) porte sur 8 éléments (les données de référence étant disponibles uniquement pour une sélection limitée d'éléments). L'accord est remarquable : les écarts varient de 0 % (^{74}W) à 3.52 % (^{68}Er), avec une moyenne de seulement 1,92 %. Les écarts individuels sont : ^{66}Dy (2.87 %), ^{67}Ho (0.88 %), ^{68}Er (3.52 %), ^{72}Hf (1.51 %), ^{74}W (0 %), ^{81}Tl (2.36 %), ^{83}Bi (0.93 %) et ^{90}Th

(3.28 %). Ce très bon accord confirme la fiabilité de notre approche semi-empirique pour cette gamme d'éléments.

➤ **Comparaison avec Akman *et al.*, (2015)**

La comparaison avec Akman *et al.*, (2015) concerne 9 éléments dans la région $70 \leq Z \leq 92$. Les écarts sont généralement faibles à modérés : ^{73}Ta (0.86 %), ^{80}Hg (2.39 %), ^{90}Th (1.72 %), ^{74}W (4.26 %), ^{82}Pb (4.94 %), ^{81}Tl (6.30 %), ^{83}Bi (6.54 %) et ^{70}Yb (8.30 %). Une exception est observée pour ^{92}U avec un écart de 13.49 %, ce qui peut s'expliquer par les difficultés expérimentales associées aux actinides lourds. L'écart moyen est de 5.42 %, témoignant d'un accord satisfaisant.

➤ **Comparaison avec Alqadi *et al.*, (2023)**

La comparaison avec Alqadi *et al.*, (2023) a été réalisée pour neuf éléments dans la plage $64 \leq Z \leq 83$. Les résultats présentent une variabilité notable : ^{74}W (0 %), ^{80}Hg (0.40 %), ^{75}Re (5.71 %), ^{83}Bi (4.67 %), ^{68}Er (9.69 %), ^{73}Ta (12.02 %), ^{64}Gd (13.53 %), ^{65}Tb (13.72 %). L'écart maximal observé est de 23.57 % pour ^{82}Pb . Globalement, les résultats montrent un très bon accord pour plusieurs éléments, notamment ^{74}W et ^{80}Hg , tandis que les écarts plus prononcés observés pour certains cas, tels que ^{64}Gd , ^{65}Tb et ^{82}Pb , peuvent être attribuées aux différences de méthodologie expérimentale entre l'étude de référence et notre approche semi-empirique.

L'ensemble des comparaisons effectuées permet de dresser un bilan nuancé et rigoureux des résultats obtenus. La comparaison la plus exhaustive, avec Scofield. (1974) sur 56 éléments, révèle une divergence systématique pour les éléments de bas numéro atomique ($Z \leq 55$). Cette divergence est fondamentale : elle traduit non pas une imprécision de notre méthode, mais une différence structurelle entre les calculs théoriques purs de Scofield et notre approche semi-empirique qui incorpore des corrections paramétrisées sur des données expérimentales.

Pour les éléments de numéro atomique élevé ($Z \geq 70$), l'accord avec l'ensemble des références est globalement bon à très bon, particulièrement avec Öz *et al.*, (2004) et Akman *et al.*, (2015). Les écarts les plus faibles sont observés pour des éléments tels que ^{74}W , ^{75}Re , ^{83}Bi et ^{80}Hg , pour lesquels des valeurs quasi nulles sont atteintes avec plusieurs références. En conclusion, la méthodologie semi-empirique adoptée dans ce travail démontre sa pertinence pour les éléments lourds, tout en présentant des écarts plus marqués vis-à-vis des valeurs théoriques pures pour les éléments légers, ce qui constitue une caractéristique attendue de ce type d'approche.

II.5 Références bibliographiques :

Akman, F., Durak, R., Kaçal, M. R., & Turhan, M. F. (2015). "Measurement of L_i X-ray fluorescence production cross sections and intensity ratios of some elements at 59.54 keV". *Can. J. Phys.* 93(10), 1057-1066.

Alqadi, M., Al-Humaidi, S., Alkhateeb, H., & Alzoubi, F. (2023). "L-shell x-ray fluorescence relative intensities for elements with $62 \leq Z \leq 83$ at 18 keV and 23 keV by synchrotron radiation". *Chin. Phys. B* 32(8), 083201.

Aylikci, V., Kahoul, A., Kup Aylikci, N., Tıraşoğlu, E., Karahan, İ. H., Abassi, A., & Dogan, M. (2015). "Empirical and semi-empirical interpolation of L X-ray fluorescence parameters for elements in the atomic range $50 \leq Z \leq 92$ ". *Radiat. Phys. Chem.* 106, 99-125.

Ertuğrul, M. (1997). "Measurement of $L\beta/L\alpha$ intensity ratios for elements in the region $57 \leq Z \leq 92$ by a Si(Li) detector". *Spectrochim. Acta Part B: At. Spectrosc.* 52(2), 201-204.

Öz, E., Baydaş, E., Ertuğrul, M., & Şahin, Y. (2004). "Measurement of L shell X-ray fluorescence intensity ratios for some elements in the atomic number range of $66 \leq Z \leq 90$ by photoionization of consecutive L-subshells". *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 260(1), 75-79.

Rao, P. V., Palms, J. M., & Wood, R. E. (1971). "High- Z L -Subshell X-Ray Emission Rates". *Phys. Rev. A* 3(5), 1568-1575.

Salem, S. I., Panossian, S. L., & Krause, R. A. (1974). "Experimental K and L relative x-ray emission rates". *At. Data Nucl. Data Tables.* 14(2), 91-109.

Scofield, J. H. (1974). "Relativistic Hartree-Slater values for K and L X-ray emission rates". *At. Data Nucl. Data Tables.* 14(2), 121-137.

Conclusion générale

Le présent travail avait pour objectif principal la détermination semi-empirique du rapport d'intensité des raies de rayons X $I_{Ll}/I_{L\alpha}$ associées à la couche L, pour les éléments dont le numéro atomique est compris entre $Z = 39$ et $Z = 94$. Cette étude s'inscrit dans le cadre plus général de la physique atomique et de la spectroscopie des rayons X, domaines dans lesquels la connaissance précise des paramètres atomiques constitue une nécessité fondamentale pour l'interprétation des spectres d'émission et le développement des techniques d'analyse élémentaire non destructive.

Dans le premier chapitre, nous avons présenté les bases théoriques indispensables à la compréhension du travail. Nous avons rappelé les notions fondamentales relatives à la structure de l'atome, aux niveaux d'énergie électroniques, ainsi qu'aux différents mécanismes d'interaction entre le rayonnement et la matière, notamment l'effet photoélectrique, l'effet Compton et la création de paires. Nous avons également décrit les processus radiatifs et non radiatifs intervenant lors de la désexcitation atomique, en particulier la fluorescence X, l'effet Auger et les transitions de Coster-Kronig, qui jouent un rôle essentiel dans la dynamique des lacunes électroniques au sein de la couche L. Enfin, nous avons introduit les paramètres spectroscopiques utilisés dans ce travail, notamment les probabilités de transition radiative, les rendements de fluorescence, ainsi que les sections efficaces de production des raies caractéristiques.

Dans le second chapitre, nous avons développé la méthodologie semi-empirique adoptée pour le calcul du rapport d'intensité $I_{Ll}/I_{L\alpha}$. Cette approche repose sur la définition d'un rapport normalisé R , obtenu en divisant les valeurs expérimentales disponibles dans la littérature par les valeurs théoriques de Scofield. (1974). Ce rapport a ensuite été ajusté par interpolation polynomiale du troisième degré en fonction du numéro atomique Z .

Les valeurs semi-empiriques du rapport $I_{Ll}/I_{L\alpha}$ ont finalement été obtenues en multipliant cette fonction correctrice par les valeurs théoriques de Scofield, ce qui a permis d'incorporer les corrections empiriques issues des données expérimentales tout en bénéficiant du cadre théorique rigoureux fourni par les calculs Hartree-Fock relativistes.

La comparaison des résultats obtenus avec les données théoriques, empiriques et expérimentales disponibles dans la littérature a permis d'évaluer la validité et la précision de l'approche adoptée. De manière générale, un bon accord est observé avec l'ensemble des références consultées, en particulier pour les éléments de numéro atomique élevé ($Z \geq 70$), pour lesquels les écarts relatifs sont très faibles. Les comparaisons les plus concluantes ont été réalisées avec les

Conclusion générale

données expérimentales de Öz *et al.*, (2004), avec un écart moyen de seulement 1.92 %, et avec celles de Akman *et al.*, (2015), avec un écart moyen de 5.42 %. Des écarts plus importants ont été observés pour les éléments de faible numéro atomique ($Z \leq 55$) par rapport aux valeurs purement théoriques de Scofield. (1974), ce qui s'explique par le fait que notre approche intègre des corrections empiriques qui modifient les prédictions théoriques brutes dans ce domaine de Z .

En définitive, les résultats obtenus dans ce travail démontrent la pertinence et l'efficacité de l'approche semi-empirique pour la détermination du rapport d'intensité $I_{L1}/I_{L\alpha}$ sur une large gamme de numéros atomiques. Ce type de modélisation constitue un outil complémentaire précieux aux méthodes purement théoriques et aux mesures expérimentales, permettant de combler les lacunes dans les données disponibles et d'améliorer la fiabilité des estimations pour les éléments pour lesquels peu de données expérimentales sont accessibles.

Résumé

Ce travail porte sur la détermination semi-empirique du rapport d'intensité des rayons X $\left(\frac{I_{L\beta}}{I_{L\alpha}}\right)$ pour les éléments de $39 \leq Z \leq 94$ à l'aide d'une approche semi-empirique. Après avoir présenté les bases théoriques des interactions rayonnement-matière et des mécanismes d'émission des rayons X caractéristiques de la couche L, des calculs semi-empiriques ont été réalisés en combinant les données expérimentales issues de la littérature (619 points de données extraits de 66 articles publiés entre 1971 et 2023) avec les valeurs théoriques de Scofield. (1974). La méthode repose sur la définition d'un rapport normalisé, ajusté par interpolation polynomiale du troisième degré en fonction du numéro atomique Z . Les valeurs semi-empiriques obtenues ont été comparées aux données théoriques, empiriques et expérimentales disponibles dans la littérature. Un bon accord général est observé, ce qui confirme la fiabilité et la pertinence de la méthode adoptée, en particulier pour les éléments de numéro atomique élevé ($Z \geq 70$).

Abstract

This work focuses on the semi-empirical determination of the X-ray intensity ratio $\left(\frac{I_{L\beta}}{I_{L\alpha}}\right)$ for elements with atomic numbers $39 \leq Z \leq 94$ using a semi-empirical approach. After presenting the theoretical foundations of radiation-matter interactions and L-shell X-ray emission mechanisms, semi-empirical calculations were carried out by combining experimental data from the literature (619 data points extracted from 66 articles published between 1971 and 2023) with Scofield's (1974) theoretical values. The method is based on defining a normalized ratio adjusted by third-degree polynomial interpolation as a function of atomic number Z . The obtained semi-empirical values were compared with theoretical, empirical, and experimental data available in the literature. Good overall agreement was observed, confirming the reliability and effectiveness of the adopted method, especially for high atomic number elements ($Z \geq 70$).

المخلص

تمثل هذا العمل في دراسة نسبة شدة الأشعة السينية للعناصر $X \left(\frac{I_{L\beta}}{I_{L\alpha}}\right)$ ذات العدد الذري $39 \leq Z \leq 94$ باستعمال مقارنة شبه تجريبية. بعد تقديم الأسس النظرية لتفاعلات الإشعاع مع المادة وآليات انبعاث الأشعة السينية الخاصة بطبقة L، أُجريت حسابات شبه تجريبية بالاعتماد على البيانات التجريبية المتوفرة في الأدبيات العلمية (619 نقطة بيانات مستخرجة من 66 مقالاً نُشرت بين عامي 1971 و 2023)، مقرونةً بالقيم النظرية لـ Scofield (1974). تعتمد المنهجية على تعريف نسبة مُعَيَّرة تُضبط بالتقاطع متعدد الحدود من الدرجة الثالثة بدلالة العدد الذري Z . وقد قُورنت القيم شبه التجريبية المُتَحَصَّل عليها بالبيانات النظرية والتجريبية المتوفرة في الأدبيات، وأظهرت النتائج توافقاً جيداً بوجه عام، مما يؤكد موثوقية وفعالية الطريقة المستعملة، خاصةً للعناصر ذات الأعداد الذرية المرتفعة ($Z \geq 70$).