

THÈSE

présentée devant

L'Université Louis Pasteur de Strasbourg

U.F.R de Sciences Physiques

pour l'obtention du

**Diplôme de Doctorat
Spécialité Physique**

par

David BROGGIO

*Scintillation iono-induite dans les solides
organiques : élaboration d'un modèle de trace
moyenne, dégradation de l'intensité de
scintillation et application en dosimétrie*

soutenue à Strasbourg le 17 décembre 2004 devant la
commission d'examen :

Emmanuel Balanzat, Directeur de Recherches	Rapporteur Externe
Michel Fromm, Professeur	Rapporteur Externe
Abdel-Mjid Nourreddine, Professeur	Rapporteur Interne
Klaus Lützenkirchen, Professeur	Directeur de Thèse
Jean-Marc Jung, Maître de Conférences	Co-directeur de Thèse
Remi Barillon, Maître de Conférences	Examineur

*À ma mère Colette,
À mon beau-père Jean-Pierre,
À ma grand-mère Renée,
Pour leur soutien constant
sans lequel rien n'eut été possible*

Ce travail a été réalisé dans le groupe de Chimie Nucléaire de l'Institut de Recherches Subatomiques, à Strasbourg. Je tiens en premier lieu à remercier Klaus Lützenkirchen pour avoir accepté la responsabilité de diriger cette thèse.

Ce travail à été encadré par Jean-Marc Jung à qui j'adresse mes remerciements pour la grande liberté qu'il a su me laisser, pour les conseils avisés qu'il m'a prodigué et pour ses grandes qualités humaines.

Ce travail a également été encadré par Rémi Barillon qui m'a aidé à élargir le sujet d'étude initial. Je tiens à le remercier chaleureusement pour son enthousiasme et sa passion communicative, pour ses conseils efficaces et les indications précises dont il m'a fait profiter.

Durant les longues nuits d'expériences au GANIL, à l'UCL, au Vivitron et au HIMAC rien n'aurait abouti sans le soutien indéfectible de Tomoya Yamauchi. Qu'il trouve ici l'expression de ma gratitude. Que ces mots soient également l'occasion de le remercier pour les nombreuses discussions dont j'ai tiré un grand profit.

Mes remerciements vont également à Monsieur Emmanuel Balanzat qui m'a fait l'honneur d'être un rapporteur de ce travail. Qu'il soit ici remercié pour sa lecture attentive du manuscrit, pour ses conseils éclairés qui m'ont permis de parfaire ce travail et aussi pour son soutien efficace durant les expériences au GANIL.

Les remarques pertinentes de Monsieur Michel Fromm m'ont également permis de rendre ce travail plus clair, je tiens aussi à le remercier pour m'avoir fait part de son intérêt pour ce travail, ce qui m'a permis d'aborder sereinement la soutenance.

Je fais part de mes plus vifs remerciements au Professeur Abdel-Mjid Nouredine pour avoir accepté d'être le rapporteur interne de ce travail. Ses conseils avisés et son efficacité m'ont permis de terminer ce travail dans d'excellentes conditions.

Mes remerciements s'adressent également à Nakairo Yasuda et Hiroko Tawara pour leur soutien dans les expériences au HIMAC dans le cadre du projet Sakura. Pour son soutien appuyé lors des expériences au Vivitron je tiens à remercier chaleureusement Monsieur Florent Haas. Je remercie aussi Jean-Marc Denis pour nous avoir permis de travailler à l'Université Catholique de Louvain et pour nous avoir fait bénéficier de sa grande expérience. J'adresse aussi mes remerciements à Yann le Gall et à Jean-Paul Stoquert pour nous avoir permis de travailler sur l'accélérateur du laboratoire PHASE et pour leur soutien efficace durant les expériences.

Enfin, mes derniers remerciements s'adressent à tous les membres du groupe de Chimie Nucléaire auprès desquels j'ai passé trois années formidables. Je remercie également Julien Faivre pour ses conseils magistraux sur l'utilisation de L^AT_EX.

Table des matières

Introduction	1
1 Perte d'énergie des particules chargées et modèle de la trace moyenne	5
I Introduction	5
II Perte d'énergie des particules chargées	6
II.1 Préambule et notations	6
II.2 Perte d'énergie des ions	6
II.2.1 Relation de Bethe-Bloch	7
II.2.2 Ordres de grandeur	10
II.3 Perte d'énergie des électrons	11
II.4 Quantité d'électrons secondaires créée par le passage d'un ion	12
III Dose radiale	16
III.1 Approche de Katz	17
III.2 Approche de Michaelian et Menchaca-Rocha	18
III.3 Derniers développements du modèle de la trace moyenne	20
IV Équation de transport pour le flux d'électrons	21
IV.1 Équation de Lewis	22
IV.2 Calcul de la distribution d'énergie dissipée	23
IV.3 Cas d'une source ponctuelle collimatée	27
IV.4 Utilisation pratique de la DED	27
V Dépôt radial d'énergie le long de la trace	28
V.1 Modélisation	28
V.2 Application	30
VI Bilan	34
2 Scintillation iono-induite	35
I Introduction	35
II Processus primaires à l'origine de la scintillation	36
II.1 Nature des états moléculaires excités	37
II.2 Transfert de l'énergie d'excitation	38
II.3 Distribution spatiale des états d'activation	41

III	Scintillation iono-induite	43
III.1	Position du problème	43
III.2	Dose radiale et luminescence	45
III.2.1	Différentes formulations du problème	45
III.2.2	Approche de Michaelian et Menchaca-Rocha	46
III.3	Luminescence spécifique et aspect temporel	48
III.4	Inhibition de l'énergie d'ionisation et effets supplémentaires à prendre en compte	51
IV	Application du modèle de dose radiale à la scintillation iono- induite	55
IV.1	Motivations	55
IV.2	Résultats et discussions	56
V	Bilan	63
3	Dégradation de l'intensité de scintillation et dégâts chimiques iono-induits dans les solides organiques	65
I	Introduction	65
II	Dispositif de mesure pour la dégradation de l'intensité de scin- tillation	67
III	Dégradation de l'intensité de scintillation	71
III.1	Dégradation iono-induite de l'intensité de scintillation de l'anthracène	71
III.1.1	Conditions expérimentales et traitement des données	72
III.1.2	Interprétation des résultats	73
III.2	Dégradation iono-induite de l'intensité de scintillation du scintillateur plastique BC-418	77
III.2.1	Conditions expérimentales	78
III.2.2	Résultats obtenus	79
IV	Étude par spectroscopie infra-rouge des dégâts chimiques in- duits par des ions carbone et des hélions dans le BC-418	85
IV.1	Caractéristiques du spectre infrarouge de BC-418	85
IV.2	Cas du carbone	89
IV.2.1	Création de dégâts dans le cœur et le halo de la trace	90
IV.2.2	Résultats et discussion	91
IV.3	Cas des hélions	101
V	Bilan	102
4	Dosimétrie d'ions d'intérêt en radiobiologie à l'aide de scintilla- teurs plastiques	107
I	Introduction	107
II	Performances du prototype développé	110
II.1	Caractéristiques techniques	110

II.2	Performances	113
III	Bilan	118
Conclusion		121
Références		123
Annexe du chapitre 1		139
I	Calcul des moments de la DED	139
II	Comparaison des différents modèles de dose radiale	140
III	Profils de dose et contribution des électrons le long de la trace .	142
IV	DED dans NaI et dans Pilot-U	146
Annexe du chapitre 2		149
Annexe du Chapitre 3		151

Liste des tableaux

1.1	Résumé des notations employées	7
1.2	Potentiels d'ionisation moyens recommandés par l'ICRU pour quelques éléments simples.	8
1.3	Potentiels d'ionisation moyens recommandés par l'ICRU pour quelques composés	9
1.4	Contributions des différents nombres d'arrêts en pour cent, pour un proton dans l'aluminium.	10
1.5	Contributions des différents nombres d'arrêts en pour cent, pour un proton dans l'or.	10
1.6	Facteurs de Lorentz pour différentes énergies d'un ion	14
1.7	Energie maximale et facteurs de Lorentz associés en fonction de l'énergie de l'ion incident.	14
2.1	Temps caractéristique des processus unimoléculaires	40
2.2	Valeurs de la densité de quenching pour quelques scintillateurs	48
2.3	Qualité de l'ajustement pour les données de Buenerd et al. concernant le scintillateur Pilot-U	60
2.4	Paramètres d'ajustement pour le scintillateur Pilot-U d'après les données de Buenerd et al.	60
3.1	Caractéristiques techniques de la tête optique et de la fibre multimode	69
3.2	Caractéristiques de l'anthracène	71
3.3	Énergie, perte d'énergie et parcours des ions carbone dans l'anthracène . Les valeurs sont calculées avec le logiciel SRIM	72
3.4	Perte d'énergie et parcours du lithium et du carbone dans le BC-418	79
3.5	Perte d'énergie et parcours de l'iode dans le BC-418	79
3.6	Paramètres d'ajustement de la diminution de l'intensité de scintillation du BC418	81
3.7	Assignation des bandes infrarouge étudiées par la suite (nombre d'onde en cm^{-1})	87
3.8	Comparaison des valeurs minimum du χ^2 réduit selon que l'on utilise un ajustement mono ou bi-exponentiel	92

3.9	Paramètres d'ajustements permettant de décrire la diminution relative du nombre de liaisons aromatiques	94
3.10	Doses radiales calculées en r_c et r_t d'après le modèle de Michaelian et al.	96
3.11	Paramètre D_0 nécessaire au calcul de la section efficace dans le modèle de Katz (équation 3.10 avec $m=1$)	96
3.12	Paramètres d'ajustements décrivant la diminution des liaisons aliphatiques	97
3.13	Section efficace de dégât des liaisons de la matrice du BC-418, irradié par des hélions de 3 MeV	101
4.1	Caractéristiques techniques de la carte d'acquisition M8784 . . .	111
4.2	Caractéristiques techniques de la tête de comptage de photons H71155-20	112
4.3	Caractéristiques de la tête de mesure et de la fibre optique . . .	112

Table des figures

1.1	Pouvoir d'arrêt du proton dans quelques matériaux d'après la base de données PSTAR	11
1.2	Pouvoir d'arrêt des électrons dans quelques matériaux d'après la base de données ESTAR	13
1.3	Effet de densité sur le pouvoir d'arrêt des électrons d'après la base de données ESTAR	13
1.4	DED dans l'aluminium pour différentes énergies	26
1.5	Notations utilisées pour la sommation des contributions	28
1.6	Comparaison des composantes directes et rétrodiffusées	30
1.7	Dose radiale dans l'aluminium pour ^{16}O , comparaison des approches	31
1.8	Contribution des électrons le long de la trace @ $E/A=101$ MeV	33
2.1	Transitions radiatives et non radiatives accessibles à la molécule isolée	38
2.2	Illustration du principe de Franck-Condon	39
2.3	Mécanismes de transfert d'énergie dans un scintillateur plastique contenant un dopant	41
2.4	Vue schématique de la localisation des différentes zones d'activation	42
2.5	Résumé des résultats pour les ajustements des données de Newman et Steigert pour différents modèles de scintillation	56
2.6	Meilleur ajustement des données de Newman et Steigert en utilisant notre profil de dose radiale et le modèle MM1.	57
2.7	Variation des constantes de normalisation (1)	57
2.8	Meilleur ajustement en utilisant notre profil de dose radiale et le modèle de Katz	58
2.9	Variation des constantes de normalisation pour le modèle de Katz	58
2.10	Meilleur ajustement en utilisant notre profil de dose radiale et le modèle MM2	59
2.11	Variation des constantes de normalisation pour le modèle MM2	59
2.12	Meilleur ajustement des données de Buenerd et al. (Pilot-U) en utilisant notre profil de dose radiale et le modèle MM1	61

2.13	Variation des constantes de normalisation (modèle MM1 pour Pilot-U)	61
2.14	Meilleur ajustement en utilisant notre profil de dose radiale et le modèle de Katz	61
2.15	Variation des constantes de normalisation pour le modèle de Katz	61
2.16	Meilleur ajustement en utilisant notre profil de dose radiale et le modèle MM2	62
2.17	Variation des constantes de normalisation pour le modèle MM2	62
3.1	Schéma du dispositif utilisé pour la mesure de la dégradation de l'intensité de scintillation	68
3.2	Caractéristique spectrale de comptage du H71155-20	70
3.3	Têtes optiques ("Pigtail style focuser") servant à la collecte de la scintillation	70
3.4	Molécule d'anthracène et spectre d'émission	71
3.5	Dégradation de l'intensité de scintillation de l'anthracène sous faisceau de Carbone	74
3.6	Section efficace de dégât et probabilité relative de capture d'exciton	76
3.7	Fluence critique en fonction de l'énergie, pour l'anthracène sous faisceau de carbone	76
3.8	Constituants du BC-418	77
3.9	Spectre d'absorption du BC-418	78
3.10	Spectre d'émission du BC-418	78
3.11	Ajustement de la dégradation de l'intensité de scintillation avec 2 et 3 exponentielles	80
3.12	Ajustement de l'intensité de scintillation pour les trois ions utilisés	80
3.13	Ajustement du rendement de scintillation de BC-418	82
3.14	Spectre IR de BC-418	86
3.15	Illustration du calcul de l'absorbance nette à 783 cm^{-1} sur un échantillon de BC-418	88
3.16	Aire couverte par le cœur de trace et le halo	89
3.17	Contributions du coeur et du halo dans la perte du nombre de liaisons	93
3.18	Ajustement de la fraction restante de liaisons avec une ou deux exponentielles	94
3.19	Ajustement de la fraction restante de liaisons aromatiques	95
3.20	Diminution de la fraction restante de liaisons aliphatiques	97
3.21	Ajustement de la fraction de liaisons restantes, cas des liaisons qui augmentent en début d'irradiation	98
3.22	Effet de la mise à l'air sur les bandes aliphatiques et aromatiques	100
3.23	Effet de la mise à l'air sur les bandes à 1607 et 1700 cm^{-1}	100

3.24	Diminution relative du nombre de liaisons de la matrice du BC-418 irradié avec des hélions de 3 MeV	102
3.25	Bilan des sections efficaces de dégât dans le PVT (1)	103
3.26	Bilan des sections efficaces de dégât dans le PVT (2)	104
4.1	Schéma de principe du fonctionnement du dosimètre	110
4.2	Sonde de mesure du dosimètre	111
4.3	Sonde de mesure du dosimètre	111
4.4	Éléments constituant le dosimètre	113
4.5	Courbe de calibration Perte d'énergie/Parcours en équivalent eau	114
4.6	Exemple de pulses vus par le dosimètre	114
4.7	Réponse du dosimètre en fonction de la profondeur eau-équivalente	116
4.8	Distribution du nombre de coups avec et sans scintillateur . . .	117
4.9	Courbe de calibration : signal par pulse en fonction du pouvoir d'arrêt	117
4.10	Ajustement des données selon le modèle MM.	118
A-1	Illustration de la méthode de calcul permettant d'obtenir les moments de la DED	139
A-2	Rapport des différents modèles (1)	140
A-3	Rapport des différents modèles (2)	141
A-4	Calcul de la dose radiale à $E/A=130$ MeV	142
A-5	Calcul de la dose radiale à $E/A=70.8$ MeV	143
A-6	Calcul de la dose radiale à $E/A=46$ MeV	144
A-7	Calcul de la dose radiale à $E/A=10$ MeV	145
A-8	DED dans NaI	146
A-9	DED dans Pilot-U	147
B-1	Meilleur ajustement en utilisant notre profil de dose radiale et le modèle de Luntz	149
B-2	Variation des constantes de normalisation pour le modèle de Luntz	149
B-3	Ajustement, modèle de Luntz dans Pilot-U	150
B-4	Variation des constantes de normalisation, modèle de Luntz dans Pilot-U	150
C-1	Calcul des incertitudes prises en compte dans l'évaluation de l'absorbance nette	152
C-2	Localisation du minimum du χ^2 dans le cas du modèle "ion-kill/ γ -kill"	153

It is evident that such protons have radiobiological applications since it is possible to treat a volume as small as one cm^3 anywhere within the body, and give to that volume several times the dose of any of the neighboring tissue.

R. R. Wilson, Phys. Rev. **71** (1947)

Introduction

Depuis le premier traitement par protonthérapie à Berkeley, en 1954, l'utilisation des faisceaux d'ions n'a cessé de s'étendre. L'application la plus marquante et la plus aboutie est sans aucun doute le traitement de tumeurs par hadronthérapie, qui se développe fortement en Europe, aux États-Unis et au Japon. L'emploi des faisceaux d'ions pour la réalisation de composants nanométriques n'a pas encore atteint le même degré de sophistication que dans le domaine médical, mais les enjeux économiques liés à ce secteur laissent prévoir des progrès importants pour la prochaine décennie. La performance des traitements médicaux est non seulement due à l'amélioration constante des techniques, mais aussi aux progrès réalisés dans la compréhension des processus d'interaction entre les particules ionisantes et la matière.

Utilisation
actuelle des
faisceaux
d'ions

Ce travail concerne un aspect particulier de l'interaction ion-matière : la scintillation induite par les ions, en particulier dans les matériaux organiques. Dans un *premier temps* nous abordons théoriquement ce problème en élaborant une méthode de calcul de la dose radiale dans l'approche du modèle de la trace moyenne. Dans un *deuxième temps* nous étudions les mécanismes à l'origine de la scintillation iono-induite et nous appliquons notre modèle de dose radiale au cas de la scintillation iono-induite. Dans la *troisième partie* de notre travail nous abordons un aspect peu étudié de l'interaction entre les ions et les scintillateurs : la dégradation de l'intensité de scintillation et les modifications chimiques iono-induites. Enfin, dans la *quatrième partie*, nous présentons un prototype de dosimètre basé sur le couplage de scintillateurs et de fibres optiques permettant la mesure en temps réel de la dose délivrée par un faisceau de carbone dans des conditions d'utilisation thérapeutiques.

Résumé des
chapitres

Pour disposer, dans la suite de ce travail, des meilleures valeurs possibles de la perte d'énergie nous discutons les moyens de calcul disponibles, leurs mérites et leur domaine d'application. La perte d'énergie n'est cependant pas le seul paramètre à prendre en compte car, pour les ions utilisés en radiothérapie, la perte d'énergie électronique s'accompagne de l'éjection dans la matière d'électrons secondaires dont le spectre en énergie est très étendu. Ces électrons éjectés déposent leur énergie autour du parcours de l'ion et les effets induits par les particules primaires et secondaires peuvent être appréhendés en invoquant le modèle de la trace moyenne. Initialement développée par Katz, cette approche

Utilité de la dose radiale

semble être la seule actuellement à même de prévoir correctement les sections efficaces de dégât biologique. Le modèle de la trace moyenne pouvant s'utiliser dans de nombreux domaines, nous avons trouvé intéressant d'approfondir ce point. Nous avons donc développé un modèle, basé sur l'équation de transport de Lewis et sur l'utilisation de la distribution d'énergie dissipée de Spencer, afin de prendre en compte de manière réaliste le transport des électrons secondaires dans la matière. L'intérêt de cette approche réside dans le fait qu'elle est particulièrement adaptée lorsque l'on s'intéresse à des ions de haute énergie ayant un long parcours à travers la matière puisque la dose radiale est calculée en un point de la trace en considérant les électrons éjectés en amont. Nous discutons enfin les mérites de cette approche par rapport à d'autres modèles, particulièrement ceux de Katz et de Michaelian.

Particularité de la scintillation iono-induite

La scintillation iono-induite se distingue principalement par deux caractéristiques : la dépendance en nombre de charge de l'intensité de scintillation pour des ions de même perte d'énergie et la saturation de l'efficacité de scintillation pour les ions de pouvoir d'arrêt élevé, ceci étant valable dans les scintillateurs organiques et inorganiques. Depuis les premiers travaux de Birks dans les années 1950, plusieurs dizaines de modèles ont été publiés afin de rendre compte des données expérimentales. Une étude critique des modèles publiés montre que la dépendance en charge de l'intensité de scintillation s'explique en partie par la prise en compte du rôle joué par les électrons secondaires et nécessite l'introduction du concept de dose radiale. Cependant, force est de constater que les mécanismes permettant de relier la dose radiale à l'intensité de scintillation sont loin d'être parfaitement établis. Nous avons plus particulièrement étudié le modèle récemment proposé par Michaelian et Menchacca-Rocha qui ont introduit l'idée que la saturation est atteinte pour un dépôt radial d'énergie supérieur à une densité critique, propre au scintillateur, dite densité de quenching. Le modèle de dose radiale que nous avons élaboré est utilisé en faisant appel à différentes hypothèses sur les mécanismes de scintillation (approche de Michaelian et Menchacca-Rocha, de Katz et de Luntz) et les résultats sont confrontés à des données expérimentales pour deux types de scintillateurs (organique et inorganique).

Dégâts iono-induits dans les scintillateurs

Les expériences et les modèles traitant de la scintillation iono-induite négligent le plus souvent le phénomène de dégradation de l'intensité de scintillation provoquée par l'irradiation du scintillateur. Alors qu'un certain nombre de résultats assez précis ont été obtenus concernant la dégradation induite par les électrons ou les photons, les études portant sur la dégradation iono-induite sont plutôt rares. Nous avons ainsi mis au point un dispositif permettant de mesurer, en temps réel, la dégradation de l'intensité de scintillation sous faisceau d'ions. Grâce à ce dispositif nous avons mesuré la dégradation de l'intensité de scintillation de l'anthracène, sous faisceau de carbone et expliqué nos résultats à l'aide d'un modèle dû à Birks. Nous avons également étudié la dégradation de l'intensité de scintillation du scintillateur plastique BC-418 (solution solide

à matrice de polyvinyltoluène) sous faisceau de lithium, de carbone et d'iode. Enfin, pour caractériser les dégâts induits dans la matrice de polyvinyltoluène, nous avons réalisé une étude par spectroscopie infrarouge d'échantillons irradiés à différentes fluences sous faisceau de carbone et d'hélium.

Pour conclure ce travail nous présentons un prototype de dosimètre constitué d'une sonde de diamètre réduit, comportant plusieurs films de scintillateur BC-418. Cette sonde qui comporte un guide de lumière est directement reliée à une fibre optique, elle-même reliée à un photomultiplicateur, le signal issu du photomultiplicateur, après traitement par une carte, est directement affiché sur écran. Ce système, testé à l'HIMAC¹ de Chiba, avec un faisceau de carbone à 290 MeV/A dans des conditions semblables à celles utilisées en radiothérapie, permet un contrôle du faisceau en mode pulsé et une reconstruction correcte des impulsions. Ce système permet aussi, après analyse des données, de relier la dose à l'intensité de scintillation mais n'offre pas actuellement une précision suffisante pour satisfaire les exigences requises dans le domaine de la radiothérapie.

Application
en
dosimétrie

There are more things in heaven
and earth, Horatio, Than are
dreamt of in your philosophy

Shakespeare, Hamlet I.v

1. Heavy Ion Medical ACcelerator

De la musique avant toute chose,
Et pour cela préfère l'Impair
Plus vague et plus soluble dans l'air,
Sans rien en lui qui pèse ou qui pose.

P. Verlaine , Jadis et Naguère

Chapitre 1

Perte d'énergie des particules chargées et modèle de la trace moyenne

I Introduction

Les ions de haute énergie, comme ceux utilisés en hadronthérapie, perdent principalement leur énergie par ralentissement électronique. Tant que le ralentissement électronique est prédominant la perte d'énergie s'accompagne de l'éjection dans la matière d'électrons dits secondaires qui perdent à leur tour de l'énergie. L'énergie déposée par ces électrons joue un rôle prépondérant dans la création des dégâts biologiques ou chimiques et dans le mécanisme de scintillation iono-induite.

L'énergie et la charge de l'ion, d'une part, et les propriétés du milieu traversé par l'ion, d'autre part, permettent de déterminer la perte d'énergie de l'ion et la quantité d'électrons secondaires éjectés. Les mécanismes de perte d'énergie des particules chargées sont rappelés dans la *première partie* ce qui permet d'examiner ensuite la distribution en énergie des électrons secondaires produits par le passage d'un ion.

L'utilisation des chambres à émulsion, puis l'intérêt pour l'effet biologique des radiations, ont motivé de nombreux travaux sur le dépôt d'énergie dû aux électrons secondaires. Dans la *seconde partie* nous présentons notamment le modèle historique de Katz et ses développements successifs.

En ce qui concerne l'action biologique des ions, l'approche microdosimétrique de Kraft *et al.* et l'approche de Katz et Cucinotta sont en concurrence, même si des possibilités de réconciliation ne sont pas exclues. Pour ce qui est de l'action des ions sur le mécanisme de scintillation, il est clairement établi que la prise en compte du dépôt d'énergie des électrons secondaires est essentielle, encore faut-il éclaircir le mécanisme physique reliant ce dépôt d'énergie aux

observations expérimentales. Dans la *troisième partie* nous étudions l'équation de Lewis qui décrit le transport des électrons dans la matière, afin de proposer un modèle pour le dépôt d'énergie des électrons secondaires autour de la trace laissée par un ion. Ce modèle, qui se situe dans l'optique du modèle de la trace moyenne de Katz et Cucinotta, est établi dans la *quatrième partie* puis appliqué et discuté à l'aide d'un exemple simple.

II Perte d'énergie des particules chargées

Nous rappelons les relations fondamentales permettant d'évaluer la perte d'énergie des particules chargées en séparant le cas des ions et des électrons. Les ordres de grandeur des pertes d'énergie et le domaine de validité des relations proposées sont examinés, quelques graphiques et tableaux permettent de fixer les ordres de grandeur. La troisième partie traite de la distribution en énergie des électrons éjectés par le passage de l'ion. Cette distribution est une donnée fondamentale pour l'établissement d'une prédiction quantitative du dépôt d'énergie dû aux électrons secondaires.

II.1 Préambule et notations

Considérons une particule projectile (p) et un atome ou une molécule cible (C). Si l'interaction entre la particule et la cible laisse les deux partenaires dans le même état après interaction on parle de diffusion élastique, ce que l'on peut symboliser par :

$$p + C \longrightarrow p + C.$$

Si l'interaction laisse la cible dans un état excité ou ionisé on parle de diffusion inélastique, et l'on écrit :

$$\begin{aligned} p + C &\longrightarrow p' + C^* && \text{cible excitée,} \\ p + C &\longrightarrow p' + C^* + e^- && \text{cible ionisée.} \end{aligned}$$

Dans les parties suivantes (1-II.2 et 1-II.3, et autant que possible par la suite) nous emploierons les notations du tableau 1.1.

II.2 Perte d'énergie des ions

Nous rappelons dans cette partie la signification et l'importance des différents termes de la relation de Bethe-Bloch avant de donner quelques ordres de grandeur.

Symbole	Définition	valeur, unité
$m_e c^2$	Masse de l'électron $\times c^2$	0.510999 MeV
α	Constante de structure fine	1/137.036
$\hbar c$	Facteur de conversion	197.327 MeV.fm
e^2	Charge de l'électron ($e^2 = \hbar c \alpha$)	1.43996 MeV.fm
r_e	Rayon classique de l'électron $r_e = \alpha \hbar c / (m_e c^2)$	2.817940 fm
1 uma	Unité de masse atomique	931.494 MeV/c ²
r_0	Rayon de Bohr	0.529177 10^{-10} m
β^a	Facteur de Lorentz (vitesse/c)	
N_A	Nombre d'Avogadro	6.022142 10^{23} Mol ⁻¹
N_e	Densité volumique d'électrons	cm ⁻³
Z_1	Nombre de charge de l'ion incident	
Z_2	Nombre de charge du milieu cible	
A_2	Masse molaire du milieu cible	g.Mol ⁻¹
M_2	Nombre de masse du milieu cible	en uma

 TAB. 1.1 – *Résumé des notations employées*

^a Quand il sera question d'électrons et d'ions, la vitesse relative de l'ion sera notée β_i pour éviter les confusions.

II.2.1 Relation de Bethe-Bloch

Depuis les travaux précurseurs de Bohr, qui a calculé le pouvoir d'arrêt en fonction du paramètre d'impact, de nombreux auteurs ont contribué à l'amélioration du calcul de la perte d'énergie de l'ion. Bethe et Bloch ont notamment calculé cette quantité en utilisant le transfert d'impulsion qui est une observable (au sens quantique) au contraire du paramètre d'impact. Fano [1] a réconcilié les approches semi-classiques et quantiques et a calculé le nombre d'arrêt primaire, L_0 , tandis que Barkas et Bloch ont proposé des corrections supplémentaires qui permettent d'aller au-delà de la première approximation de Born. En adoptant les notations de Ziegler [2], la relation de Bethe-Bloch s'écrit :

$$\frac{dE}{dX} = C_{BB} \frac{Z_1^2 Z_2}{\beta^2} [L_0(\beta) + Z_1 L_1(\beta) + Z_1^2 L_2(\beta)]. \quad (1.1)$$

Pour obtenir le pouvoir d'arrêt en keV/(mg/cm²), on prend :

$$C_{BB} = \frac{4\pi r_0^2 m_e c^2 N_A}{10^{21} M_2} \approx \frac{0.3071}{M_2}.$$

Nombre d'arrêt primaire

Plus de 95 % de la perte d'énergie est contenue dans le nombre d'arrêt primaire L_0 qui s'exprime en fonction de \bar{I} , le potentiel moyen d'ionisation du matériau

cible :

$$L_0(\beta) = \ln \left(\frac{2m_e c^2 \beta^2}{1 - \beta^2} \right) - \ln(\bar{I}) - \frac{C}{Z_2} - \frac{\delta}{2}. \quad (1.2)$$

La correction de couche C/Z_2 modifie l'hypothèse classique dans laquelle on considère que la vitesse du projectile est supérieure à la vitesse de Bohr des électrons. La correction de couche est maximale entre 5 et 30 MeV/uma et peut atteindre 6% de la perte d'énergie totale ; elle devient par contre négligeable aux énergies relativistes. La correction de densité ($\delta/2$) permet de traiter correctement le champ électrique qui est réduit par la permittivité relative du milieu par rapport à sa valeur dans le vide. Cette correction, qui augmente avec la densité du milieu, peut être considérée comme négligeable pour des énergies inférieures à 1 GeV/uma.

Potentiel d'ionisation

Le potentiel d'ionisation moyen \bar{I} , qui intervient dans la relation de Bethe-Bloch, est défini par la somme (1.3) qui fait intervenir les forces d'oscillateur généralisées, f_n , et les énergies propres des états électroniques de la cible :

$$\ln \bar{I} = \sum f_n \ln E_n, \quad (1.3)$$

avec cette définition le transfert d'énergie calculé dans la relation de Bethe-Bloch est l'énergie moyenne transférée sur l'ensemble des états $|n\rangle$. Les forces d'oscillateurs généralisées sont calculables si l'on se donne les fonctions d'ondes des états $|n\rangle$:

$$f_n = \frac{2m_e E_n}{\hbar^2 Z_2} \left| \sum_{j=1}^{Z_2} \langle n|x_j|0\rangle \right|^2. \quad (1.4)$$

Les forces d'oscillateurs obéissent à la règle de somme : $\sum f_n = 1$. En pratique, les potentiels d'ionisation pour les éléments du tableau périodiques sont tabulés, notamment par l'ICRU¹ [3, 4], les valeurs de \bar{I} représentent le meilleur compromis entre les valeurs théoriques et les valeurs déduites des mesures du pouvoir d'arrêt dans divers matériaux ; quelques-unes des valeurs recommandées par l'ICRU sont données dans le tableau 1.2 .

Élément	H	C	Al	Si	Au	Pb
I (eV)	19.2	81	166	173	790	823

TAB. 1.2 – Potentiels d'ionisation moyens recommandés par l'ICRU pour quelques éléments simples.

1. International Committee on Radiation Units

Composé	I (eV)	Composé	I (eV)
Eau (liquide, CNTP)	75	Air (CNTP)	87.7
CsI	553.1	NaI	452
Polystyrène	68.7	Polyéthylène	57.4
BGO	534.1	Anthracene	68.5

TAB. 1.3 – Potentiels d'ionisation moyens recommandés par l'ICRU pour quelques composés

Correction de Barkas et de Bloch

La correction de Barkas, $Z_1 L_1(\beta)$, est une correction à l'approximation de Born et elle permet de prendre en compte la polarisation du milieu par le projectile. La correction de Barkas explique notamment que des particules chargées négativement ont un parcours légèrement plus grand que des particules de même masse, mais chargées positivement. La terme de Barkas explique aussi les déviations du pouvoir d'arrêt par rapport à la loi d'échelle en Z_1^2 . Cette correction peut être considérée comme négligeable pour des énergies supérieures à 20 MeV/uma mais elle devient importante à basse énergie (pour un ion lithium à 1 MeV/uma la correction de Barkas représente 20% de la perte d'énergie).

La correction de Bloch tient compte des interactions à grand paramètre d'impact mais reste toujours inférieure à la correction de Barkas. En pratique, on retiendra qu'elle ne dépasse jamais quelques pour cent de la perte d'énergie totale, même à basse énergie où elle atteint son maximum.

Cas des milieux composés

Dans le cas où le milieu cible est constitué de plusieurs éléments, la règle de Bragg permet de calculer la perte d'énergie en introduisant, pour la charge et la masse atomique du milieu, des valeurs dites effectives, définies par :

$$\begin{cases} Z_{eff} = \frac{\sum n_i Z_i}{\sum n_i} \\ A_{eff} = \frac{\sum n_i A_i}{\sum n_i} \end{cases} \quad (1.5)$$

Ces valeurs remplacent Z_2 et A_2 ; n_i est la stœchiométrie de l'élément i dans le composé cible. En ce qui concerne le potentiel d'ionisation moyen qui intervient dans la perte d'énergie on peut utiliser la relation de Berger permettant d'obtenir le potentiel d'ionisation d'un milieu à partir de celui de ses composants [5] :

$$\log(\bar{I}) = \frac{1}{\sum \frac{Z_i}{A_i} w_i} \sum \frac{Z_i}{A_i} w_i \log \bar{I}_i, \quad (1.6)$$

où la fraction massique de l'élément i est notée w_i . En utilisant cette relation on obtient quasiment les valeurs recommandées par l'ICRU, dont quelques exemples sont donnés dans le tableau 1.3.

II.2.2 Ordres de grandeur

Afin d'examiner l'importance relative des différentes contributions qui interviennent dans le ralentissement nous proposons d'examiner les tableaux 1.4 et 1.5 empruntés à Ziegler [2]. L'importance relative du nombre d'arrêt primaire et des corrections de Barkas et de Bloch est donnée en pour cent du pouvoir d'arrêt total pour un proton dans l'aluminium et dans l'or. Le nombre d'arrêt primaire prend en compte les effets de densité et de couches, propres à la cible. Si l'on dispose du pouvoir d'arrêt du proton dans un matériau donné, on peut en déduire, avec une bonne approximation, le pouvoir d'arrêt d'un ion de charge Z_1 en appliquant la loi d'échelle en Z_1^2 (la procédure pour passer du pouvoir d'arrêt des hélions à celui des ions lourds est détaillée dans [6]). Ceci reste valable pour des énergies supérieures à 1 MeV/uma qui est la valeur recommandée par l'ICRU comme limite de validité de la relation de Bethe-Bloch [3]. Pour des énergies inférieures à 1 MeV/uma il faut faire appel à la théorie diélectrique de Linhard pour obtenir le pouvoir d'arrêt.

Énergie (MeV)	L_0	L_1 (Barkas)	L_2 (Bloch)
1	95.95	5.24	-1.19
5	98.84	1.31	-0.15
10	99.25	0.81	-0.06
100	99.79	0.21	-0.005
1 000	99.93	0.07	-0.001
10 000	99.98	0.02	-0.000

TAB. 1.4 – Contributions des différents nombres d'arrêts en pour cent, pour un proton dans l'aluminium.

Énergie (MeV)	L_0	L_1 (Barkas)	L_2 (Bloch)
1	94.1	8.56	-2.68
5	98.1	2.09	-0.25
10	98.87	1.23	-0.1
100	99.73	0.28	-0.006
1 000	99.92	0.08	-0.001
10 000	99.98	0.02	-0.000

TAB. 1.5 – Contributions des différents nombres d'arrêts en pour cent, pour un proton dans l'or.

En pratique le logiciel SRIM [7] développé par Ziegler permet d'obtenir le pouvoir d'arrêt et le parcours des ions dans n'importe quel matériau pour des énergies comprises entre 10 keV et 10 GeV. Selon Ziegler, l'erreur moyenne que l'on peut attendre en utilisant SRIM (version 2003) est inférieure à 5%. La base de données fournie par le NIST¹ permet d'obtenir le pouvoir d'arrêt du proton (programme PSTAR) et du noyau d'hélium (programme ASTAR) dans 74 matériaux différents [8]. Les valeurs fournies sont en accord avec celles recommandées par l'ICRU [3], le domaine de validité est 1 keV - 10 GeV pour les protons et 1 keV - 1 GeV pour l'hélium. La figure 1.1 présente les pouvoirs d'arrêt dans quelques matériaux d'intérêt, obtenus à l'aide du programme PSTAR.

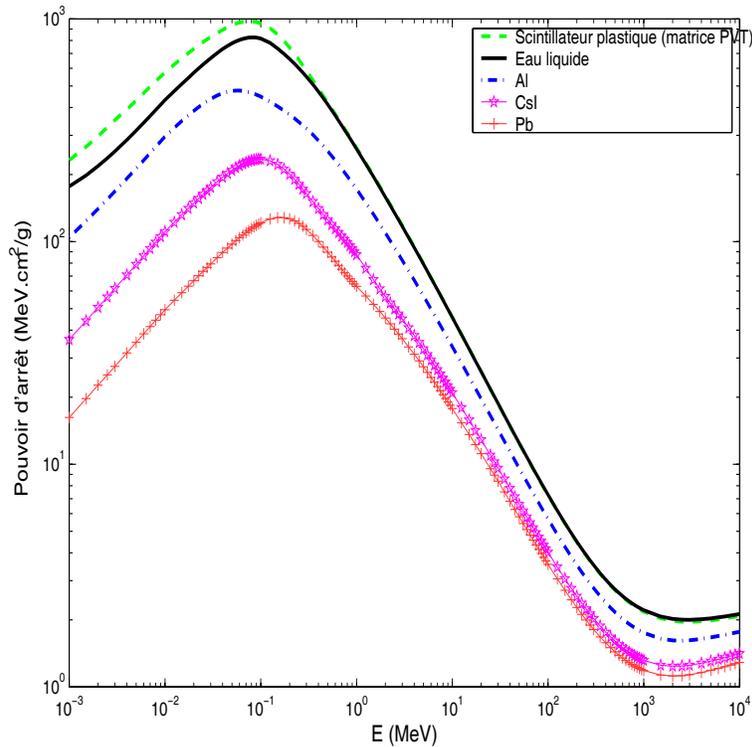


FIG. 1.1 – *Pouvoir d'arrêt du proton dans quelques matériaux d'après la base de données PSTAR*

II.3 Perte d'énergie des électrons

La perte d'énergie des électrons, résultant de collisions inélastiques dans un potentiel coulombien, a été calculée par Bethe [9] en tenant compte de

1. National Institute of Standards and Technology

l'indiscernabilité des électrons heurtants et heurtés et de leur spin. Cette perte d'énergie représente l'énergie perdue par l'électron afin de laisser la cible dans un état ionisé ou excité. Nous adoptons l'écriture de Seltzer et Berger [10, 11] pour la perte d'énergie de l'électron afin de montrer l'analogie de forme avec la relation de Bethe-Bloch :

$$\frac{dT}{dX} = C_e \frac{Z_2}{A_2} \frac{1}{\beta^2} \left\{ B_0(T) - 2 \ln \left(\frac{\bar{I}}{m_e c^2} \right) - \delta \right\}. \quad (1.7)$$

Pour exprimer la perte d'énergie en $MeV/(g/cm^2)$ il convient de prendre :

$$C_e = \frac{2\pi N_A e^4}{m_e c^2} \approx 0.1535.$$

L'équivalent du nombre d'arrêt primaire pour les électrons est $B_0(T)$ que l'on exprime plus commodément en fonction de τ ($\tau = T/m_e c^2$) :

$$B_0(T) = \ln \left(\frac{\tau^2(\tau + 2)}{2} \right) + \frac{1}{(\tau + 1)^2} \left[1 + \frac{\tau^2}{8} - \ln(2) \cdot (2\tau + 1) \right]. \quad (1.8)$$

Les corrections de densité ont été particulièrement étudiées par Sternheimer [12, 13]; Seltzer et Berger ont tabulé ces corrections pour plus de 278 matériaux [11]. La perte d'énergie décrite par (1.7) est considérée comme utilisable jusqu'à 1 keV [14], mais l'erreur produite peut alors être de l'ordre de 10% pour les matériaux de faible Z; l'ICRU préfère recommander d'utiliser (1.7) pour des énergies supérieures à 10 keV [15]. Le programme ESTAR fourni par le NIST permet d'obtenir le pouvoir d'arrêt de l'électron entre 10 keV et 1 GeV, dans plus de 250 matériaux. La figure 1.2 présente le pouvoir d'arrêt des électrons dans quelques matériaux d'intérêt; l'importance des corrections de densité est présentée sur la figure 1.3 où l'on peut constater qu'elles sont négligeables pour des énergies inférieures à 1 MeV. Les figures 1.2 et 1.3 prennent en compte la perte d'énergie par rayonnement, qui est non négligeable à haute énergie.

Signalons que Miterev [16] a présenté une méthode générale pour calculer la perte d'énergie de l'électron pour des énergies supérieures à 10 eV. Son calcul prend en compte les pertes d'énergie par collisions élastiques et inélastiques ainsi que le rayonnement de freinage. Le pouvoir d'arrêt dû aux collisions inélastiques est notamment calculé en faisant intervenir un potentiel d'ionisation qui dépend spécifiquement de l'énergie incidente.

Enfin, le cas des milieux composés est traité de la même manière que pour les ions.

II.4 Quantité d'électrons secondaires créée par le passage d'un ion

La distribution en énergie des électrons éjectés dépend de l'énergie cinétique de l'ion et de sa charge. L'énergie maximale transmissible à l'électron est obtenue par des considérations purement cinétiques et s'exprime en fonction du

II. Perte d'énergie des particules chargées

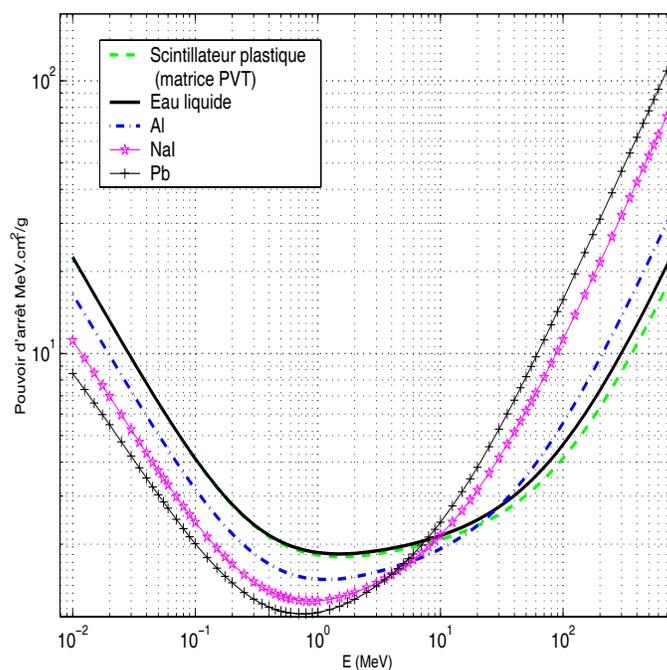


FIG. 1.2 – *Pouvoir d'arrêt des électrons dans quelques matériaux d'après la base de données ESTAR*

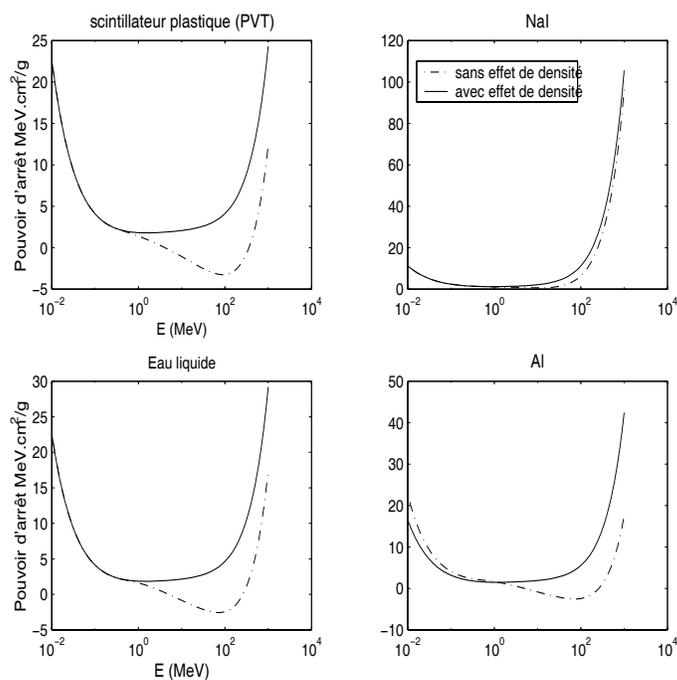


FIG. 1.3 – *Effet de densité sur le pouvoir d'arrêt des électrons d'après la base de données ESTAR*

facteur de Lorentz de l'ion. En négligeant la masse de l'électron devant celle de l'ion, mais en prenant en compte les effets relativistes, on peut calculer l'énergie cinétique maximale (ω_{max}) transmissible à un électron *supposé libre* :

$$\omega_{max} = 2m_e c^2 \beta_i^2 \gamma_i^2 .$$

Il est facile d'exprimer β_i en fonction de l'énergie cinétique par nucléon de l'ion (E_A) et on a :

$$\beta_i = \sqrt{1 - \left(1 + \frac{E_A}{E_{uma}}\right)^{-2}} .$$

Le tableau 1.6 fixe les ordres de grandeurs et montre qu'au-delà de 200 MeV par nucléon l'ion peut-être considéré comme relativiste. On peut aussi exprimer le facteur de Lorentz (β_{max}) de l'électron d'énergie maximale en utilisant les relations précédentes et on obtient :

$$\beta_{max} = 2 \frac{\beta_i}{1 + \beta_i^2} .$$

Le tableau 1.7 donne l'énergie cinétique maximale et les facteurs de Lorentz associés en fonction de l'énergie cinétique par nucléon de l'ion. Comme on peut le constater, dès lors que l'énergie cinétique de l'ion dépasse 200 MeV par nucléon il est possible d'éjecter des électrons relativistes.

E_A (MeV)	β_i	γ_i
1	0.046	1.001
10	0.145	1.011
100	0.426	1.107
300	0.654	1.322
500	0.759	1.537
1000	0.876	2.074

TAB. 1.6 – Facteurs de Lorentz pour différentes énergies d'un ion

E_A (MeV)	ω_{max} (keV)	β_{max}	γ_{max}
1	2	0.092	1.004
10	22	0.285	1.043
50	112	0.573	1.220
100	231	0.725	1.452
145	343	0.801	1.670
300	764	0.916	2.496

TAB. 1.7 – Energie maximale et facteurs de Lorentz associés en fonction de l'énergie de l'ion incident.

Le nombre d'électrons éjectés, par unité de parcours et d'énergie, ayant une énergie comprise entre ω et $\omega + d\omega$, dépend du nombre N_e d'électrons par unité de volume. Cette quantité $dN/d\omega$ est donnée par Bradt et Peters [17] :

$$\frac{dN}{d\omega} = \frac{2\pi N_e z^{*2} e^4}{m_e c^2 \beta_i^2} \frac{1}{\omega^2} \left\{ 1 - \beta_i^2 \frac{\omega}{\omega_{max}} + \pi \beta_i z^{*2} \alpha \left(\frac{\omega}{\omega_{max}} \right)^{1/2} \left(1 - \frac{\omega}{\omega_{max}} \right) \right\}.$$

Dans cette relation z^*e représente la charge effective de l'ion et on pourra, par exemple, utiliser la relation de Barkas :

$$z^*e = Z_1 e (1 - \exp(-125 \beta_i Z_1^{-2/3})).$$

L'énergie minimale de la distribution est de l'ordre de grandeur du potentiel d'ionisation, si bien que l'intégrale de $w \frac{dN}{dw}$ entre ω_{min} et ω_{max} donne la perte d'énergie linéique électronique.

Afin de se ramener à une formulation ne faisant intervenir que la vitesse relative de l'ion nous écrivons :

$$\frac{dN}{d\omega} = C_1 \frac{z^{*2}}{\beta_i^2} \frac{1}{\omega^2} \left\{ 1 - (1 - \beta_i^2) \frac{\omega}{2\omega_e} + C_2 z^{*2} (1 - \beta_i^2)^{1/2} \left(\frac{\omega}{2\omega_e} \right)^{1/2} \left(1 - \frac{\omega}{2\omega_e} \frac{1 - \beta_i^2}{\beta_i^2} \right) \right\}.$$

Nous avons posé :

$$\begin{aligned} C_1 &= \frac{2\pi N_e e^4}{m_e c^2} \text{ (keV.cm}^{-1}\text{)}, \\ C_2 &= \pi \alpha, \\ \omega_e &= m_e c^2 = 511 \text{ keV.} \end{aligned} \tag{1.9}$$

Pour étudier les approximations possibles nous posons :

$$\begin{aligned} \left(\frac{dN}{d\omega} \right)_1 &= C_1 \frac{z^{*2}}{\beta_i^2} \frac{1}{\omega^2}, \\ \left(\frac{dN}{d\omega} \right)_2 &= C_1 \frac{z^{*2}}{\beta_i^2} \frac{1}{\omega^2} \left\{ 1 - (1 - \beta_i^2) \frac{\omega}{2\omega_e} \right\}. \end{aligned} \tag{1.10}$$

La première de ces approximations conduit à une perte d'énergie linéique où le terme logarithmique est considéré comme constant. La seconde prend en compte les effets relativistes de haute énergie, mais les deux négligent les effets dus au ralentissement de faible paramètre d'impact. La qualité de l'approximation dépend du type d'ion, par l'intermédiaire du nombre de charge, et de l'énergie cinétique de l'ion considéré. Quelle que soit la vitesse de l'ion les deux approximations surestiment les éjections de haute énergie. Pour un proton de haute énergie ($\beta_i = 0.7$), si l'on s'attarde sur la quantité d'électrons autour de l'énergie ω_{max} , on peut commettre plus de 70 % d'erreur avec la première approximation, mais seulement quelques pour cent avec la seconde. Malgré

une surestimation qui peut devenir importante autour de w_{max} , la seconde approximation correspond à une perte d'énergie linéique correcte à quelques dixièmes de pour cent. Enfin, la majorité des électrons produits est d'énergie bien inférieure à ω_{max} .

L'énergie d'éjection ω de l'électron est liée à sa direction d'émission, si l'on utilise la colatitude¹ θ on a [18]:

$$\sin^2(\theta) = \frac{\omega}{\omega_{max}}. \quad (1.11)$$

On peut ainsi calculer $dN(\theta)$, le nombre d'électrons, par unité de parcours, éjectés avec un angle compris entre θ et $\theta + d\theta$. En utilisant la seconde approximation, donnée par la relation (1.10), on trouve :

$$\begin{aligned} \frac{dN(\theta)}{d\theta} &= \frac{dN}{d\omega} \frac{d\omega}{d\theta} \\ &= 2C_1 \frac{z^{*2}}{\beta_i^2} \frac{1}{\omega^2} \left(1 - \beta_i^2 \frac{\omega}{\omega_{max}} \right) \omega_{max} \sin \theta \cos \theta \\ &= 2C_1 \frac{z^{*2}}{\beta_i^2} \frac{\omega_{max}}{\omega^2} \left(1 - \beta_i^2 \frac{\omega}{\omega_{max}} \right) \left(\frac{\omega}{\omega_{max}} \right)^{1/2} \left(1 - \frac{\omega}{\omega_{max}} \right)^{1/2} \end{aligned} \quad (1.12)$$

Dans la dernière équation la dépendance angulaire n'est pas explicitement écrite, la relation (1.11) est implicite.

Toute la discussion précédente considère l'énergie cinétique transmissible à un électron supposé libre. Pour traiter le cas d'un électron lié par un potentiel \bar{I} on remplace ω par $\omega - \bar{I}$ dans la relation (1.12) [19, 18].

III Dose radiale

L'utilisation d'émulsions photographiques et de chambres à bulles ou à gaz pour l'identification des particules chargées a motivé de nombreuses recherches sur la structure de la trace laissée par un ion traversant la matière [20]. Katz, Butts et Kobetich ont mis l'accent sur le rôle des électrons secondaires (dits aussi électrons δ) dans l'activation des émulsions photographiques [21, 22] et dans la formation de traces latentes [23], allant même jusqu'à prévoir la forme de la trace laissée par l'hypothétique monopôle de Dirac [24, 25]. Katz et Kobetich ont défini les quantités fondamentales et le formalisme permettant une évaluation quantitative de la dose radiale, et même si de nombreuses modifications ont été proposées par la suite, nous insisterons en particulier sur la méthodologie initiale de Katz et Kobetich et sur les derniers développements apportés par Katz et Cucinotta.

Malgré l'abandon des émulsions photographiques de nombreuses recherches

1. angle entre la normale à la trajectoire et la direction d'émission.

se poursuivent sur la structure de la trace ionique. Le premier domaine concerné est sans doute la radiobiologie où des ions de haute énergie sont utilisés pour traverser la matière organique sur des distances de plusieurs centimètres. Kraft a souligné que les théories actuelles ont du mal à rendre compte du décalage du RBE maximum des ions de charge élevée vers les pouvoirs d'arrêts croissants. La prévision de l'action biologique des ions passe nécessairement par l'évaluation de la dose radiale, mais l'évaluation de la section efficace de dégâts biologiques à l'aide de cette dose radiale est sujette à débat. Tandis que Cucinotta *et al.* proposent le modèle de la trace moyenne (ou encore trace amorphe) basée sur la théorie de la cible, Kraft *et al.* prônent l'utilisation d'une approche microdosimétrique qui met l'accent sur l'aspect stochastique de l'interaction entre une cible et *un* électron, ces deux approches sont d'ailleurs peut-être réconciliables.

L'intérêt croissant pour le développement de nanocomposants motive aussi les recherches sur la structure de la trace ionique. La taille de la trace initiale, de la trace révélée et la vitesse de révélation sont des paramètres clés à déterminer avant de passer à la production de masse de nanorésistances, par exemple. Toulemonde, Dufour et Paumier ont proposé le modèle de la pointe thermique [26] pour décrire la création de trace dans la matière inorganique, ces travaux sont basés sur une approche thermodynamique qui permet de rendre compte du rôle thermique joué par les électrons secondaires dans les modifications locales de phase du milieu. Cette approche permet de prédire les rayons de trace observés dans les matériaux inorganiques [27] et même dans les composés organiques [28, 29] même si ces fondements thermodynamiques sont l'objet de discussion [30, 31].

III.1 Approche de Katz

En considérant un flux radial d'énergie, Φ_e , Katz et Kobetich calculent la dose radiale, $\rho(r)$ à la distance r de la trace :

$$\rho(r) = -\frac{1}{2\pi r} \frac{d\Phi_e}{dr}. \quad (1.13)$$

Le flux d'énergie est obtenu en connaissant le parcours total, $r_t(\omega)$, des électrons en fonction de l'énergie initiale ω , ce qui permet d'obtenir l'énergie résiduelle $W(r, \omega)$ à la distance r . Pour obtenir l'énergie résiduelle, Katz et Kobetich partent de la relation :

$$r_t(\omega) = \frac{A\omega}{1 - \frac{B}{1+C\omega}},$$

qui donne avec une précision relative inférieure à 10% le parcours des électrons dans l'aluminium entre 0.3 keV et 20 MeV. Les constantes A, B et C sont

ajustées au mieux pour le cas de l'aluminium puis cette relation est étendue à tous les autres milieux. La fraction d'électrons d'énergie ω (et de parcours associé $r_t(\omega)$), transmis à travers un absorbeur d'épaisseur t est empruntée à Rao [32] qui la considère utilisable entre 0.01 et 3 MeV :

$$\eta(r, \omega) = \frac{1 + e^{-gh}}{1 + e^{-g(t/r-h)}}.$$

Les constantes g et h dépendent du milieu par l'intermédiaire de sa charge et de sa masse moyenne.

Enfin, connaissant $dN(\omega)$, le nombre d'électrons émis, par unité de parcours de l'ion, avec une énergie comprise entre ω et $\omega + d\omega$ le flux dénergie est :

$$\Phi_e = \int_{\omega_{min}}^{\omega_{max}} \eta(r, \omega) W(r, \omega) dN(\omega). \quad (1.14)$$

On peut aussi obtenir une formulation en fonction du parcours de l'électron dès lors que l'on dispose d'une relation entre l'énergie cinétique initiale de l'électron et de son parcours $R(\omega)$.

$$\rho(r) = -\frac{1}{2\pi r} \frac{d}{dr} \int_{R_{min}}^{R_{max}} \eta(r, R) W(r, R) dN(R). \quad (1.15)$$

Le modèle initial présenté par Katz et Kobetich ne permet pas une expression analytique mais on constate que :

$$\rho(r) \approx \frac{z^{*2}}{r^2},$$

où z^* est la charge effective.

III.2 Approche de Michaelian et Menchaca-Rocha

Michaelian et Menchaca-Rocha utilisent d'autres relations que Katz et Kobetich pour la relation parcours/énergie et pour la probabilité de transmission. Ils utilisent notamment une relation due à Kanay et Okayama pour la perte d'énergie de l'électron, basée sur la théorie de Lindhard qui définit un potentiel semi-empirique pour l'interaction entre l'électron et la cible. Ils prennent, pour la perte d'énergie de l'électron :

$$-\frac{d\omega}{dr} = \frac{1}{na\omega^{n-1}}, \quad (1.16)$$

où l'exposant n vaut $5/3$ et a est une constante qui dépend du seul milieu. Si l'on souhaite obtenir un parcours en cm et si l'on a pour unité d'énergie l'électronvolt on obtient :

$$a = \frac{5.02510^{-12} A_{eff}}{0.182 \rho Z_{eff}^{8/9}},$$

où on utilise les valeurs effectives données par 1.5 et la masse volumique ρ du milieu. Cette relation donne ainsi, pour un électron d'énergie initiale ω_0 un parcours R_0 tel que :

$$R_0 = a\omega_0^n. \quad (1.17)$$

La fraction d'électrons transmis est obtenue par une relation due à Everhart :

$$\eta(r,R) = \left(1 - \frac{r}{R}\right)^d,$$

où $d = 0.045Z_{eff}$. Utilisant encore la relation (1.16) et la vitesse v de l'ion Michaelian et Menchaca-Rocha donnent le nombre, $dN(R)$, d'électrons émis avec un parcours initial compris entre R et $R + dR$:

$$dN(R) = \pi N_e a^{1/n} \frac{2e^4}{m_e n} \frac{z^{*2}}{v^2} \frac{dR}{R^{1+1/n}}.$$

Ce que nous réécrivons en fonction du facteur de Lorentz de l'ion et de la constante C_1 introduite précédemment (cf. 1-II.4)

$$dN(R) = C_1 \frac{z^{*2}}{\beta_i^2} \frac{a^{1/n}}{n} \frac{dR}{R^{1+1/n}}. \quad (1.18)$$

Pour comparer avec l'expression utilisé par Katz dans [18] nous utilisons (1.16) pour écrire la relation (1.18) en fonction de l'énergie cinétique de l'électron :

$$dN(\omega) = C_1 \frac{z^{*2}}{\beta_i^2} \frac{d\omega}{\omega^2}. \quad (1.19)$$

Nous reconnaissons dans cette relation le premier terme de la relation utilisée par Katz et la première approximation de (1.10). Finalement, il vient, en utilisant la relation (1.15) :

$$\begin{aligned} \rho(r) &= -\pi N_e \frac{2}{n} \frac{e^4 z^{*2}}{m_e V^2} \frac{1}{2\pi r} \frac{d}{dr} \int_r^{R_{max}} \frac{(1 - r/R)^{d+1/n}}{R} dR \\ &= N_e \frac{e^4 z^{*2}}{n m_e c^2 \beta_i^2} \frac{1}{r^2} [1 - r/R_{max}]^{d+1/n} \\ &= \frac{C_1 z^{*2}}{n} \frac{1}{\beta_i^2} \frac{1}{r^2} [1 - r/R_{max}]^{d+1/n}. \end{aligned} \quad (1.20)$$

R_{max} et le parcours des électrons d'énergie ω_{max} , soit en tenant compte de la relation (1.17) et de la relation définissant ω_{max} :

$$R_{max} = a(2m_e c^2 \beta_i^2 \gamma_i^2)^n.$$

Ainsi écrite la relation 1.20 donne $\rho(r)$ en keV.cm^{-3} . Par la suite nous préférons utiliser une quantité qui s'exprime dans les mêmes unités que la dose, ce que l'on peut faire, suivant l'exemple de Koch *et al.* [33, 34], en remplaçant C_1 par C_1/ρ .

Le modèle de dose radiale de Michaelian *et al.* a été récemment appliqué pour décrire le comportement non linéaire de détecteurs à semi-conducteurs [35, 36].

III.3 Derniers développements du modèle de la trace moyenne

Le modèle de dose radiale proposé par Katz et Kobetich [18] a été amélioré par Katz et Cucinotta afin de prendre en compte, de manière plus réaliste, la distribution angulaire des électrons éjectés, la relation énergie/parcours des électrons secondaires et aussi les excitations moléculaires près de la trajectoire de l'ion incident. En considérant la distribution angulaire des électrons éjectés lors de la collision primaire, le profil radial de dose, dû aux électrons δ devient [37] :

$$\rho_\delta(r) = -\frac{1}{2\pi r} \sum_i \int d\Omega \int_{w_r(\theta)}^{w_{max}-I_i} d\omega \frac{\partial}{\partial r} [\eta(r, \omega, \theta) W(r, \omega, \theta)] \frac{dn_i}{d\omega d\Omega}. \quad (1.21)$$

Dans cette relation la sommation est étendue à tous les composants du milieu (les potentiels d'ionisation des constituants sont notés I_i). La distribution angulaire et énergétique des électrons est donnée par la paramétrisation suivante :

$$\frac{dn}{d\omega d\Omega} = \frac{dn}{d\omega} \frac{N}{(\theta + \theta_c(\omega))^2 + \frac{K}{\omega}},$$

où $dn/d\omega$ est donnée par Rudd [38], $K \approx 0.015$ keV, et $\theta_c(\omega)$ est solution de $\cos^2(\theta_c(\omega)) = \omega/\omega_{max}$. Cette paramétrisation permet de pallier le manque de sections efficaces expérimentales, en donnant une distribution angulaire "piquée" dans la direction classique d'éjection (θ_c). Pour ce qui est de la relation énergie/parcours des électrons, nécessaire au calcul de l'énergie résiduelle, une relation complexe, mais détaillée, valable pour tous les matériaux, est donnée par Cucinotta [37]. Une contribution supplémentaire à la dose radiale provient de l'excitation des électrons de valence, excitation provoquée par l'interaction coulombienne à longue portée de la particule incidente. Cette contribution est limitée à quelques nanomètres autour de la trace et s'écrit :

$$\rho_{exc} = C \frac{\exp(-r/2d)}{r^2},$$

où $d = (\beta\hbar c)/(2\omega_r)$ et $\omega_r = 13$ eV pour l'eau. Le paramètre ω_r est tiré des travaux de Brandt et Ritchie (*cf.* références dans [39]) ; il correspond à l'énergie associée à la fréquence de plasma¹, à condition de ne retenir que les électrons non liés dans le calcul de la densité électronique². La constante C est calculable si l'on adopte la normalisation suivante :

$$\frac{dE}{dx} = \int_0^{r_{max}} (\rho_{exc}(r) + \rho_\delta(r)) 2\pi r dr + S_n + S_{HE},$$

1. $\hbar\omega_p = \sqrt{4\pi N_e r_e^3 m_e c^2 / \alpha}$, avec les notations du tableau 1.1.

2. En considérant 4 électrons par molécule d'eau ceci permet, en tout cas, de retrouver la valeur de 13 eV pour l'eau.

les termes S_n et S_{HE} représentant les contributions nucléaires et de haute énergie au pouvoir d'arrêt. Le terme d'excitation représente 5-15% de la perte d'énergie [39]. La prise en compte de la distribution angulaire permet d'obtenir une meilleure évaluation de la dose à longue distance radiale, en effet dans l'hypothèse de l'éjection radiale la dose est sous-estimée [40]. De manière générale, la prise en compte de la distribution angulaire modifie significativement le profil de dose à courte et longue distance, alors qu'aux distances intermédiaires les modifications sont peu importantes [39]. La dose calculée, en prenant en compte le terme d'excitation et la distribution angulaire, a été confrontée à l'expérience pour les particules suivantes dans un gaz équivalent à l'eau : proton de 1 MeV et ^{20}Ne à 377 MeV/A [41] ; particules α à 0.75 MeV/A [40] ; et encore d'autres ions dans [37]. Dans toutes ces expériences la comparaison avec l'expérience est clairement satisfaisante et meilleure qu'avec le modèle simple. Cucinotta, Katz *et.al* utilisent le modèle de la trace moyenne pour prédire la probabilité de dégât biologique ou de mutations dans les tissus ou cultures cellulaires irradiés. Cucinotta a notamment proposé une relation analytique qui donne une excellente approximation de la dose radiale dans l'eau [41], cette relation permet de se dispenser des calculs fastidieux impliqués par 1.21 :

$$\rho(r) = \frac{z^{*2} N e^4}{\beta_i^2 m_e c^2} \frac{1}{r^2} \exp - \left(\frac{r}{0.37 R_{max}} \right)^2 \frac{1}{c_1 + 1/r}. \quad (1.22)$$

Le terme exponentiel modifie le comportement à longue distance radiale et le dernier terme le comportement à courte distance. Pour l'eau Cucinotta donne :

$$c_1 = 0.6 + 1.7\beta_i - 1.1\beta_i^2,$$

les constantes numériques sont ajustées pour que les distances soient exprimées en millimètre. Cette expression est la quantité de base qui permet de calculer la section efficace d'inactivation de diverses bactéries, irradiées sous faisceau d'ion. Les résultats obtenus dans l'ajustement de la section efficace en fonction de la perte d'énergie sont satisfaisants [41, 42], surtout si l'on considère le domaine de pouvoir d'arrêt concerné (plusieurs décades) et la diversité des ions employés (de l'hydrogène à l'uranium). Ces résultats sont d'autant plus intéressants que les sections efficaces d'inactivation ou de mutation présentent le même type de variation en fonction de la perte d'énergie que l'efficacité de scintillation.

IV Équation de transport pour le flux d'électrons

Nous considérons dans cette partie l'équation de Lewis [43] qui permet de calculer le flux d'électrons à travers la matière dans le cas d'une source plane,

infinie, monodirectionnelle et monoénergétique. A partir de cette équation, Spencer calcule la Distribution spatiale d'Énergie Dissipée (DED) [44] qui rend compte de l'aspect statistique du dépôt d'énergie dû aux électrons. Dans la partie 1-IV.3 nous verrons les transformations à appliquer pour traiter le cas d'une source ponctuelle collimatée. Le calcul de la DED pour ce type de source nous permettra de calculer dans la partie 1-V la dose radiale le long de la trace laissée par un ion en considérant le long de cette trace une suite de source d'électrons ayant un spectre d'émission donné par les relations de la partie 1-II.4.

IV.1 Équation de Lewis

On considère la source décrite ci-dessus située sur la plan $z = 0$ et émettant perpendiculairement à ce plan, dans la direction des z positifs, des électrons d'énergie ω_0 . L'équation de Lewis s'écrit :

$$-\frac{\partial I}{\partial r} + \cos \theta \frac{\partial I}{\partial z} = \int N \sigma(r, \Theta) \left\{ I(r, \theta', z) - I(r, \theta, z) \right\} d\Omega' + \frac{1}{2\pi} \delta(z) \delta(r - r_0) \delta(\cos \theta - 1). \quad (1.23)$$

Le flux d'électron, d'obliquité entre θ et $\theta + d\theta$, et de parcours résiduel entre r et $r + dr$ est $2\pi I(r, \theta, z) \sin \theta d\theta dr$.

Le nombre de centres diffuseurs, par unité de masse, est N .

La section efficace, par atome, pour défléchir entre Θ et $\Theta + d\Theta$ un électron de parcours résiduel r est $2\pi \sigma(r, \Theta) \sin \Theta d\Theta$.

Les deux termes de gauche de cette équation décrivent le taux de changement de $I(r, \theta, z)$ dû, respectivement, au ralentissement des électrons et à leur déplacement dans l'espace. Le premier terme du membre de droite décrit le taux de changement du flux, dû aux chocs qui donnent une déviation, le dernier terme décrit la source.

Dans cette équation de transport on n'utilise pas la variable énergie, qui est remplacée par le parcours résiduel de l'électron. Dans l'hypothèse du ralentissement continu le parcours résiduel à l'énergie ω est obtenu par intégration sur l'inverse du pouvoir d'arrêt (équation 1.7) dans lequel nous négligeons les corrections de densité :

$$r(\omega) = \int_0^\omega \frac{1}{dT/dr} dT$$

Pour résoudre l'équation on introduit des variables sans dimension : $x = z/r_0$, $t = r/r_0$, $S(t, \Theta) = r_0 N \sigma(r, \Theta)$, avec $r_0 = r(\omega_0)$, ce qui permet de réécrire l'équation sous la forme :

$$-\frac{\partial I}{\partial t} + \cos \theta \frac{\partial I}{\partial x} = \int S(t, \Theta) \left\{ I(t, \theta', x) - I(t, \theta, x) \right\} d\Omega' + \frac{1}{2\pi} \delta(x) \delta(t - 1) \delta(\cos \theta - 1). \quad (1.24)$$

Dans la suite de cette partie nous ne parlons plus que des quantités renormalisées. On peut effectuer une projection de $I(t, \theta, x)$ sur les harmoniques sphériques en définissant :

$$I_l(t, x) = \int_{-1}^1 P_l(\cos \theta) I(x, \theta, t) d(\cos \theta).$$

On définit aussi les moments d'espaces des fonctions $I_l(t, x)$ par :

$$I_{ln}(t) = \int_{-1}^1 x^n I_l(t, x) dx.$$

En particulier $I_0(t, x)$ est le flux d'électrons intégré sur les angles de déviation par rapport à la direction d'origine.

Par la suite il faudra aussi utiliser la fonction $S_l(t)$:

$$S_l(t) = 2\pi \int_{-1}^1 \{1 - P_l(\cos \Theta)\} S(t, \Theta) d(\cos \Theta).$$

La Distribution spatiale d'Energie Dissipée est donnée par :

$$J(x) = \int_0^1 I_0(t, x) \frac{dT}{dt} dt$$

IV.2 Calcul de la distribution d'énergie dissipée

Nous voyons d'abord l'approche adoptée dans le calcul de la DED avant de donner les détails analytiques.

Approche générale

La seule quantité qu'il nous faut calculer est donc $I_0(t, x)$, pour cela nous utilisons le fait que les moments d'espaces sont calculables *analytiquement* via une relation de récurrence :

$$I_{ln}(t) = \int_t^1 G_l(t, t') F_{ln}(t') dt' + \delta_{0n} G_l(t, 1)$$

La deuxième fonction sous l'intégrale est nulle pour $n \leq 0$, sinon elle dépend uniquement de $I_{l-1, n-1}$ et $I_{l+1, n-1}$. La relation de récurrence est complète car les fonctions I_{l0} sont calculables directement. La fonction $G_l(t, t')$ dépend uniquement de la section efficace :

$$G_l(t, t') = \exp\left(-\int_t^{t'} S_l(\tau) d\tau\right).$$

Comme l'illustre la première figure de l'annexe de ce chapitre, on peut calculer par intégration numérique tous les moments I_{0n} . Reste à reconstruire le flux

intégré sur toutes les déviations (*i.e.* $I_0(t, x)$) à partir de ses moments d'espace. Spencer propose une méthode particulière, ayant constaté la convergence trop lente des méthodes classiques. Pour ma part, j'ai employé la méthode qui suit, basée sur l'approximation par la méthode des rectangles des moments d'espace :

$$I_{0n}(t) \approx h \sum_{i=0}^N x_i^n I_0(t, x_i).$$

Si l'on a calculé $N + 1$ moments d'espace on obtient, pour tout t , le système suivant :

$$\begin{pmatrix} I_{0,0}(t) \\ I_{0,1}(t) \\ \vdots \\ \vdots \\ I_{0,N}(t) \end{pmatrix} = h \begin{pmatrix} x_0^0 & x_1^0 & \dots & \dots & x_N^0 \\ x_0^1 & x_1^1 & \dots & \dots & x_N^1 \\ \vdots & \cdot & \cdot & \cdot & \vdots \\ \vdots & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ x_0^N & x_1^N & \dots & \dots & x_N^N \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I_0(t, x_0) \\ I_0(t, x_1) \\ \vdots \\ \vdots \\ I_0(t, x_N) \end{pmatrix}$$

La matrice du système est la fameuse matrice de Vandermonde, inversible et bien conditionnée, qui permet ainsi de calculer les quantités $I_0(t, x_i)$. Une fois ces quantités obtenues on calcule par intégration numérique la DED.

Calcul analytique des fonctions S_l

Spencer a montré [44] que les fonctions S_l sont *aussi* calculables analytiquement. On peut considérer dans un premier temps la section efficace de Rutherford, modifiée par un facteur d'écran dû à Molière ce qui permet non seulement de prendre en compte les effets d'écrans à l'aide d'un seul paramètre mais aussi de tenir compte des effets relativistes aux petits angles de déviation. On obtient alors la relation suivante pour les fonctions S_l :

$$\begin{aligned} S_l(T) &= (Z + 1) \frac{3N_A Z \phi_0}{4A} \left(\frac{T + 1}{T(T + 2)} \right)^2 r_0 C_l \\ C_0 &= 0 \\ C_1 &= \ln(1 + \eta^{-1}) \\ C_{l+1} &= \left(2 + \frac{1}{l}\right)(1 + 2\eta)C_l - \left(1 + \frac{1}{l}\right)C_{l-1} - \left(2 + \frac{1}{l}\right) \frac{1}{1 + \eta}. \end{aligned} \quad (1.25)$$

Cette expression est donnée en fonction de T , l'énergie cinétique de l'électron divisée par $m_e c^2$, de r_0 , le parcours de l'électron d'énergie T et de $\phi_0 = 8\pi e^4 / 3m_e^2 c^4$. Le facteur d'écran de Molière, η , est donné par :

$$\eta = 0.25 \left(\frac{Z^{1/3}}{0.885} \right)^2 \frac{1}{T(T + 2)} (1.13 + 3.76(Z/137)^2 (T + 1)^2 T^{-1} (T + 2)^{-1}). \quad (1.26)$$

Pour les matériaux de faible Z il est préférable d'utiliser la section efficace de Mott, plus précisément Spencer suggère d'utiliser une expression due à Fano qui introduit une correction pour tenir compte des déflexions inélastiques. En notant ϵ la correction de Fano et en posant $\kappa^2 = T(T+2)(T+1)^{-2}$ les fonctions S_l s'écrivent :

$$S_l(T) = \frac{Z(Z+1)3N_a\phi_0}{4A} \frac{1+\epsilon}{T(T+2)\kappa^2} \left\{ C_l + 2\pi Z\alpha\kappa l - (\kappa^2 + \pi Z\alpha\kappa) \sum_{i=1}^l \frac{1}{i} \right\} r_0. \quad (1.27)$$

La correction de Fano s'écrit :

$$\epsilon = \frac{1}{(Z+1)\ln(4\eta)} \left\{ u_{in} - \ln \left(0.16Z^{-2/3} \left(1 + \frac{3.33Z\alpha}{\kappa} \right) \right) \right\}. \quad (1.28)$$

Dans cette correction apparaît une constante *négative*, u_{in} , qui dépend du matériau considéré mais dont la valeur est peu différente de -5 . Nous avons cependant constaté que le calcul des DED est facilité si la constante u_{in} est choisie au mieux. L'expression théorique pour u_{in} est donnée par Fano [45] en faisant appel à la fonction de diffusion incohérente S :

$$u_{in} = - \lim_{U \rightarrow \infty} \left\{ \int_{-\infty}^U S \left(\exp \frac{u}{2} \right) du + 1 - U \right\}. \quad (1.29)$$

La fonction de diffusion incohérente peut être calculée numériquement et de nombreuses tabulations ont été publiées (*cf.* [46, 47, 48], par exemple). Afin de calculer rapidement u_{in} nous pouvons poser $S(u) = 1 - \exp(-u/\tau)$ ce qui est justifié par l'allure des fonctions tabulées, d'une part, et par l'utilisation que nous souhaitons en faire d'autre part (l'allure de la fonction à l'origine compte peu dans (1.29)). Dans ces conditions l'expression (1.29) est calculable analytiquement¹ et on trouve en utilisant Maple ou [49] et en notant γ_E la constante d'Euler :

$$-u_{in} \approx 2(\gamma_E - \ln \tau) + 1 \approx 2.15 - 2 \ln \tau. \quad (1.30)$$

Ainsi, après évaluation de τ par un ajustement classique, les valeurs de Cromer et Mann [47] nous donnent $u_{in} \approx -4.96$ pour le Lithium et $u_{in} \approx -4.26$ pour le béryllium, ce qui permettra, par la suite, de fixer la valeur de u_{in} pour des matériaux de faible Z comme les scintillateurs plastiques.

Signalons enfin que dans son calcul des moments Spencer utilise une approximation des fonctions $S_l(t)$, qu'il considère valable quelles que soient les sections efficaces utilisées. Par la suite nous n'utiliserons pas cette approximation et nous utiliserons soit l'expression (1.25) soit (1.27).

1. La fonction S utilisée par Fano a pour limite 1, mais certains auteurs donnent Z^*S comme fonction de diffusion incohérente, il faut donc prendre soin de normaliser correctement les fonctions tabulées pour utiliser la méthode proposée.

Remarques

Dans le cas d'un milieu composé on applique les règles de la partie 1-II.2 et on utilise les potentiels d'ionisation fournis par l'ICRU pour le milieu que l'on souhaite étudier. Le problème de l'intégration numérique est loin d'être une mince affaire, surtout que l'on souhaite par la suite calculer un grand nombre de ces fonctions. En pratique, nous calculons une vingtaine de points puis nous réalisons un "spline" cubique sur ces points, sans noter de différences notables avec un calcul plus précis. Golovin a d'ailleurs utilisé un nombre de points équivalent dans un calcul similaire [50]. Les courbes obtenues par cette méthode sont semblables à celles publiées par Spencer, où la partie en $x < 0$ correspond à la rétrodiffusion des électrons. Un exemple de DED dans l'aluminium est donné sur la figure 1.4. Les DED pour NaI(Tl) et le scintillateur plastique Pilot-U, qui seront utilisées au chapitre suivant, sont données dans l'annexe de ce chapitre.

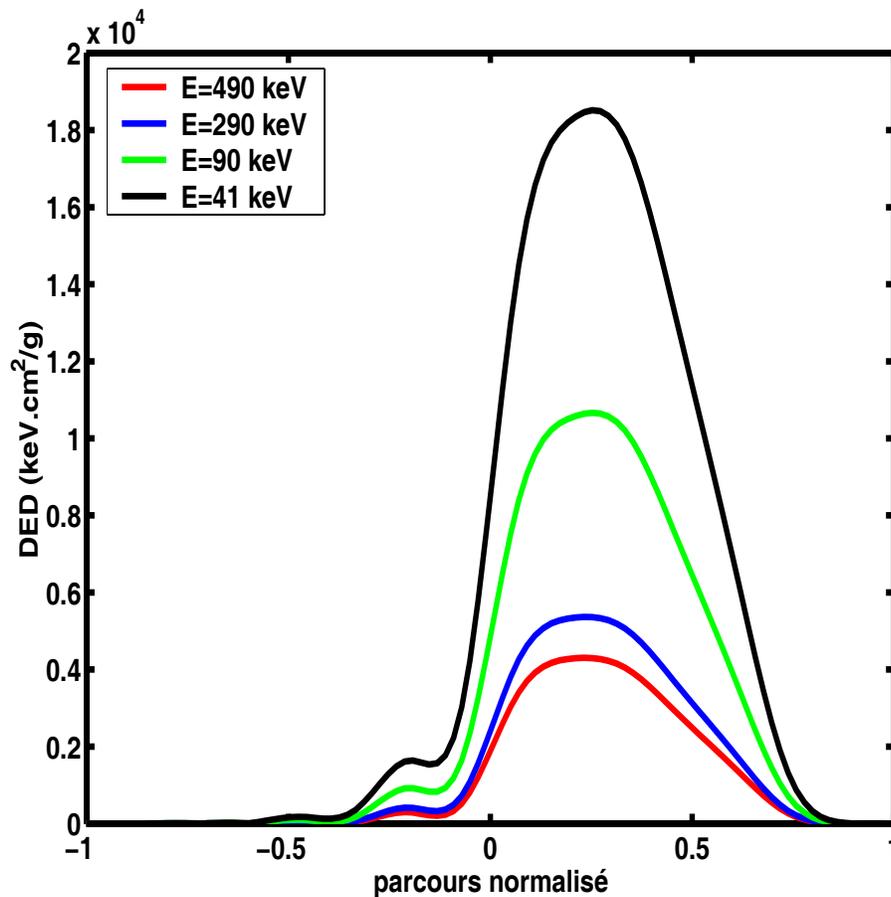


FIG. 1.4 – DED dans l'aluminium pour différentes énergies

IV.3 Cas d'une source ponctuelle collimatée

Spencer [51] donne une relation générale pour passer de la DED due à une source plane à celle due à une source ponctuelle collimatée. Il faut pour cela considérer les DED en z dans le cas de la source plane pour une émission de co-latitude quelconque $\theta_0 : J_{pl}(\theta_0, z)$. La DED, à la distance z' dans la direction d'émission et à la distance radiale ρ' par rapport à cette direction, due à une source ponctuelle collimatée, est donnée par la transformée inverse de Hankel-Fourier de $J_{pl}(\theta_0, z)$:

$$J_{po}(\rho', z') = \frac{1}{(2\pi)^2} \int_{-\infty}^{\infty} e^{iq_z z'} dq_z \int_0^{\infty} q_\rho B_0(q_\rho \rho') dq_\rho \int_{-\infty}^{\infty} e^{-izq} J_{pl}(z, \theta_0).$$

Pour les subtilités d'intégration on consultera la publication originale. Guidé par l'exemple traité par Spencer j'ai choisi :

$$J_{pl}(z, \theta_0) = \frac{1}{\cos \theta_0} J_{po}\left(\frac{z}{\cos \theta_0}, 0\right).$$

L'argument en z est modifié pour prendre en compte la rotation du repère et le pré-facteur assure la conservation de l'intégrale de la fonction, intégrée sur le parcours possible de l'électron. Pour les fonctions de ce type on trouve :

$$J_{po}(\rho', z') = \frac{\delta(\rho')}{2\pi\rho'} J_{pl}(z', 0).$$

La fonction de la variable ρ' assure que l'intégrale de la fonction sur l'élément de surface $2\pi\rho' d\rho'$ est égale à la valeur de la fonction sur l'axe, et traduit ainsi la collimation. Désormais, pour caractériser la DED en un point cible de l'espace, d'altitude z , dans le cas d'une source ponctuelle collimatée, d'énergie ω_0 , émettant à la co-latitude θ_0 , et située à l'origine, nous prendrons :

$$J(\omega_0, \frac{z}{r_0(\omega_0) \cos \theta_0}).$$

La fonction J dont il est question est celle de la seconde partie qui prend ses valeurs pour x entre -1 et 1. La dépendance en énergie est cette fois explicitement introduite. On pourrait prendre en compte l'élargissement du faisceau en remplaçant la distribution de Dirac par une gaussienne piquée.

IV.4 Utilisation pratique de la DED

Par la suite nous utiliserons des quantités dotées de dimensions. La DED dimensionnée, que nous noterons $\mathcal{J}(w, r)$, vérifie la propriété suivante :

$$\int_{-r_0(w)}^{r_0(w)} \mathcal{J}(w, r) dr = \omega.$$

Autrement dit, l'intégrale de la DED sur le parcours de l'électron est égale à l'énergie initiale de l'électron, les parcours étant exprimés en g/cm^2 la fonction \mathcal{J} s'exprime en $\text{keV} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{cm}^2$. Dans la pratique les DED sont calculées pour le milieu étudié et enregistrées une bonne fois pour toutes dans un fichier, ce qui permet de les utiliser efficacement.

V Dépôt radial d'énergie le long de la trace

Nous expliquons ici comment calculer la dose radiale en utilisant la distribution d'énergie dissipée de Spencer, puis nous illustrons la méthode à l'aide d'un exemple.

V.1 Modélisation

Nous considérons connue l'énergie de l'ion le long de la trace et nous nous intéressons à un point d'abscisse x_0 sur la trace et situé à la distance radiale z_0 de la trace de l'ion¹. Pour évaluer l'énergie déposée par les électrons secondaires sur un élément de volume (de masse) élémentaire centré en (x_0, z_0) , nous sommions toutes les contributions dues à l'éjection d'électrons sur un élément de longueur dv . La source ponctuelle collimatée que nous considérons à l'abscisse v ($0 \leq v \leq x_0$) a pour énergie $\omega_d(v)$ et émet un nombre d'électrons $dN(\theta)$ entre θ et $\theta + d\theta$ (cf. figure 1.5). La distance de la source à la cible est notée

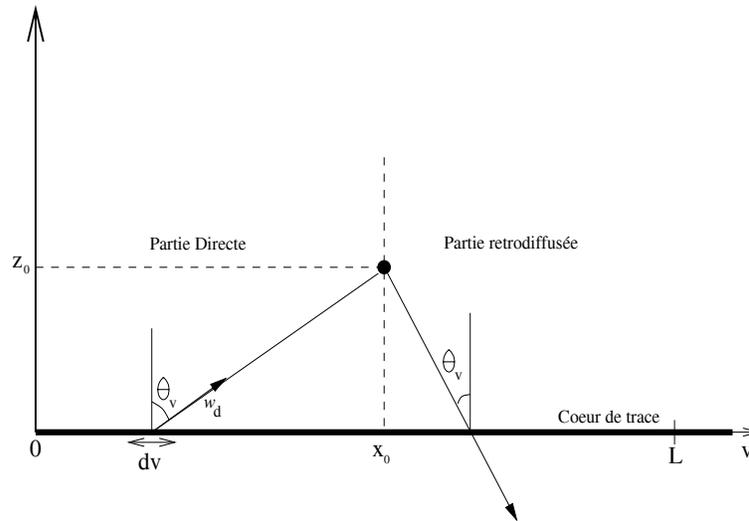


FIG. 1.5 – Notations utilisées pour la sommation des contributions

1. Nous conservons ici les notations utilisées par Spencer, la distance radiale est donc (provisoirement) notée z_0

$r(v)$. L'énergie $\omega_d(v)$ est définie par :

$$\omega_d(v) = w_{max}(v) \sin^2 \theta_v = w_{max}(v) \frac{(x_0 - v)^2}{z_0^2 + (x_0 - v)^2}$$

La surface élémentaire dS traversée par les électrons considérés est $dS = r^2(v)d\Omega$. Ainsi, la contribution de l'élément dv à la dose cherchée est :

$$\left(\frac{dN(\theta)}{dS}\right)_v dv \mathcal{J}(\omega_d(v), \frac{z_0}{\cos \theta_v r_0(\omega_d(v))})$$

Le terme en facteur de la fonction \mathcal{J} , représente le terme source. En effet, la fonction de Spencer calculée dans la partie 1-IV utilise une source correspondant à 1 électron par cm^2 . En notant que :

$$\cos \theta_v = \frac{z_0}{\sqrt{z_0^2 + (x_0 - v)^2}},$$

on peut poser, pour simplifier l'écriture du second argument de la fonction \mathcal{J} :

$$\mathfrak{R}_{x_0, z_0}(v) = \frac{z_0}{\cos \theta_v r_0(\omega_d(v))} = \frac{\sqrt{z_0^2 + (x_0 - v)^2}}{r_0(\omega_d(v))}. \quad (1.31)$$

On trouve ainsi, pour la dose en (x_0, z_0) , en sommant les contributions du début de la trace jusqu'à x_0 et en utilisant la relation (1.12) :

$$D_d(x_0, z_0) = 2C_1 \int_0^{x_0} \mathcal{G}(v) \mathcal{J}(\omega_d(v), \mathfrak{R}_{x_0, z_0}(v)) dv. \quad (1.32)$$

On a posé pour simplifier l'écriture :

$$\mathcal{G}(v) = \frac{1}{2\pi r^2(v)} \frac{z^{*2}}{\beta_i^2(v)} \frac{\omega_{max}(v)}{\omega_d^2(v)} \left(1 - \beta_i^2(v) \frac{\omega_d(v)}{\omega_{max}(v)}\right) \left(1 - \frac{\omega_d(v)}{\omega_{max}(v)}\right)^{1/2} \quad (1.33)$$

Dans l'expression (1.32) la fonction \mathcal{J} est nulle si son second argument est supérieur à 1. Autrement dit, si l'électron n'a pas l'énergie suffisante pour atteindre le volume cible, la contribution est nulle. Nous n'avons pas encore tenu compte de l'énergie due aux électrons rétrodiffusés. Pour cela, nous sommes les contribution pour les abscisses situées à droite de x_0 . On trouve :

$$D_r(x_0, z_0) = 2C_1 \int_{x_0}^L \mathcal{G}(v) \mathcal{J}(\omega_d(v), -\mathfrak{R}_{x_0, z_0}(v)) dv. \quad (1.34)$$

On a introduit dans cette expression la longueur de la trace L et on notera le signe *néгатif* dans la fonction \mathcal{J} . La dose déposée dans un élément de volume centré en (x_0, y_0) est la somme des contributions directes, $D_d(x_0, z_0)$, et rétrodiffusées, $D_r(x_0, z_0)$.

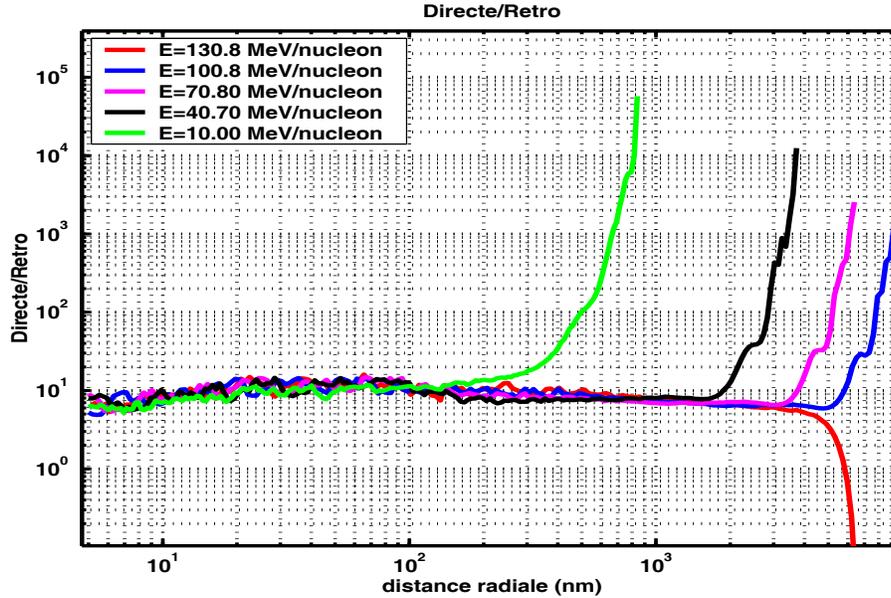


FIG. 1.6 – Comparaison des composantes directes et rétrodiffusées à différentes énergies le long de la trajectoire de ^{16}O à 150 MeV/uma dans l'aluminium. La composante "retro" est négligeable sauf au début de la trajectoire (courbe rouge), dans ce cas on a peu d'électrons émis en amont mais les rétrodiffusés émis en aval apportent une contribution. Cette contribution devient négligeable lorsque l'on progresse le long de la trajectoire

V.2 Application

Le résultat obtenu permet de calculer la dose radiale due aux électrons secondaires en un point de la trace de l'ion. Ces résultats peuvent être confrontés à ceux prédits par Michaelian ou Katz. Dans le cas d'un ion oxygène de 150 MeV par nucléon traversant l'aluminium nous obtenons des profils comparables en forme et en intensité à ceux prédits par Katz et Michaelian. Cependant, le rayon de la zone où est déposée la dose due aux électrons secondaires dépend de l'approche utilisée et aussi de l'énergie de l'ion. La figure 1.7 présente les profils obtenus à différentes énergies. L'échelle logarithmique ne permettant pas une bonne vision des différences subtiles nous trouvons, dans l'annexe de ce chapitre, une comparaison des différents modèles étudiés. Pour disposer d'une référence nous choisissons de former le rapport des modèles de Katz et Michaelian puis nous formons le rapport du modèle "Transport" sur les modèle de Katz et Michaelian. On peut constater que le rapport entre le modèle "Transport" et les autres est du même ordre de grandeur que le rapport entre le modèle de Katz et de Michaelian, dans la zone où l'on obtient une dose radiale qui décroît comme le carré de la distance radiale.

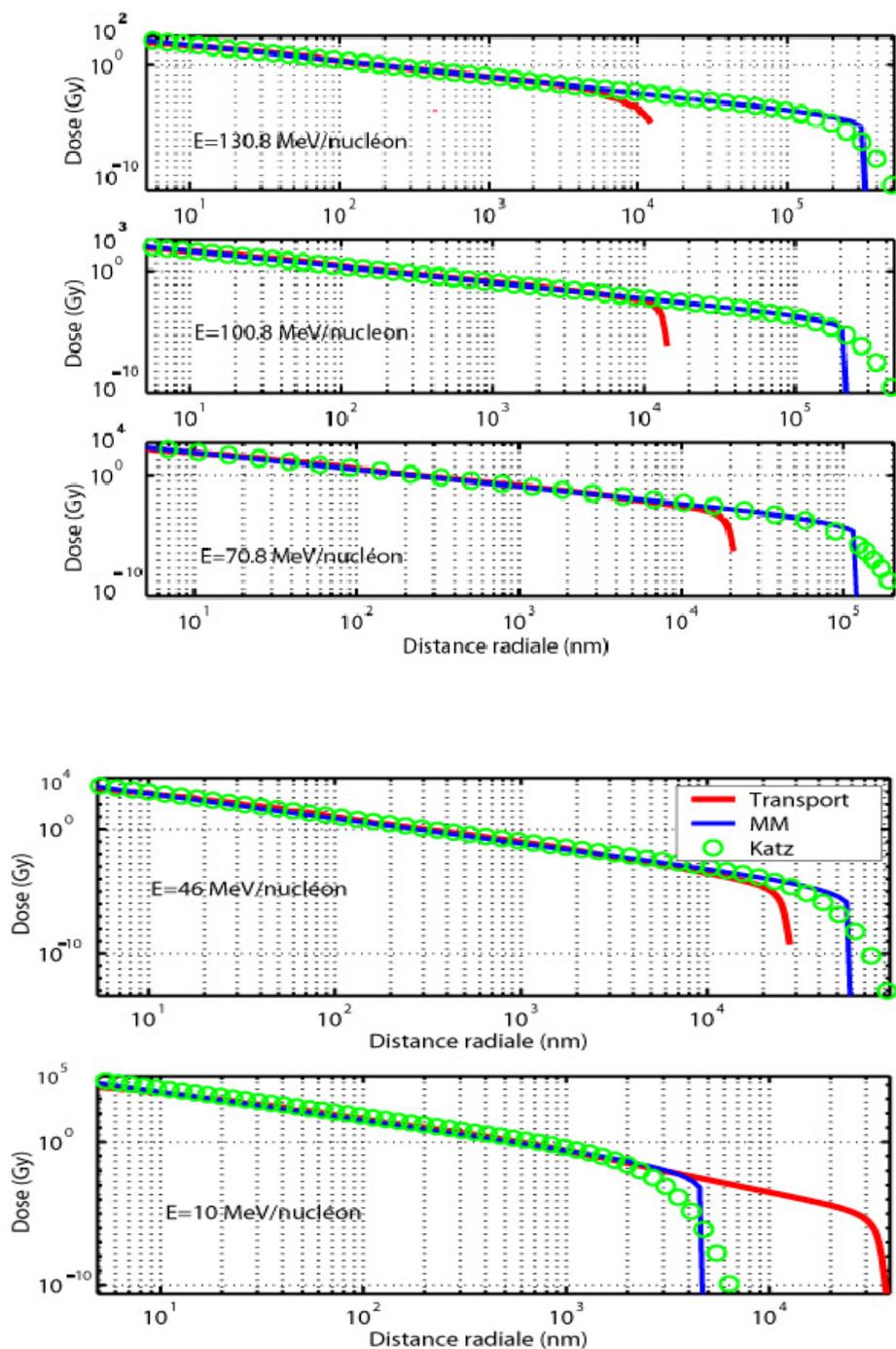


FIG. 1.7 – Dose radiale dans l'aluminium pour ^{16}O , comparaison des approches

La contribution de la dose directe est prédominante à toute énergie, comme le montre la figure 1.6. On retiendra que la dose due aux électrons rétrodiffusés est 70 à 80 fois moins importante que la dose directe, ceci malgré le fait que l'on considère pour les rétrodiffusés une source collimatée. Cette approche conduit, en effet, à une surestimation de la composante rétrodiffusée, puisque la rétrodiffusion s'accompagne nécessairement d'une dispersion des électrons considérés.

Comme on l'a vu, l'approche adoptée permet d'examiner le profil de dose à une profondeur de pénétration donnée. Si l'on fixe cette profondeur, on peut examiner, pour chaque distance radiale, les contributions des électrons tout le long de la trace. À titre d'exemple, nous présentons le profil de dose obtenu pour ^{16}O dans l'aluminium. L'ion a initialement 150 MeV/nucléon et la dose radiale est présentée à $5.25 \mu\text{m}$, où l'énergie résiduelle est d'environ 100 MeV/nucléon. Les barres verticales colorées de la figure 1.8 marquent les distances radiales pour lesquelles sont examinées les contributions. La figure 1.8 présente les contributions associées aux distances radiales considérées. Comme on peut le constater, à courte distance, la fonction à intégrer est très nettement piquée, on peut considérer que la majorité de la dose est due aux électrons éjectés *radialement* tout près du point que l'on considère dans la trace. Par contre, à longue distance radiale, les contributions sont de moins en moins piquées, et la dose déposée tient compte des contributions dues aux électrons éjectés tout le long de trace. D'autres profils de doses et les contributions associées sont présentés dans l'annexe de ce chapitre.

Les modèles de Katz et Michaelian-Menchaca prédisent une forte dépendance en $1/z^2$ pour la dose radiale. Michaelian et Menchaca [52] ont introduit une modification de cette loi en $(1 - z/z_{max})^\alpha$ pour tenir compte des électrons rétrodiffusés. La distance z_{max} est déterminée par le parcours des électrons de plus grande énergie. En pratique, cette modification introduit une décroissance brutale de la dose radiale à longue distance. Cucinotta [41] a lui aussi introduit des modifications à longue et courte distance. La comparaison de ces deux modèles montre une très bonne concordance à courte distance. À longue distance, la coupure introduite par Michaelian et Menchaca donne un rayon de trace inférieur à celui de Cucinotta. Dans les deux modèles il n'est pas fait mention de la trace dans son ensemble ; si bien que la dose radiale en un point de la trace dépend de l'énergie de l'ion en ce seul point.

V. Dépôt radial d'énergie le long de la trace

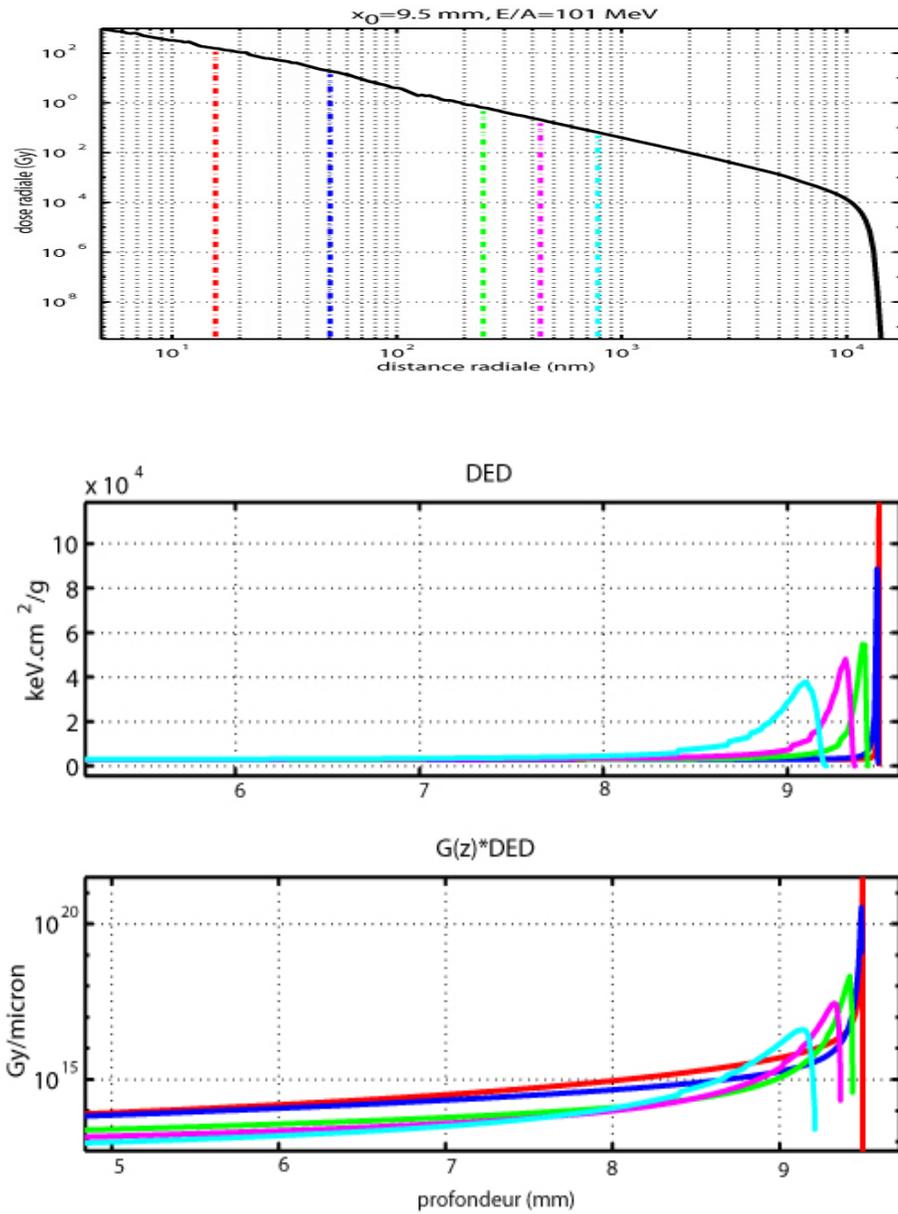


FIG. 1.8 – Contribution des électrons le long de la trace @ $E/A=101$ MeV

VI Bilan

La perte d'énergie des ions et des électrons est facilement calculable grâce aux multiples sources de données accessibles à la communauté, notamment le logiciel SRIM et les programmes PSTAR et ESTAR du NIST. On peut aussi se servir de tables récentes comme celles présentées dans [6]. Il faut cependant noter que d'importantes questions restent d'actualité, comme la validité de la règle d'addition de Bragg (surtout pour les matériaux de faible Z à basse énergie [53]) ou les problèmes liés à la charge effective [54]. Dans certains cas le pouvoir d'arrêt n'a jamais été mesuré, ainsi nous n'avons pas trouvé de référence expérimentale pour le pouvoir d'arrêt du carbone dans l'eau. Pour ce cas précis la base de donnée mise à disposition par Ziegler [7], renvoie à [55], qui après vérification renvoie à [56] où les pouvoirs d'arrêts sont déduits de mesure dans l'aluminium!

Le concept de dose radiale est utile dans un grand nombre d'application, il permet de calculer la dose déposée autour de la trace d'un ion en prenant en compte les électrons secondaires. Les derniers développements proposés par Cucinotta *et al.* incluent les sections efficaces doublement différentielles décrivant la production d'électrons secondaires. Dans l'état actuel des connaissances la dose radiale dans le cœur de trace et à la limite du halo reste sujette à débat, d'autant plus que les données expérimentales manquent.

Nous avons développé un modèle de trace moyenne, basé sur l'équation de transport de Lewis et sur l'utilisation de la distribution d'énergie dissipée de Spencer, afin de prendre en compte de manière réaliste le transport des électrons secondaires dans la matière. Cette approche nous permet de tenir compte de tous les électrons émis le long de la trace, en particulier nous ne faisons pas l'hypothèse d'un flux radial d'électrons, mais nous utilisons pour décrire l'éjection des électrons la corrélation semi-classique de Rutherford entre l'énergie et l'angle d'éjection de l'électron. Dans le cas d'ions de haute énergie ayant un long parcours dans la matière notre approche modifie le comportement à grande distance radiale, le profil de dose s'étend moins loin que dans le cas d'un flux radial d'électron où la limite du halo est déterminée par le parcours des électrons de plus haute énergie.

Je suis d' la mauvaise herbe,
Braves gens, braves gens,
C'est pas moi qu'on rumine
Et c'est pas moi qu'on met en gerbe...
Je suis d' la mauvaise herbe,
Braves gens, braves gens,
Je pousse en liberté
Dans les jardins mal fréquentés!

G. Brassens - La mauvaise herbe

D'une lave en fusion, d'une pâte d'étoile, d'une cellule vivante germée par miracle nous sommes issus, et, peu à peu, nous nous sommes élevés jusqu'à écrire des cantates et à peser des voies lactées.

Saint-Exupéry, Terre des Hommes

Chapitre 2

Scintillation iono-induite

I Introduction

Selon Bernard Valeur [57] la première observation de fluorescence remonte à 1565. Le terme fluorescence a été introduit en 1853 par Stokes pour désigner la propriété des matériaux émettant une longueur d'onde visible, suite à l'absorption de lumière de plus faible longueur d'onde (loi de Stokes). Le terme fluorescence est construit à l'aide du terme allemand *fluorspath* (fluorine en français) est du suffixe "-scent" (qui a la couleur de). Le terme luminescence a été introduit par Wiedeman en 1888 pour désigner les processus amenant un composé à produire de la lumière, parmi ces processus on peut citer la thermoluminescence, la radioluminescence (excitation initiale du composé par des particules ionisantes), la bioluminescence (chez la luciole par exemple). Le terme phosphorescence tire ses origines des racines grecques $\phi\omega\varsigma$ (lumière) et $\phi\omega\rho\epsilon\iota\nu$ (qui porte), bien que le terme phosphore soit utilisé depuis le Moyen-Âge la phosphorescence désigne aujourd'hui le résultat d'une transition radiative précise sur laquelle nous reviendrons.

Au début du siècle, Rutherford a utilisé des écrans scintillants en sulfure de zinc pour étudier la diffusion des particules α ; depuis cette époque de nombreux matériaux scintillants ont été découverts et leur domaine d'utilisation s'est largement développé. On peut rapidement classer les scintillateurs en trois catégories : inorganique, organique et liquide. Les scintillateurs inorganiques peuvent se présenter sous forme de cristaux purs (CsI, BaF₂), ou activés (NaI(Tl), CaF₂(Eu)), sous forme également de céramiques (YAG(Ce) [58], Lu₂O₃ [59]) ou de verres (LiBaF₃ [60]). Les scintillateurs organiques peuvent également se présenter sous forme cristalline (anthracène, terphényle), éventuellement dopée, ou sous forme amorphe. Ce sont alors majoritairement des plastiques à base de polystyrène ou de polyvinyltoluène, contenant un ou plusieurs dopants scintillants. Les scintillateurs liquides sont simplement obtenus en mettant un composé organique scintillant en solution.

Utilisation
actuelle des
scintillateurs

Depuis les années 1980 la recherche sur les matériaux scintillants a connu un regain d'activité prononcé : l'imagerie médicale nécessite en effet des scintillateurs toujours plus performants [61], tandis que les expériences de physique des hautes énergies poussent au développement de nouveaux scintillateurs permettant la construction de calorimètres de grand volume. Ainsi, le détecteur CMS utilisera 80 000 cristaux de PbWO_4 et on estime que l'industrie de l'imagerie médicale est demandeuse de 175 tonnes métriques de scintillateur chaque année [60]. Les scintillateurs sont aussi largement utilisés dans les expériences concernant les astroparticules, comme détecteurs embarqués ($\text{NaI}(\text{Tl})$ dans le satellite GLAST¹ [62]) ou comme détecteur d'événements pour les expériences à terre [63]. Pour en finir avec les différents domaines d'application des scintillateurs il faut signaler l'utilisation des fibres optiques scintillantes qui permettent de décaler vers le rouge la longueur d'onde d'entrée. Ces fibres WLS (WaveLength Shifting) permettent de travailler avec des longueurs d'onde plus "commodes". Il existe enfin un grand nombre d'applications en biologie, parmi celles-ci l'utilisation de molécules scintillantes est particulièrement utile pour marquer des sites particuliers tels que les récepteurs membranaires ou des sites actifs de protéines [57].

Résumé des
parties

Dans ce deuxième chapitre nous nous occuperons surtout de la scintillation induite par les ions. Dans un premier temps nous résumons l'ensemble des processus d'excitation et de transfert d'énergie qui expliquent la luminescence, en particulier dans les scintillateurs organiques. Nous présentons ensuite les caractéristiques particulières de la luminescence induite par les ions et nous discuterons les différentes approches qui permettent de rendre compte des phénomènes observés. À la fin de la troisième partie nous dressons une liste des questions qui nous paraissent dignes d'intérêt. Dans la dernière partie nous appliquons le modèle de dose radiale construit au chapitre précédent afin de calculer la luminescence induite par les ions.

II Processus primaires à l'origine de la scintillation

Lorsque une particule ionisante interagit avec un milieu scintillant l'énergie de la particule est absorbée par le milieu, ce qui conduit à l'excitation de différents états moléculaires. Le retour à l'équilibre de ces états excités se fait à travers différents canaux de relaxation dont certains permettent l'émission de photons. Dans le cas où les molécules scintillantes sont en faible concentration dans un milieu hôte il est primordial de s'intéresser aux mécanismes de transfert d'énergie du milieu hôte vers les dopants. Enfin, lorsque l'excitation initiale est provoquée par une particule fortement ionisante, créant une cascade

1. Gamma ray Large Area Telescope

d'électrons secondaires, il est intéressant de connaître la répartition spatiale des états d'activation.

II.1 Nature des états moléculaires excités

L'émission d'un photon de fluorescence par une molécule est due à la désexcitation radiative du premier état singulet excité vers l'état fondamental, qui est en général lui aussi singulet. La dépopulation temporelle d'un ensemble d'états singulets excités se fait selon une décroissance exponentielle de temps caractéristique τ_f , de l'ordre de la nanoseconde. Ce temps caractéristique qui correspond à la durée de vie moyenne des états singulets excités est la constante de temps de la fluorescence. La phosphorescence correspond à une transition radiative du premier état triplet excité vers l'état fondamental. La durée de vie des états triplets étant plus longue que celle des états singulets la constante de temps de la phosphorescence (de quelques millisecondes à plusieurs secondes [64]) est plus grande que la constante de temps de la fluorescence.

Fluorescence
et
phosphorescence

Lorsque le milieu scintillant est soumis à un rayonnement ionisant on observe en fait que la scintillation peut se décomposer en deux composantes, l'une dite prompte, l'autre dite différée. La composante prompte résulte de l'excitation des molécules dans un état singulet tandis que la composante lente résulte de l'interaction bimoléculaire d'états triplets qui donne des états singulets excités [65]. La composante lente est caractérisée par un temps de l'ordre de la microseconde qui est typique des processus de diffusion des espèces triplets. La formation et l'interaction d'espèces triplets sont favorisées dans les zones de forte densité d'activation formées par une particule fortement ionisante ou par des électrons lents.

Composante
prompte et
lente

Pour définir la qualité d'une molécule scintillante on utilise l'efficacité quantique de fluorescence qui est le rapport d'embranchement radiatif de l'annihilation du premier état singulet excité [64, 66]. Pour les molécules scintillantes les plus efficaces, dont on trouve une liste dans [64, 66], le rendement quantique de fluorescence est de l'ordre de 80 %. Sur la figure 2.1 nous avons représenté quelques uns des états accessibles à une molécule isolée et différentes transitions possibles.

États
moléculaires
accessibles

Les transitions radiatives d'absorptions, notées A_1 , entre états de même multiplicité (transitions permises) sont du type $S_0 - S_1$, $S_0 - S_n$, $S_1 - S_n$. Les transitions interdites entre états singulets et triplets (A_2), sont du type $S_0 - T_1$ et $S_0 - T_q$.

Les relaxations radiatives donnant lieu à l'émission d'un photon de fluorescence sont repérées par la lettre F , les processus possibles sont les transitions $S_1 - S_0$ (fluorescence normale), $S_p - S_0$ ainsi que $T_q - T_1$ et $S_p - S_1$. La phosphorescence est notée avec la lettre P , elle correspond à des transitions du type $T_{1/n} - S_0$. Les transitions non radiatives, en compétition avec la fluorescence et la phosphorescence, sont soit des conversions internes (CI), entre états de même mul-

tiplicité, soit des intercombinaisons non radiatives (INR), entre états de multiplicités différentes.

Sur la figure 2.1 nous avons représenté les niveaux de vibration moléculaire : le principe de Franck-Condon requiert que les transitions vers les états d'énergie plus élevée maximisent l'intégrale de recouvrement des orbitales moléculaires de départ et d'arrivée, comme illustré sur la figure 2.2. Ainsi, les excitations et désexcitations de la molécule induisent des transitions vibroniques, la relaxation vers un état électronique "pur" se fait sur le seule mode vibrationnel (symbolisé par \rightsquigarrow sur la figure 2.1).

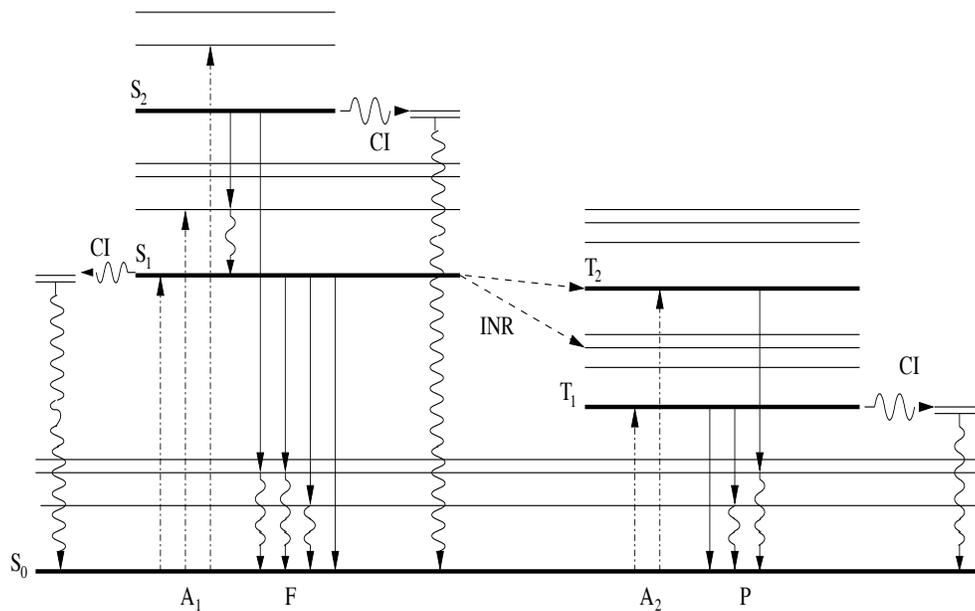


FIG. 2.1 – Transitions radiatives et non radiatives accessibles à la molécule isolée

II.2 Transfert de l'énergie d'excitation

Lors du ralentissement des particules primaires ou secondaires, dans un temps de l'ordre de 10^{-13} s, des états primaires d'activation (excitation ou ionisation) sont créés. Afin de caractériser la densité volumique de molécules excitées dans un état $|n\rangle$ on peut chercher à utiliser le spectre de dégradation, $y(T)$, introduit par Spencer et Fano [67], qui donne le nombre d'électrons d'énergie cinétique T qui traverse, par unité de temps et d'énergie, un volume sphérique élémentaire. Connaissant $\sigma_n(T)$, la section efficace d'excitation d'une molécule dans l'état d'énergie E_n , on a théoriquement le nombre élémentaire, dN_n , d'espèces excitées dans un état d'énergie E_n :

$$dN_n = \sigma_n(T)y(T)dT.$$

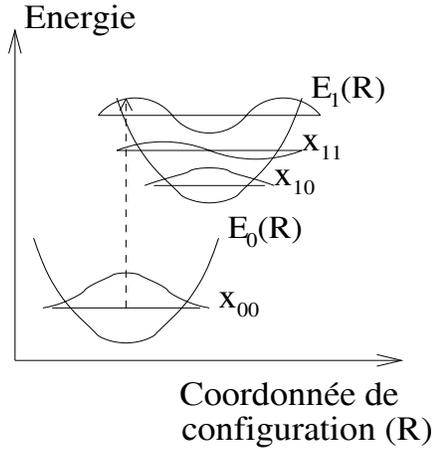


FIG. 2.2 – Illustration du principe de Franck-Condon

En pratique, il n'est pas facile de calculer le spectre de dégradation, en particulier la partie concernant les électrons de basse énergie. De même, la section efficace d'excitation n'est pas connue avec précision pour les électrons lents du spectre de dégradation. Pour ces deux raisons il convient donc d'examiner plus précisément les différents mécanismes menant à la création directe ou indirecte d'états S_1 .

Considérons d'abord le cas d'un milieu scintillant organique ne comportant qu'une seule espèce (pas de dopants). L'excitation par les électrons rapides ($T \gtrsim 50$ eV) donne lieu à la création de plasmons (états collectifs d'excitation des électrons de valence) qui relaxent en un temps de l'ordre de 10^{-15} s et laissent la molécule dans un état superexcité. Si l'énergie du niveau superexcité est inférieure à l'énergie d'ionisation les états singulets superexcités décroissent non radiativement vers l'état S_1 , avec un rapport d'embranchement peu différent de l'unité et dans un temps de l'ordre de $10^{-13} - 10^{-11}$ s [65, 68]. Si l'énergie du niveau superexcité est supérieure au seuil d'ionisation la dissociation ou l'autoionisation sont possibles, Fuchs *et al.* ont montré que dans les solutions scintillantes la probabilité de l'autoionisation est proche de l'unité [69]. Bien que l'énergie cinétique de l'électron libéré par autoionisation soit faible, elle reste suffisante pour exciter directement les niveaux moléculaires singulets ou triplets des molécules environnantes. Un électron libéré par autoionisation peut aussi donner une recombinaison radiative avec l'ion parent, on parle alors de recombinaison géminée. Le rôle des électrons lents ($T \lesssim 50$ eV) est similaire au cas des électrons résultants de l'autoionisation. Le tableau 2.1 donne les ordres de grandeurs des temps caractéristiques des processus que nous avons évoqués jusque ici.

Cas des
milieux purs

Les scintillateurs organiques composés contiennent un ou deux dopants, dilués en faible quantité dans une matrice hôte, généralement en polystyrène

Processus	Temps caractéristique (s)
<i>éjection des électrons primaires</i>	$10^{-17} - 10^{-16}$
absorption	10^{-15}
<i>temps de relaxation des plasmons</i>	10^{-15}
<i>développement de la cascade d'électrons δ</i>	$10^{-15} - 10^{-14}$
<i>création des excitons, paires électrons-trous</i>	$10^{-14} - 10^{-13}$
durée de vie des états S_n	$10^{-13} - 10^{-11}$
relaxation vibrationnelle	$10^{-12} - 10^{-10}$
fluorescence	$10^{-10} - 10^{-7}$
intercombinaison non radiative	$10^{-10} - 10^{-8}$
conversion interne	$10^{-11} - 10^{-9}$
phosphorescence	$10^{-6} - 1$

TAB. 2.1 – *Temps caractéristique des processus unimoléculaires*

Composés
binaires
et ternaires

(PS) ou polyvinyltoluène (PVT). Les concentrations de dopants fluorescents dans ces scintillateurs, dits secondaires (un dopant) ou ternaires (deux dopants), sont de l'ordre de $3 - 10 \text{ g/L}$ pour le dopant primaire, et de l'ordre de $0.01 - 0.1 \text{ g/L}$ pour le dopant secondaire [66, 70]. Une liste de dopants couramment utilisés dans la fabrication des scintillateurs plastiques, ainsi que leurs longueurs d'onde principale d'absorption et d'émission est donnée par Vasil'chenko [71]. Les matrices de PS ou de PVT ont une efficacité de scintillation faible, par rapport aux dopants, le spectre d'émission des scintillateurs plastiques est ainsi caractéristique du dernier dopant émetteur. Pour caractériser la réponse d'un scintillateur dopé il faut donc examiner les mécanismes de transfert d'énergie de la matrice hôte vers le dopant primaire ou du dopant primaire vers le secondaire.

Transferts
radiatifs

Les processus radiatifs sont possibles à condition que le spectre d'absorption de l'absorbeur (dopant primaire, secondaire) recouvre le spectre d'émission de l'émetteur (matrice, dopant primaire). De tels transferts ont, par exemple, été mis en évidence par Birks dans une matrice de PVT dopée au naphthalène, dans ce cas une augmentation de la concentration de naphthalène entraîne une augmentation de la proportion de transfert radiatif [72]. L'importance du transfert radiatif peut être évaluée en considérant le recouvrement des spectres d'absorption et d'émission des éléments constituant le scintillateur.

Transferts
non radiatifs

Parmi les transferts d'énergie non radiatifs possibles la diffusion d'excitons, ou tout ou moins de paires électrons-trous faiblement corrélées, joue un rôle important dans les cristaux moléculaires et aussi dans les scintillateurs plastiques. Dans le cas de ces derniers l'excitation initiale peut migrer le long du polymère, à la manière des excitons dans un cristal idéal [66, 65, 72, 73]. Enfin, l'énergie d'excitation peut être transmise via des interactions dipolaires à longue portée, autrement dit par le mécanisme de Förster. Ce type de transferts d'énergie a été mis en évidence par Birks dans le PVT dopé au pyrène, et par Swank et

Buck dans des scintillateurs à base de PS [74]. Comme le prévoit la théorie de Förster l'efficacité de ce transfert non radiatif atteint son maximum pour une certaine concentration de dopant, au delà de cette concentration l'efficacité reste quasi constante. La figure 2.3, adaptée de Birks [72], résume les mécanismes de transferts d'énergie dans un scintillateur plastique contenant un dopant.

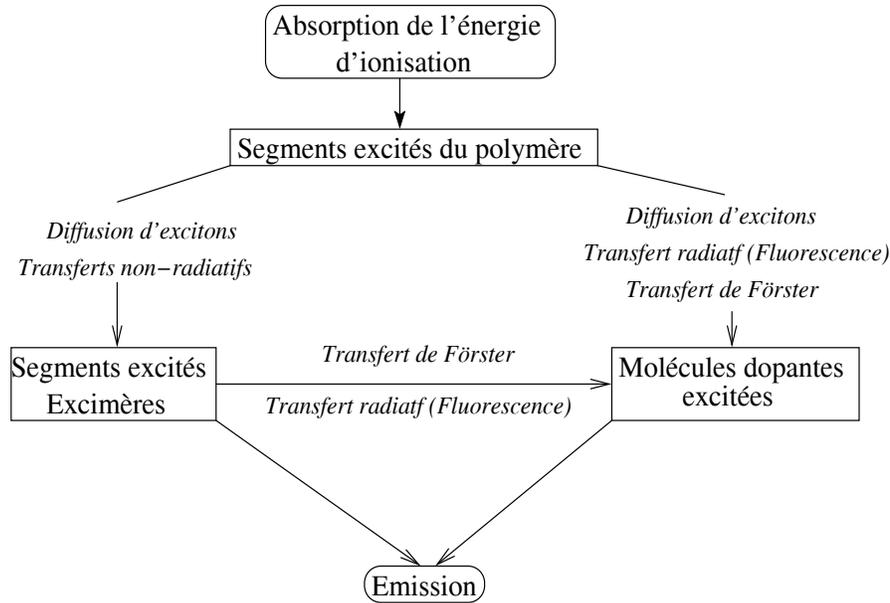


FIG. 2.3 – Mécanismes de transfert d'énergie dans un scintillateur plastique contenant un dopant

II.3 Distribution spatiale des états d'activation

Des zones d'activations de natures différentes sont créées par le flux de particules résultant de l'irradiation d'un milieu. Dans le cas de l'irradiation par des électrons on distingue habituellement, suivant la dénomination adoptée par Mozumder et Magee [75], les grappes isolées (spurs) des essaims (blobs), qui correspondent, respectivement, aux zones de faible et forte densité d'ionisation. Les molécules excitées situées dans les essaims sont soumises à l'interaction des molécules voisines excitées, au contraire des molécules situées dans les grappes. Les grappes isolées sont créées par des collisions optiques avec des électrons suffisamment rapides pour que le libre parcours moyen entre deux collisions soit assez grand pour laisser la molécule excitée isolée. En réalité, les états excités créés par ces collisions résultent de la relaxation des plasmons évoqués plus haut. À ces électrons rapides il faut encore ajouter les électrons lents dont l'énergie est inférieure à une valeur limite, que l'on peut prendre

Électrons :
blobs et
spurs

égale à la valeur du potentiel d'ionisation moyen [76]. Les autres électrons, ni trop rapides ni trop lents, qui ont un pouvoir d'arrêt élevé et un faible parcours moyen, conduisent à la création des essaims. On peut donner un ordre de grandeur de l'énergie limite pour la formation des essaims en considérant que ces zones sont créés par des électrons secondaires dont l'énergie cinétique est telle que le parcours moyen est inférieur au rayon de Onsager¹.

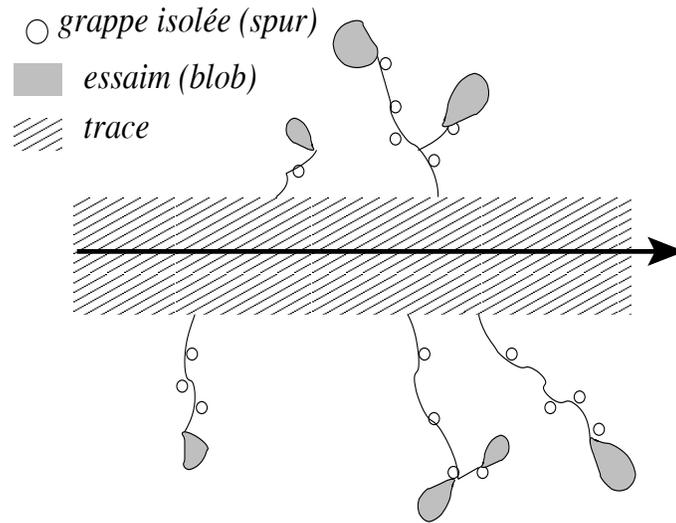


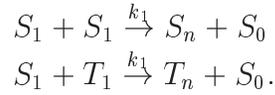
FIG. 2.4 – Vue schématique de la localisation des différentes zones d'activation

Cas des ions Dans le cas de l'irradiation par des ions, on considère, autour de la trajectoire de l'ion, une trace cylindrique, constituée par le recouvrement des blobs et des spurs, où règne une forte densité d'activation. Cette zone de forte densité d'ionisation est créée par le ralentissement de la particule primaire et par les électrons secondaires lents. Les électrons secondaires rapides donnent naissance, autour de la trace, à des grappes et à des essaims isolés. Une vue schématique des zones d'activation est représentée sur la figure 2.4.

Densité limite d'espèces excitées La constante de temps de la fluorescence ne dépend ni de la charge, ni de l'énergie de la particule excitatrice [77]. D'autre part, la scintillation iono-induite est caractérisée par une saturation de l'efficacité de scintillation pour les pouvoirs d'arrêts élevés. En faisant l'hypothèse que la saturation est due à un processus de dégradation de l'énergie d'excitation on peut obtenir un ordre de grandeur de la densité d'activation du milieu. En effet, puisque la constante de temps de la scintillation n'est pas affectée, les processus de dégradation doivent être plus rapides que la durée de vie des états excités. Da Silva four-

1. le rayon au-delà duquel l'interaction coulombienne est égale à l'énergie thermique du milieu

nit un exemple pour l'anthracène [78], où l'on considère deux interactions bimoléculaires, entre états triplets, qui inhibent la population des états singulets :



Il faut que l'on ait $1/(k_i C) \geq \tau_f$. Dans l'anthracène $\tau_f \approx 10^{-9}$ s et $k_1 \approx k_2 \approx 10^{-8} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, les réactions inhibitrices ne peuvent donc avoir lieu que dans des zones où la concentration en espèces excitées est supérieure à $10^{16} - 10^{17} \text{ cm}^{-3}$.

III Scintillation iono-induite

Lorsque la radioluminescence est induite par des ions nous parlerons de luminescence, ou de scintillation, iono-induite. Les anglo-saxons utilisent le terme ionoluminescence qui est d'ailleurs inscrit au PACS (Physics and Astronomy Classification Scheme) ou l'acronyme IBIL pour Ion Beam Induced Luminescence. Avec le développement des moyens de production de faisceau d'ions il a été possible de mesurer la scintillation induite par de nombreux ions, et ceci sur un domaine d'énergie étendu. Dans un premier temps nous examinerons le caractère spécifique de la luminescence iono-induite, puis différentes approches permettant de la décrire, notamment l'approche de Michaelian et Menchaca-Rocha qui fait appel au dépôt radial d'énergie, et l'approche de Voltz qui prend en compte l'aspect temporel de l'émission de scintillation. Après une discussion sur les questions non résolues à ce jour nous présenterons les résultats obtenus dans la modélisation de la scintillation iono-induite, lorsque nous utilisons le modèle de dose radiale développé dans le chapitre précédent.

III.1 Position du problème

Deux quantités peuvent être utilisées pour caractériser la réponse d'un scintillateur, on utilise soit la luminescence spécifique, dL/dx , soit l'efficacité de luminescence, dL/dE . La première quantité est le nombre de photons émis par unité de parcours de la particule excitatrice, la seconde est le nombre de photons émis par unité d'énergie cédée dans le milieu. Comme l'ont noté Muga et Griffith [79], ces quantités sont souvent déduites d'expériences dans lesquelles l'ion est totalement arrêté dans le scintillateur. En effet, une mesure directe de la luminescence spécifique ou de l'efficacité de luminescence nécessite d'utiliser des échantillons dont l'épaisseur est adaptée à l'énergie de l'ion incident, de manière à ce que le parcours de l'ion dans le scintillateur se fasse sans variation notable d'énergie. Aucune allusion n'est faite au sujet de l'aspect temporel de la scintillation lorsque l'on évoque l'une ou l'autre de ces quantités, il est implicitement admis que les mesures de ces quantités sont réalisées avec un temps

Lumi.
spécifique
Efficacité de
lumi.

de collecte suffisant pour prendre en compte la composante différée.

Particularité de la scintillation iono-induite

Un aspect frappant de la scintillation iono-induite, propre aux scintillateurs organiques et inorganiques, est la diminution de l'efficacité de scintillation lorsque la perte d'énergie augmente. Dans le cas d'ions arrêtés dans un scintillateur on mesure la luminescence totale en fonction de l'énergie incidente, la convexité des courbes résultantes est également une manifestation du phénomène de saturation [80]. On dit alors que le scintillateur sature, et pour mieux préciser ce terme nous suivons l'exemple de Ahlen en disant qu'il y a saturation lorsque la réponse du scintillateur change, avec le pouvoir d'arrêt, plus lentement que linéairement [81]. Comprendre et modéliser la scintillation iono-induite consiste d'abord à rendre compte du phénomène de saturation de la réponse du scintillateur, mais aussi de la scintillation particulière induite par chaque type d'ion.

Modèles de Birks, Chou...

La première tentative pour rendre compte du phénomène de scintillation est due à Birks [82] qui a supposé que le nombre d'excitons produit par une particule ionisante est proportionnel à la perte d'énergie (soit $A dE/dx$ ce nombre). La particule ionisante endommage aussi certaines molécules qui deviennent des pièges à excitons. Birks donne alors la luminescence spécifique en introduisant le rapport des probabilités de capture d'un exciton par une molécule endommagée et par une molécule non endommagée (soit k ce rapport, $k > 1$) :

$$\frac{dL}{dx} = \frac{A \frac{dE}{dx}}{1 + kB \frac{dE}{dx}}.$$

Bien que cette expression rende compte de la saturation, les paramètres utilisés par Birks sont normalement indépendants de la nature de la particule excitatrice, ce qui a été mis en défaut par l'expérience. D'autre part cette expression prédit que l'efficacité de scintillation due à l'électron est plus grande que celle due au proton, ce qui est aussi désapprouvé par l'expérience [83]. Les modifications apportées à ce modèle par Wright [84] et Chou [85], qui proposent respectivement :

$$\frac{dL}{dx} = A \ln\left(1 + B \frac{dE}{dX}\right)$$

$$\frac{dL}{dx} = \frac{\frac{dE}{dx}}{A + B \frac{dE}{dx} + C \left(\frac{dE}{dx}\right)^2},$$

en prenant en compte des réactions bimoléculaires supplémentaires, se révèlent également incapables de rendre compte des mesures expérimentales.

Par la suite nous serons plus particulièrement intéressés par la luminescence des scintillateurs organiques. On peut cependant espérer tirer profit des ressemblances notables entre la réponse aux ions des scintillateurs organiques et inorganiques : saturation à pouvoir d'arrêt élevé et augmentation de la luminescence spécifique pour des ions de même vitesse mais de nombre de charge décroissant [80, 79].

III.2 Dose radiale et luminescence

III.2.1 Différentes formulations du problème

Les expériences de Newman et Steigert [86] montrent clairement que des ions de même perte d'énergie mais de masses différentes ne produisent pas la même intensité de scintillation. Cette considération a amené Meyer et Murray [83, 87] à considérer le rôle joué par les électrons secondaires éjectés par l'ion primaire. En effet, pour le même pouvoir d'arrêt, plus la charge de l'ion incident est élevée, plus le spectre des électrons secondaires éjectés est énergétique. Ainsi, la dose déposée par l'ion de charge plus élevée sera moins importante (moins concentrée, si l'on préfère). Si l'on suppose, en outre, que plus la dose est élevée plus la saturation est importante, l'ion de charge plus élevée produira plus de scintillation, ce qui est en accord avec l'expérience. Suite à cette analyse, de nombreux travaux ont été entrepris afin de calculer le profil radial de dose et de proposer des mécanismes permettant de relier ce dépôt radial d'énergie à la luminescence observée.

Utilité de la dose radiale

Meyer et Murray [87] ont ainsi voulu calculer la fraction d'énergie déposée par les électrons δ en dehors du cœur de la trace. Selon leurs hypothèses cette fraction est indépendante du type de l'ion et la saturation a lieu dans le cœur de trace. Bien que leur modèle rende compte de la saturation, grâce à l'introduction de l'hypothèse de saturation des centres lumineux, il s'avère incapable de prédire correctement les différences de scintillation dues à différents types d'ions.

Modèle de Meyer et Murray

Un progrès notable est dû à Katz et Kobetich [88] qui utilisent leur expression de la dose radiale, calculée en tenant compte de la charge effective de l'ion (*cf.* 1-III.1). Dans leur approche, héritée de la théorie de la cible ([89] ch. 2), la probabilité d'activation d'un centre lumineux est donnée par une loi de Poisson dépendante de la dose; la luminescence spécifique est ainsi :

Modèle de Katz

$$\frac{dL}{dx} = C \int_0^\infty (1 - \exp(-\rho(r)/\rho_0)) 2\pi r dr. \quad (2.1)$$

La dose ρ_0 est définie comme la dose nécessaire à l'activation de 63% des centres lumineux ayant reçu une dose uniforme. Les ajustements obtenus par Katz et Kobetich [88] sont satisfaisants pour les ions lourds, mais beaucoup moins pour les légers. Les ajustements obtenus par Katz *et al.* [90], en utilisant d'autres données expérimentales et en se limitant aux protons et particules alpha sur différents scintillateurs, sont beaucoup plus satisfaisants.

Muga, Griffith et Diksic se sont plutôt intéressés au nombre d'électrons traversant une surface perpendiculaire à la trajectoire de l'ion incident. Cette méthode présente l'avantage de ne pas considérer un flux radial d'électrons, comme dans l'approche de Katz *et al.*; cependant Muga *et al.* considèrent que le nombre de centres lumineux activés, par unité de surface, est proportionnel au flux d'électrons mais indépendant de l'énergie de ces derniers. Le mécanisme

Modèle de Muga

de saturation est introduit en décrétant qu'au-delà d'un certain flux critique l'efficacité de scintillation est à son maximum. Les ajustements réalisés par Muga et Diksic [91] reproduisent correctement les valeurs expérimentales de la luminescence spécifique en fonction de l'énergie, et ceci pour cinq types d'ions, de l'oxygène à l'iode.

Modèle de
Luntz

Luntz [80] s'est basé sur le profil radial de dose, donné par Katz, pour définir deux régions autour de la trajectoire de l'ion : un cœur de trace où la dose est si élevée que les mécanismes de scintillation sont presque totalement inhibés et un halo dans lequel la luminescence spécifique est proportionnelle à l'énergie déposée. Le pouvoir prédictif du modèle proposé par Luntz semble cependant limité par le fait que les deux paramètres libres introduits dans son modèle varient non linéairement avec le nombre de charge de l'ion [52, 80].

III.2.2 Approche de Michaelian et Menchaca-Rocha

Hypothèses
du modèle

En 1994 Michaelian et Menchaca-Rocha ont proposé un modèle (modèle MM) permettant de décrire l'émission de scintillation suite au passage d'un ion de haute énergie à travers un scintillateur [52]. Michaelian et Menchaca-Rocha considèrent que la scintillation d'une région dépend directement de l'énergie qui y est déposée et non pas du nombre d'électrons la traversant, comme dans certains modèles antérieurs. Michaelian et Menchaca-Rocha font l'hypothèse d'un flux radial d'électrons comme Katz dans [88] pour calculer la dose radiale. Ils appliquent ensuite l'hypothèse que la scintillation est proportionnelle à l'énergie localement déposée par les électrons secondaires. En introduisant une densité d'énergie critique, spécifique au milieu, ils aboutissent à une expression pour la luminescence par unité de longueur. Cette densité critique d'énergie introduite dans le modèle est obtenue par ajustement sur les données expérimentales. Un grand avantage du modèle est aussi d'aboutir à une expression analytique pour la luminescence par unité de longueur, qui ne dépend que de deux paramètres, dans son expression la plus simple. Des expressions analytiques sont données pour CsI, NaI, CH dans [52] et pour BGO et BaF₂ dans [92].

Pouvoir
prédictif

Le modèle a été testé pour différents ions sur un bon nombre de scintillateurs, inorganiques ou organiques. Les données expérimentales utilisées par les auteurs pour tester la pertinence du modèle sont extraites de données publiées ou de leurs propres expériences [93, 94]. L'accord est bien plus satisfaisant qu'avec les modèles antérieurs, surtout si l'on considère l'étendue du domaine d'énergie et de charge des ions considéré. Les énergies des ions vont de quelques MeV au GeV, pour des nombres de charge de 1 à 40. Notons cependant que les auteurs reconnaissent quelques problèmes avec les ions les plus légers. D'autre part, Koch *et al.* modifient le modèle pour parvenir à tenir compte d'une décroissance de l'intensité de scintillation en fonction de l'énergie dans leurs expériences [34, 33].

Michaelian et Menchaca-Rocha partent de l'hypothèse selon laquelle la densité de paires électron-trou, ou plus généralement de porteurs d'énergie, est proportionnelle à la densité d'énergie déposée (autrement dit à la dose locale). Les effets de quenching sont pris en compte en supposant que la densité de porteurs d'énergie reste constante si la dose locale est supérieure à une valeur limite notée ρ_q . En appliquant leur modèle de dose radiale exposé dans la partie 1-III.2 ils obtiennent la densité de porteurs par unité de parcours de l'ion :

$$\frac{dN_e}{dx} = K \left\{ \pi r_q^2 \rho_q + \int_{r_q}^{R_{max}} \rho(r) 2\pi r dr \right\}. \quad (2.2)$$

La dose ρ_q est le principal paramètre libre du modèle et le rayon r_q est obtenu en résolvant l'équation $\rho(r_q) = \rho_q$. Dans un premier temps Michaelian et Menchaca-Rocha considèrent que la luminescence spécifique est directement proportionnelle à la densité de porteurs, si bien que l'on obtient :

$$\frac{dL}{dx} = C \frac{dN_e}{dx}, \quad (2.3)$$

Une amélioration de ce modèle qui tient compte des effets d'inhibition de l'énergie disponible pour la composante lente de la scintillation est possible :

$$\frac{dL}{dx} = \frac{dN_e}{dx} \left\{ 1 - \mathcal{F} \frac{dN_e/dx}{K_a + dN_e/dx} \right\}, \quad (2.4)$$

K_a un paramètre dont la définition dépend du type de scintillateur. Pour un scintillateur comme CsI(Tl) ou NaI(Tl) l'étude des processus mis en jeu montre que la création de centres V_k (trou autopiégé dans le réseau, formant une liaison moléculaire entre deux atomes d'iode) est presque toujours suivie d'une recombinaison non-radiative avec un électron ou d'une recombinaison radiative qui donne un photon absorbé par Tl^+ . Par contre la recombinaison des paires électron-trou sur les sites Tl donne lieu à une émission qui n'est pas absorbée. Dans ce cas $K_a = \mathcal{E} \rho_a$, où ρ_a est la densité de centres activateurs et \mathcal{E} une constante du matériau ; \mathcal{F} est la fraction de recombinaisons aux sites V_k qui ne donne pas de scintillation (recombinaison non-radiative ou émission absorbée). Pour les scintillateurs organiques la composante lente résulte de l'interaction d'espèces dans l'état triplet, si on suppose que la probabilité d'inhibition, P_q , des états triplets augmente avec le nombre d'espèces triplets selon :

$$P_q = \frac{N_t}{N_t + \mathcal{A}},$$

où \mathcal{A} est le nombre d'espèces qui permettent la transformation d'un triplet en singulet. Pour les scintillateurs organiques Michaelian et Menchaca-Rocha proposent donc de prendre $K_a = \mathcal{A}$ [92] et ils définissent \mathcal{F} comme le facteur "d'inefficacité" de fluorescence par interaction bimoléculaire (par rapport

à l'efficacité de la desexcitation des états singulets). Ce modèle sera appelé modèle MM2 par la suite.

Signalons enfin, pour être complet, que Michaelian et Menchaca-Rocha ont corrigé, en 2002 [95], le paramètre d'impact classique qu'ils avaient précédemment utilisé pour calculer la dose radiale. Cette modification apporte une amélioration des ajustements effectués sur les données expérimentales, surtout à basse énergie. Afin de fixer les idées nous donnons dans le tableau 2.2 les valeurs de ρ_q , données par Michaelian *et al.* pour différents scintillateurs.

Scintillateur	ρ_q (erg/g) ^a
NE-102	$3.5 \cdot 10^7$ [52]
	$3 \cdot 10^2$ (<i>basse énergie</i>) [93]
	$1.6 \cdot 10^{-3}$ (<i>haute énergie</i>) [93]
Pilot-U	$1 \cdot 10^6$ [52]
	$1.4 \cdot 10^6$ [92]
NaI(Tl)	$2.3 \cdot 10^6$ [52]
CsI(Tl)	$8 \cdot 10^8$ [95]
	$2.3 \cdot 10^8$ (<i>basse énergie</i>) [96]
	$8.9 \cdot 10^6$ [52]
BGO	$1.1 \cdot 10^1$ [94]
BaF ₂	$1.7 \cdot 10^4$ [97]

TAB. 2.2 – Valeurs de la densité de quenching pour quelques scintillateurs

^a Dose[Gray]= 10^{-4} xDose[erg/g]

III.3 Luminescence spécifique et aspect temporel

Les approches présentées ci-dessus traitent de la scintillation globale, sans faire de distinction entre les composantes promptes et lentes, qui résultent cependant de processus physiques différents. L'approche de Voltz *et al.* permet, par contre, de calculer séparément la luminescence spécifique due à chaque composante. De plus le modèle proposé par Voltz [98] intègre l'idée qu'il faut distinguer un cœur de trace dans lequel l'efficacité de scintillation atteint son maximum et un halo dans lequel la réponse ne sature pas.

Dans le cœur de trace la conversion des états singulets supérieurs vers l'état S_1 est perturbée par la présence d'espèces transitoires. En considérant que les espèces inhibitrices sont distribuées selon une loi de Poisson, et que l'inhibition est certaine si la distance entre l'inhibiteur et une molécule excitée est inférieure à la distance critique R_d , la probabilité de former un état S_1 à partir d'un état initial S_n est :

$$P = \beta \exp\left(-B_s \frac{dE}{dx}\right).$$

Approche
initiale de
Voltz

La quantité dE/dx représente la perte d'énergie de la particule excitatrice. L'efficacité de conversion de l'état S_1 vers l'état S_n est β et on a $B_s = 2R_d/W_d$, W_d étant l'énergie moyenne pour former un centre inhibiteur. La densité linéaire de molécules excitées dans l'état S_1 est alors :

$$\frac{dN_s}{dx} = \frac{1}{W_s} \frac{dE}{dx} \exp(-B_s \frac{dE}{dx}).$$

L'énergie moyenne pour exciter un état S_n est W'_s et $W_s = W'_s/\beta$. En introduisant la fraction F_s d'énergie déposée dans le halo, le nombre de molécules excitées dans l'état S_1 , par unité de parcours de l'ion est :

$$\frac{dN_s}{dx} = \frac{1 - F_s}{W_s} \frac{dE}{dx} \exp(-B_s(1 - F_s) \frac{dE}{dx}) + \frac{F_s}{W_s} \frac{dE}{dx}.$$

Le dernier terme de droite correspond au nombre d'états singulets dans le halo, le terme exponentiel traduit l'inhibition de l'énergie d'excitation dans le cœur de trace. La densité linéaire de molécules excitées dans l'état triplet est calculée de la même manière, mais en négligeant la contribution du halo :

$$\frac{dN_t}{dx} = \frac{\Phi_t}{W_t} \frac{dE}{dx} \exp(-B_t \Phi_t \frac{dE}{dx}).$$

Dans cette expression W_t est l'énergie moyenne pour produire un état T_1 et $\Phi_t dE/dx$ représente la fraction d'énergie déposée utilisée pour activer des états triplets. Si on désigne maintenant par η_s l'efficacité quantique de fluorescence et par α le nombre d'états S_1 formés lors de l'interaction triplet-triplet la luminescence spécifique est :

$$\frac{dL}{dx} = \frac{dL_p}{dx} + \frac{dL_d}{dx} = \eta_s \frac{dN_s}{dx} + \alpha \eta_s \frac{dN_t}{dx}.$$

Les indices "p" et "d" désignent, respectivement, les composantes promptes et différées. En posant $\chi = W_t/\alpha$ et en notant S_e la perte d'énergie, l'expression finale de la luminescence spécifique s'écrit :

$$\frac{dL}{dx} = \eta_s \left\{ \frac{1 - F_s}{W_s} \exp(-B_s(1 - F_s)S_e) + \frac{F_s}{W_s} + \frac{\Phi_t}{\chi_t} \exp(-B_t \Phi_t S_e) \right\} S_e.$$

Si on ne compte pas la première constante multiplicative ce modèle comporte 6 paramètres libres : F_s , W_s , B_s , χ , Φ_t et B_t . La détermination expérimentale de ces paramètres nécessite ainsi d'étudier l'intensité de scintillation en fonction du temps, afin de discriminer les composantes promptes et différées [99]. Voltz donne une expression de F_s dans [98], mais nous préférons donner directement l'expression proposée par Ahlen [100] qui prend en compte, dans le calcul de la perte d'énergie, les effets relativistes :

$$F_s = \frac{1 \ln(2m_e c^2 \beta^2 \gamma^2 / T_0) - \beta^2}{2 \ln(2m_e c^2 \beta^2 \gamma^2 / I) - \beta^2}.$$

L'énergie minimale pour qu'un électron éjecté aille au-delà du cœur de trace est T_0 , c'est en fait ce paramètre qui permet de définir la limite entre cœur et halo. Les premières expériences de Voltz *et al.* [98], montrent que la théorie est qualitativement en accord avec les résultats expérimentaux, en particulier la luminescence spécifique due aux protons exhibe un maximum pour l'épaisseur de scintillateur plastique utilisée.

Affinement
du modèle

L'expression initiale proposée dans [98] a été modifiée par Voltz et Da Silva [68], afin de prendre en compte les contributions promptes et différées quelles que soient leur origine spatiale (trace, essaims, grappes isolées). En notant ϕ_1 la fraction d'énergie déposée hors de la trace et ϕ_2 la fraction déposée dans les essaims, on a maintenant :

$$\begin{aligned} \frac{dL/dx}{S_e \eta_s} &= \frac{1}{W_s} \left\{ (1 - \phi_1) e^{-B_s(1-\phi_1)S_e} + \phi_2 e^{-B_s \phi_2 S_e} + (\phi_1 - \phi_2) \right\} \\ &+ \frac{1}{\chi} \left\{ (1 - \phi_1) e^{-B_t(1-\phi_1)S_e} + \phi_2 e^{-B_t \phi_2 S_e} + (\phi_1 - \phi_2) \right\}. \end{aligned} \quad (2.5)$$

Cette nouvelle expression contient le même nombre de paramètres libres que l'expression initiale. En effet, les fractions ϕ_1 et ϕ_2 sont calculables dès que l'on a fixé deux énergies, E_1 et E_2 , telles qu'un électron d'énergie cinétique comprise entre ces deux valeurs ait un libre parcours moyen inférieur à la distance critique d'inhibition. Les trois termes dans chaque accolade de l'expression 2.5 correspondent aux contributions dans le cœur de trace, les blobs et les spurs. Malgré cette modification, il s'avère difficile d'ajuster les résultats expérimentaux obtenus en irradiant un scintillateur plastique avec des particules α de quelques MeV, en particulier la composante lente est mal décrite [76, 78].

Affinement
supplémentaire

Botelho do Rego et Lopes Da Silva [76] ont alors suggéré une modification de l'expression donnant la composante lente en considérant que la probabilité de réaction des états triplets est gouvernée par la distribution poissonienne des espèces triplets le long de la particule excitatrice. Cette modification prise en compte, on obtient l'agréable expression suivante :

$$\begin{aligned} \frac{\chi dL_d/dx}{S_e \eta_s} &= (1 - \phi_1) e^{-B_t(1-\phi_1)S_e} \left\{ 1 - e^{-B_t(1-\phi_1)S_e} \right\} \\ &+ \phi_2 e^{-\phi_2 B_t S_e} \left\{ 1 - e^{-\phi_2 B_t S_e} \right\} + (\phi_1 - \phi_2) \left\{ 1 - e^{-B_t(\phi_1-\phi_2)S_e} \right\}, \end{aligned} \quad (2.6)$$

où les termes supplémentaires qui n'apparaissent pas dans l'équation 2.6 traduisent la probabilité de réaction des espèces triplets. Grâce à cette nouvelle expression la composante lente est correctement décrite pour un film plastique (PS + diphénylanthracène), irradié par des particules α de 1 à 8 MeV. On peut retenir les ordres de grandeurs suivants, tirés de [76, 78, 68], pour des scintillateurs plastiques : $E_1 = 0.3 - 1$ keV, $E_2 = 50 - 70$ eV, $B_t = 1 - 3 \cdot 10^{-3}$ cm.MeV⁻¹, $B_s \approx 10^{-2}$ cm.MeV⁻¹.

Ahlen *et al.* ont comparé la qualité des prédictions fournies par différents modèles, en particulier ils opposent une version simplifiée du modèle de Voltz, dans laquelle la contribution de la composant lente est négligée, à une expression due à Tarlé [101]. Les deux expressions pour la luminescence spécifique sont :

$$\frac{dL}{dx} = A\{(1 - F_s) \exp(-B_s(1 - F_s)S_e) + F_s\}S_e \quad (2.7)$$

$$\frac{dL}{dx} = A \left\{ \frac{(1 - F_s)}{1 + B_s(1 - F_s)S_e} + F_s \right\} S_e \quad (2.8)$$

Les résultats expérimentaux traités par Ahlen *et al.* recouvrent un domaine d'énergie et de nombre de charge beaucoup plus vaste que celui des expériences précédemment citées. D'après ces auteurs l'équation 2.7 permet d'ajuster les données expérimentales de manière satisfaisante pour des ions lourds relativistes si l'on considère individuellement chaque ion, cependant les paramètres impliqués dans 2.7 varient de manière erratique pour chaque type d'ion [102]. Par contre l'expression 2.8 permet un ajustement pour les 3 types d'ions avec un seul ensemble de paramètre ($B_s \approx 10^{-2} \text{ cm.MeV}^{-1}$, $T_0=8.5 \text{ keV}$). D'autre part, Buffington *et al.* [103] ont montré que l'équation 2.7 n'est pas adéquate pour ajuster les résultats obtenus, dans le domaine non relativiste, avec des ions légers excitants le scintillateur plastique Pilot-Y. Enfin, d'après les conclusions d'Ahlen [102], le modèle simplifié de Voltz trouve toute son utilité dans le domaine relativiste, dans ce cas la contribution due aux électrons δ de haute énergie devient prédominante et la réponse du scintillateur varie linéairement avec le pouvoir d'arrêt.

III.4 Inhibition de l'énergie d'ionisation et effets supplémentaires à prendre en compte

Inhibition de l'énergie d'ionisation

Les modèles utilisant le profil radial de dose parviennent à reproduire, avec plus ou moins de succès, les caractéristiques principales de la réponse du scintillateur : saturation de l'efficacité de scintillation et séparation des réponses en fonction du nombre de charge de l'ion. Comme l'a noté Luntz [80], l'efficacité de scintillation est plus sensible à un changement de vitesse de l'ion à pouvoir d'arrêt fixe qu'à un changement de pouvoir d'arrêt à vitesse fixe ; ainsi la vitesse, qui fixe le dépôt radial d'énergie, est bien le paramètre à prendre en compte. Ceci dit, la connaissance du profil radial de dose n'est pas suffisante car dans les zones de forte densité d'ionisation de nombreux phénomènes inhibiteurs de la scintillation sont à considérer.

En premier lieu nous pouvons évoquer les effets de température ; en effet, le modèle de la pointe thermique [26] prédit une hausse considérable de la température dans le cœur de la trace. Même si les valeurs des températures

Approche de
Ahlen

Effet de la
température

calculées dans le cadre de ce modèle sont questionnables [30, 31, 104], de nombreux effets sont expliqués par ce modèle [27, 28, 29] et une confirmation expérimentale, quasi directe, de la hausse de température, a été récemment publiée [105]. Comme l'a montré Birks [106], la probabilité de relaxation relative décroît rapidement avec la température (relation de Mott-Gurney). D'autre part, des modifications physico-chimiques, pouvant aller jusqu'à un changement de phase, sont associées à la hausse de température.

Rôle des
dégâts
radio-induits

Sans nécessairement invoquer une augmentation de température, la création de dégâts radio-induits est principalement due à des événements purement ionisants [107, 80], les dégâts ainsi créés deviennent des pièges à électrons ou à trous, limitant ainsi le transfert d'énergie vers les centres scintillants. Ces mêmes défauts peuvent être à l'origine d'une diminution de l'efficacité de transfert radiatif. Les centres d'absorption peuvent se présenter sous forme de radicaux, stables ou instables, comme ceux mis en évidence par Busjan *et al.* [108, 109, 110, 111], suite à l'irradiation de fibres optiques scintillantes. Enfin, Birks attribue la détérioration du rendement de scintillation de l'anthracène, soumis à une forte fluence de particules α , à la création de dégâts radio-induits qui deviennent des pièges à excitons [112].

Inhibition
de l'énergie
d'ionisation

La diminution du nombre de porteurs de charge, utiles à l'excitation des centres lumineux, peut également être attribuée à la recombinaison de paires électrons trous se formant dans le voisinage de la trace, le taux de recombinaison de ces paires est régi par une cinétique du second ordre, autrement dit il varie comme le carré de la densité d'ionisation [80]. La recombinaison non radiative d'une paire électron trou peut aussi avoir lieu dans le voisinage d'un centre lumineux excité [113]. Powell et Harrah [113] ont aussi montré que la saturation, dans les scintillateurs à base de PVT, résulte, en partie, de l'interaction de deux excitons de basse énergie qui se combinent en un exciton d'énergie plus élevée, qui relaxe alors très rapidement, non radiativement, vers un état de plus basse énergie. Ce processus, gouverné par une cinétique du second ordre, se retrouve aussi dans les cristaux inorganiques [114].

Finalement, l'ensemble de ces processus se résume à une diminution de l'énergie potentiellement disponible pour exciter les centres lumineux, on parle alors d'inhibition de l'ionisation (ionisation quenching). Il semble maintenant acquis que c'est bien l'ensemble de ces processus qui est responsable de la saturation de l'efficacité de scintillation à pouvoir d'arrêt élevé, plutôt que l'inhibition des centres lumineux. En effet les modèles proposés par Muga *et al.* [79, 91] et les premiers travaux de Murray et Meyer [83] attribuaient la saturation au fait que les centres lumineux ne pouvaient pas "accueillir" plus d'une paire électron-trou et que la quantité supplémentaire d'énergie, créée par une augmentation du pouvoir d'arrêt, n'était de ce fait pas utile à la scintillation. Cette hypothèse a été désapprouvée, par les travaux ultérieurs de Gwin et Murray [115] dans le cas des scintillateurs inorganiques, et par les travaux de Swank et Bunk [74] dans le cas des scintillateurs plastiques. Katz et Kobetich uti-

lisent explicitement l'hypothèse de réduction du nombre de centres lumineux, mais leur formulation est mathématiquement équivalente à celle proposée par Salamon et Ahlen [116] qui considèrent une réduction rapide du nombre de paires électron-trou, avant de prendre en compte les effets d'interactions bimoléculaires.

Pour en finir avec les effets d'inhibition signalons le travail de Matsufuji *et al.* [117] qui ont étudié la réponse du scintillateur NE102 irradié par des ions relativistes, légers et lourds. Ces auteurs ont examiné la réduction du rendement de scintillation et concluent à l'existence de deux régimes d'inhibition : l'un qui dépend de la nature de la particule et dont l'effet se manifeste surtout à basse énergie pour les pouvoirs d'arrêt élevés, l'autre indépendant de la particule et dont l'effet est surtout sensible dans le domaine relativiste. Pour des énergies suffisamment grandes les auteurs proposent la paramétrisation suivante de la luminescence spécifique :

$$\frac{dL}{dx} = S \frac{dE}{dx} - Q \left(\frac{dE}{dx} \right)^q + cste,$$

qui rend correctement compte de l'ensemble de leurs données expérimentales, sans cependant permettre d'ajuster finement les données relatives à chaque type d'ion.

Composantes promptes et différées

Nous voulons maintenant faire une remarque rapide sur l'importance de la composante différée. Il est couramment et implicitement admis que cette composante est négligeable, dans le cas de la scintillation iono-induite. Ainsi, dans leur exploitation du modèle de Voltz, Ahlen *et al.* négligent cette contribution. Michaelian et Menchaca-Rocha, l'incluent en temps que terme légèrement correctif [52], même s'ils notent que cette contribution est susceptible d'augmenter avec le pouvoir d'arrêt. Nous n'avons trouvé dans la littérature qu'un nombre limité de mesures se rapportant à l'importance relative des composantes promptes et lentes dans le cas de la scintillation iono-induite. Ces données nous invitent cependant à un grand scepticisme quant à l'hypothèse de négligeabilité de la composante lente. En effet, pour un monocristal de terphényle irradié avec des α de 7.8 MeV on a $L_p/L_d = 0.3 - 0.5$ et pour un monocristal de stilbène on a $L_p/L_d = 0,6$ pour des particules α de 5.8 MeV [65, 118]. Ces deux valeurs sont en parfait accord avec la description de l'intensité temporelle de scintillation, établie par Voltz et King [119].

Insistons sur le fait que l'évaluation des proportions relatives des deux composantes nécessite une expression exacte de l'intensité temporelle de scintillation, ce qui permet de déconvoluer les deux composantes dans l'intensité totale; certains travaux, pour ne pas dire de nombreux, ignorent cette réalité. Par exemple, les résultats de Harihar *et al.* [120] ne sont pas utilisables car l'intensité temporelle de scintillation d'un cristal de trans-stilbene est ajustée par une

fonction du type $A \exp(-k_1 t) + B \exp(-k_2 t)$. Il nous semble donc que l'acquisition de nouvelles données sur la proportion relative des deux composantes, sur une large gamme de perte d'énergie et de nombre de charge, permettrait de mieux comprendre les processus mis en jeu, et notamment de savoir si la proportion de composante lente varie avec le pouvoir d'arrêt, quelle est la forme de cette variation, comment le nombre de charge de l'ion l'influence.

Effets du champ magnétique

Les assemblages étendus de scintillateurs utilisés en physique des hautes énergies, notamment au niveau des calorimètres, peuvent être soumis à des champs magnétiques relativement élevés (4 T pour le détecteur CMS par exemple). Il a été remarqué que le rendement de scintillation augmente avec le champ magnétique, la prise en compte de cet effet est donc nécessaire pour garantir la fiabilité de la résolution en énergie des calorimètres. Bien que "la dépendance [entre la hausse du rendement de scintillation et la hausse du champ magnétique] soit plutôt complexe et qu'aucune explication claire n'ait été proposée jusqu'alors" [121], nous donnons ici quelques constatations expérimentales. La plupart des scintillateurs sur lesquels cet effet a été mis en évidence sont du type plastique (NE102, NE110, PPMA, fibres scintillantes). En excitant des scintillateurs plastiques à l'aide d'électrons, de rayons X et de γ , on constate une augmentation du taux de scintillation à partir de quelques gauss : d'après Bertoldi *et al.* [122], qui ont réalisé des expériences avec un champ magnétique aussi élevé que 20 T, l'augmentation du taux de scintillation sature aux alentours de 2 T, l'augmentation étant alors de 6 à 8 moyenne pour des scintillateurs à base de PS ou PVT. Balalykin *et al.* [121] rapportent une augmentation du rendement de scintillation dans le cas de l'irradiation par des protons, mais pas dans le cas de l'irradiation par des particules α , ceci pour le scintillateur plastique NE-110. En ce qui concerne l'irradiation par les particules α , ces derniers résultats sont en contradiction avec les conclusions de Cumalat *et al.* [123] qui ont constaté une augmentation du rendement de scintillation de 4-5 % en irradiant un scintillateur à base de PPMA avec des particules α issues de sources de ^{241}Am et de ^{252}Cf , l'augmentation pour des scintillateurs à base de PS ou PVT est plus faible mais cependant détectable ; ces dernières expériences sont réalisées avec un champ faible de 0.1 T. Enfin, Blömker *et al.* [124] ont conduit des expériences en champ faible (0.4 T maximum) avec des protons de 25 MeV et des X de 5.9 keV. D'après ces auteurs, l'augmentation du rendement de scintillation est plus prononcée pour des scintillateurs à base d'acrylique que pour des scintillateurs à base de PVT ou de PS ; d'autre part, aucune influence du champ magnétique n'est décelable en irradiation UV et la constante de temps de la fluorescence n'est pas non plus influencée par la présence du champ.

Rôle des fragments.

Lorsque un faisceau de particules de haute énergie (plusieurs centaines de MeV/uma) traverse la matière une partie des particules incidente subit une fragmentation nucléaire. Les fragments ainsi créés continuent leur course à travers le matériau avec une vitesse presque égale à la vitesse des particules initiales. Ces fragments sont en partie responsables de l'élargissement du pic de Bragg et de l'élévation de dose au-delà de ce pic. Les fragments subissent aussi une déviation latérale et longitudinale plus importante que le faisceau initial. La dose déposée par ces fragments est un facteur à prendre en compte dans la programmation des traitements en hadronthérapie et c'est aussi un point crucial dans l'évaluation du risque pour les vols spatiaux habités [125, 126, 127]. En ce qui concerne la scintillation iono-induite, le rôle des fragments n'a jamais été pris en compte, à notre connaissance, il n'est pourtant pas exclu que la contribution de ces fragments soit en prendre en compte, surtout lorsque des particules de haute énergie sont arrêtées dans un scintillateur.

IV Application du modèle de dose radiale à la scintillation iono-induite

IV.1 Motivations

Au chapitre précédent nous avons élaboré une méthode de calcul de la dose radiale qui permet, notamment, de prendre en compte la corrélation entre l'énergie et l'angle d'émission des électrons secondaires éjectés. Certains modèles de dose radiale incluent cette corrélation, comme celui de Cucinotta *et al.* [37], utilisé pour la prédiction des sections efficaces de dégâts biologiques. Une telle corrélation est aussi prise en compte dans les travaux de Ohno *et al.* [128, 129], dans le calcul de la dose radiale utilisé pour la prédiction des rendements radiolytiques. Dans le cas de la scintillation iono-induite Muga *et al.* [79, 91], ainsi que Meyer et Murray [87], n'ont pas fait l'hypothèse d'un flux radial d'électrons mais leur modèle de scintillation ne prenait pas en compte l'inhibition de l'énergie disponible.

Nous appliquons ici le calcul de dose radiale du chapitre précédent au cas de la scintillation iono-induite. Afin de tester la qualité des modèles reliant la dose radiale à la scintillation nous utilisons les modèles MM1 et MM2 (équation 2.3 et 2.4), le modèle de Katz (équation 2.1) et aussi le modèle de Luntz [80] qui généralise l'approche de Birks en donnant l'expression suivante pour la luminescence spécifique :

$$\frac{dL}{dx} = \int_{r_{min}}^{r_{max}} \frac{2\pi r \rho(r)}{1 + \rho(r)/\rho_0} dr.$$

Tous ces modèles nécessitent l'utilisation d'une constante de normalisation dont nous examinons les variations en fonction du nombre de charge de l'ion incident. Nous examinons également la qualité globale des ajustements réalisés en utilisant des données expérimentales publiées dans la littérature.

IV.2 Résultats et discussions

Cas d'un scintillateur inorganique

Nous utilisons les données de Newman et Steigert [86] qui ont mesuré la scintillation totale d'un scintillateur NaI(Tl) épais. Les ions employés par Newman et Steigert sont He, $^{10-11}\text{B}$, C, N, O, F, Ne à des énergies de 10 à 1 MeV/uma. Dans tous les ajustements réalisés, les constantes de normalisation pour chaque ion sont déterminées après avoir trouvé le meilleur ajustement des autres paramètres. Pour déterminer la qualité de l'ajustement nous utilisons le test du χ^2 :

$$\chi^2 = \frac{1}{N - npl} \sum (y_i^{exp} - y_i^{cal})^2 .$$

N est le nombre de points expérimentaux, y_i^{exp} et y_i^{cal} les valeurs expérimentales et calculées, et npl est le nombre de paramètres libres du modèle utilisé (dose critique, paramètres additionnels et constantes de normalisation). Vu que nous ne disposons pas des erreurs sur les quantités mesurées elles ne sont pas prises en compte dans le calcul du χ^2 .

En utilisant les mêmes données et leur modèle de dose radiale, Michaelian et Menchaca ont obtenu le meilleur ajustement pour $\rho_q = 220$ Gy tandis que Katz et Kobetich l'ont obtenu pour $\rho_q = 1080$ Gy.

Modèle	χ^2	Paramètres
MM1	0.042	$\rho_q = 3.9 \text{ kGy}$
Katz	0.036	$\rho_q = 6.7 \text{ kGy}$
Luntz	0.029	$\rho_q = 11 \text{ kGy}$
MM2	0.023	$\rho_q = 2.1 \text{ kGy}$ $\mathcal{F} = 0.85$ $\mathcal{A} = 310^{-4}$

FIG. 2.5 – Résumé des résultats pour les ajustements des données de Newman et Steigert pour différents modèles de scintillation

L'utilisation de notre expression de la dose radiale et du modèle MM1 donne le meilleur ajustement pour $\rho_q \approx 3.9$ kGy. Malgré un ajustement partiellement satisfaisant pour certains ions (^{11}B et ^{16}O), l'ajustement global peut

IV. Application du modèle de dose radiale à la scintillation iono-induite

être considéré comme bon, comme le montrent la figure 2.6 et la valeur du χ^2 obtenue ($\chi^2 \approx 0.042$). Les constantes de normalisation obtenues pour chaque ion sont, par contre, assez dispersées, notamment pour l'hélium dont la variation relative de la constante de normalisation par rapport à la moyenne des constantes est de 80% (cf. figure 2.7).

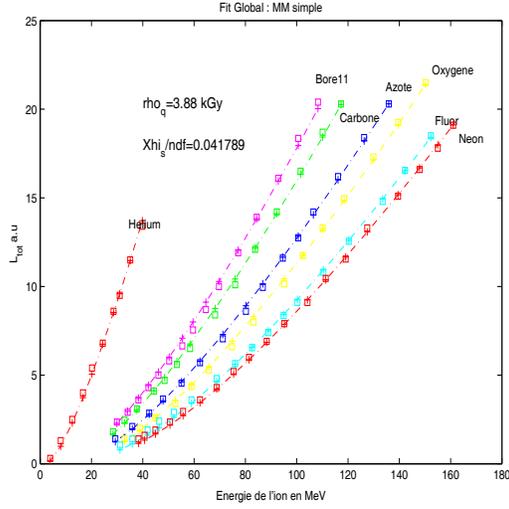


FIG. 2.6 – Meilleur ajustement des données de Newman et Steigert en utilisant notre profil de dose radiale et le modèle MM1. Les points expérimentaux sont représentés par des \square et les points calculés par des $+$, les lignes en pointillé sont tracées pour le confort visuel

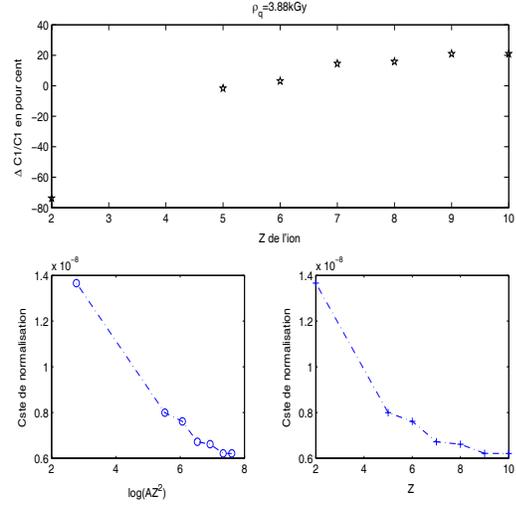


FIG. 2.7 – Variation des constantes de normalisation : écart en % par rapport à la constante moyenne et tracé des constantes en fonction de $\log(AZ^2)$ et de Z . Les lignes en pointillé sont tracées pour guider l'oeil

L'utilisation du modèle de Katz conduit à un ajustement légèrement meilleur que le modèle MM1 ($\chi^2 \approx 0.036$), mais la dispersion des constantes de normalisation reste importante (cf. figures 2.8 et 2.9), la dose "critique" nécessaire pour obtenir cet ajustement est $\rho_q \approx 6.7$ kGy. Le modèle de Luntz donne un ajustement aussi bon que le modèle de Katz, avec une dose "critique" de 11 kGy et une dispersion des constantes de normalisation toujours aussi peu satisfaisante (cf. l'annexe de ce chapitre). Ces deux derniers modèles ont cependant été testés avec des profils de dose radiale dont le plus petit rayon n'était pas strictement identique, pour l'hélium et le Bore nous avons $r_{min} = 0.5$ nm, $r_{min} = 1$ nm pour le carbone et $r_{min} = 5$ nm pour les autres ions. Nous ne pensons pas que la dispersion des constantes de normalisation pourrait être significativement réduite en utilisant une valeur de r_{min} strictement égale pour tous les ions.

L'utilisation du modèle MM2 donne un ajustement meilleur que tous les ajustements précédents, la scintillation due à chaque ion est prédite avec un égal succès. La dispersion des constantes de normalisation est considérablement réduite en particulier pour l'hélium (*cf.* figures 2.10 et 2.11). L'ensemble des paramètres donnant le meilleur ajustement pour chaque modèle est résumé dans le tableau 2.5. La correction qui s'applique est plus importante pour les ions de charge élevée comme le montre la figure 2.11.

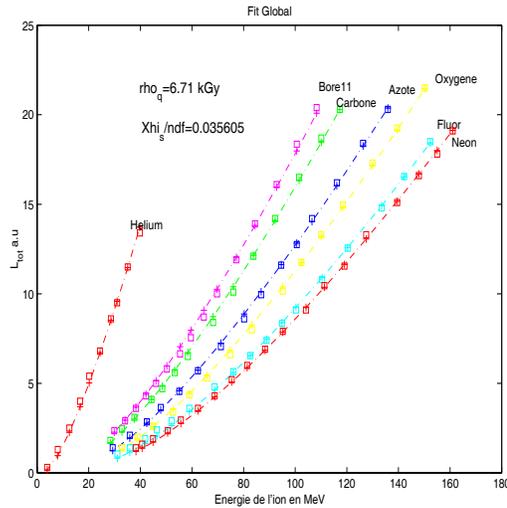


FIG. 2.8 – Meilleur ajustement en utilisant notre profil de dose radiale et le modèle de Katz

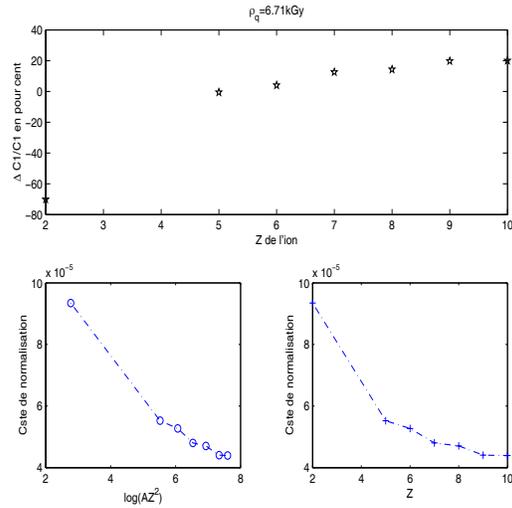


FIG. 2.9 – Variation des constantes de normalisation pour le modèle de Katz

Cas d'un scintillateur organique

Nous utilisons les données de Buenerd *et al.* [130] qui ont mesuré la scintillation totale d'un scintillateur plastique Pilot-U épais. Les ions utilisés sont ^4He , ^6Li , ^{12}C , ^{16}O , ^{20}Ne et ^{40}Ar à des énergies de 20 à 3 MeV/uma. Buenerd *et al.* donnent une relation permettant d'ajuster leurs données :

$$L(E) = \gamma E + \beta(e^{-\alpha E} - 1).$$

Dans cette relation les constantes dépendent en fait du nombre de charge de l'ion (α et γ sont des fonctions affines de $1/Z$ et β est une fonction affine de Z). Comme pour les valeurs de Newman et Steigert nous évaluons la bonté de l'ajustement en calculant le χ^2 , mais cette fois nous donnons dans le tableau 2.3 le χ^2 pour chaque type d'ion, afin d'inclure dans la comparaison des ajustements la relation ci-dessus. Pour les mêmes données Michaelian *et al.* [92] ont obtenu $\rho_q = 140$ Gy, $\mathcal{A} = 9 \cdot 10^{-4}$ et $\mathcal{F} = 0.5$. Pour ce scintillateur, lors du calcul de la luminescence spécifique, nous avons pris pour tous les ions $r_{min} = 0.5$ nm.

IV. Application du modèle de dose radiale à la scintillation iono-induite

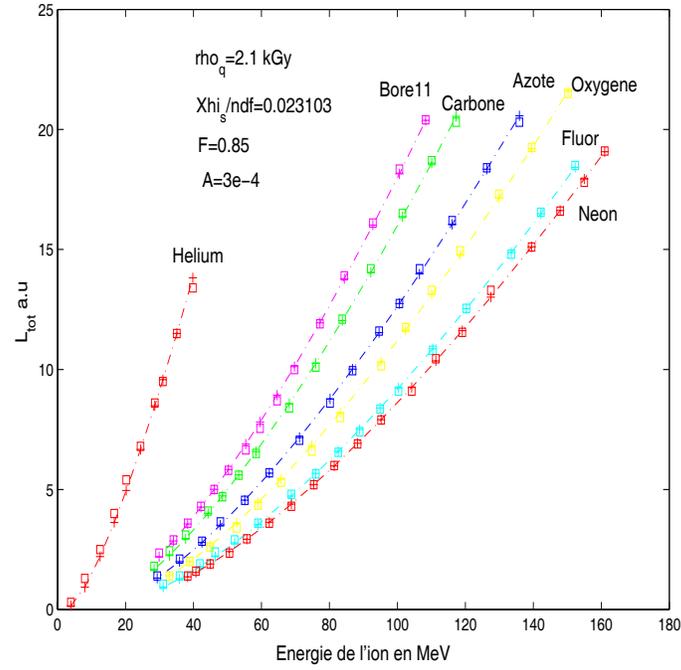


FIG. 2.10 – Meilleur ajustement en utilisant notre profil de dose radiale et le modèle MM2

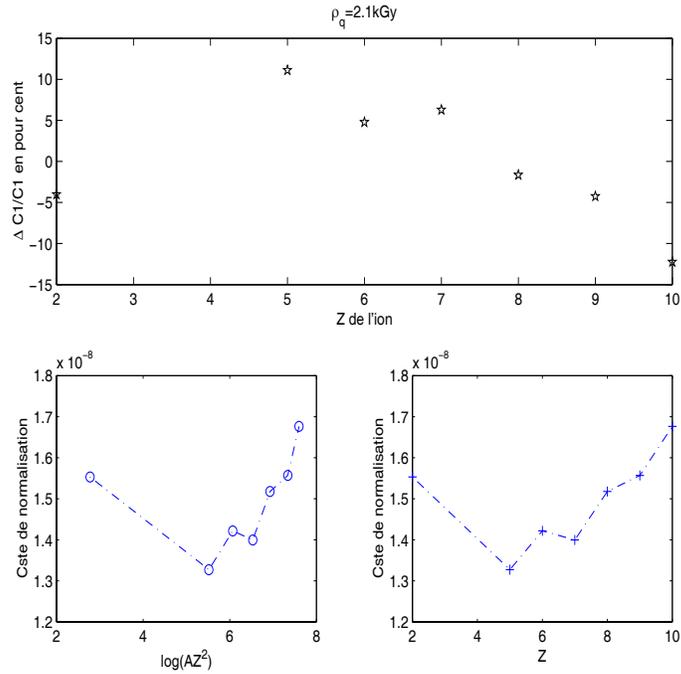


FIG. 2.11 – Variation des constantes de normalisation pour le modèle MM2

Comme pour les données de Newman et Steigert, nous obtenons dans le cas du modèle de Luntz et de Katz des valeurs de ρ_q supérieures à celles obtenues avec le modèle MM1 et MM2 (*cf.* tableau 2.4). Pour ces deux modèles, bien que les valeurs du χ^2 soient correctes (comparées aux autres modèles) et les ajustements satisfaisants (*cf.* figures 2.14 et l'annexe de ce chapitre pour le modèle de Luntz), la dispersion des constantes de normalisation est assez importante (*cf.* figure 2.15 et annexe de ce chapitre). La dispersion des constantes de normalisation n'est pas particulièrement bonne dans le cas du modèle MM1 (figures 2.12 et 2.13) mais elle s'améliore avec le modèle MM2 (figures 2.17 et 2.17). Comme dans le cas du scintillateur NaI(Tl) nous obtenons une dose ρ_q supérieure à celle obtenue par Michaelian *et al.*, mais nos valeurs de \mathcal{F} et \mathcal{A} sont assez semblables.

	Buenerd	MM1	MM2	Luntz	Katz
He	17.6	14.4	16.3	11.6	16.3
Li	6.6	4	2.6	2.5	2.6
C	2.1	1.5	2.1	2.5	2.1
O	15.2	13.6	9.5	8.8	9.5
Ne	5.1	2.3	1.6	1.5	1.6
Ar	4.6	3.8	2.7	2.9	2.7
$\langle \chi^2 \rangle$	8.5	6.6	6	6	5.8

TAB. 2.3 – Qualité de l'ajustement pour les données de Buenerd *et al.* concernant le scintillateur Pilot-U

Modèle	Paramètres
MM1	$\rho_q = 410 \text{ Gy}$
MM2	$\rho_q = 230 \text{ Gy}$ $\mathcal{F} = 0.75$ $\mathcal{A} = 5e - 4$
Luntz	$\rho_q = 1400 \text{ Gy}$
Katz	$\rho_q = 870 \text{ Gy}$

TAB. 2.4 – Paramètres d'ajustement pour le scintillateur Pilot-U d'après les données de Buenerd *et al.*

IV. Application du modèle de dose radiale à la scintillation iono-induite

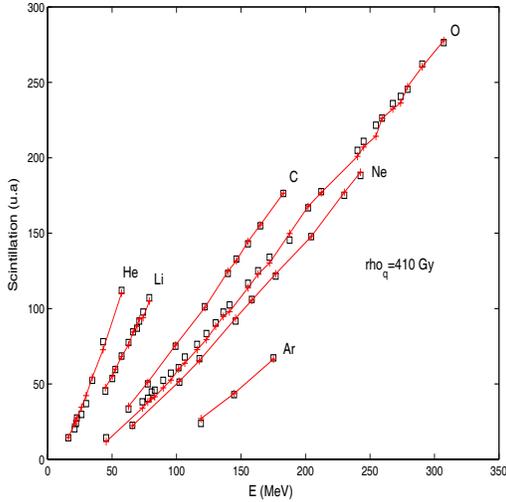


FIG. 2.12 – Meilleur ajustement des données de Buenerd et al. (Pilot-U) en utilisant notre profil de dose radiale et le modèle MM1. Les points expérimentaux sont représentés par des \square et les points calculés par des $+$, les lignes en trait plein sont tracées pour le confort visuel

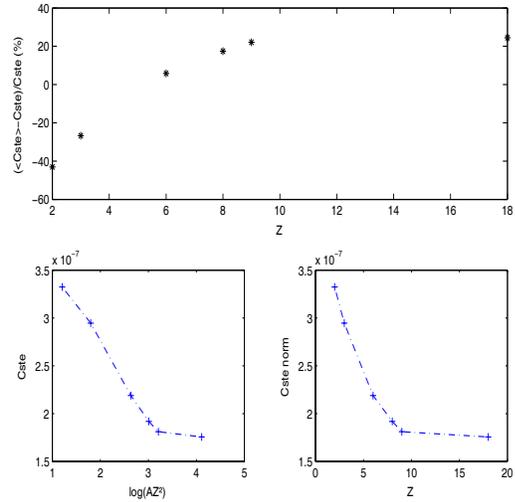


FIG. 2.13 – Variation des constantes de normalisation: écart en % par rapport à la constante moyenne et tracé des constantes en fonction de $\log(AZ^2)$ et de Z . Les lignes en pointillé sont tracées pour guider l'oeil

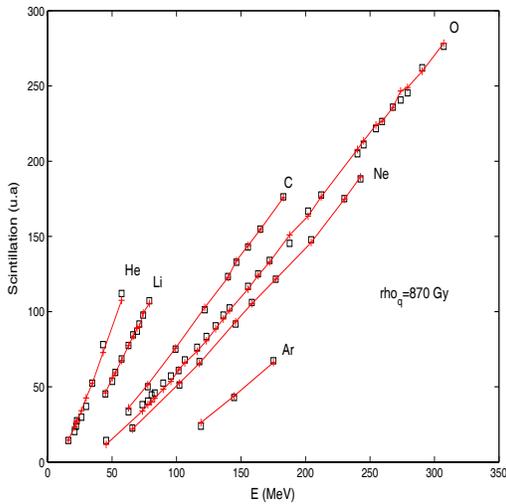


FIG. 2.14 – Meilleur ajustement en utilisant notre profil de dose radiale et le modèle de Katz

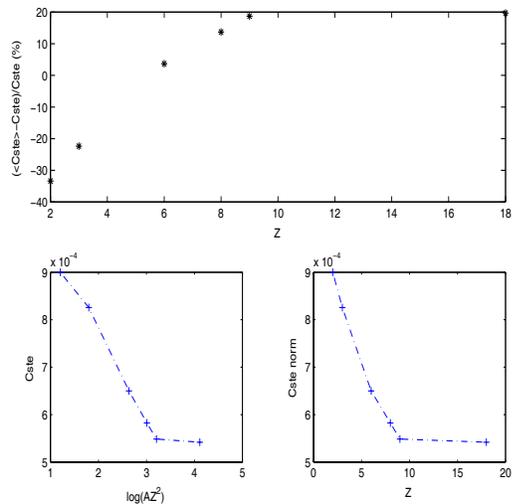


FIG. 2.15 – Variation des constantes de normalisation pour le modèle de Katz

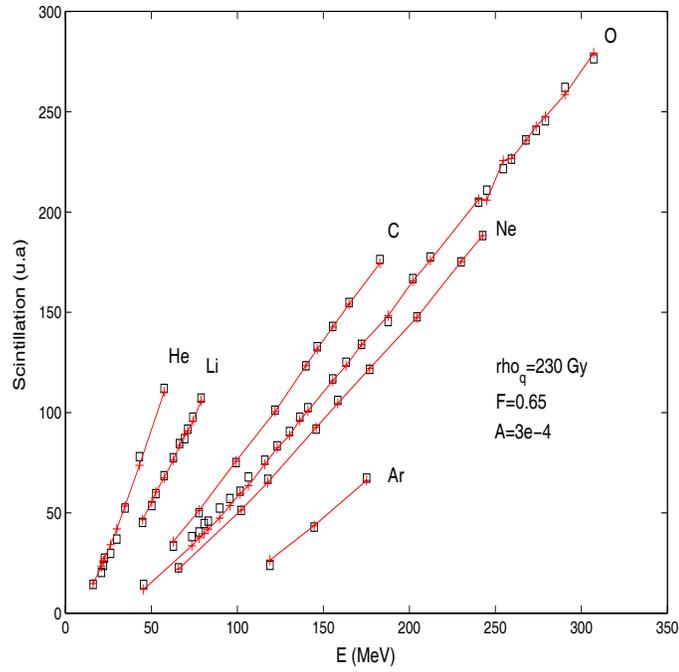


FIG. 2.16 – Meilleur ajustement en utilisant notre profil de dose radiale et le modèle MM2

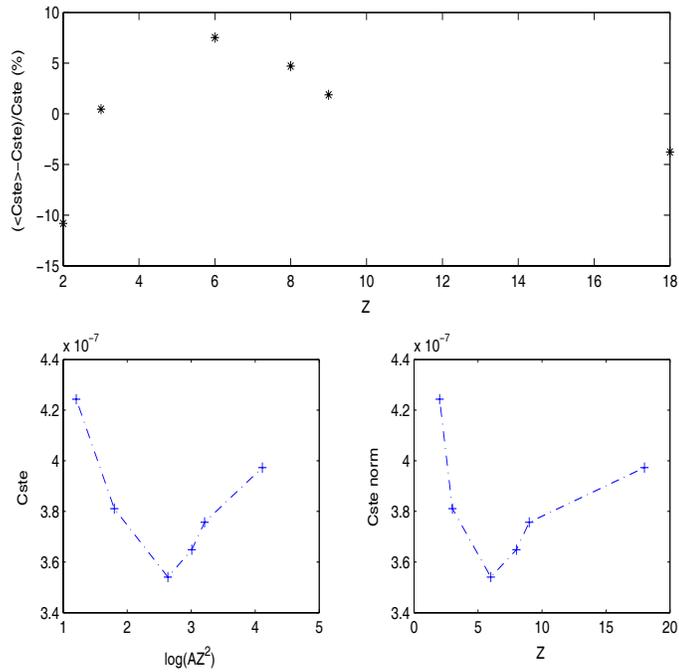


FIG. 2.17 – Variation des constantes de normalisation pour le modèle MM2

V Bilan

La difficulté de lier le dépôt radial à la scintillation observable tient plus à notre méconnaissance des processus de scintillation sous forte densité d'ionisation qu'à l'évaluation de manière précise du dépôt radial ; même si le calcul de ce dernier peut être encore amélioré en affinant notre connaissance, théorique ou expérimentale, de la section efficace doublement différentielle décrivant l'éjection d'électrons suite à une collision avec un ion [131, 132, 133, 134] et aussi nos connaissances sur le pouvoir d'arrêt, notamment à base énergie. Bien que l'utilisation de modèles incluant le concept de dose radiale donnent des résultats prédictifs satisfaisants, les paramètres tirés de ces modèles, comme la dose critique des modèles de Luntz, Katz et Michaelian, ne s'interprètent pas en terme de processus clairement définis. D'autres part, toutes ces doses critiques sont censées représenter la dose au-delà de laquelle l'inhibition de l'énergie disponible devient effective et pourtant les valeurs tirées de ces modèles ne sont pas du même ordre de grandeur. Les modèles récemment publiés par Pârlog *et al.* [135], concernant la scintillation iono-induite dans NaI(Tl), et par Quaranta *et al.* [136], concernant les scintillateurs plastiques montrent qu'une étude détaillée des processus de scintillation est peut-être plus importante qu'une connaissance détaillée du profil de dose radiale. Enfin, nous répétons qu'il serait souhaitable d'obtenir plus de résultats quant aux composantes promptes et différées de la scintillation et de réaliser une étude de leur importance relative en fonction du pouvoir d'arrêt et du type d'ion. En effet, la composante différée résulte de la recombinaison des états triplets et on peut espérer, en étudiant cette composante, obtenir des informations quant à l'inhibition de ce canal spécifique.

Connaître ce n'est point démontrer ni expliquer. C'est accéder à la vision

Saint Exupéry - Pilote de guerre

Bientôt nous plongerons dans les froides ténèbres;
Adieu vive clarté de nos étés trop courts!
J'entends déjà tombé avec des chocs funèbres
Le bois retentissant sur le pavé des cours

C. Baudelaire , Les Fleurs du mal

Chapitre 3

Dégradation de l'intensité de scintillation et dégâts chimiques iono-induits dans les solides organiques

I Introduction

L'utilisation massive des scintillateurs organiques dans les expériences de physique des hautes énergies, présentes et futures, a motivé un certain nombre de travaux sur la dégradation des propriétés de scintillation dans un environnement soumis à de hautes doses de rayonnement ionisant. Non seulement les calorimètres, mais aussi les fibres scintillantes à décalage de longueur d'onde pourraient être soumis à des doses annuelles supérieures à 10 kGy [137]. Les scintillateurs utilisés pour la dosimétrie β ou γ , en radio-chirurgie stéréotaxique par exemple, même s'ils sont soumis à des doses relativement faibles, sont susceptibles de perdre de leur efficacité sous l'action des rayonnements ionisants [138]. La prise en compte des dégâts sous irradiation est particulièrement cruciale lorsque l'on souhaite utiliser des scintillateurs plastiques pour mesurer la dose délivrée par des particules fortement ionisantes comme les protons, les hélions ou les ions carbone, utilisés en radiothérapie [139, 140]. D'un point de vue plus fondamental, Okudaira *et al.* [141] ont montré que, même dans le cas d'irradiation par un rayonnement synchrotron VUV, on pouvait mettre en évidence des dégâts radio-induits et déterminer de cette manière les mécanismes de photo-dégradation dans le PMMA. D'autre part, la dégradation de l'intensité de scintillation est rarement prise en compte dans les nombreux travaux portant sur la détermination du rendement de scintillation iono-induit, même s'il est vrai que l'on considère en général des expériences réalisées sous faible fluence. Comme le fait remarquer Zorn [142] on peut diviser les modifi-

Dégradation
des
scintillateurs

cations des propriétés de scintillation en deux catégories : d'une part une perte de transmission optique et d'autre part une perte de l'efficacité intrinsèque de scintillation. Cette distinction est certes pratique pour qualifier les effets, cependant les deux phénomènes sont corrélés et tous les rayonnements ionisants sont susceptibles de les induire l'un comme l'autre.

Dégradation
induite par
les particules
légères

La majorité des études sur la dégradation radio-induite des scintillateurs a été réalisée en utilisant comme source de rayonnement ionisant des électrons, des γ ou des rayons-X. Vasil'chenko *et al.* [71] ont ainsi étudié, en utilisant des sources de ^{60}Co et ^{90}Sr , la radiorésistance d'un très grand nombre de solutions solides, afin de trouver un scintillateur offrant une bonne tenue aux radiations tout en conservant une efficacité de scintillation suffisante. Busjan, Wick et Zoufal [108, 143] ont utilisé des rayons-X pour étudier la radiorésistance de différentes fibres scintillantes à base de polystyrène, ils ont ainsi pu mettre en évidence de forts effets de débit de dose ainsi que la formation de trois types de centres d'absorption, parmi lesquels des centres à faible durée de vie qui disparaissent en quelques heures en présence d'oxygène. Hamada *et al.* [144] ont eux aussi utilisé une source de ^{60}Co et mis en évidence un effet de débit de dose dans les scintillateurs à base de polystyrène, de plus ces auteurs ont montré que les pertes en transmission et en émission peuvent être décrites, en fonction de la dose, par des fonctions bi-exponentielles. Enfin, les facultés de guérison, après irradiation γ , de scintillateurs à base de polystyrène ont été mises en évidence par Holm *et al.* [145].

Dégradation
iono-induite

Les exemples d'étude de la dégradation iono-induite des propriétés de scintillation sont plus rares et les connaissances actuelles sont moins précises que celles concernant la dégradation induite par les électrons ou les photons. Torrisi [140] a cependant montré en utilisant des protons, des hélions, des ions xénon et argon, que le PVT perd 50 % de son efficacité de scintillation pour des fluences de l'ordre de 10^{13} part/cm² (ions lourds de pouvoir d'arrêt élevé¹) à 10^{14} part/cm² (ions légers de pouvoir d'arrêt plus faible²). Quaranta *et al.* [146, 147] ont mesuré la perte d'efficacité de scintillation du PVT pur et de NE102 (PVT + para-terphényl + POPOP) induite par des hélions de 2 MeV. Enfin Miersch *et al.* [148] se sont surtout intéressés à la radiorésistance des scintillateurs inorganiques mais ils ont mesuré, à titre de comparaison, la perte d'efficacité de scintillation de pilot-U irradié par des ions carbone de 100 MeV.

Résumé
des parties

Dans ce chapitre nous présentons un dispositif expérimental permettant d'étudier la dégradation de l'intensité totale de scintillation. Ce dispositif a été utilisé pour mesurer la dégradation de l'intensité de scintillation de l'antracène sous faisceau de carbone, à différentes énergies, ainsi que la dégradation du scintillateur BC-418 sous faisceau de lithium, de carbone et d'iode. Les modifications chimiques induites sur BC-418 par des faisceaux d'hélions et de

1. ions argon de 300 keV, $dE/dx=705$ keV/ μm
2. protons de 300 keV, $dE/dx=66$ keV/ μm

carbone sont également étudiées par spectroscopie infra-rouge. Grâce à cette étude nous espérons comprendre les liens entre la perte de l'intensité de scintillation et les modifications chimiques radio-induites autour de la trace de l'ion.

II Dispositif de mesure pour la dégradation de l'intensité de scintillation

Le dispositif que nous avons réalisé permet de mesurer en temps réel l'intensité de scintillation émise au cours de l'irradiation. Ce dispositif a été utilisé au VIVITRON, il est cependant suffisamment léger pour être facilement adapté sur une autre ligne. Les irradiations sont réalisées sous un vide secondaire (10^{-6} - 10^{-7} Torr), dans une chambre de petit volume, de manière à ce que le pompage soit réalisé en quelques minutes. L'axe de la chambre d'irradiation est parfaitement aligné sur la ligne et sur le collimateur en amont, et un porte-échantillon permet de placer les matériaux à irradier de manière totalement reproductible sur l'axe du faisceau. Les échantillons sont placés à 45° par rapport à l'axe du faisceau de manière à maximiser la collection de lumière. La chambre d'irradiation est équipée d'une fenêtre en fluorure de magnésium placée à la verticale de l'échantillon, sur cette fenêtre une tête optique équipée d'une lentille permet de focaliser la scintillation vers l'entrée d'une fibre optique dont l'autre côté est relié à l'entrée fibrée (connecteur ST) d'une tête de comptage de photon.

Ce dernier dispositif est en fait un photomultiplicateur de faible encombrement, le H7155-20 de chez Hamamatsu, qui comprend une pré-échelle de comptage (prescaler), un amplificateur et un discriminateur intégré. Le H7155-20 est alimenté sous 5V en direct à l'aide de l'alimentation stabilisée AL 841B de chez ELC (nous avons modifié cette alimentation pour qu'elle délivre 5V). Le H7155-20 est piloté grâce à une carte d'acquisition (M8784, Hamamatsu) qui permet de choisir la périodicité du comptage et sa durée totale, l'ensemble constitué de la tête de comptage et de la carte permet d'effectuer un comptage sans temps mort. Grâce à ce dispositif nous avons accès au rendement de scintillation en cours d'irradiation. En effet, durant le temps de comptage τ nous obtenons un nombre de photons, après correction de cette valeur à l'aide de la fonction réponse du H7155-20 (*cf.* tableau 4.2) nous obtenons le taux de comptage que nous normalisons avec le débit de fluence. Ainsi, dans des conditions géométriques identiques, nous obtenons une quantité proportionnelle au rendement de scintillation (nombre de photons de scintillation par ion incident). Cette approche est valable tant que la variation du rendement de scintillation est négligeable durant le temps de comptage τ . Afin de minimiser les perturbations par la lumière extérieure, un cylindre de protec-

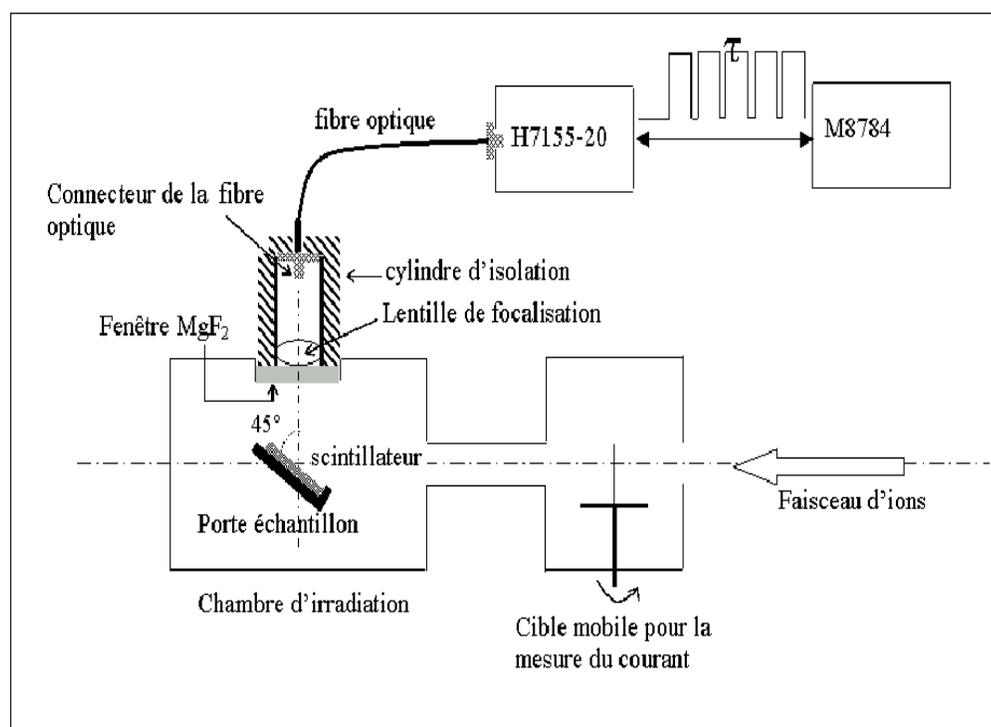


FIG. 3.1 – Schéma du dispositif utilisé pour la mesure de la dégradation de l'intensité de scintillation

II. Dispositif de mesure pour la dégradation de l'intensité de scintillation

tion en bakélite noire isole la tête de comptage et une partie de la fenêtre en fluorure de magnésium, de même la fibre optique a été placée dans une gaine thermosensible épaisse. Cette dernière opération s'est avérée nécessaire puisque les tests préliminaires ont montré que la lumière ambiante pénètre la gaine de protection de la fibre et génère un signal important (plus de 10 000 cps/s dans des conditions d'éclairage normales). Enfin, en recouvrant soigneusement le H7155-20 on obtient un bruit de l'ordre de 0.6-1 cps/s, en accord avec les spécifications du fabricant. La fibre optique, la tête optique et la tête de comptage ont une bande passante, en longueur d'onde, suffisante pour étudier la plupart des scintillateurs (*cf.* tableaux 4.2 et 3.1). Avant chaque irradiation l'intensité du faisceau est mesurée à l'aide d'un ensemble polarisé, constitué d'une cible en tantale et d'un repousseur d'électrons. Cet ensemble est relié à un électromètre Keithley qui affiche la charge collectée, connaissant l'état de charge des ions incidents et la surface couverte par le faisceau nous obtenons le débit de fluence. La cible et le repousseur sont situés dans une chambre de grand volume, isolée de la chambre d'irradiation par une vanne manuelle. La figure 3.1 présente les éléments du montage et les tableaux 4.2 à 4.1 précisent les caractéristiques des éléments utilisés, la figure 3.2 donne la réponse spectrale du H7155-20.

longueur de la fibre	18 m
connecteur de sortie	ST
\varnothing cœur / \varnothing gaine	200/240 μm
lentille	asphérique, $f=11$ mm, $\varnothing 5.5$ mm
gaine de protection	kevlar/PVC, épaisseur 3 mm
bande passante de l'ensemble	350-480 nm

TAB. 3.1 – *Caractéristiques techniques de la tête optique et de la fibre multi-mode*

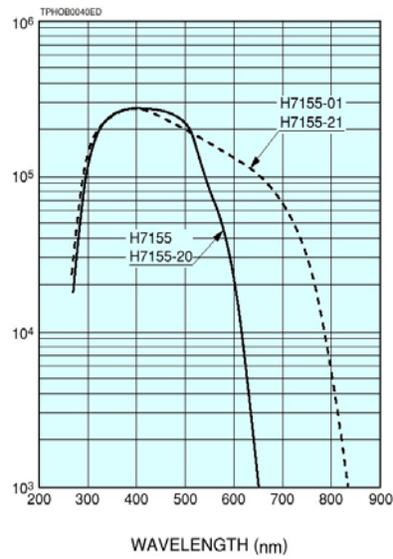


FIG. 3.2 – Caractéristique spectrale de comptage du H71155-20 d'après la documentation du fabricant [149]

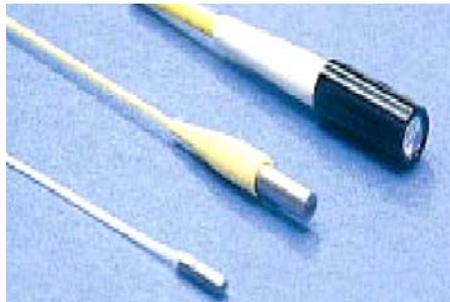


FIG. 3.3 – Têtes optiques ("Pigtail style focuser") servant à la collecte de la scintillation

III Dégradation de l'intensité de scintillation

Le système décrit au paragraphe précédent a d'abord été utilisé pour mesurer la dégradation de l'intensité de scintillation de l'anthracène irradié par un faisceau de carbone. En effet, pour ce scintillateur de référence, Birks a proposé un model [112] pour la dégradation iono-induite de l'intensité de scintillation, mais ce model n'avait jamais été testé pour d'autres particules que les alphas du polonium. Le système a ensuite été utilisé pour mesurer la perte de scintillation du scintillateur plastique BC-418 irradié par différents ions.

III.1 Dégradation iono-induite de l'intensité de scintillation de l'anthracène

Le cristal d'anthracène a été l'un des premiers scintillateur étudié, ce composé fait partie de la série des acènes (benzène, naphthalène, tétracène, pentacène) et cristallise sous forme monoclinique [150]; l'efficacité de scintillation des scintillateurs organiques est, en général, exprimée en pour cent de celle de l'anthracène. Le spectre d'émission de l'anthracène en solution est représenté sur la figure 3.4, et quelques caractéristiques du scintillateur sont résumées dans le tableau 3.2.

masse volumique	1.283 g/cm ³
formule	C ₁₄ H ₁₀
masse molaire	178.23 g/Mol
potentiel d'ionisation ajusté	69.5 eV
numéro CAS	120-12-7

TAB. 3.2 – Caractéristiques de l'anthracène

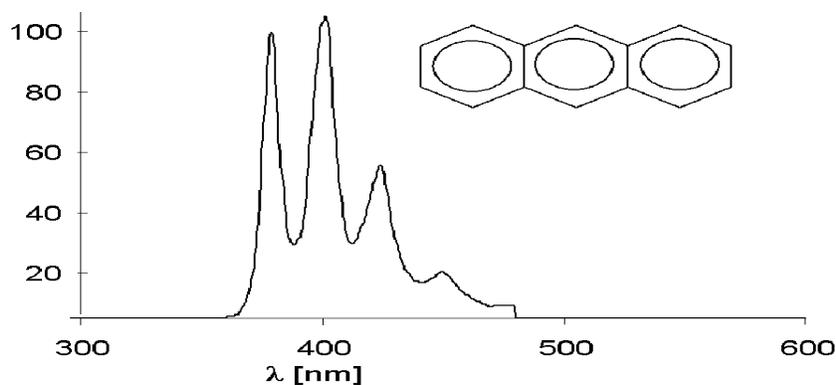


FIG. 3.4 – Molécule d'anthracène et spectre d'émission dans le cyclohexane. Excitation à 252 nm, d'après [151]

III.1.1 Conditions expérimentales et traitement des données

Les échantillons ont été préparés à partir d'anthracène pur à 99%, sous forme de poudre cristalline, fournie par Sigma-Aldrich. La poudre a été réduite au mortier et tamisée avant d'être pressée sous forme de pastille à 40 kN. Les échantillons présentant une différence de densité ont ensuite été éliminés de manière à ce que toutes les pastilles sélectionnées pour l'irradiation puissent être considérées comme équivalentes. Les pastilles obtenues n'ont pas la transparence des cristaux originaux, si bien que la longueur d'atténuation à 400 nm se trouve réduite à $(26 \pm 3) \mu\text{m}$. Cette mesure a été réalisée en utilisant des pastilles fines et un spectrophotomètre Uvikon-930. Les irradiations ont été réalisées sous faisceau de carbone à différentes énergies, la perte d'énergie et les parcours des ions correspondants à ces énergies sont donnés dans le tableau 3.3, l'épaisseur des pastilles (1 mm) est telle que les ions utilisés sont arrêtés dans le scintillateur. A chaque énergie nous avons réalisé deux irradiations sur des échantillons différents afin de s'assurer de la reproductibilité. Les débits de fluence mesurés avant chaque irradiation dépendent de l'énergie du faisceau, mais restent compris entre $0.5 \cdot 10^8$ et $22 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. Après correction des données obtenues à l'aide de la fonction réponse du H71155-20, et normalisation avec le débit de fluence, les données sont traitées à l'aide d'un filtre passe-bas qui permet d'éliminer les fluctuations rapides dues à l'utilisation du faisceau en mode balayage. Cette méthode est équivalente à un moyennage classique mais la fréquence de coupure du filtre passe-bas peut être adaptée facilement en fonction du temps d'intégration du H71155-20. Les points expérimentaux représentant l'intensité de scintillation en fonction de la fluence, à différentes énergies, sont donnés sur la figure 3.5. Sur cette figure, tous les points expérimentaux ne sont pas représentés : pour plus de clarté les données ont été séparées sur 41 canaux logarithmiquement espacés. Chaque point représente la moyenne des données sur ce canal et la barre d'erreur est attribuée en prenant la déviation standard des données dans le canal.

Énergie (MeV)	100	90	80	70	60	50	40	30	25
Perte d'énergie (keV/ μm)	2.3	2.5	2.7	3.1	3.4	3.9	4.6	5.6	6.1
Parcours (μm)	256	214	176	142	111	84	60	40	32

TAB. 3.3 – *Énergie, perte d'énergie et parcours des ions carbone dans l'anthracène . Les valeurs sont calculées avec le logiciel SRIM*

III.1.2 Interprétation des résultats

Dans les cristaux organiques moléculaires la scintillation est due à une transition radiative entre le premier état singulet excité et l'état fondamental. D'après Birks et Black, [112] le peuplement des états singulets résulte de la compétition entre la migration et la capture d'excitons par les molécules endommagées. Suivant Birks, on appelle k le rapport des probabilités de capture d'exciton des molécules saines et endommagées ($k > 1$ puisque les molécules n'ayant pas subies de dégâts sont des pièges à exciton moins efficaces). Le rapport des concentrations des molécules endommagées et des molécules saines est $x = \exp(\sigma_d \Phi) - 1$. La fluence (part./cm²) est notée Φ et σ_d est égale au nombre de molécules endommagées, par particule incidente, divisé par la densité surfacique de molécules d'anthracène, on peut donc assimiler σ_d à la section efficace de dégât. L'intensité de scintillation, S , est donnée en fonction de la fluence par :

$$S = \frac{S_0}{1 + kx} = \frac{S_0}{1 + k(\exp(\sigma_d \Phi) - 1)}, \quad (3.1)$$

l'intensité de scintillation est maximum dans la limite d'une fluence nulle et vaut S_0 . Dans le cas où $\sigma_d \Phi \ll 1$ on a l'approximation suivante :

$$S = \frac{S_0}{1 + \frac{\Phi}{\Phi_c}}$$

où $\Phi_c = k/\sigma_d$ est la fluence nécessaire pour réduire l'intensité de scintillation de moitié. Chaque ensemble de points représenté sur la figure 3.5 a été ajusté selon la relation 3.1 à l'aide du programme PAW, afin d'extraire les paramètres k et σ_d . À chaque énergie nous disposons de deux ensembles de données, desquels nous extrayons (k_1, σ_{d1}) et (k_2, σ_{d2}) . Les valeurs moyennes de ces paramètres sont données en fonction de l'énergie sur la figure 3.6. La valeur de la barre d'erreur est calculée en faisant la somme quadratique de la déviation standard et des incertitudes liées à l'ajustement. En prenant l'exemple de la probabilité relative de capture d'exciton nous avons :

$$\sigma_k^2 = \frac{(k_1 - k_2)^2}{2} + \sigma_{k1}^2 + \sigma_{k2}^2, \quad (3.2)$$

où σ_k est l'incertitude attribuée à k et $\sigma_{k1/2}$ l'incertitude d'ajustement liée à $k_{1/2}$.

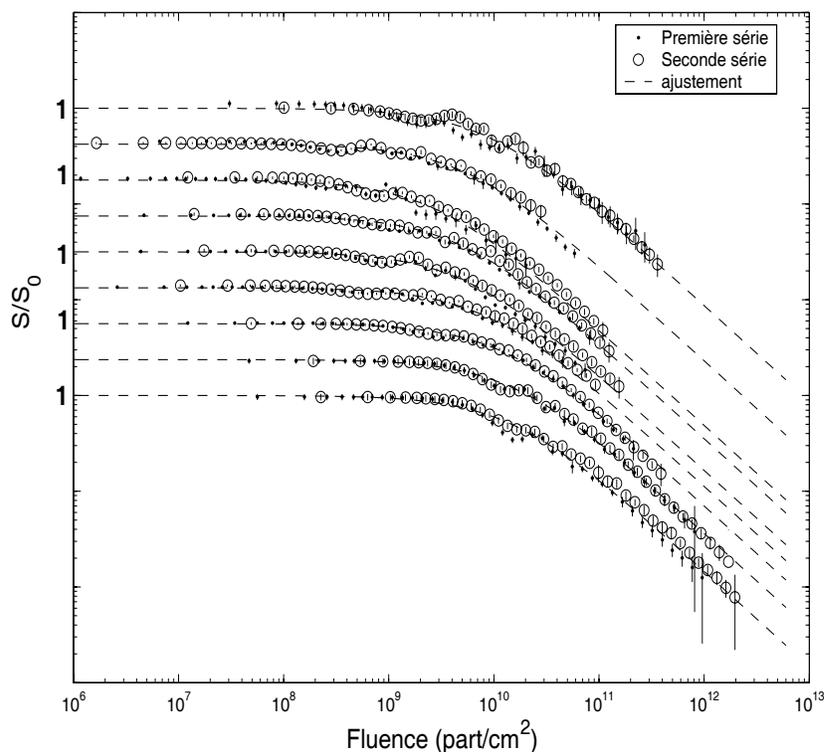


FIG. 3.5 – Dégradation de l'intensité de scintillation de l'anthracène sous faisceau de Carbone. Les courbes superposées représentent l'intensité de scintillation normalisée, en fonction de la fluence, à différentes énergies : du bas vers le haut 100, 90, 80...MeV, comme dans le tableau 3.3. Sur l'axe des ordonnées la valeur est 1 pour chaque asymptote horizontale.

Nous notons d'abord que la longueur d'atténuation, à 400 nm, des photons est petite par rapport aux parcours donnés dans le tableau 3.3. Ceci n'est pas tout à fait exact pour les irradiations à 25 et 30 MeV, mais nous ferons cependant l'hypothèse que la scintillation provient d'une région de l'échantillon dans laquelle la variation de l'énergie de l'ion est faible. De plus, les échantillons brunissent durant l'irradiation et ceci réduit encore la longueur d'atténuation des photons. Comme on peut le constater sur la figure 3.6, si l'on tient compte des incertitudes, la probabilité relative de capture d'exciton peut-être considérée comme constante : la moyenne sur toutes les énergies donne $k = 2179 \pm 507$. Cette valeur élevée de k est en accord avec l'ordre de grandeur proposé par Birks ($k \approx 1000$) et confirme son interprétation selon laquelle les molécules endommagées sont des pièges à exciton très efficaces. D'autre part, la valeur quasi constante de k laisse penser qu'il n'y a qu'un seul processus en compétition avec la diffusion d'excitons. La section efficace de dégât (*cf.* figure 3.6) est de l'ordre de grandeur de la surface de la molécule d'anthracène ($\approx 2 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2$) et aug-

mente significativement avec la perte d'énergie. Liu *et al.* [152] ont observé une augmentation linéaire de la section efficace de dégât en irradiant du PET avec des ions argon de pouvoir d'arrêt élevé (700-3000 keV/ μm) alors que Papaléo *et al.* [153] ont observé une augmentation quadratique de la section efficace de dégât en irradiant des films de C_{60} avec différents ions rapides. Pour ce qui concerne les valeurs de la section efficace, présentées sur la figure 3.6, il nous semble qu'aucune conclusion définitive ne peut-être donnée sur la variation de la section efficace de dégât : les incertitudes sur les valeurs sont trop grandes et le domaine de variation de la perte d'énergie trop limité (*cf.* tableau 3.3). Des valeurs de σ_d et de k on peut tirer Φ_c dont la valeur, en fonction de l'énergie, est donnée sur la figure 3.7 ; nous obtenons $0.9 \cdot 10^{10}$ part/cm² comme valeur moyenne et l'encadrement suivant : $0.3 \cdot 10^{10} < \Phi_c < 1.6 \cdot 10^{10}$ part/cm². À titre de comparaison, Miersch *et al.* [148], proposent comme valeur de Φ_c $3.2 \cdot 10^{11}$ part/cm² pour le Pilot-U irradié par des ions carbone de 50 MeV et des valeurs encore plus élevées pour les scintillateurs inorganiques CsI, YAP(Ce), GSO(Ce). Cependant, dans leur étude, l'intensité de scintillation en fonction de la fluence est donnée par la relation suivante :

$$S = \frac{S_0}{1 + \sqrt{\frac{\Phi}{\Phi_c}}}. \quad (3.3)$$

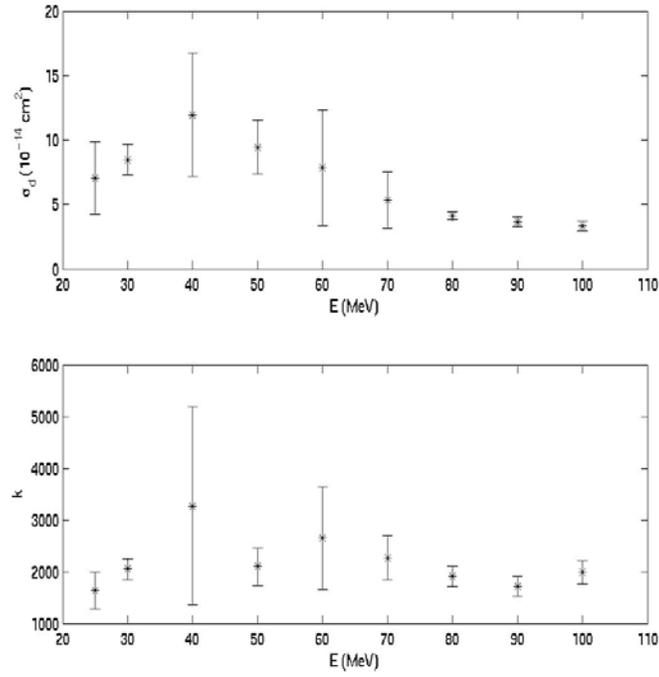


FIG. 3.6 – Section efficace de dégât (haut) et probabilité relative de capture d'exciton (bas) dans l'anthracène irradié sous faisceau de carbone.

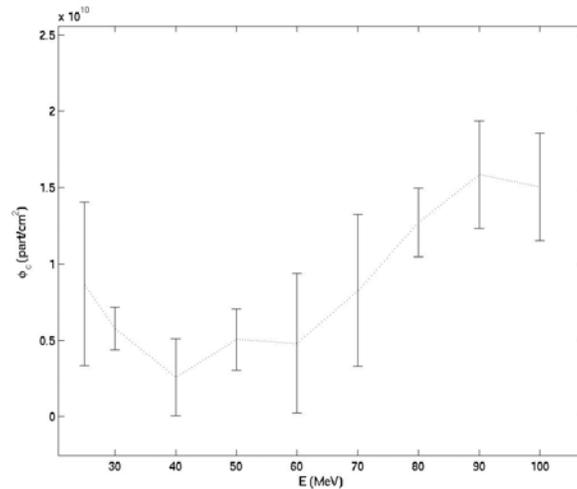


FIG. 3.7 – Fluence critique en fonction de l'énergie, pour l'anthracène sous faisceau de carbone. La fluence critique Φ_c correspond à la fluence nécessaire pour réduire de moitié l'intensité de scintillation.

III.2 Dégénération iono-induite de l'intensité de scintillation du scintillateur plastique BC-418

Le scintillateur BC-418 est un plastique scintillant produit par Bicon. Il s'agit d'une solution solide de polyvinyltoluène contenant des dopants scintillants, on peut considérer le BC-418 comme l'équivalent du scintillateur Pilot-U, plus connu de la communauté scientifique. Bien que la nature des dopants ne soit pas révélée par Bicon on peut affirmer que BC-418 est un scintillateur ternaire (2 dopants) si l'on étudie les spectres d'émission et d'absorption (*cf.* figures 3.10 et 3.9). Le spectre d'absorption révèle, en effet, deux bandes caractéristiques à 274 et 307 nm, tandis que le spectre d'émission présente une large bande d'émission avec un maximum d'intensité à 360 nm et un épaulement caractéristique à 340 nm. Si l'on se réfère à la liste, donnée par Vasilchenko [71], des dopants usuels utilisés dans les scintillateurs plastiques on peut émettre l'hypothèse que le premier dopant est le paraterphényl ($\lambda_{abs}=275$ nm, $\lambda_{em}=340$ nm) qui donne l'épaulement à 340 nm dans la bande d'émission. D'autre part, le BC-418 est un scintillateur très rapide, de temps de décroissance 1.4 ns, et le paraterphényl est justement connu pour sa grande rapidité de transfert d'énergie. On peut supposer que le second dopant est un composé de la famille des oxadiazoles, sans doute le 2,5-bis-(styryl-4)-oxadiazole ($\lambda_{abs} = 300$ nm, $\lambda_{em} = 360$ nm). Enfin, le PVT constituant la matrice du BC-418 présente ces fonctions méthyles en position meta ou para, ainsi que nous l'avons déterminé par étude du spectre infrarouge (*cf.* partie 3-IV.1). Les figures 3.9 et 3.10 présentent les spectres d'absorption et d'émission du BC-418 et les molécules évoquées ci-dessus sont représentées sur la figure 3.8.

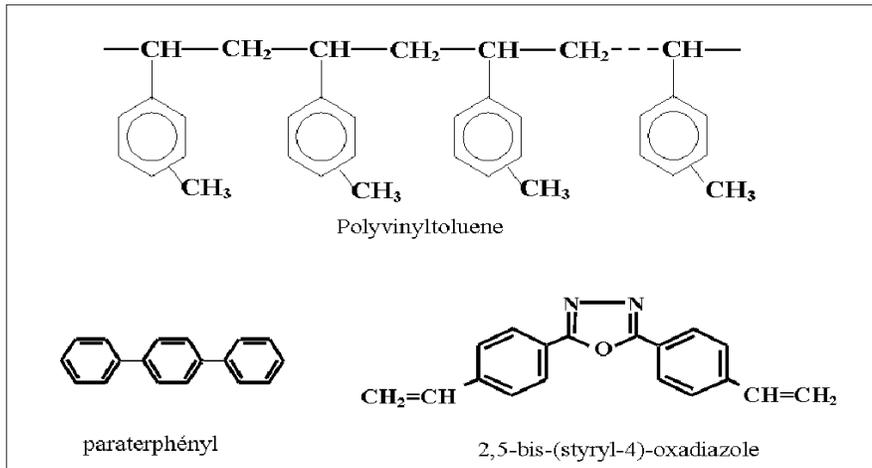


FIG. 3.8 – *Constituants du BC-418*

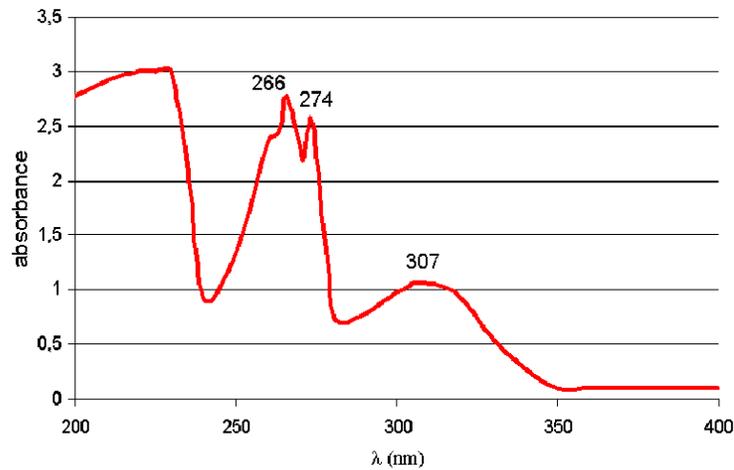


FIG. 3.9 – *Spectre d'absorption du BC-418*

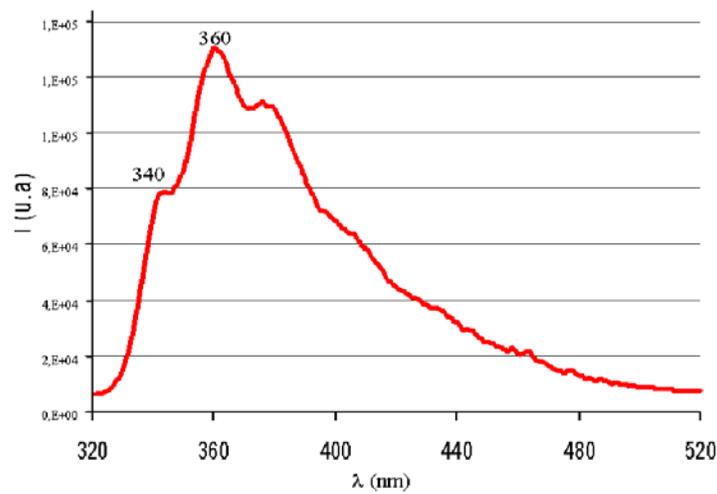


FIG. 3.10 – *Spectre d'émission du BC-418*

III.2.1 Conditions expérimentales

Les irradiations ont été réalisées au Vivitron sous faisceau de lithium, de carbone et d'iode, à différentes énergies. Les valeurs de l'énergie, du parcours et de la perte d'énergie sont données dans les tableaux 3.4 et 3.5. L'échantillon utilisé a une épaisseur de 50 microns, si bien que les ions lithium et carbone traversent le scintillateur, alors que l'iode y est arrêté. Le débit de fluence pour le lithium est entre $1.5 \cdot 10^9$ et $7.5 \cdot 10^9$ $\text{part.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$, entre $3.7 \cdot 10^9$ et $5.2 \cdot 10^9$ $\text{part.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ pour le carbone et entre $1.4 \cdot 10^9$ et $4.9 \cdot 10^9$ $\text{part.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$

pour l'iode. Nous avons irradié au moins deux échantillons à chaque énergie, pour s'assurer de la reproductibilité des mesures.

	lithium		carbone		
E d'entrée (MeV)	50	60	60	80	120
dE/dx (keV/ μm)	57	49	299	239	172
Parcours (μm)	496	686	126	201	401
E de sortie (MeV)	47	57	43	68	111

TAB. 3.4 – *Perte d'énergie et parcours du lithium et du carbone dans le BC-418, en fonction de l'énergie du faisceau*

E (MeV)	130	160	190	220	250
dE/dx (keV/ μm)	$9 \cdot 10^3$	$9.4 \cdot 10^3$	$9.6 \cdot 10^3$	$9.7 \cdot 10^3$	$9.8 \cdot 10^3$
Parcours (μm)	26	29	32.2	35.5	38.4

TAB. 3.5 – *Perte d'énergie et parcours de l'iode dans le BC-418*

III.2.2 Résultats obtenus

Les données obtenues sont corrigées en utilisant la fonction réponse du H7155-20 puis normalisées par le débit de fluence. Un exemple de dégradation de l'intensité de scintillation en fonction de la fluence est donné figure 3.11. Pour caractériser cette dégradation nous cherchons à ajuster les valeurs expérimentales du rendement de scintillation, S , avec une fonction de la forme :

$$\begin{cases} S = S_0 \sum_i a_i \exp(-\frac{\Phi}{\Phi_i}) \\ \sum_i a_i = 1, \end{cases}$$

La règle de sommation imposée aux coefficients a_i permet de définir S_0 comme le "vrai" rendement de scintillation, lorsque l'on ne tient pas compte des dégâts. Dans un premier temps nous nous intéressons seulement à la description de la dégradation de l'intensité de scintillation, par la suite nous étudierons S_0 en fonction de l'énergie.

Pour le lithium et le carbone nous trouvons que le meilleur ajustement est obtenu en utilisant une superposition de deux fonctions exponentielles, alors que pour l'iode l'ajout d'une troisième exponentielle améliore clairement l'ajustement. Un exemple d'ajustement avec deux et trois exponentielles, dans le cas de l'iode, est présenté sur la figure 3.11, et quelques exemples pour les trois ions sont donnés sur la figure 3.12. Sur cette dernière figure nous n'avons pas représenté tous les points expérimentaux pour plus de clarté, on note aussi que pour les ions carbone et lithium les ajustements sont moins précis que pour l'iode, en raison des fluctuations de l'intensité du faisceau.

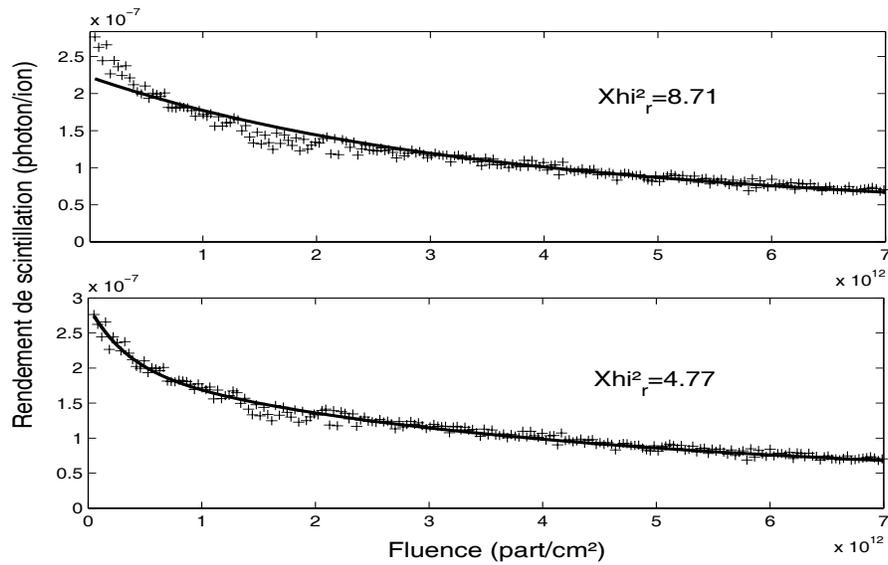


FIG. 3.11 – Exemple d'ajustement avec 2 (haut) et 3 (bas) exponentielles pour les données obtenues avec l'iode à 130 MeV. Seul le début des courbes est montré, la fluence maximale est $2 \cdot 10^{13}$ part.cm⁻². L'ajout d'une quatrième composante exponentielle n'augmente pas l'intervalle de confiance du χ^2 .

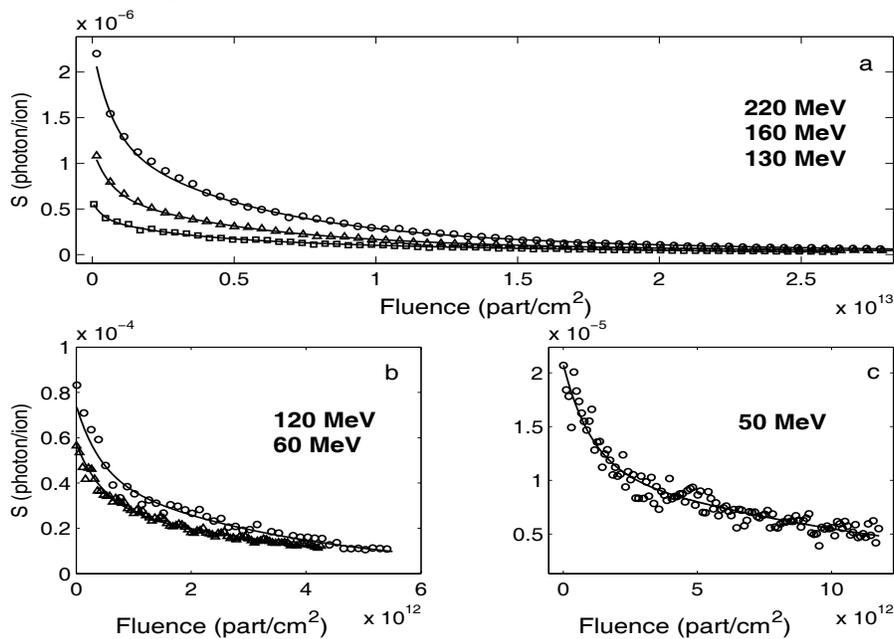


FIG. 3.12 – Exemples d'ajustements de l'intensité de scintillation pour les trois ions utilisés : iode (a), carbone (b) et lithium (c). Les énergies sont données du haut vers le bas dans le même ordre que les courbes correspondantes. Pour plus de clarté les points expérimentaux ne sont pas tous représentés.

Les paramètres obtenus lors de l'ajustement ne présentent pas de variation significative en fonction de l'énergie, en conséquence les valeurs données dans le tableau 3.6 sont des valeurs moyennes pour les énergies étudiées et les incertitudes correspondent à la déviation standard des valeurs. Dans le tableau 3.6 nous donnons également les valeurs de la fluence qui réduisent l'intensité de scintillation d'un dixième et de moitié ($\Phi_{1/10}$ et $\Phi_{1/2}$).

	lithium	carbone	iode
Φ_1 (10^{13} part.cm $^{-2}$)	0.08 ± 0.02	0.05 ± 0.01	0.05 ± 0.02
Φ_2 (10^{13} part.cm $^{-2}$)	1.52 ± 0.5	0.4 ± 0.1	0.34 ± 0.1
Φ_3 (10^{13} part.cm $^{-2}$)			1.4 ± 0.3
a_1 (%)	38 ± 10	43 ± 11	34 ± 8
a_2 (%)	62 ± 10	57 ± 11	38 ± 6
a_3 (%)			28 ± 2
$\Phi_{1/10}$ (10^{13} part.cm $^{-2}$)	0.02	0.01	0.01
$\Phi_{1/2}$ (10^{13} part.cm $^{-2}$)	0.34	0.1	0.15

TAB. 3.6 – Paramètres d'ajustement de la diminution de l'intensité de scintillation du BC418

En comparant les valeurs de $\Phi_{1/2}$ pour le BC-418 et pour l'anthracène on constate que la fluence nécessaire pour réduire de moitié l'intensité de scintillation est cent fois plus grande dans le cas du BC-418 (*cf.* 3.5). Nous n'avons pas trouvé dans la littérature de mesure de la dégradation de l'intensité d'un scintillateur PVT si ce n'est la valeur rapportée par Miersch *et al.* [148] qui proposent $\Phi_{1/2} = 3.2 \cdot 10^{11}$ part.cm $^{-2}$ pour le Pilot-U irradié par des ions carbone de 50 MeV. Cependant, cette valeur est obtenue en ajustant les données expérimentales à l'aide d'une fonction de la forme 3.3, ce qui ne correspond pas à nos résultats et paraît discutable sachant que la mesure de ces auteurs ne va pas au-delà d'une fluence de 10^{10} part.cm $^{-2}$. On peut aussi se tourner vers les valeurs rapportées par Quaranta *et al.* qui ont étudié la dégradation de l'intensité de scintillation de NE-102 (PVT + para-terphényle + POPOP¹) irradié par des ions de basse énergie [147]. Pour décrire la perte d'intensité dans la bande du POPOP ils utilisent une fonction exponentielle ($\exp(-\Phi/\Phi_c)$) et obtiennent pour ces trois ions les valeurs suivantes :

- $\Phi_c = 6 \cdot 10^{13}$ part.cm $^{-2}$ (H à 1.85 MeV),
- $\Phi_c = 0.3 \cdot 10^{13}$ part.cm $^{-2}$ (He à 2.2 MeV),
- $\Phi_c = 0.2 \cdot 10^{13}$ part.cm $^{-2}$ (N à 1.2 MeV).

Ces mêmes auteurs ont aussi comparé la perte de scintillation totale du PVT pur et de NE-102 irradié par des ions He de 2 MeV [146], dans ce cas ils

1. 2,2'-(1,4-phenylene)bis(5-phenyl)oxazole

ont utilisé une superposition de deux exponentielles pour décrire la perte de scintillation ($(\exp(-\Phi/\Phi_a) + \exp(-\Phi/\Phi_b))$) et ils trouvent :

- $\Phi_a=2 \cdot 10^{13}$, $\Phi_b=0.4 \cdot 10^{13}$ part/cm² pour le PVT pur,
- $\Phi_a=3.4 \cdot 10^{13}$, $\Phi_b=0.5 \cdot 10^{13}$ pour NE-102.

Bien que le scintillateur que nous étudions ne soit pas exactement le même nous trouvons également des fluences caractéristiques (Φ_i) de l'ordre de $0.2 - 0.5 \cdot 10^{13}$ part.cm⁻² pour l'iode et le carbone et des valeurs plus élevées qui s'approchent de Φ_a pour le lithium et l'iode.

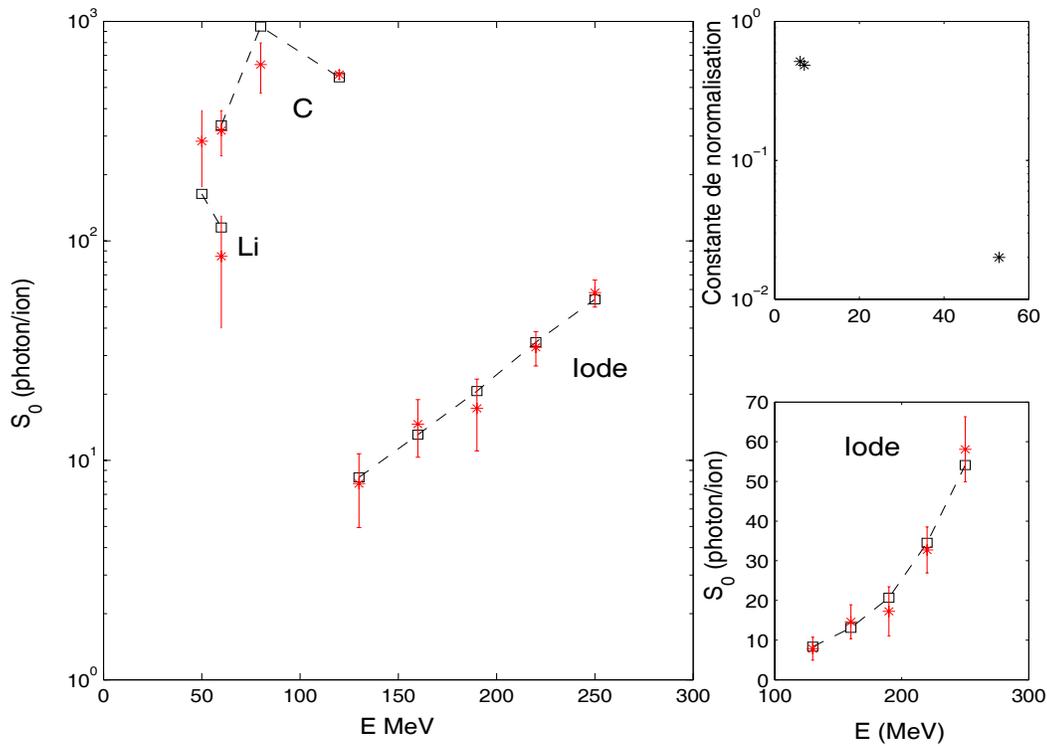


FIG. 3.13 – Ajustement du rendement de scintillation de BC-418 avec le modèle de Michaelian et Menchaca-Rocha. Les points expérimentaux sont représentés par des \star et les points calculés par des \square , les lignes tracées guident l'oeil. Les valeurs des constantes de normalisation sont données dans le coin supérieur droit et le rendement de scintillation pour l'iode dans le coin inférieur droit

L'ajustement des valeurs expérimentales nous permet également d'extraire le "vrai" rendement de scintillation, S_0 , et d'étudier sa variation en fonction de l'énergie et de la charge de l'ion. Pour ce faire nous utilisons le modèle de Michaelian et Menchaca-Rocha (cf. 2-III.2.2) ; les valeurs de l'énergie de l'ion le long du parcours, nécessaires pour le calcul de la luminescence spécifique, sont

tirées de SRIM. Pour l'iode qui est arrêté dans le scintillateur nous ne prenons en compte que les énergies supérieures à 0.4 MeV/A. Les variations de S_0 , sont représentées figure 3.13. Les barres d'erreurs sont obtenues en additionnant quadratiquement la déviation standard et les incertitudes liées à l'ajustement (*cf.* eq. 3.2). Dans un premier temps nous cherchons une estimation de la valeur de la densité de quenching, ρ_q , en utilisant les valeurs de S_0 pour l'iode, puis nous appliquons un ajustement de toutes les données. Le minimum du χ^2 est atteint pour $\rho_q = 0.4 \cdot 10^6$ erg/g = 40 Gy, pour fournir un encadrement de cette valeur nous pouvons faire varier ρ_q jusqu'à ce que la distance normalisée entre les valeurs calculées (y_i^{calc}) et expérimentales soit supérieure au double de la distance minimale, plus explicitement si d_{min} est la distance moyenne normalisée obtenue au minimum du χ^2 on fait varier ρ_q jusqu'à ce que¹ :

$$\frac{1}{N} \sum_{i=1}^{i=N} \frac{|y_i^{exp} - y_i^{calc}|}{\sigma_i} \geq 2d_{min}.$$

Nous pouvons ainsi proposer l'encadrement suivant :

$$20 \leq \rho_q \leq 70 \text{ Gy}.$$

La valeur que nous obtenons est proche de celle donnée par Michaelian et Menchaca-Rocha pour le Pilot-U ($\rho_q = 100$ Gy) dans [52] et rappelée dans le tableau 2.2. En utilisant notre calcul de dose radiale et le modèle MM nous avons trouvé pour rho_q des valeurs du même ordre de grandeur (*cf.* 2.4). L'utilisation du modèle MM1 permet ainsi de décrire correctement l'augmentation non linéaire du rendement de scintillation de l'iode et, dans une moindre mesure, les valeurs obtenues pour le carbone et le lithium (*cf.* figure 3.13). Cependant, la valeur de la constante de normalisation pour l'iode est très différente des valeurs obtenues pour les deux autres ions. Nous avons essayé d'utiliser le modèle MM2 (équation 2.4) pour diminuer la dispersion des constantes de normalisation mais ceci n'apporte aucune amélioration significative.

1. Pour $\rho_q^{min} = 0.4 \cdot 10^6$ erg/g on a $d_{min} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{i=N} \frac{|y_i^{exp} - y_i^{calc}(\rho_q^{min})|}{\sigma_i} = 0.55$

Chapitre 3. Dégradation de l'intensité de scintillation et dégâts chimiques iono-induits dans les solides organiques

IV Étude par spectroscopie infra-rouge des dégâts chimiques induits par des ions carbone et des hélions dans le BC-418

Dans cette partie nous caractérisons, par spectroscopie infra-rouge, les dégâts chimiques induits sur le BC-418 par des hélions et des ions carbone. En étudiant les dégâts induits par le carbone nous discutons différentes hypothèses permettant de rendre compte des résultats obtenus.

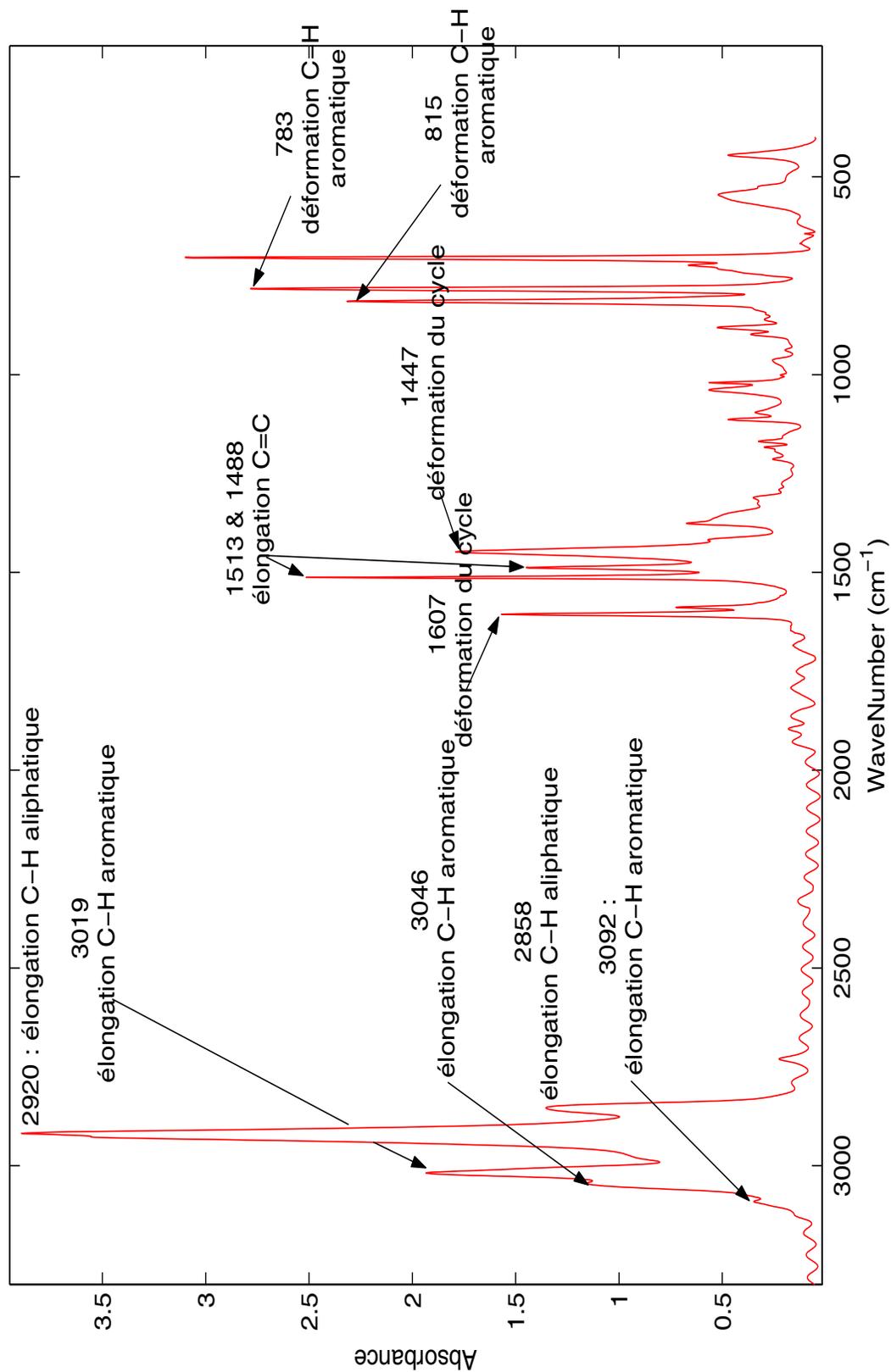
IV.1 Caractéristiques du spectre infrarouge de BC-418

Le spectre infrarouge du BC-418, obtenu à l'aide du spectromètre à transformée de Fourier Equinox 55 de chez Bruker et d'un détecteur DLATGS¹ est présenté sur la figure 3.14. L'étude des bandes d'absorption permet de préciser la nature des liaisons du PVT constituant la matrice.

Bandes caractéristiques du groupement aromatique

- *Élongations C-H aromatiques.* Ces élongations correspondent aux bandes situées entre 3150 et 3010 cm^{-1} , on peut discerner un pic et trois épaulements, ce qui est compatible avec un benzène di-substitué.
- *Élongations et déformations du cycle.* On note sur le spectre 4 bandes de moyenne intensité (1447, 1488, 1513, 1607 cm^{-1}). La présence de la paire 1488-1513 cm^{-1} est caractéristique d'une disubstitution en para [154]. Comme dans le polystyrène, la bande à 1607 cm^{-1} est caractéristique de la déformation dans le plan du cycle [155]. La bande à 1447 cm^{-1} peut correspondre à une déformation dans le plan d'une liaison -CH₂- ou C-H, ou à une déformation du cycle. Comme Calgano *et al.* [155] nous considérons qu'il s'agit d'une déformation du cycle.
- *Déformations hors du plan des liaisons C-H.* Nous avons une bande à 830 cm^{-1} , caractéristique d'une substitution du cycle en para, mais nous avons aussi des bandes aux alentours de 690, 780 et 880 cm^{-1} , caractéristiques d'une substitution en meta [156]. Nous ne pouvons que conclure que le polymère est constitué d'un mélange de toluène substitué tantôt en meta, tantôt en para, d'où la représentation du PVT sur la figure 3.8.
- *Déformations dans le plan des liaisons C-H.* Les bandes se trouvent aux alentours de 1265±65 cm^{-1} mais elles sont difficiles à exploiter car de faible intensité.
- *Bandes de combinaisons et d'harmoniques.* Ces bandes apparaissent faiblement entre 2000 et 1650 cm^{-1} .

1. Deuteriated L-Alanine TriGlycine Sulfate



Bandes caractéristiques des groupements aliphatiques

- *Élongations C-H des fonctions méthyles.* Deux bandes distinctes apparaissent à 2920 et 2858 cm^{-1} . La première d'entre elles résulte du mode d'élongation asymétrique dans lequel deux liaisons C-H du groupe méthyle s'allongent pendant que la troisième se contracte. La deuxième bande provient de l'élongation symétrique dans laquelle les trois liaisons C-H s'allongent et se contractent en même temps.
- *Déformations des liaisons C-H de la chaîne alkyle.* Ces déformations ont des nombres d'onde compris entre 1340 et 1370 cm^{-1} , elles sont de faible intensité et difficilement exploitables.

En résumé, en s'appuyant sur [156, 157, 154, 155], l'assignation des bandes étudiées par la suite est donnée dans le tableau 3.7.

Déformations C-H aromatiques	Élongations C=C aromatiques	Déformations du cycle	Élongations C-H aliphatiques	Élongations C-H aromatiques
783, 815	1488, 1513	1447, 1607	2858, 2920	3019, 3046, 3092

TAB. 3.7 – Assignation des bandes infrarouge étudiées par la suite (nombre d'onde en cm^{-1})

Traitement des données spectroscopiques

Dans ce qui suit nous étudions la disparition ou l'apparition des liaisons en fonction de la fluence délivrée sur l'échantillon. La quantité d'intérêt est alors la fraction de liaisons restantes en fonction de la fluence, Φ . On étudie donc le rapport $N(\Phi)/N_0$, N et N_0 représentant respectivement la quantité de liaisons du matériau irradié et vierge. Pour obtenir cette quantité il convient d'abord de vérifier que l'absorption des bandes que l'on souhaite étudier suit la loi de Beer-Lambert, autrement dit que l'absorbance, à une certaine longueur d'onde, est directement proportionnelle à l'épaisseur de l'échantillon (e). Dans ces conditions le rapport de l'absorbance de l'échantillon irradié (A) sur l'absorbance de l'échantillon vierge (A_0) est égale à la fraction de liaisons restantes :

$$\frac{A}{A_0} = \frac{\epsilon C e}{\epsilon C_0 e} = \frac{N}{N_0}.$$

Nous avons donc vérifié la validité de la loi de Beer-Lambert en superposant des échantillons de BC-418 d'épaisseur 10 μm et en mesurant l'absorbance résultante. Pour les nombres d'onde donnés dans le tableau 3.7 la loi de Beer-Lambert est vérifiée.

Lorsque nous étudions hors ligne des échantillons irradiés, la quantité N/N_0 est calculée pour chaque échantillon en utilisant un spectre de référence mesuré avant irradiation et le spectre mesuré après irradiation. Dans ce cas les données

à traiter peuvent être représentées par l'ensemble de points $\{\Phi_i, (N/N_0)_i\}$, sur lequel les ajustements sont directement réalisés. Lorsque le spectre est pris en ligne nous étudions plutôt l'ensemble de données $\{\Phi_i, A_i\}$ sur lequel nous réalisons les ajustements appropriés, puis nous utilisons le résultat de l'ajustement pour extrapoler A_0 ce qui, au final, permet d'obtenir N/N_0 . L'intérêt de cette méthode est double : d'une part, on n'augmente pas l'incertitude liée aux points expérimentaux par une division systématique des données par A_0 et, d'autre part, on se fait une idée rapide de la qualité de l'ajustement en vérifiant la concordance des valeurs extrapolée et expérimentale de l'absorbance initiale.

Enfin, toutes les absorbances prises en compte par la suite sont en fait les aires nettes prises sous les pics d'absorbance, comme illustré sur la figure 3.15.

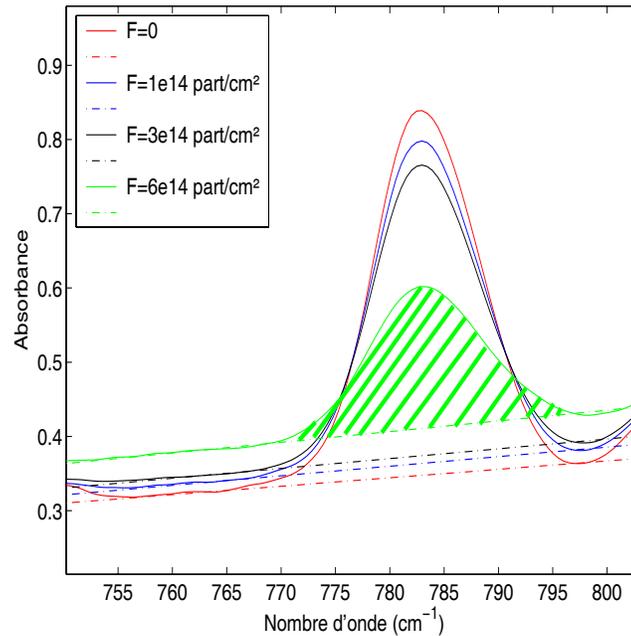


FIG. 3.15 – Illustration du calcul de l'absorbance nette à 783 cm^{-1} sur un échantillon de BC-418. La ligne de base (en pointillé) est calculée pour chaque fluence afin d'obtenir l'aire nette hachurée.

Remarque Les oscillations de faibles amplitudes sur le spectre sont dues à l'interférence des faisceaux transmis et réfléchis au niveau de la séparatrice. Connaissant l'indice de réfraction du matériau, n , on en déduit l'épaisseur d du matériau en considérant les longueurs d'ondes, λ_1 et λ_2 , de deux maxima successifs [158] :

$$d = \frac{\lambda_1 \lambda_2}{2n(\lambda_1 - \lambda_2)}.$$

En utilisant cette relation sur plusieurs échantillons d'épaisseur 10 et 50 μm (valeurs du fabricant) nous avons trouvé, en moyenne, une épaisseur de 9.8 et 52 μm en prenant $n = 1.58$ pour le PVT [140]. C'est là une méthode simple et efficace pour vérifier l'épaisseur d'un échantillon, tant que les variations de l'indice de réfraction avec la longueur d'onde sont faibles.

IV.2 Cas du carbone

Nous présentons ici les résultats de la spectroscopie infrarouge du BC-418 irradié par des ions $^{13}\text{C}^{5+}$ de 11 MeV/uma . Le pouvoir d'arrêt est 158 keV/ μm et le parcours 512 μm , à cette énergie. l'échantillon est traversé par l'ion sans variation significative du pouvoir d'arrêt. La spectroscopie a été réalisée sur la ligne moyenne énergie du GANIL en utilisant un échantillon d'épaisseur 10 μm . Les spectres sont acquis lorsque la consigne de fluence est atteinte sans sortir l'échantillon de la chambre d'irradiation placée sous vide secondaire. Comme nous le verrons, la disparition d'un certain nombre de liaisons peut être ajustée par la superposition de deux exponentielles décroissantes, nous commençons donc par proposer une explication à ce comportement en distinguant l'efficacité relative de création de dégât dans le cœur et le halo de la trace. Par la suite, nous discutons la validité de cette hypothèse en la confrontant aux résultats expérimentaux.

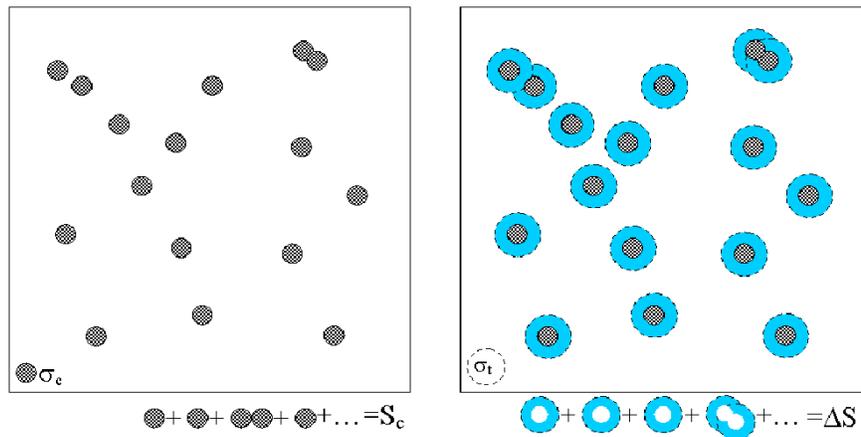


FIG. 3.16 – Aire couverte par le cœur de trace et le halo. Sur la figure de gauche on ne considère que le cœur de la trace tandis que sur la figure de droite nous ajoutons le halo. Nous prenons en compte deux régions de la surface irradiée: la zone couverte par le cœur de trace (S_c) et la zone uniquement couverte par le halo (ΔS)

IV.2.1 Création de dégâts dans le cœur et le halo de la trace

Pour commencer considérons une surface (S_0), irradiée par une distribution uniforme de particules. Si nous attachons à chaque particule une section σ_c nous pouvons calculer le rapport de la surface couverte sur la surface totale :

$$\frac{S_c}{S_0} = 1 - \exp(-\sigma_c \Phi). \quad (3.4)$$

On peut se convaincre de la validité de cette relation en considérant l'augmentation de la surface couverte, due à un accroissement élémentaire de la fluence :

$$S(\Phi + \Delta\Phi) = S(\Phi) + \sigma_c \Delta\Phi (S_0 - S(\Phi)).$$

La relation 3.4 rappelée par Yamauchi dans [159] est utile pour estimer la fluence au-delà de laquelle le recouvrement des traces ne peut plus être négligé ([160, 161]). Jusqu'à présent, nous n'avons attaché aucune signification particulière à σ_c , mais si maintenant nous considérons que σ_c représente une surface dans laquelle la disparition de liaisons est certaine, nous pouvons calculer comme suit le nombre, N , de liaisons restantes :

$$\begin{aligned} N &= N_0 - N_{détruit} \\ &= N_0 - \frac{S_c}{S_0} N_0. \end{aligned} \quad (3.5)$$

Si bien que la fraction de liaisons restantes est :

$$\frac{N}{N_0} = 1 - (1 - \exp(-\sigma_c \Phi)) = \exp(-\sigma_c \Phi).$$

Cette dernière expression est celle donnée par Katz dans [162], lorsque l'on considère que l'on se trouve dans le mode dit "ion-kill", c'est-à-dire lorsque l'on ne considère pas l'effet cumulé des électrons secondaires issus de différentes traces (*cf.* 3-IV.3 et [163, 164, 165]).

Cependant, la zone où la probabilité de dégâts est certaine, si elle existe, ne peut-être qu'une zone de forte densité d'ionisation, ce que l'on appelle habituellement le cœur de trace. Une approche plus réaliste consiste à scinder la trace en deux zones : le cœur et le halo¹. Considérons alors que nous augmentons la surface σ_c et que nous passons à σ_t , comme représenté sur la figure 3.16. Pour tenir compte de l'effet dans le halo nous cherchons ΔS , l'aire totale couverte par le halo, *en retirant la contribution du cœur*. Nous avons :

$$\begin{aligned} \frac{S_c}{S_0} &= 1 - \exp(-\sigma_c \Phi) \\ \frac{S_t}{S_0} &= 1 - \exp(-\sigma_t \Phi), \end{aligned} \quad (3.6)$$

1. On a vu dans la partie 2-III.2, à propos de la scintillation iono-induite, que cette distinction permet d'aboutir à des modèles plus satisfaisants.

d'où l'on tire,

$$\Delta S = S_0 (\exp(-\sigma_c \Phi) - \exp(-\sigma_t \Phi)).$$

Comme dans la relation 3.5 nous calculons le nombre de liaisons restantes en introduisant, cette fois, l'efficacité relative (par rapport au cœur) de création de dégâts dans le halo, et nous l'appelons k :

$$N = N_0 - \frac{S_c}{S_0} N_0 - k \frac{\Delta S}{S_0} N_0.$$

Nous obtenons finalement :

$$\begin{aligned} \frac{N}{N_0} &= 1 - (1 - \exp(-\sigma_c \Phi)) - k (\exp(-\sigma_c \Phi) - \exp(-\sigma_t \Phi)) \\ &= (1 - k) \exp(-\sigma_c \Phi) + k \exp(-\sigma_t \Phi). \end{aligned} \quad (3.7)$$

IV.2.2 Résultats et discussion

Nous étudions les bandes données dans le tableau 3.7. L'incertitude considérée sur les aires nettes est de l'ordre de 0.2-0.5 %, sauf pour l'épaule à 3092 pour lequel on obtient une erreur relative de 5 %. La méthode appliquée pour l'évaluation des incertitudes est donnée dans l'annexe de ce chapitre.

Liaisons aromatiques

Nous étudions ici les bandes à 783, 815, 1447, 1488, 1513, 3019, 3046 et 3092 cm^{-1} , le cas de la bande à 1607 est traité à part. Pour ces liaisons nous observons une diminution monotone de l'absorbance, l'allure des courbes obtenues laisse penser qu'un ajustement à l'aide d'exponentielles décroissantes est possible, nous étudions trois modèles possibles pour réaliser l'ajustement :

- Prise en compte de dégâts créés dans les régimes "ion-kill" et " γ -kill" selon la terminologie de Katz [165, 162]. Dans le premier régime on considère des cibles détruites par une seule particule (au voisinage de la trace), tandis que dans le second les cibles doivent subir plusieurs "passages" d'électrons secondaires d'énergie élevée avant d'être détruites. La fraction restante de liaisons est alors :

$$\frac{N}{N_0} = \exp(-\sigma_i \Phi) \{1 - (1 - \exp(-\sigma_\gamma \Phi))^m\}, \quad (3.8)$$

où σ_i et σ_γ sont les sections efficaces de dégâts dans les modes "ion-kill" et " γ -kill" et m le nombre moyen d'attaques pour détruire la cible¹.

1. A propos de l'équation 3.8: en développant selon le binôme de Newton on a $N/N_0 = \sum_{k=1}^{k=m} C_k^m (-1)^k \exp(-(\sigma_i + k\sigma_\gamma)\Phi)$. On note donc que cette relation requiert d'ajuster les données avec une superposition d'exponentielles dont les "poids" sont de signe alterné et fixés pour m donné. D'autres part les opérandes de chaque exponentielle doivent être en progression arithmétique

- Prise en compte du seul mode "ion-kill", qui est en fait un cas particulier de la relation ci-dessus avec $\sigma_\gamma = 0$. La validité de ce cas particulier est justifiée si l'on suppose qu'un électron secondaire suffit à rompre la liaison ("one-hit theory" [89], chap. 2). Une telle approche a déjà été utilisée avec succès pour expliquer la diminution relative du nombre de liaisons dans le nitrate de cellulose (LR-115) irradié par différents ions et les gammas du ^{60}Co ([163, 164]). La fraction de liaison restante est donc :

$$\frac{N}{N_0} = \exp(-\sigma_i \Phi). \quad (3.9)$$

- Prise en compte des contributions du cœur et du halo (relation 3.7).

Nous commençons par étudier l'ajustement avec la relation 3.8, pour ce faire nous prenons m constant et nous réalisons un test du χ^2 en échantillonnant le plan $(\sigma_i, \sigma_\gamma)$. Pour toutes les valeurs étudiées de m , ($m = 2..8$) nous trouvons que le minimum du χ^2 est atteint sur la ligne $\sigma_\gamma = 0$, autrement dit l'ajustement converge vers la forme mono-exponentielle ; bien entendu, le minimum du χ^2 est atteint pour la valeur de σ_i directement obtenu pour un ajustement selon la relation 3.9. La détermination du minimum du χ^2 est illustrée et commentée dans l'annexe de ce chapitre.

Il reste donc à comparer les qualités des ajustements obtenus en utilisant les relations 3.9 et 3.7. Dans un premier temps nous remarquons que le χ^2 réduit¹ est bien meilleur si l'on utilise la relation 3.7, (l'intervalle de confiance le plus faible est 96%!), alors que pour l'ajustement mono-exponentiel les intervalles de confiance sont très faibles, sauf pour les bandes à 1447 et 3092 cm^{-1} où l'intervalle de confiance est comparable à celui obtenu en utilisant 3.7 (*cf.* tableau 3.8).

k (cm^{-1})	783	815	1447	1488	1513	3019	3046	3092
Equation 3.9								
χ_r^2	57	80	3.2	144	130	104	135	0.44
IC ^b (%)	5e-4	0	99.9	0	0	0	0	100
Equation 3.7								
χ_r^2	0.76	1.9	1	2.8	2	3.6	7.4	0.17
IC (%)	100	99.9	100	99.9	100	99.9	96.4	100

TAB. 3.8 – Comparaison des valeurs minimum du χ^2 réduit selon que l'on utilise un ajustement mono ou bi-exponentiel

^b Intervalle de confiance

1. $\chi_r^2 = \frac{1}{N-k} \sum_{i=1}^{i=N} \frac{(y_i^{\text{exp}} - y_i^{\text{calc}})^2}{\sigma_i^2}$, k=nombre de contraintes

La bande à 3092 cm^{-1} est incluse dans les données mais son utilisation est cependant douteuse car l'aire nette étudiée est bien plus faible que pour les autres bandes. La figure 3.18 illustre les différences d'ajustements selon que l'on utilise une ou deux exponentielles. La figure 3.19 montre les données expérimentales ajustées à l'aide de 3.7. Ces deux figures permettent de se convaincre "visuellement", de la qualité de l'ajustement selon 3.7. Enfin, la figure 3.17 illustre les contributions de chaque composante de 3.7.

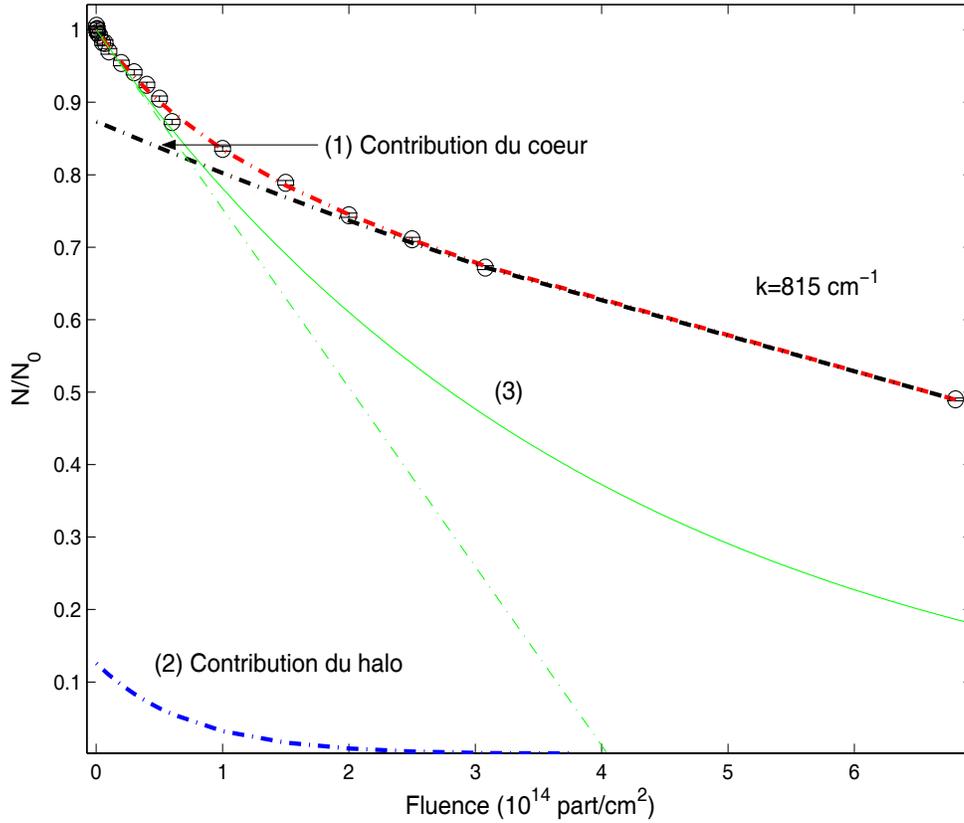


FIG. 3.17 – Contributions du cœur et du halo dans la perte du nombre de liaisons pour la bande à 815 cm^{-1} . En bleu, contribution du halo : $k \exp(-\sigma_t \Phi)$. En noir, contribution du cœur : $(1 - k) \exp(-\sigma_c \Phi)$. Les points expérimentaux sont ajustés en sommant les deux contributions (courbe rouge). Courbe verte en traits pleins, ajustement mono-exponentiel : $\exp(-\sigma_m \Phi)$ avec $\sigma_m = (1 - k)\sigma_c + k\sigma_t$. En pointillé la tangente de cette courbe en 0.

Pour aller plus loin nous examinons les paramètres d'ajustements donnés dans le tableau 3.9. Notons d'abord que les valeurs de σ_c et σ_i sont proches, comme on pouvait s'y attendre, car en utilisant 3.9 on ne compte pas les dégâts créés loins du cœur de trace.

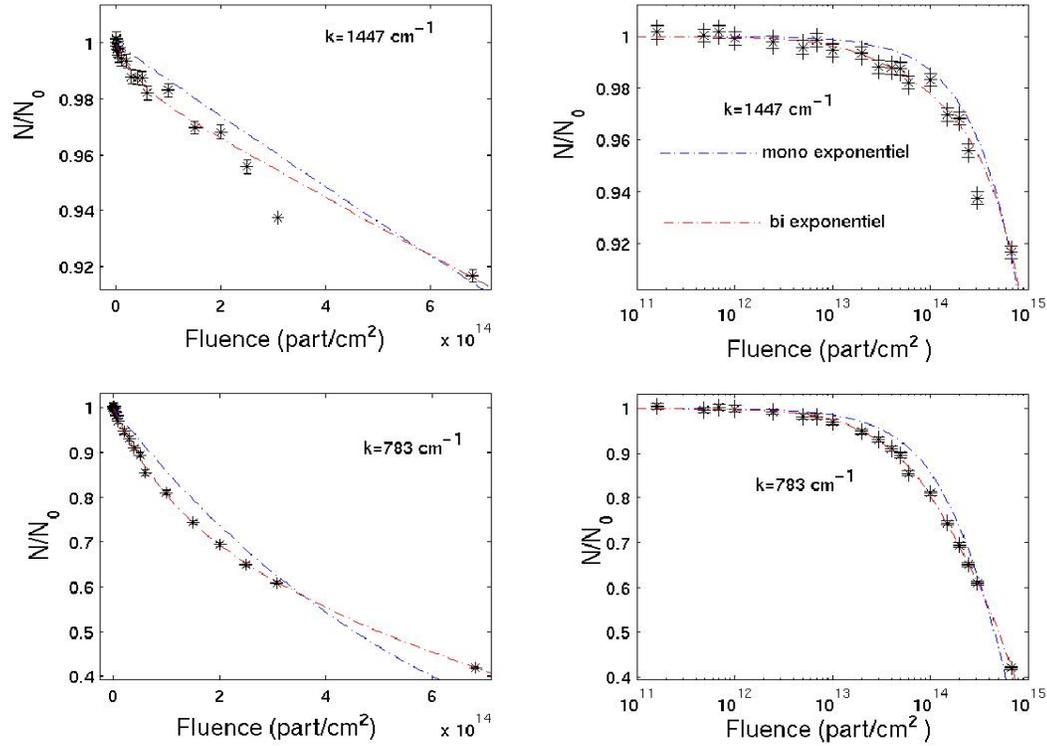


FIG. 3.18 – Ajustement de la fraction restante de liaisons avec une ou deux exponentielles

k (cm^{-1})	783	815	1447	1488	1513	3019	3046	3092
σ_i (10^{-16} cm^2)	15 ± 2	12 ± 1	1 ± 0.1	5 ± 1	8.3 ± 1	7 ± 1	9.8 ± 1.5	20 ± 10
σ_c (10^{-16} cm^2)	9.7 ± 1	8.5 ± 0.8	1.1 ± 0.1	2.6 ± 0.4	4.8 ± 0.7	4.2 ± 0.6	6.3 ± 0.9	17 ± 3
σ_t (10^{-14} cm^2)	1 ± 0.2	1.4 ± 0.4	2.5 ± 2.4	1.6 ± 0.4	0.7 ± 0.2	1.1 ± 0.3	1.6 ± 0.6	1.8 ± 2.6
k (%)	19 ± 9	13 ± 5	1.5 ± 1.3	12 ± 3	15 ± 8	12 ± 5	13 ± 6	9 ± 20

TAB. 3.9 – Paramètres d'ajustements permettant de décrire la diminution relative du nombre de liaisons aromatiques

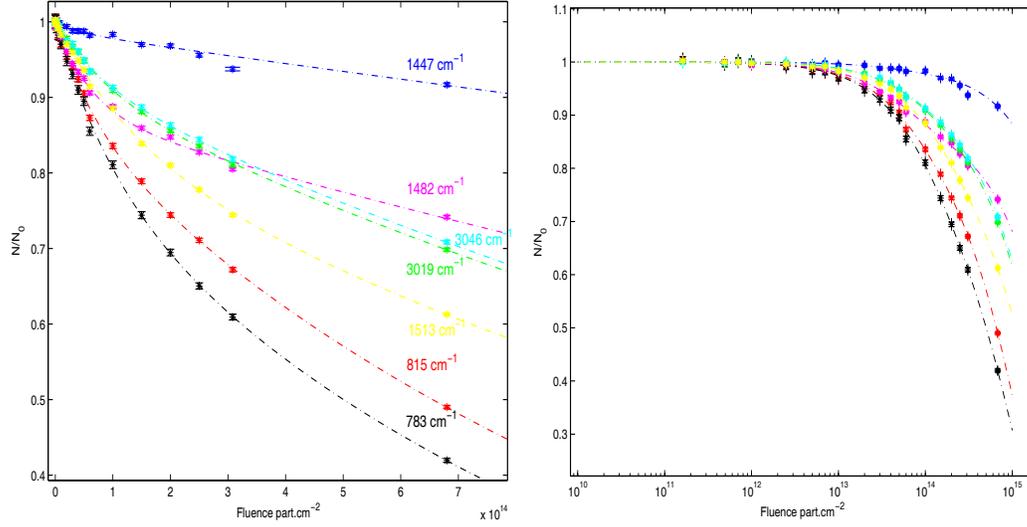


FIG. 3.19 – Ajustement de la fraction restante de liaisons aromatiques, en superposant deux exponentielles

Dans le cas de l'hypothèse décrite par 3.7 nous pouvons calculer la dose radiale en r_c et r_t , les rayons des disques d'aire σ_c et σ_t . Pour les valeurs présentées dans le tableau 3.10 nous avons r_c de l'ordre de 0.05 nm et r_t de l'ordre de 1 nm. La valeur de r_c est, bien sûr, largement inférieure au nanomètre mais cependant 20 fois plus élevée que le paramètre d'impact minimum¹. Les doses en r_c et r_t , calculées à l'aide de la relation 1.20 (Michaelian *et al.*), sont données dans le tableau 3.10. En r_c et r_t les ordres de grandeur de la dose sont respectivement 10 et $0.5 \cdot 10^9$ Gy, mais il est préférable de convertir cette valeur en électron-volt par volume de monomère ($V_{mono} \approx 0.2 \text{ nm}^3$) ce qui conduit à considérer en r_c des doses de 5 à 80 keV par volume de monomère et en r_t des doses entre 0.5 et 0.8 keV par volume de monomère. On ne peut pas se livrer au même calcul en associant un rayon à σ_i car cette quantité est définie par Katz [41] de la manière suivante :

$$\sigma_i = 2\pi \int_0^{r_{max}} r \left(1 - \exp -\frac{D(r)}{D_0}\right)^m dr, \quad (3.10)$$

où D_0 est la dose gamma nécessaire à l'obtention d'une "attaque" par cible, du moins en ce qui concerne les cibles biologiques. En prenant $m = 1$ nous pouvons chercher quelle est la dose D_0 qui correspond aux σ_i trouvées. Pour comparer ces valeurs à celles du tableau 3.11 nous donnons D_0 selon que l'on utilise pour $D(r)$ la relation 1.20 ou 1.22. Que l'on calcule la dose radiale en utilisant l'une ou l'autre de ces relations les valeurs de D_0 obtenues sont terriblement élevées, de l'ordre du dixième ou de la dizaine de MeV par unité de volume de monomère. Nous avons vérifié que D_0 peut chuter de 3 ordres

1. $b_{min} = \frac{\hbar c}{\beta m_e c^2} = 2.6 \text{ fm}$ pour $\beta = 0.15$ [95]

de grandeur si l'on passe de $m = 1$ à $m = 2 - 3$, ce qui permet de trouver des valeurs plus réalistes de D_0 , mais ce qui est incompatible avec la relation 3.9.

k (cm^{-1})	783	815	1447	1488	3019	3046	3092
r_c (nm)	0.17	0.17	0.06	0.09	0.12	0.14	0.23
Dose en r_c (10^9 Gy)	7	7	63	21	15	10	3.7
Dose en r_c (keV/V_{mono})	8.6	8.6	78	26	18	12	4.6
r_t (nm)	0.56	0.66	0.88	0.71	0.6	0.71	0.75
Dose en r_t (10^9 Gy)	0.63	0.46	0.26	0.4	0.6	0.4	0.3
Dose en r_t (keV/V_{mono})	0.78	0.57	0.32	0.5	0.7	0.5	0.43

TAB. 3.10 – Doses radiales calculées en r_c et r_t d'après le modèle de Michaelian et al.

k (cm^{-1})	783	815	1447	1488	3019	3046	3092
D_0 (10^{11} Gy), dose radiale selon 1.20)	0.9	1.2	16	3	2.2	1.5	0.7
D_0 (10^{14} Gy), dose radiale selon 1.22)	0.5	0.65	7.5	1.5	1.1	0.8	0.4
D_0 en MeV/V_{mono} (Dose radiale selon 1.20)	0.11	0.15	2	0.37	0.27	0.18	0.09
D_0 en MeV/V_{mono} (Dose radiale selon 1.22)	61	80	920	184	134	98	49

TAB. 3.11 – Paramètre D_0 nécessaire au calcul de la section efficace dans le modèle de Katz (équation 3.10 avec $m=1$)

Bandes aliphatiques

Nous examinons ici les bandes à 2858 et 2920 cm^{-1} (élongation C-H), en suivant la même méthodologie que précédemment. Comme pour les liaisons aromatiques, c'est l'ajustement à l'aide de la relation 3.7 qui donne les meilleurs résultats, même si, pour la bande à 2858 un ajustement avec 3.9 est aussi correct. Les paramètres d'ajustement sont donnés dans le tableau 3.12, et les ajustements montrés sur la figure 3.20. Les sections efficaces étant du même ordre de grandeur que celles données dans le tableau 3.9, les doses en r_c et r_t , ainsi que la dose D_0 sont du même ordre de grandeur que celles données dans les tableaux 3.10 et 3.11.

	$\chi_r^2/\text{IC}(\%)$ (eqn. 3.9)	$\chi_r^2/\text{IC}(\%)$ (eqn. 3.7)	σ_i 10^{-16} cm^2	σ_c 10^{-16} cm^2	σ_t 10^{-14} cm^2	k (%)
2858 cm^{-1}	9.2/95	0.2/100	5 ± 0.6	3 ± 0.3	1.3 ± 0.2	7.5 ± 2
2920 cm^{-1}	35/1	1.2/100	3 ± 0.5	2 ± 0.2	1.6 ± 0.4	5 ± 1.5

TAB. 3.12 – Paramètres d'ajustements décrivant la diminution des liaisons aliphatiques

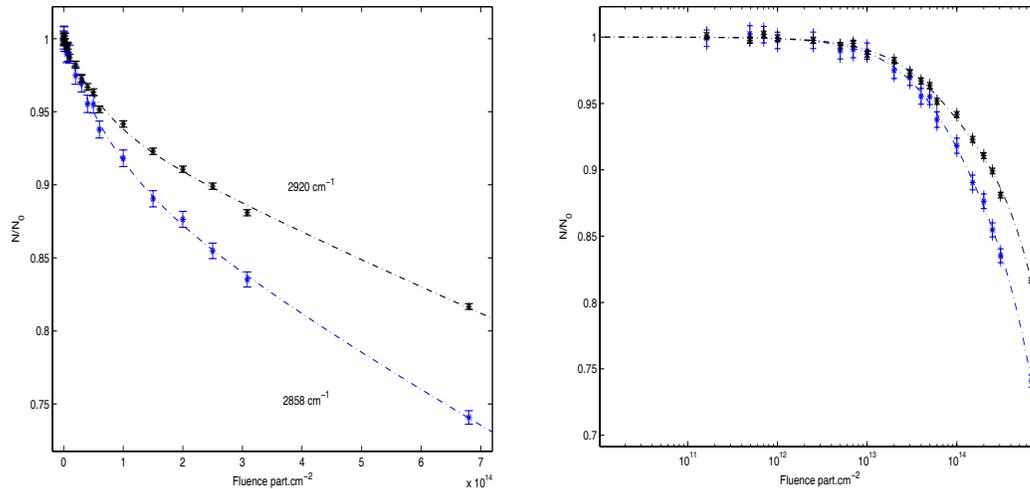


FIG. 3.20 – Diminution de la fraction restante de liaisons aliphatiques

Liaisons particulières

Les liaisons étudiées jusqu'à présent diminuent monotonement en fonction de la fluence. Cependant, la bande à 1607 cm^{-1} (déformation du cycle) présente une augmentation faible, suivie d'une diminution, en fonction de la fluence. Nous observons aussi l'apparition d'une bande d'oxydation à 1700 cm^{-1} qui présente le même comportement.

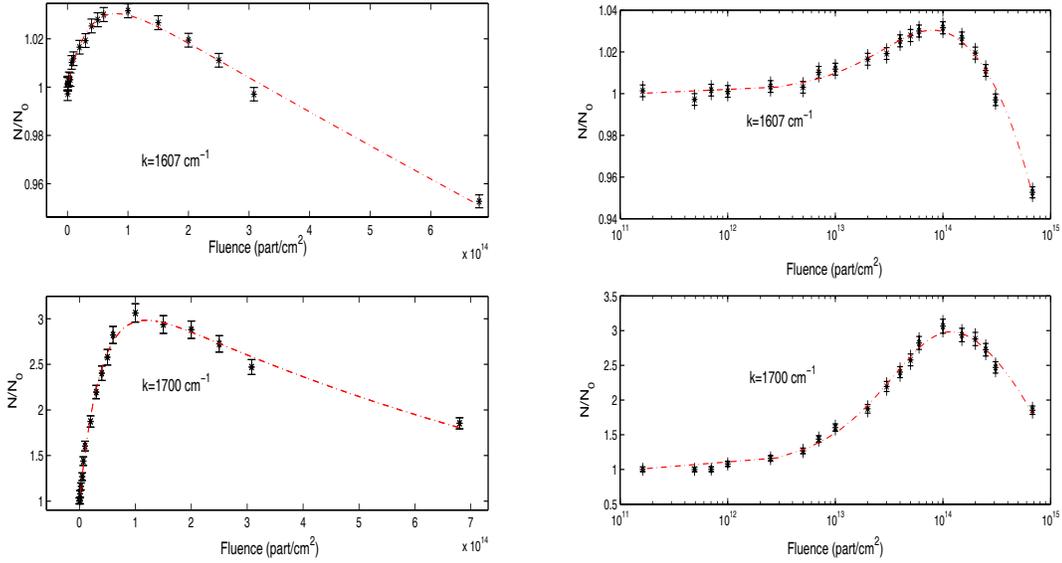
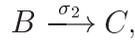


FIG. 3.21 – Ajustement de la fraction de liaisons restantes, cas des liaisons qui augmentent en début d'irradiation

Pour une liaison dont la concentration décroît exponentiellement avec la fluence nous pouvons considérer, par analogie avec les méthodes de cinétique chimique, le schéma de "réaction" suivant :



qui signifie, dans le cas qui nous occupe, que la vitesse de disparition de B, en fonction de la fluence, est simplement proportionnelle à σ_2 .

Pour prendre en compte une augmentation de B, il faut supposer la présence d'une espèce (A) qui donne B :



Nous essayons donc d'ajuster la fraction de liaisons restantes à 1607 et 1700 cm^{-1} à l'aide de la fonction suivante :

$$N = N_0 \exp(-\sigma_2 \Phi) + N_{0A} \frac{\sigma_1}{\sigma_1 - \sigma_2} (\exp(-\sigma_2 \Phi) - \exp(\sigma_1 \Phi)),$$

avec $\sigma_1 > \sigma_2$ Les ajustements obtenus sont présentés sur la figure 3.21. Pour la bande d'oxydation l'ajustement des aires nettes ne conduit pas à $N_0(0) = 0$, si bien que nous pouvons tracer N/N_0 ; nous obtenons pour cette bande :

- * $\sigma_1 = (2.6 \pm 0.3) 10^{-14} \text{ cm}^2$
- * $\sigma_2 = (9.6 \pm 1.5) 10^{-16} \text{ cm}^2$
- * $R = \frac{N_{0A}}{N_0} = 2.4 \pm 0.1.$

Pour la bande à 1607 cm^{-1} nous obtenons :

- * $\sigma_1 = (2.7 \pm 0.6) 10^{-14} \text{ cm}^2$

* $\sigma_2 = (1.4 \pm 0.1) 10^{-16} \text{ cm}^2$

* $R = \frac{N_0 A}{N_0} = 0.05 \pm 0.005$.

Pour cette dernière bande, la valeur de σ_2 , qui décrit la décroissance à fluence élevée, est proche des valeurs de σ_i et de σ_c (*cf.* tableau 3.9) de l'autre bande de déformation du cycle à 1447 cm^{-1} . Les valeurs de σ_1 pour les deux bandes sont remarquablement proches.

Effet de la mise à l'air

Une entrée d'air a été réalisée après la dernière irradiation. Un premier spectre a été pris au moment de l'ouverture et les suivants toutes les cinq minutes. Nous remarquons une diminution peu significative sur les liaisons aromatiques dont l'absorbance baisse avec la fluence, nous remarquons un effet de diminution plus marquée de l'absorbance sur les bandes à 2858 et 2920 cm^{-1} (*cf.* figures 3.22 et 3.23). Le cas de la bande d'oxydation à 1700 cm^{-1} est plus intéressant puisque nous remarquons une augmentation de l'absorbance qui sature après quelques minutes à la valeur maximale obtenue lors de l'irradiation. Enfin, pour la bande à 1607 cm^{-1} nous observons le même type de comportement, mais la valeur de saturation reste inférieure à la valeur maximale atteinte lors de l'irradiation.

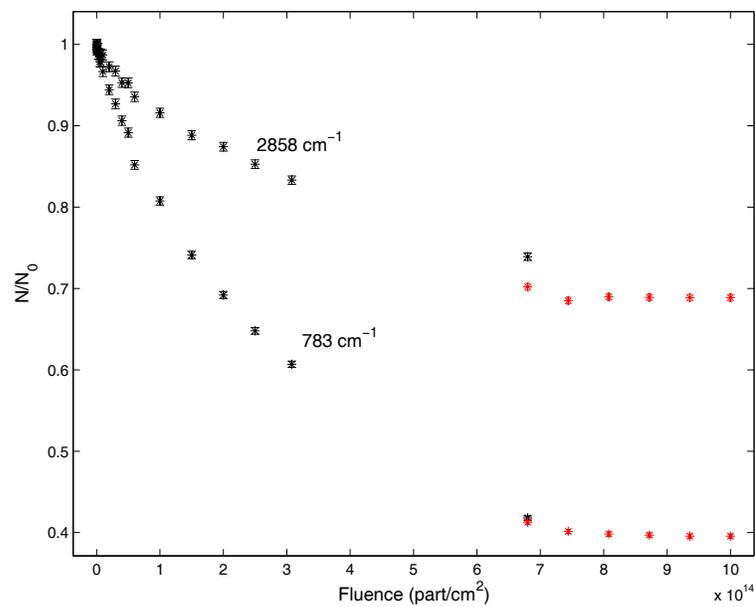


FIG. 3.22 – *Effet de la mise à l'air sur les bandes aliphatiques et aromatiques*

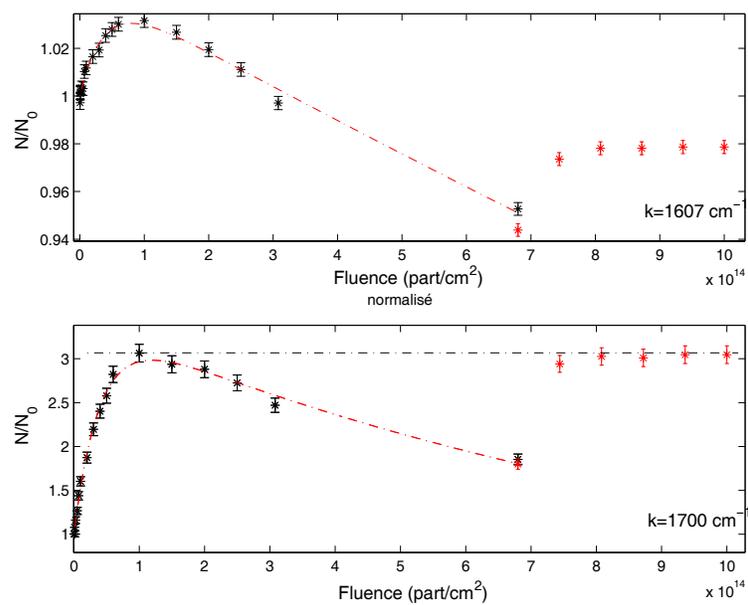


FIG. 3.23 – *Effet de la mise à l'air sur les bandes à 1607 et 1700 cm^{-1}*

IV.3 Cas des hélions

Nous irradiions sous vide dix échantillons de BC-418 d'épaisseur $10\ \mu\text{m}$ avec des hélions de $3\ \text{MeV}$, ($dE/dx=140\ \text{keV}/\mu\text{m}$, parcours $\approx 16.5\ \mu\text{m}$) en utilisant l'accélérateur linéaire du laboratoire PHASE (UPR 292). D'après SRIM 2003 les hélions sortent de l'échantillon à une énergie de $1.4\ \text{MeV}$ ($dE/dx=200\ \text{keV}/\mu\text{m}$), il est donc raisonnable de considérer comme perte d'énergie la valeur "moyenne" de $170\ \text{keV}/\mu\text{m}$. Nous plaçons les échantillons sur une cible tournante équipée d'un dispositif de mesure de courant semblable à celui utilisé au VIVITRON. L'évolution, en fonction de la fluence, de la fraction restante de quelques liaisons, est représentée sur la figure 3.24. Les barres d'erreurs considérées ont été obtenues, pour chaque bande, en considérant la déviation standard des absorbances nettes des échantillons non irradiés. La même incertitude est considérée lors de la mesure de l'échantillon irradié. Au final, nous avons une incertitude relative de 8 à 15 % sur la fraction de liaisons restantes. Les données obtenues sont ajustées en ne considérant que le seul mode "ion-kill" (relation 3.9). Pour les données obtenues avec les hélions nous ne cherchons pas à obtenir un ajustement selon la relation 3.7, les points expérimentaux ne sont pas assez nombreux (en particulier à faible fluence) et les barres d'erreurs sont trop grandes. Les résultats de l'ajustement sont donnés dans le tableau 3.13, ils seront discutés dans la conclusion de ce chapitre.

k (cm^{-1})	783	815	1447	1607	1488	1513	3019	3046	3092	2858	2920
σ_i ($10^{-16}\ \text{cm}^2$)	17 ± 3	15 ± 3	3 ± 2	2 ± 1	6 ± 3	8 ± 3.5	8 ± 2	12 ± 3	23 ± 7	7 ± 1	4 ± 1

TAB. 3.13 – Section efficace de dégât des liaisons de la matrice du BC-418, irradié par des hélions de $3\ \text{MeV}$

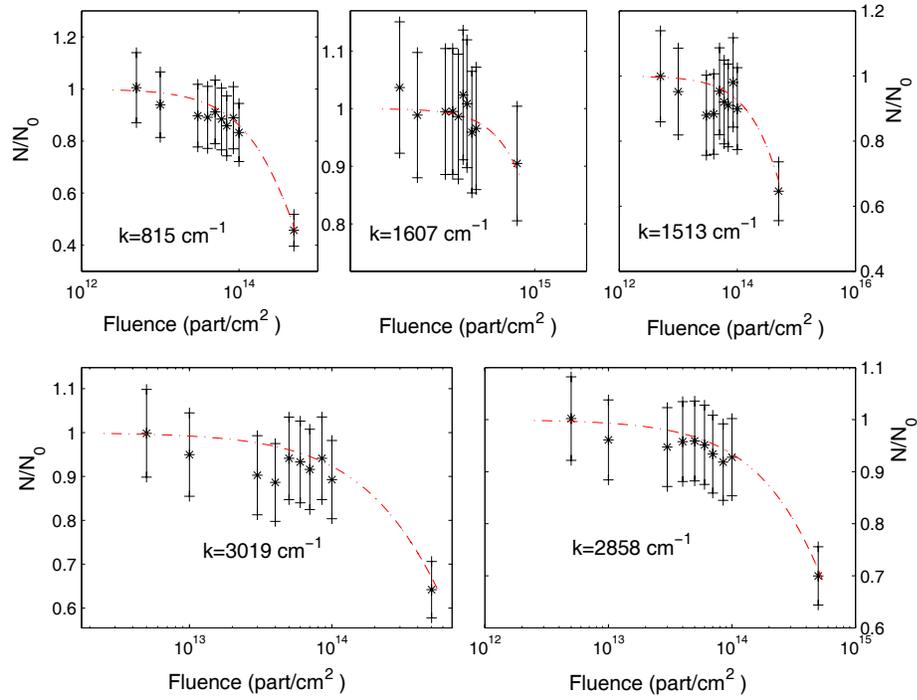


FIG. 3.24 – Diminution relative du nombre de liaisons de la matrice du BC-418 irradié avec des hélions de 3 MeV

V Bilan

Dégradation de l'intensité de scintillation

Nous avons mis au point un dispositif facile à mettre en œuvre afin de mesurer, en ligne, la dégradation de l'intensité de scintillation. Ce dispositif a d'abord permis de confirmer le modèle de Birks pour la dégradation de l'intensité de scintillation des cristaux moléculaires, ce modèle n'ayant jamais été vérifié pour d'autres particules que les alphas naturels. Dans le cas de l'antracène, la section efficace de dégât est du même ordre de grandeur que la surface de la molécule et l'efficacité de capture des excitons par les molécules endommagées est plus de 1000 fois supérieure à l'efficacité des molécules saines. Nous avons également montré, en utilisant différents ions, que la dégradation de l'intensité de scintillation du BC-418 peut-être décrite par une superposition d'exponentielles décroissantes, ceci confirme et précise les travaux déjà menés sur des scintillateurs de même type. Toutefois l'origine des composantes exponentielles observées n'est pas expliquée. Pour des pouvoirs d'arrêt compris entre 50 et 9000 keV/ μm la fluence nécessaire pour réduire d'un dixième l'intensité de scintillation est de 10^{11} part/cm² et pour la réduire de moitié 10^{12} part/cm².

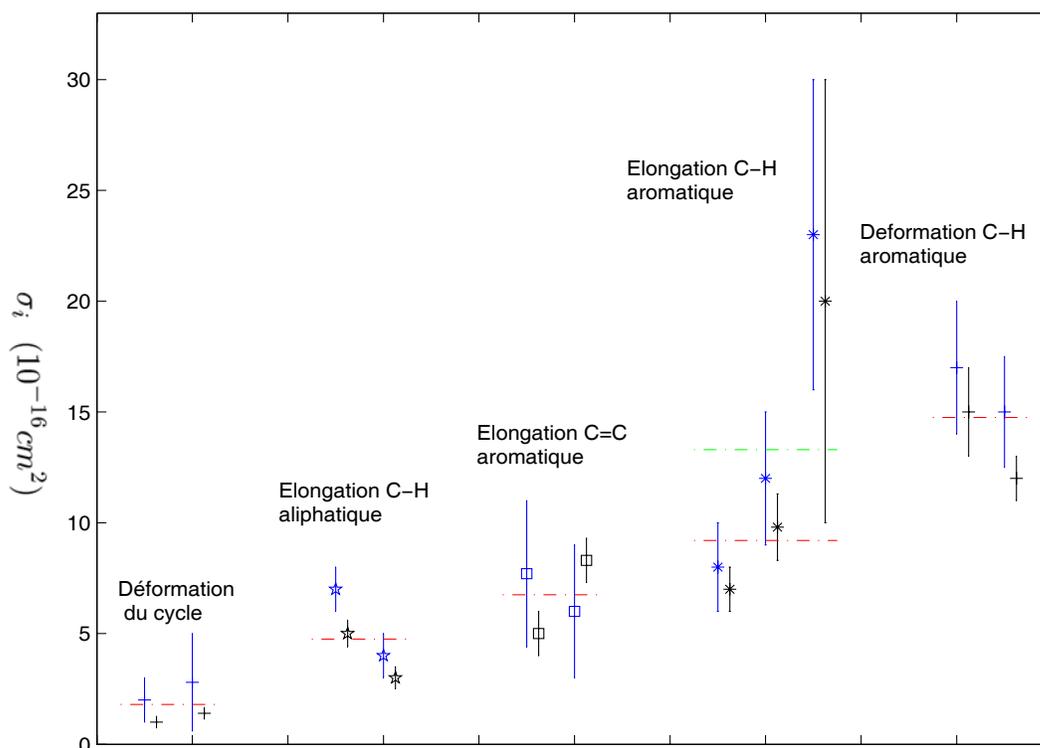


FIG. 3.25 – Bilan des sections efficaces de dégât dans le PVT. En noir données obtenues avec les ions carbone, en bleu avec les hélions. La ligne rouge en pointillé représente la moyenne des données, dans le cas des élongations C-H aromatiques la ligne verte correspond à la moyenne en incluant la bande à 3092 cm^{-1} pour laquelle nous avons une grande incertitude

Spectroscopie infrarouge

Les données obtenues avec les hélions et les ions carbone, pour des pouvoirs d'arrêt comparables, sont cohérentes, comme illustré sur la figure 3.25. Si l'on se limite aux valeurs de σ_i nous pouvons ordonner les liaisons en fonction de leur radio-résistance :

- Déformation du cycle, $\sigma \sim 2 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$
- Élongation C-H aliphatique, $\sigma \sim 5 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$
- Élongation C=C aromatique, $\sigma \sim 7 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$
- Élongation C-H aromatique, $\sigma \sim 9 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$
- Déformation C-H aromatique, $\sigma \sim 15 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$

Cet ordre est respecté si l'on considère σ_c à la place de σ_i . Nous notons aussi sur la figure 3.25 que les sections efficaces obtenues lors de l'irradiation par les ions carbone sont légèrement inférieures à celles obtenues pour les hélions, ce qui est cohérent avec le fait que la perte d'énergie, dans ce dernier cas, est légèrement plus élevée. Il est difficile de conclure définitivement sur la

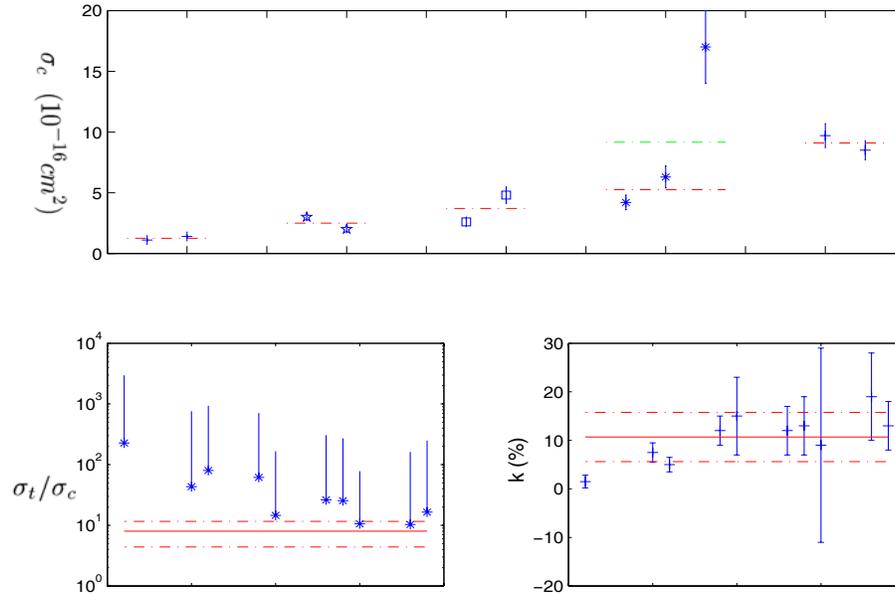


FIG. 3.26 – Bilan des sections efficaces de dégât dans le PVT. Graphe du haut : comparaison des valeurs de σ_c et des moyennes obtenues en ne tenant compte que σ_i (cf. figure 3.25). En bas à gauche : rapport σ_t/σ_c , seule la partie supérieure des barres d'erreur est représentée. En rouge (trait plein) rapport des fluences critiques permettant de décrire la diminution relative de scintillation lors de l'irradiation par des ions carbone (cf. tableau 3.6) ; en pointillé incertitude sur cette quantité. En bas à droite : efficacité relative du halo, moyenne et déviation standard (en rouge)

validité de l'hypothèse que nous avons formulée pour expliquer l'ajustement des données avec une double exponentielle. Certes les ajustements sont meilleurs avec cette hypothèse mais la détermination de l'efficacité relative du halo est encore imprécise, même si on peut proposer k autour de 10 %, compte tenu des incertitudes (cf. figure 3.26). D'autre part la valeur de σ_t est entachée d'une grande incertitude, ce qui explique les barres d'erreurs importantes sur le rapport σ_t/σ_c . Ce rapport n'est toutefois pas incompatible avec le rapport des fluences critiques mesurées pour les ions carbone : il est du même ordre de grandeur, pour certaines bandes, et dans la barre d'erreur pour les autres (cf. en bas à gauche figure 3.26). Enfin, les doses que nous déduisons de cette approche sont plus raisonnables que celles déduites en ne considérant le seul mode "ion-kill" (cf. tableau 3.11)

Nous constatons aussi, à faible fluence, une augmentation significative, bien que de faible amplitude, de la bande à 1607 cm^{-1} . Une observation semblable a été rapportée, pour la même bande dans le polystyrène, par Calgano *et al.* [155], mais nos données sont beaucoup plus complètes, notamment nous

constatons que la bande d'oxydation croît avec la même pente que la bande à 1607 cm^{-1} .

Perspectives

Dans l'état actuel il est impossible d'expliquer définitivement les mécanismes induisant la perte de scintillation, même si nous pouvons dire qu'à fluence identique la perte relative d'intensité de scintillation est bien plus grande que la perte relative de liaisons. En effet pour des ions carbone ($dE/dx \approx 150\text{ keV}/\mu\text{m}$), à $\Phi=10^{12}\text{ part}/\text{cm}^2$ nous avons $S/S_0=0.5$ mais $N/N_0=0.99$; pour $\Phi = 10^{13}\text{ part}/\text{cm}^2$ nous avons $S/S_0=0.05$ et $N/N_0=0.98$. De même qu'une très faible quantité de dopants est nécessaire à la scintillation il semble que les dégâts chimiques induits aient une efficacité d'inhibition de la scintillation très importante. Afin de mieux quantifier les processus mis en œuvre dans la perte de l'intensité de scintillation on pourra se tourner vers des expériences (en ligne de préférence) de spectrométrie d'émission et d'absorption UV-VIS, afin d'observer si la perte de scintillation est la même dans toutes les bandes d'émission, la spectrométrie d'absorption permettrait aussi de savoir dans quelle mesure le transfert radiatif de la matrice vers les dopants est affecté. On pourra aussi essayer des expériences RPE afin de déterminer les radicaux présents dans le matériau irradié. On pourrait aussi essayer d'analyser par RMN ou spectroscopie Raman les solides irradiés afin de gagner en sensibilité.

Autour des oliviers palpitent les origines

(..)

Autour des amandiers fleurissent les mondes en
sourdine

No pasarán sous les fourches caudines

Noir Désir/B. Cantat, À l'envers à l'endroit

J'étrangle celui-là qui se lève dans la nuit et jette
au vent ses prophéties comme l'arbre touché par la
semence du ciel, quand il craque et se brise et
embrase avec lui la forêt

Saint-Exupéry, Citadelle

Chapitre 4

Dosimétrie d'ions d'intérêt en radiobiologie à l'aide de scintillateurs plastiques

I Introduction

Développement de l'hadronthérapie

En 1947 R. Wilson calcule la perte d'énergie de protons de 150 MeV à travers les tissus et montre que la différence de dose entre l'entrée et le point d'arrêt rend les faisceaux d'ions parfaitement adaptés au traitement des tumeurs profondes [166]. En 1954 les premiers traitements par protonthérapie débutent à Berkeley, puis dans les années 1970 des ions plus lourds commencent à être utilisés. Depuis les premiers traitements on estime qu'entre 20 000 [167] et 50 000 [168] patients ont été traités par hadronthérapie. Il semble aujourd'hui bien établi que l'ion le plus efficace est le carbone. En effet, les ions plus lourds déposent trop de dose dans les tissus sains, en outre l'efficacité biologique relative (RBE) du carbone, à pouvoir d'arrêt maximum est très élevée (RBE=2-3 pour un pouvoir d'arrêt de 77 keV/ μm selon [169]). L'utilisation du carbone n'est cependant pas destinée à devenir systématique puisque pour certaines tumeurs les protons se révèlent plus adaptés [170]. Les comparaisons entre radiothérapie conventionnelle et hadronthérapie montrent de meilleurs résultats en faveur de l'hadronthérapie [125]. Les progrès réalisés au cours des dernières décennies dans les systèmes de contrôle de faisceau et l'amélioration générale des techniques de construction d'accélérateur permettent aujourd'hui un développement relativement rapide des centres d'hadronthérapie à travers le monde [171]. Au Japon plus de 1000 patients ont été traités au HIMAC¹ depuis son inauguration en 1994 et les traitements ont également commencé en

1. Heavy Ion Medical Accelerator

2001 au HIBMC¹. En Europe, les traitements ont commencé en 1997 à GSI² et de nombreux projets sont en cours, à différents stades d'avancement : projet ÉTOILE en France [172], projet TERA en Italie [173], et d'autres encore en Autriche (Med-AUSTRON) et en Suède [174] .

Dosimétrie absolue et relative

La mise en œuvre d'un traitement par hadronthérapie nécessite la collaboration de nombreux spécialistes et le strict respect d'un protocole de traitement. Dans un premier temps la tumeur à irradier est localisée et mesurée par imagerie médicale. Dans un deuxième temps la dose totale à délivrer à la tumeur est prescrite par le praticien. La détermination de la dose nécessaire est avant tout basée sur l'expérience des cliniciens qui n'emploient pas, actuellement, de méthodes de calculs d'événements létaux, comme ceux présentés par Kraft *et al.* [175]. La dose prescrite, exprimée en Gray Equivalent (GyE=RBE*Dose[Gy]) dépend du type de tumeur, de sa taille, de la condition du patient, mais on peut retenir que les doses prescrites sont en général de l'ordre de 10 à 70 GyE [168, 176]. Dans l'étape de traitement le volume de la tumeur est divisé en volumes élémentaires (voxels) irradiés par un faisceau de faible diamètre (1-3 millimètres de largeur à mi hauteur). La dose prescrite est obtenue en variant l'intensité et l'énergie du faisceau afin que chaque voxel reçoive une fraction de la dose totale. Pour chaque irradiation de voxel, il faut non seulement tenir compte des mouvements naturels du patient (respiration), mais aussi de la dose résiduelle apportée par l'irradiation des voxels voisins. Ceci nécessite une parfaite maîtrise du faisceau et une parfaite connaissance de ces paramètres énergétiques et géométriques à travers les différents milieux traversés (air, liquide, os, tissus) puisqu'au final la dose est toujours évaluée en considérant le produit de la fluence par le pouvoir d'arrêt massique [177, 125, 139] :

$$\begin{aligned}
 Dose &= \Phi \frac{dE}{dx} \frac{1}{\rho} \\
 &= 1.610^{-9} \underbrace{\Phi}_{\text{cm}^{-2}} \underbrace{\frac{dE}{dx}}_{\text{keV}/\mu\text{m}} \underbrace{\frac{1}{\rho}}_{\text{cm}^3.\text{g}^{-1}} .
 \end{aligned} \tag{4.1}$$

Comme on peut le constater, en l'absence de mesure de dose in-situ, seule la connaissance du comportement du faisceau à travers la matière (relation énergie parcours et straggling notamment) permet d'assurer une prescription de dose correcte. De nombreux systèmes, souvent improprement qualifiés de dosimètres, ne sont en réalité que des compteurs de particules. Ainsi les détecteurs de traces nucléaires sont le plus souvent utilisés pour vérifier l'homogénéité du faisceau ou pour donner la fluence après révélation [178], même

1. Hyogo Ion Beam Medical Center
 2. Gesselshaft für SchwerIonenforschung, Darmstatt

si de complexes procédures de calibration peuvent conduire à une mesure de dose absolue [178, 179]. De même les détecteurs à semi-conducteur, comme celui présenté dans [180] ne sont que des compteurs (rapides) de particules. La dernière intercomparaison de dosimétrie d'ions carbone, menée à l'HIMAC, avec des chambres d'ionisation a montré un excellent accord des mesures, mais il faut bien remarquer qu'à cette occasion les chambres d'ionisation ont délivré des valeurs en Gy/"Monitor Unit", autrement dit que la fluence était mesurée indépendamment [181]. Comme le souligne Fukumura [181] la seule manière totalement fiable de réaliser une dosimétrie absolue est d'utiliser la calorimétrie, d'autant plus que l'ICRU n'a pas défini de protocole pour la dosimétrie d'ion à l'aide de chambre d'ionisation, excepté le cas des protons ¹. Un exemple récent de calorimètre, utilisé pour la qualification de faisceau d'ions, est présenté dans [183], les dimensions d'un tel calorimètre sont telles qu'il peut être facilement transporté mais sûrement pas utilisé pour réaliser une mesure de dose in-vivo.

Dosimétrie et scintillateurs

Comme nous venons de l'expliquer rapidement, en prenant comme exemple l'hadronthérapie, il n'existe pas actuellement de méthode de dosimétrie in-vivo adaptée aux faisceaux d'ions. Dans la plupart des cas la dosimétrie ex-vivo est même réalisée connaissant l'énergie ou la fluence des particules. Dans ce chapitre nous présentons un prototype de dosimètre basé sur l'utilisation de scintillateurs couplés à une fibre optique. Nous avons en effet travaillé dans l'idée d'aboutir, à terme, à un système d'encombrement suffisamment faible pour permettre de réaliser une dosimétrie in-vivo. Même si l'encombrement de certaines chambres d'ionisation est très faible (100 mm³), Beddar *et al.*[138] ont montré que l'utilisation de scintillateurs et de fibres optiques conduit à un encombrement minimal. Ils ont en effet réalisé, pour la dosimétrie de rayons-X d'intérêt médical, un dispositif dont le volume de la tête de mesure est de 1.6 mm³. Dans la suite de Beddar *et al.* d'autres équipes ont présenté des dispositifs similaires utilisant d'autres scintillateurs [184, 185]. L'emploi de scintillateur de faible densité, équivalente à celle de l'eau, est cependant préférable, afin de ne pas avoir à effectuer de correction de pouvoir d'arrêt. L'utilisation de ce type de dispositif pour la dosimétrie des ions a été suggérée par Torrisi [139] et Beddar a également montré que son dispositif, sous faisceau de proton monoénergétique, possède une meilleure sensibilité que les dosimètres usuels [186]. Enfin, l'utilisation d'une fibre optique reliée à un système de comptage rapide permet de réaliser un dosimètre actif, à l'instar des chambres d'ionisation.

1. L'AIEA a cependant publié un protocole pour la dosimétrie des ions lourds utilisés en radiothérapie [182]

II Performances du prototype développé

Nous présentons, par la suite, le dernier prototype testé au HIMAC. Au paravant nous avons travaillé sur une version de plus grand encombrement. Ce premier prototype nous a permis de vérifier la proportionnalité entre l'intensité du faisceau et le signal de sortie du dosimètre. Ce test réalisé sous faisceau de protons de 65 MeV à l'UCL, nous a cependant montré que le rapport signal à bruit (S/B) du prototype (rapport du signal mesuré avec scintillateur sur le signal sans scintillateur) était trop grand pour réaliser une mesure de dose fiable. Plus exactement, ce test nous a permis de déterminer que le problème du rapport S/B pouvait être contourné en augmentant l'épaisseur de scintillateur, de manière à augmenter le signal en gardant le bruit constant. Lors d'une expérience suivante, conduite sur la ligne haute énergie du GANIL, toujours avec le même prototype et en utilisant des ions carbone monoénergétique (90 MeV/uma), nous avons vérifié la proportionnalité du signal de sortie du dosimètre et d'une chambre d'ionisation de type Markus. Ce test nous a également permis de déterminer l'épaisseur de BC-418 nécessaire pour obtenir un rapport S/B qui donne des résultats exploitables. Par la suite, afin d'obtenir un encombrement plus réduit et un bruit plus faible, nous avons décidé d'utiliser une tête de mesure de volume plus faible et un guide de lumière afin de ne pas exposer la fibre dans le champ d'irradiation.

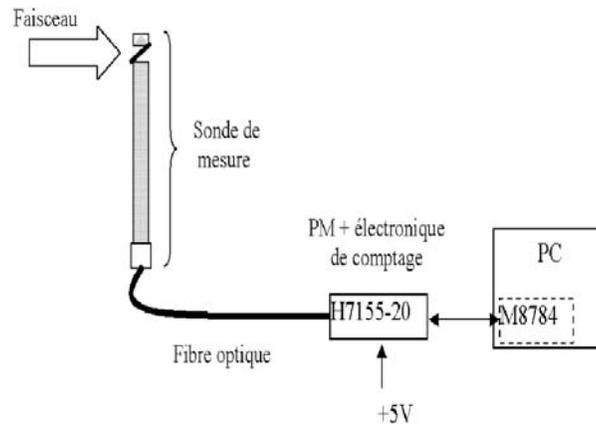


FIG. 4.1 – Schéma de principe du fonctionnement du dosimètre

II.1 Caractéristiques techniques

Un schéma de principe résumant le principe de fonctionnement du dosimètre est donné figure 4.1. Les éléments de comptage, c'est-à-dire la tête de

comptage H7155-20 et la carte M8784, ont été décrits en 3-II mais nous donnons ici, dans les tableaux 4.2 et 4.1 les caractéristiques techniques détaillées. Le scintillateur est inséré dans une sonde de réflexion constituée d'un guide de lumière en quartz et d'un prisme à son extrémité afin de réfléchir vers la fibre la scintillation émise vers le haut. Le recouvrement est en titane, la longueur de la sonde est de 17.5 cm et le diamètre extérieur 6.4 mm, la sonde de mesure est en outre étanche. La fibre silice/silice est de type multimode, de diamètre de coeur 600 μ , la gamme spectrale d'utilisation s'étend de 220 à 1100 nm. Pour se protéger de la lumière parasite la fibre est gainée à l'aide d'un adhésif supplémentaire. Les caractéristiques de la sonde et de la fibre sont données dans le tableau 4.3, les figures 4.2, 4.3 et 4.4 présentent l'ensemble du dosimètre et la sonde de mesure.

signal d'entrée	TTL positif
durée du signal d'entrée	≥ 8 ns
Taux de comptage maximum	50 MHz
Capacité de comptage maximum	2^{32} coups / intégration
Temps d'intégration	10 μ s - 10 s
Mode de déclenchement	logiciel ou extérieur
Système d'exploitation	Windows Me/98SE/2000
Type de Bus	SPI

TAB. 4.1 – *Caractéristiques techniques de la carte d'acquisition M8784*



FIG. 4.2 – *Sonde de mesure du dosimètre*



FIG. 4.3 – *Sonde de mesure du dosimètre*

Connecteur d'alimentation	HIROSE HR10A-78-45
Tension d'entrée	+4.5 +5.5 V
Tension d'entrée maximum	6 V
Courant d'entrée maximum	+70 mA
Puissance consommée maximum	350 mW
"Courant" d'obscurité ^a	0.8 cps/s
Temps de résolution (τ)	10 ns
Taux de comptage maximum en mode linéaire ^b	10^7 cps/s ^c
Fonction réponse ^d	$n = \frac{n'}{1+\tau n'}$
Domaine spectral ^e	300-650 nm
Diamètre de la cathode	8 mm
Type du connecteur fibré	E5776 (type FC) ^f
Signal de sortie	TTL positif
Connecteur de sortie	BNC-R
Dimension	50x22x22 mm
Poids	75 g

TAB. 4.2 – *Caractéristiques techniques de la tête de comptage de photons H71155-20*

^a Valeur pour l'appareil utilisé

^b Pour cette valeur il existe une déviation de 10 % par rapport à la linéarité

^c Cette valeur est diminuée d'un facteur 1/4 après le prescaler

^d $n'=4$ x taux de comptage affiché; n =vrai taux de comptage

^e cf. figure 3.2

^f Nous avons remplacé ce connecteur par un adaptateur de type ST

Domaine spectral	220-1100 nm
Volume de l'insert pour les scintillateurs	2.5 mm [hauteur] x 20 mm ² [surface]=50 mm ³
Diamètre extérieur de la sonde (haut)	6.4 mm
Diamètre de la sonde (base)	12.5 mm
Longueur de la sonde	235 mm
Matériau du guide et du prisme	quartz suprasil
Diamètre de cœur	600 μ m
Matériau de la fibre	silice

TAB. 4.3 – *Caractéristiques de la tête de mesure et de la fibre optique*

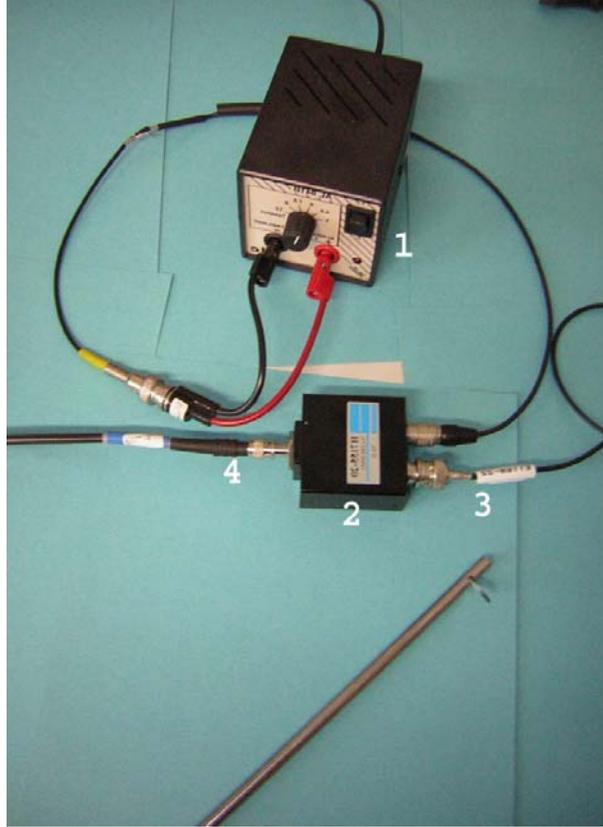


FIG. 4.4 – *Éléments constituant le dosimètre: Alimentation 5V (1), H7155-20 (2), sortie TTL vers la carte M8784 (3), connecteur ST (4).*

II.2 Performances

Conditions expérimentales

Le prototype a été testé au HIMAC sur la ligne "Bio-Room" ([187]) avec un faisceau de ^{13}C d'énergie nominale 290 MeV/uma, en mode pulsé. La fluence du faisceau est fixée à $1.8 \cdot 10^5$ particule. cm^{-2} /pulse et le champ d'irradiation couvre uniformément une zone de 10 cm de diamètre. Le dosimètre est placé au centre du champ d'irradiation, aligné à l'aide de Lasers. Nous avons mesuré la réponse du dosimètre en variant l'énergie du faisceau à l'aide des dégradeurs en PMMA, de manière à obtenir une variation d'énergie simulant la courbe de Bragg dans l'eau. Pour la plupart des points de la courbe de calibration (*cf.* figure 4.5) nous avons mesuré la réponse du dosimètre en utilisant successivement des épaisseurs de BC-418 de 250, 400 et 500 μm ; une fois le scintillateur en place nous recouvrons la tête de mesure d'une double épaisseur d'adhésif noir (polyéthylène 2x130 μm) afin de protéger le dosimètre de la lumière parasite.

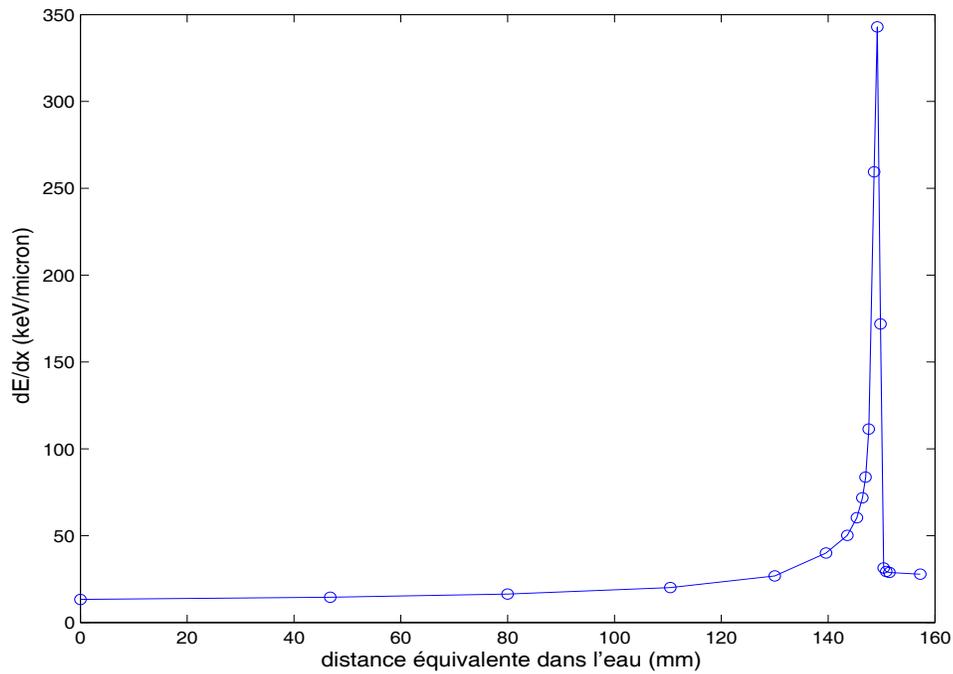


FIG. 4.5 – Courbe de calibration Perte d'énergie/Parcours en équivalent eau, pour le faisceau utilisé. Cette courbe est fournie par le NIRS, des dégradeurs en PMMA permettent de réduire l'énergie du faisceau et d'obtenir les points de cette courbe. On peut ainsi avec cette courbe de référence simuler un parcours le long de la courbe de Bragg.

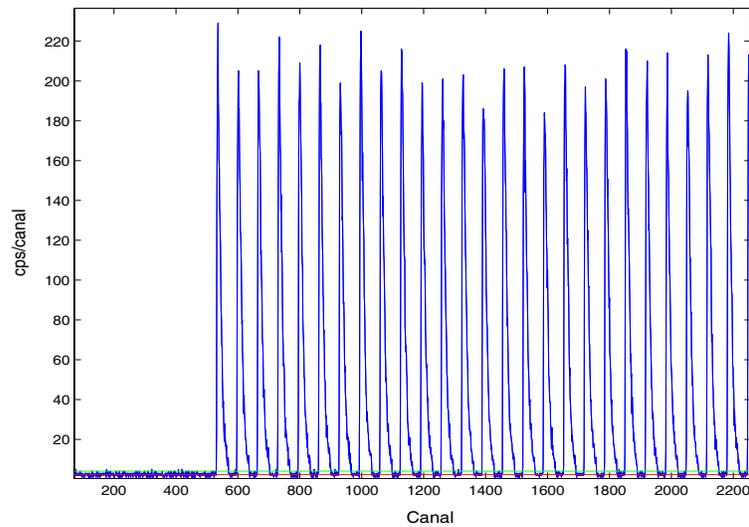


FIG. 4.6 – Exemple de pulses vus par le dosimètre. Temps d'intégration 50 ms, 8 films de 50 microns, $dE/dx \approx 70 \text{ keV}/\mu\text{m}$

Traitement des résultats et courbe de calibration

Pour chaque énergie nous avons accumulé des données correspondants à l'utilisation de 60-100 pulses. Par ailleurs nous avons utilisé un temps d'intégration de 50 et 100 ms, au niveau de la carte d'acquisition, afin de vérifier que les résultats obtenus sont indépendants de ce paramètre qui doit être suffisamment court devant la durée des pulses (1.2 s) pour reconstruire correctement le signal, mais suffisamment long pour obtenir un nombre d'événements suffisant. Une séance d'irradiation a été consacrée à mesurer le signal de la sonde irradiée sans scintillateur afin d'ôter ce signal parasite du résultat des mesures. Les données acquises sont traitées selon le protocole suivant :

- (i) reconstruction des pulses
- (ii) soustraction du bruit de fond du H7155-20
- (iii) construction de la distribution du nombre de coups par pulse
- (iv) soustraction du bruit mesuré sans scintillateur.

Les pulses sont reconstruits en fixant un seuil au-dessus du bruit de fond du H7155-20 (*cf.* figure 4.6). Le bruit de fond du H7155-20 est évalué en commençant l'acquisition avant le début de l'irradiation, le bruit de fond est toujours inférieur à 1 cps/s en accord avec les spécifications du fabricant. La distribution du nombre de coups, avec ou sans scintillateur, peut-être considérée comme gaussienne. La valeur considérée au final est la moyenne de la distribution (*iv*), à laquelle on attache la barre d'erreur suivante :

$$\sigma^2 = \sigma_{PM}^2 + \sigma_{stat}^2 + \sigma_{blanc}^2,$$

la déviation standard du bruit de fond du H7155-20 est σ_{PM} , les déviations standards des distributions d'événements, avec et sans scintillateur, sont σ_{stat} et σ_{blanc} , respectivement. Un exemple de distribution d'événements, avec et sans scintillateur, est donné figure 4.8. Plus de 90 % de l'incertitude est due à σ_{stat} . La courbe de réponse en fonction de la profondeur équivalente dans l'eau est donnée sur la figure 4.7, les données sont normalisées de manière à faire coïncider la mesure à énergie nominale avec le pouvoir d'arrêt à cette énergie. Il est intéressant de considérer le facteur d'échelle entre le signal à pouvoir d'arrêt nominal et le point à pouvoir d'arrêt maximal; exprimée en pour cent cette quantité représente la dynamique du système. Nous avons ainsi une dynamique de l'ordre de 15 %, à comparer avec l'incertitude moyenne qui est de 5% (minimum 3%, maximum 5%), et surtout avec le facteur d'échelle de 2500 % entre le pouvoir d'arrêt nominal et le pouvoir d'arrêt maximum . La courbe de calibration en fonction du pouvoir d'arrêt est donnée sur la figure 4.9, où nous retrouvons la forme typique de la réponse d'un scintillateur, à savoir une fonction prenant deux valeurs distinctes pour une même valeur du pouvoir d'arrêt.

Les courbes obtenues sont ajustées en utilisant le modèle de Michaelian *et al.*, étant donné le domaine d'énergie couvert nous utilisons le modèle MM2.

L'ajustement réalisé nous permet de retrouver la valeur de la densité de quenching ρ_q que nous trouvons cette fois égale à $0.5 \cdot 10^6$ erg/g (50 Gray). Pour obtenir le meilleur ajustement nous avons en outre $\mathcal{F} = 1$ et $\mathcal{A} = 4 \cdot 10^{-4}$ (cf. relation 2.4 et [92]) les constantes de normalisation, pour chaque épaisseur de scintillateur, sont toutes du même ordre de grandeur (cf. figure 4.10).

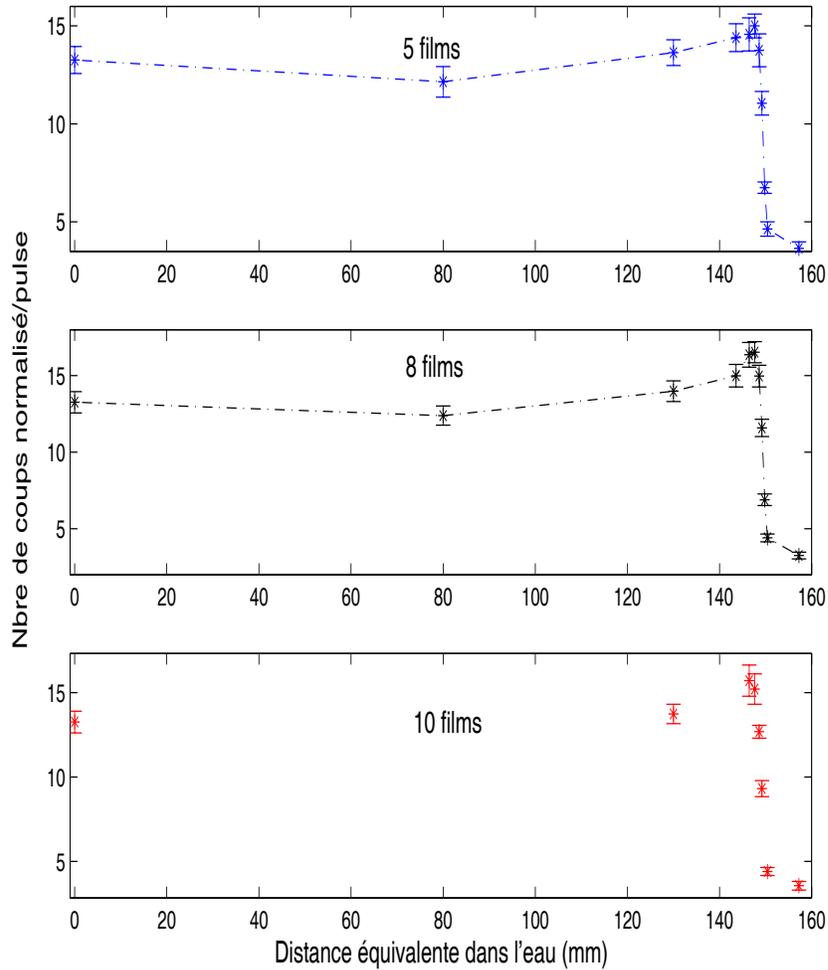


FIG. 4.7 – Réponse du dosimètre en fonction de la profondeur eau-équivalente. Le premier est normalisé de manière à coïncider avec le pouvoir d'arrêt nominal

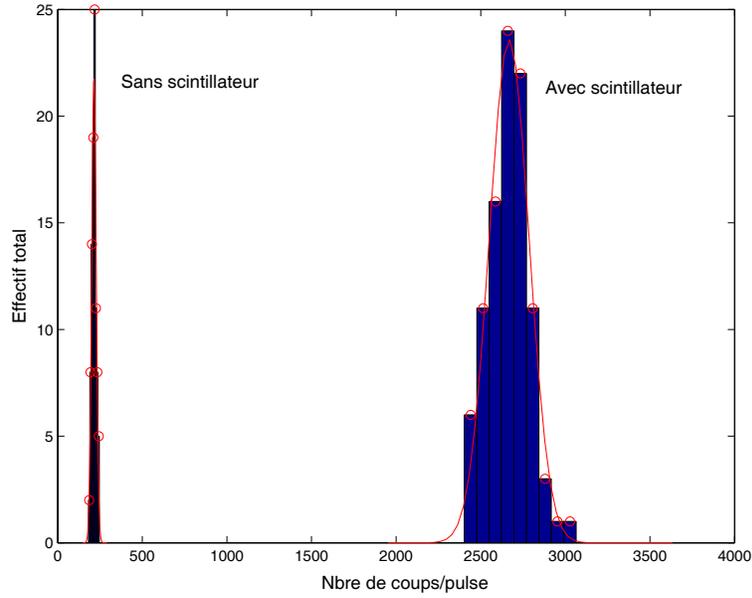


FIG. 4.8 – Distribution du nombre de coups avec et sans scintillateur, ajustement gaussien. Temps d'intégration 50 ms, 8 films de 50 microns, $dE/dx \approx 70 \text{ keV}/\mu\text{m}$

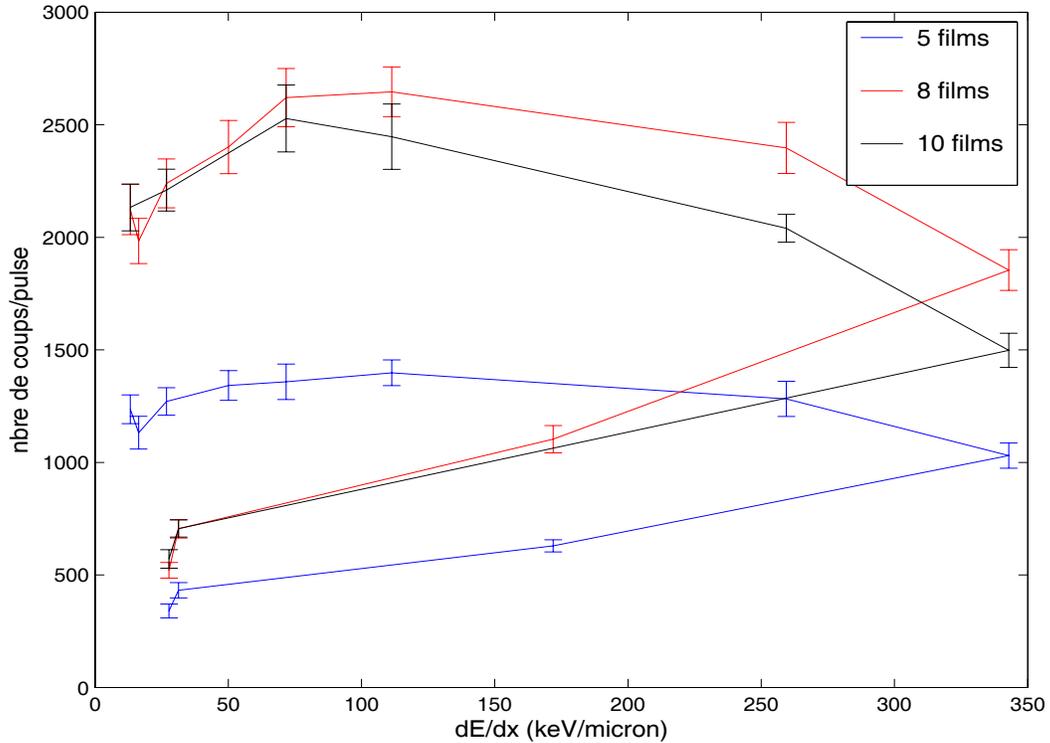


FIG. 4.9 – Courbe de calibration: signal par pulse en fonction du pouvoir d'arrêt. La branche supérieure des courbes correspond aux énergies élevées en amont du pic de Bragg

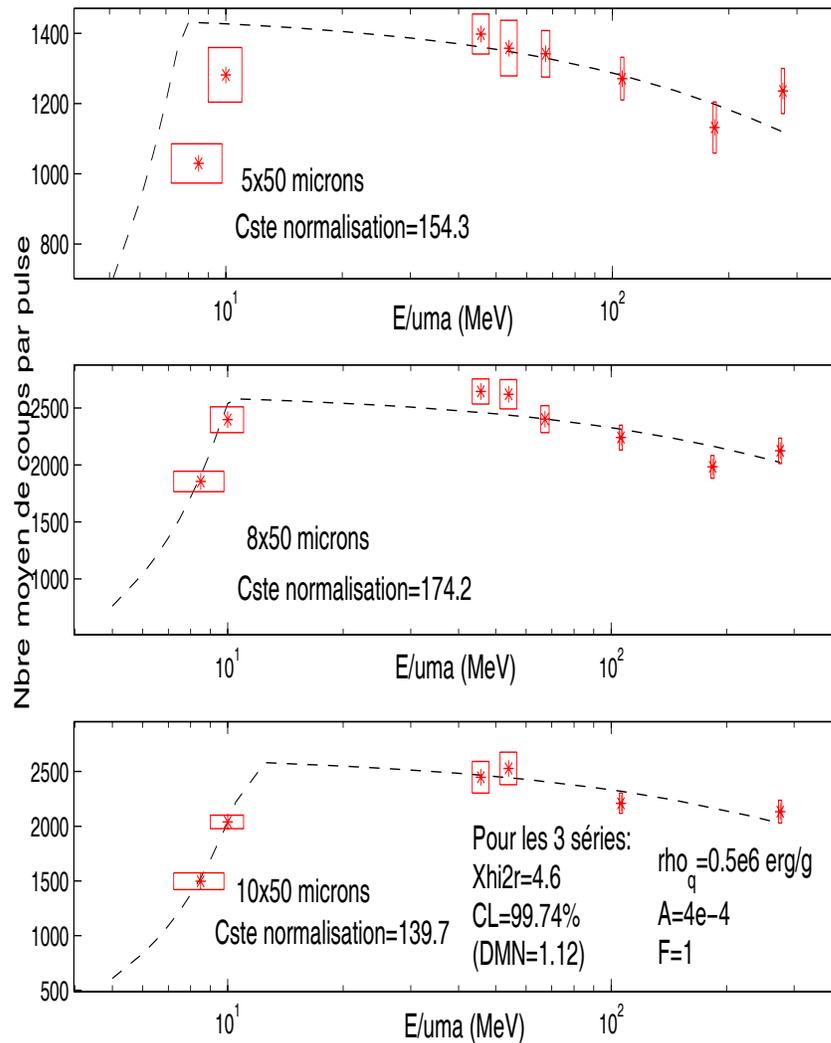


FIG. 4.10 – Ajustement des données selon le modèle MM.

III Bilan

Le prototype réalisé permet de reconstruire avec une faible dynamique la courbe de Bragg, l'augmentation de signal précédent le pic de Bragg est faible mais la diminution de signal après le pic est très nette. La faible dynamique du dosimètre, liée à la saturation de l'efficacité de scintillation, n'est pas un obstacle définitif. En fait, ce qui pose réellement problème, c'est l'incertitude liée aux mesures, alliée à une faible sensibilité. Si nous parvenons à réduire

l'incertitude des mesures nous pourrions nous rapprocher de la précision requise en dosimétrie thérapeutique qui est de 3.5 % [188]. Pour améliorer la précision des mesures deux pistes sont à explorer, d'une part augmenter l'efficacité de collecte des photons en choisissant des réflecteurs adaptés et d'autre part synchroniser l'acquisition du signal avec les pulses du faisceau. Le test réalisé à l'HIMAC a été conduit avec une intensité relativement faible. D'après les discussions avec nos collaborateurs du NIRS il n'est pas exclu qu'une bonne partie des fluctuations du signal soit inhérente au faisceau et que l'on puisse les diminuer en augmentant l'intensité. Une autre piste intéressante serait, bien entendu, de trouver un matériau scintillant dans lequel la saturation de l'efficacité de scintillation est limitée, mais jusqu'à présent nous n'avons trouvé aucune piste pour réaliser un tel matériau et, à notre connaissance, il n'existe pas, dans la littérature d'indication pouvant nous guider. En Février 2005 nous testerons de nouveau à l'HIMAC le prototype de dosimètre, en utilisant une intensité plus élevée, un système de synchronisation entre le faisceau et l'acquisition, et en améliorant la collecte de la scintillation. Nous utiliserons, en outre, pour chaque énergie, une chambre d'ionisation calibrée sur place. Enfin, nous utiliserons des hélions puis des ions carbone, afin de vérifier qu'avec les hélions la sensibilité du système est plus grande du fait de la diminution de la saturation pour les pouvoirs d'arrêt plus faible.

Ulula mordeque acrius quam belua
(*Devise des barons de Hurlemort*)

S. Brussolo - Hurlemort

Sur toutes les pages lues
Sur toutes les pages blanches
Pierre sang papier ou cendre
J'écris ton nom

P. Éluard, Liberté

Conclusion

Nous nous sommes intéressés à l'interaction entre les ions et les matériaux scintillants, d'un point de vue théorique et expérimental. Nous avons également développé un prototype de dosimètre destiné aux faisceaux d'ions d'intérêt biologique.

D'un point de vue théorique nous avons étudié la perte d'énergie des ions dans la matière et le modèle de la trace moyenne puis développé, dans l'esprit de ce modèle, un calcul de dose radiale basé sur l'utilisation d'une équation de transport. Nous avons également étudié les mécanismes de la scintillation iono-induite.

Grâce à une littérature abondante, à des programmes largement distribués et des bases de données bien fournies on dispose aujourd'hui de données fiables pour le calcul de la perte d'énergie des ions dans la matière. Il faut cependant noter que d'importantes questions restent ouvertes, notamment en ce qui concerne la perte d'énergie des ions lourds, la validité de la règle d'addition de Bragg, le traitement rigoureux de la charge effective.

Nous nous sommes intéressés au modèle de la trace moyenne qui permet de décrire la dose radiale autour de la trace de l'ion en tenant compte de la dose due aux électrons secondaires. Cette approche est séduisante car elle s'applique dans de nombreux cas et permet notamment de calculer les sections efficaces de dégâts biologiques. Nous avons développé un calcul réaliste de dose radiale en prenant en compte l'éjection d'électrons tout le long de la trace et en traitant le transport de ces derniers à l'aide de l'équation de transport de Lewis. Dans le cas d'ions de haute énergie ayant un long parcours à travers la matière notre approche modifie le comportement à longue distance radiale par rapport à l'approche classique de Katz. A courte distance radiale notre approche ne modifie pas le comportement connu en $1/r^2$ mais elle est moins bien adaptée pour traiter ce cas.

De notre étude de la scintillation iono-induite il ressort qu'aucune des approches développées depuis les années 1950 ne semble faire l'unanimité. C'est pourquoi nous avons cru utile de présenter différentes approches, notamment les modèles utilisant la trace moyenne et ceux basés sur les travaux de Voltz où l'on prend en compte l'aspect temporel de la scintillation. Nous avons uti-

lisé notre modèle de trace moyenne en appliquant différentes hypothèses quant à la production de scintillation et constaté que ces hypothèses donnent des résultats d'égale qualité. La lecture de travaux récents [135, 136] nous pousse à penser que les approches basées sur le modèle de la trace moyenne sont indissociables d'une étude détaillée des mécanismes propres à chaque scintillateur et qu'il est sans doute illusoire de chercher un modèle valable pour tous les types de scintillateurs.

D'un point de vue expérimental nous nous sommes intéressés à la dégradation des propriétés de scintillation des solides organiques et aux modifications chimiques iono-induites. Ceci, afin de connaître la radiorésistance du scintillateur plastique prévu pour la dosimétrie et afin d'étudier de manière plus détaillée les mécanismes de dégradation de l'intensité de scintillation.

Nous avons mis en place un dispositif de mesure permettant de mesurer la dégradation de l'intensité de scintillation en utilisant une fibre optique et une tête de comptage de photon. Ce dispositif a d'abord permis de mesurer la section efficace de dégâts des centres scintillants dans l'anthracène et de valider le modèle de Birks qui n'avait jamais été vérifié pour d'autres particules que les alphas. Ce dispositif nous a également permis de montrer que la dégradation de l'intensité de scintillation du BC-418 (PVT + dopants scintillants) peut être décrite, en fonction de la fluence, par une superposition d'exponentielles décroissantes. Pour ce matériau, les expériences menées sur un vaste domaine de perte d'énergie (50-9000 keV/ μm) montrent que l'on perd 10 % de l'intensité de scintillation pour une fluence de 10^{11} ions/cm² et 50 % autour de 10^{12} ions/cm².

Nous avons également étudié par spectroscopie infrarouge les modifications de la matrice du BC-418 irradié par des ions. En étudiant les données obtenues avec des ions carbone de 11 MeV/uma il nous a semblé que les ajustements réalisés avec les modèles publiés dans la littérature n'étaient pas pleinement satisfaisants. Par contre, lorsque nous avons considéré, de manière très simple, deux contributions à l'origine des dégâts, l'une provenant du cœur de la trace et l'autre du halo, nous avons obtenu des ajustements réellement satisfaisants. Les données pour étayer ce modèle sont peu nombreuses et nous sommes désireux d'en acquérir rapidement plus, afin d'affirmer ou infirmer notre explication.

Enfin, d'un point de vue plus pratique, nous avons affronté la saturation de l'efficacité de scintillation afin de mettre au point un dosimètre dédié aux faisceaux d'ions d'intérêt biologique. Notre prototype est constitué d'une sonde dans laquelle est inclus le scintillateur BC-418. Lorsque le scintillateur est irradié la dose déposée par le faisceau est convertie en scintillation que l'on collecte et transporte à l'aide d'une fibre optique. L'intérêt d'utiliser ce scintillateur plastique réside dans le fait que sa densité est équivalente à celle de l'eau (des tissus à peu de chose près) et que les doses déposées dans le plas-

tique et de l'eau sont les mêmes. Le prototype actuel a été testé dans des conditions d'irradiations biologiques au National Institute of Radiobiological Sciences (Chiba, Japon) sous faisceau de carbone. Le dosimètre développé permet un monitoring en temps réel du faisceau pulsé, mais présente une faible sensibilité. Ce manque de sensibilité n'est pas un obstacle insurmontable si l'on s'attache à réduire les incertitudes de mesure, ce à quoi nous travaillons pour le prochain test au NIRS en février 2005.

Salut! Divinités par la rose et le sel

P. Valéry, La Jeune Parque

Références

- [1] U. Fano. “Penetration of protons, alpha particles and mesons”. In “Studies in penetration of charged particle in matter”, volume 39, pp. 287–348. National Academy of Science-National Research Council (**1964**).
- [2] J. Ziegler. “The stopping of energetic light ions in elemental matter”. *J. Appl. Phys/Rev. Appl. Phys*, **85**; pp. 1249–1272 (**1999**).
- [3] “ICRU Report 49: Stopping powers and ranges for protons and alpha particles” (**1993**).
- [4] “<http://physics.nist.gov/cgi-bin/star/compos.pl>” (**2003**).
- [5] W. Barkas and M. Berger. “Tables of Energy losses and ranges of heavy charged particles”. In “Studies in penetration of charged particle in matter”, volume 39, p. 103. National Academy of Science-National Research Council (**1964**).
- [6] H. Tai, H. Bichel, J. Wilson, J. Shinn, F. Cucinotta, and F. Badavi. “Comparison of stopping power and range databases for radiation transport study”. Technical paper TP-3644, NASA (**1997**).
- [7] “<http://www.srim.org>” (**2003**).
- [8] “<http://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/PSTAR.html>” (**2003**).
- [9] H. A. Bethe. *Handbuch der Physik*. Springer, Berlin (**1933**).
- [10] S. Seltzer and M. Berger. “Evaluation of the Collision stopping power of elements and compounds for electrons and positrons”. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, **33**; pp. 1189–1218 (**1981**).
- [11] S. Seltzer and M. Berger. “Improved procedure for calculating the collision stopping power of elements and compounds for electrons and positrons”. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, **35** (7); pp. 665–676 (**1983**).
- [12] R. Sternheimer. “The density effect for the ionization loss in various materials”. *Phys. Rev.*, **88** (4); pp. 851–859 (**1952**).
- [13] R. Sternheimer, S. Seltzer, and M. Berger. “Density effect for the ionization loss of charged particles in various substances”. *Phys. Rev. B.*, **26** (11); pp. 6067–6076 (**1982**).
- [14] “<http://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/ESTAR.html>” (**2003**).

- [15] “ICRU Report 37: Stopping Powers for electrons and positrons” (1984).
- [16] A. Miterev. “Energy loss and linear ranges of electrons in amorphous media”. *High Energy Chemistry*, **30** (2); pp. 86–88 (1996).
- [17] H. Bradt and B. Peters. “Investigation of the primary cosmic radiation with nuclear photographic emulsions”. *Phys. Rev.*, **74**; pp. 1828–1837 (1948).
- [18] E. Kobetich and R. Katz. “Energy deposition by electron beams and delta-rays”. *Phys. Rev.*, **170** (2); pp. 391–396 (1968).
- [19] M. Rudd, C. Sautter, and C. Bayley. “Energy and angular distributions of electrons ejected from Hydrogen and Helium by 100- to 300-keV protons”. *Phys. Rev.*, **151**; pp. 20–27 (1966).
- [20] W. Barkas. “Information content of particles track”. *Phys. Rev.*, **124** (3); pp. 897–903 (1961).
- [21] R. Katz and E. Kobetich. “Particle tracks in emulsion”. *Phys. Rev.*, **186** (2); pp. 344–351 (1969).
- [22] R. Katz and E. Kobetich. “Width of heavy-ion tracks in emulsion,”. *Phys. Rev.*, **170** (2); pp. 401–405 (1968).
- [23] R. Katz and E. Kobetich. “Formation of etchable tracks in dielectric” . *Phys. Rev.*, **170** (2); pp. 401–405 (1968).
- [24] P. A. M. Dirac. “The theory of magnetic poles” . *Phys. Rev.*, **74** (7); pp. 817–830 (1948).
- [25] R. Katz and J. Butts. “Width of ion and monopole tracks in emulsion” . *Phys. Rev.*, **137** (1); pp. 198–203 (1965).
- [26] M. Toulemonde, C. Dufour, and E. Paumier. “Transient thermal process after a high-energy heavy ion irradiation of amorphous metals and semiconductors” . *Phys. Rev. B*, **46** (22); pp. 14362–14369 (1992).
- [27] M. Toulemonde, C. Dufour, Z. Wang, and E. Paumier. “Atomic and cluster ion bombardement in the electronic stopping power regime : a thermal spike description” . *Nucl. Instr. and Meth. B*, **112**; pp. 26–29 (1996).
- [28] G. Szenes. “Analysis of the evolution of latent tracks in polyvinylidene fluoride” . *Nucl. Instr. and Meth. B*, **155** (3); pp. 301–307 (1999).
- [29] H. De Cicco, G. Saint-Martin, M. Alurralde, O. Bernaola, and A. Filevich. “Ion tracks in an organic material : application of the liquid drop model” . *Nucl. Instr. and Meth. B*, **173** (4); pp. 455–462 (2001).
- [30] A. Miotello, R. Kelly, and M. Dapor. “Fast particles irradiation of solids : excitation of secondary electrons and the related energy-deposition function” . *Nucl. Instr. and Meth. B*, **141**; pp. 16–24 (1998).
- [31] A. Miotello and R. Kelly. “Contribution of vaporization and boiling to thermal-spike sputtering by ions or laser pulses” . *Phys. Rev. E*, **60** (3); pp. 2616–2625 (1999).

-
- [32] B. S. Rao. “A simple formula for the transmission and absorption of monoenergetic electrons”. *Nucl. Instr. and Meth.*, **155** (1); pp. 155–156 (**1966**).
- [33] K. Koch, W. Tuszynski, and H. Voit. “Luminescence induced by swift atomic ions in samples with nanoscale dimensions”. *Nucl. Instr. and Meth. B*, **209**; pp. 48–54 (**2003**).
- [34] K. Koch, W. Tuszynski, C. Tomaschko, and H. Voit. “Luminescence in thin molecular samples by bombardment with single MeV atomic ions”. *Nucl. Instr. and Meth. B*, **146** (1-4); pp. 190–197 (**1998**).
- [35] A. Menchaca-Rocha, R. Alfaro, E. Belmont-Moreno, and A. Martínez-Dávalos. “Interpretation of non-linear Si p-i-n detector response data to low Z ions”. *Nucl. Instr. and Meth. B*, **201** (2); pp. 426–430 (**2002**).
- [36] A. Menchaca-Rocha, J. Cabrera, R. Alfaro, E. Belmont-Moreno, and A. Martínez-Dávalos. “A new Approach to deal with non-linearities in Si detector response”. *Nucl. Instr. and Meth. B*, **207** (3); pp. 356–367 (**2003**).
- [37] F. Cucinotta, R. Katz, J. Wilson, and R. Dubey. “Heavy ion track structure calculations for radial dose in arbitrary materials”. Technical memorandum TM-3497, NASA (**1995**).
- [38] M. Rudd. “User-friendly model for the energy distribution of electrons from proton or electron collisions”. *Nucl. Tracks. Radiat. Meas.*, **16** (2-3); pp. 213–218 (**1989**).
- [39] F. Cucinotta, H. Nikjoo, and D. Goodhead. “Applications of amorphous track models in radiation biology”. *Radiat. Environ. Bioph.*, **38** (2); pp. 81–92 (**1999**).
- [40] F. Cucinotta, R. Katz, and J. Wilson. “Track structure model for radial distributions of electron spectra and event spectra from high-energy ions”. Technical Publication TP-208707, NASA (**1998**).
- [41] R. Katz, F. A. Cucinotta, and C. Zhang. “The calculation of radial dose from heavy ions: predictions of biological cation cross sections”. *Nucl. Instr. and Meth. B*, **107** (1-4); pp. 287–291 (**1996**).
- [42] F. Cucinotta, J. Wilson, M. Shavers, and R. Katz. “The calculation of heavy ion inactivation and mutation rates in the track structure model”. Technical Publication TP-3630, NASA (**1997**).
- [43] H. W. Lewis. “Multiple Scattering in an infinite Medium”. *Phys. Rev.*, **78** (5); pp. 526–529 (**1950**).
- [44] L. V. Spencer. “Theory of Electron Penetration”. *Phys. Rev.*, **98** (6); p. 1597 (**1955**).
- [45] U. Fano. “Inelastic collisions and the Molière theory of multiple scattering”. *Phys. Rev.*, **93** (1); pp. 117–120 (**1954**).

- [46] R. Brown. “Coherent and incoherent X-ray scattering by bound electrons. II. Three- and four-electrons atoms”. *Phys. Rev. A*, **2** (3); pp. 614–617 (**1970**).
- [47] D. Cromer and J. Mann. “Compton scattering factors for spherically symmetric free atoms”. *J. Chem. Phys.*, **47** (6); pp. 1892–1893 (**1967**).
- [48] J. A. Wheeler and W. L. Jr. “Influence of atomic electrons on radiation pair production”. *Phys. Rev.*, **55** (1); pp. 117–120 (**1939**).
- [49] S. Selby. *Handbook of tables mathematics*. The Chemical Rubber CO., Cleveland (**1967**).
- [50] A. I. Golovin. “Numerical solution of the equation of electron transport in matter”. *High Temperature*, **40** (2); pp. 176–183 (**2002**).
- [51] M. Berger and L. V. Spencer. “General relation between fluxes from collimated point and plane source of radiation”. *Phys. Rev.*, **113** (2); pp. 408–411 (**1958**).
- [52] K. Michaelian and A. Menchaca-Rocha. “Model of ion-induced luminescence based on energy deposition by secondary electrons”. *Phys. Rev. B*, **49** (22); pp. 15.550–15.562 (**1994**).
- [53] A. Sharma, A. Fettouhi, A. Schinner, and P. Sigmund. “Stopping of swift ions in compounds”. *Nucl. Instr. and Meth. B*, **218**; pp. 19–28 (**2004**).
- [54] P. Sigmund and A. Schinner. “Binary theory of light-ion stopping”. *Nucl. Instr. and Meth. B*, **193** (1-4); pp. 49–55 (**2002**).
- [55] H. Kamitsubo. “Heavy ion science”. *Oyo Buturi*, **43**; pp. 1019–1028 (**1974**).
- [56] L. Northcliffe and R. Schilling. “Range and stopping-power tables for heavy ions”. *Nucl. Data Tables A*, **7**; p. 233 (**1970**).
- [57] B. Valeur. *Molecular Fluorescence*. John Wiley & Sons, London (**2001**).
- [58] E. Zych, C. Brecher, A. J. Wojtowicz, and H. Lingertat. “Luminescence properties of Ce-activated YAG optical ceramic scintillator”. *J. Lumin.*, **75** (3); pp. 193–203 (**1997**).
- [59] V. V. Nagarkar, S. R. Miller, S. V. Tipnisand, A. Lempickiand, C. Brecher, and H. Lingertat. “A new large area scintillator screen for X-ray imaging”. *Nucl. Instr. and Meth. B*, **213**; pp. 250–254 (**2004**).
- [60] M. J. Weber. “Inorganic scintillators: today and tomorrow”. *J. Lumi.*, **100**; pp. 35–45 (**2002**).
- [61] G. Blasse. “Scintillator Materials”. *Chem. Mater.*, **6**; pp. 1465–1475 (**1994**).
- [62] D. Bédérède, E. Bougamont, P. Bourgeois, F. X. Gentit, Y. Piret, and G. Tauzin. “Performances of the CsI(Tl) detector element of the GLAST calorimeter”. *Nucl. Instr. and Meth. A*, **518** (1-2); pp. 15–18 (**2004**).

-
- [63] R. Bernabei, M. Amato, P. Belli, and F. Cappella, *et al.* “WIMP search by the DAMA experiment at Gran Sasso”. *Nucl. Phys. B-Proc. Sup.*, **124**; pp. 181–184 (2003).
- [64] J. Birks. *Photophysics of aromatic molecules*. Wiley-Interscience, London (1970).
- [65] R. Voltz. “Radioluminescence des milieux organiques”. In “Actions Chimiques et Biologiques des Radiations”, volume 13, pp. 1–55. Masson Éditeurs (1969).
- [66] F. Brooks. “Development of organic scintillators”. *Nucl. Instr. and Meth.*, **162** (1-3); pp. 477–405 (1979).
- [67] L. Spencer and U. Fano. “Energy spectrum from electron slowing down”. *Phys. Rev.*, **93** (6); pp. 1172–1181 (1954).
- [68] J. Lopes Da Silva. “Radioluminescence des milieux organiques: étude de la luminescence spécifique des scintillateurs aromatiques condensés”. *Le Journal de Physique*, **39**; pp. 561–572 (1978).
- [69] C. Fuchs, F. Heisel, and R. Voltz. “Formation of excited singlet states in irradiated aromatic liquids”. *J. Chem. Phys.*, **76** (25); pp. 3867–3875 (1972).
- [70] A. Quaranta, S. Carturan, G. Maggioni, and P. Milazzo *et al.* “Polyimide-based scintillating thin films”. *IEEE T. Nucl. Sci.*, **48** (2); pp. 219–224 (2001).
- [71] V. G. Vasil’chenko, V. G. Lapshinand, A. I. Peresyppkin, A. A. Konstantinchenkoand, A. I. Pyshchev, V. M. Shershukov, B. V. Semenov, and A. S. Solov’ev. “New results on radiation damage studies of plastic scintillators”. *Nucl. Instr. and Meth. A*, **369** (1); pp. 55–61 (1996).
- [72] A. Hallam and J. Birks. “Energy transfer inn organic systems XIII. Plastic scintillators.” *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, **11** (18); pp. 3273–3287 (1978).
- [73] F. Heisel, G. Laustriat, and R. Voltz. “Radioluminescence et transfert d’énergie dans les scintillateurs plastiques”. In Masson, editor, “Séminaires de chimie de l’état du solide. Quelques aspects de l’état solide organique.”, volume 5, pp. 57–77 (1970).
- [74] R. K. Swank and W. L. Buck. “The scintillation process in plastic solid solutions”. *Phys. Rev.*, **91** (4); pp. 927–933 (1953).
- [75] A. Mozumder and J. Magee. “Model of tracks of ionizing radiations for radical creation mechanisms”. *Radiation Research*, **28** (2); pp. 203–214 (1966).
- [76] A.M. Botelho do Rego and J. Lopes Da Silva. “Delayed specific luminescence of organic scintillators”. *Chem. Phys. Lett.*, **105** (5); pp. 559–562 (1984).

- [77] H. Kallmann and G. J. Brucker. “Decay times of fluorescent substances excited by high-energy radiation”. *Phys. Rev.*, **108** (5); pp. 1122–1130 (1957).
- [78] Laura M.I. de Carvalho and J. Lopes Da Silva. “Scintillation intensity on NE-102A screens: numerical integration of an expression for the radioluminescence yield, eventual application as a method of particle identification”. *Nucl. Instr. and Meth.*, **184** (2-3); pp. 563–570 (1981).
- [79] L. Muga and G. Griffith. “Specific luminescence studies in plastic scintillator”. *Phys. Rev. B*, **9** (9); pp. 3.639–3.649 (1974).
- [80] M. Luntz. “Track-effect theory of scintillation efficiency”. *Phys. Rev. B*, **4** (9); pp. 2857–2868 (1971).
- [81] S. Ahlen, B. Cartwright, and G. Tarlé. “Return to unsaturated response of polymeric scintillators excited by relativistic heavy ions”. *Nucl. Instr. and Meth.*, **147** (2); pp. 321–328 (1977).
- [82] J. Birks. “The specific fluorescence of anthracene and other organic materials”. *Phys. Rev.*, **54**; pp. 364–365 (1951).
- [83] A. Meyer and R. Murray. “Scintillation response of activated inorganic crystals to various charged particles”. *Phys. Rev.*, **122** (3); pp. 815–826 (1961).
- [84] G. Wright. “Scintillation response of organic phosphors”. *Phys. Rev.*, **91** (5); pp. 1282–1283 (1953).
- [85] C. Chou. “The nature of the saturation effect of fluorescent scintillators”. *Phys. Rev.*, **87** (5); pp. 904–905 (1952).
- [86] E. Newman and F. Steigert. “Response of NaI(Tl) to energetic heavy ions”. *Phys. Rev.*, **118**; pp. 1575–1578 (1960).
- [87] A. Meyer and R. Murray. “Effect of energetic secondary electrons on the scintillation process in alkali halide crystals”. *Phys. Rev.*, **128** (1); pp. 98–105 (1962).
- [88] R. Katz and E. Kobetich. “Response of NaI(Tl) to energetic heavy ions”. *Phys. Rev.*, **170** (2); pp. 397–400 (1968).
- [89] H. Dertinger and H. Hung. *Molecular Radiation Biology. The action of ionizing radiation on elementary biological objects*. Springer-Verlag, New-York (1970).
- [90] R. Katz, S. Sharma, and M. Homayoonfar. “Detection of energetic heavy ions”. *Nucl. Instr. and Meth.*, **100** (1); pp. 13–32 (1972).
- [91] L. Muga and M. Diksic. “Refined model of luminescence production in plastic scintillators”. *Nucl. Instr. and Meth.*, **122**; pp. 553–558 (1974).
- [92] K. Michaelian, A. Menchaca-Rocha, and E. Belmont-Moreno. “Scintillation response of nuclear particle detectors”. *Nucl. Instr. and Meth. A*, **356** (2-3); pp. 297–303 (1995).

-
- [93] A. Menchaca-Rocha, M. Buénerd, L. Gallin-Martel, F. Ohlsson-Malek, and T. Thuillier. “Response measurements of NE102 to $Z=2-6$ ions at $E/A=0.15-1.5$ GeV, and predictions for higher Z 's”. *Nucl. Instr. and Meth. A*, **438**; pp. 322–332 (1999).
- [94] A. Menchaca-Rocha, M. Buénerd, L. Gallin-Martel, F. Ohlsson-Malek, and T. Thuillier. “The response of BGO to $E/A=150-600$ MeV $Z=2-6$ ions”. *Nucl. Instr. and Meth. A*, **444**; pp. 584–590 (2000).
- [95] H. Cruz-Galindo, K. Michaelian, A. Martínez-Dávalos, E. Belmont-Moreno, and S. Galindo. “Luminescence model with quantum impact parameter for low energy ions”. *Nucl. Instr. and Meth. B*, **194**; pp. 319–322 (2002).
- [96] A. Martínez-Dávalos, E. Belmont-Moreno, and K. Michaelian. “Light-output response of CsI(Tl) detectors for low-energy ions”. *J. Lumi.*, **72** (74); pp. 769–771 (1997).
- [97] K. Michaelian, A. Menchaca-Rocha, and S. Hilarion. “Ion-induced luminescence”. *J. Lumi.*, **72** (74); pp. 740–741 (1997).
- [98] R. Voltz, J. L. D. Silva, and A. Coche. “Influence of the nature of ionizing particles on the specific luminescence of organic scintillators”. *J. Chem. Phys.*, **45** (9); pp. 3306–3311 (1966).
- [99] J. Lopes Da Silva and R. Voltz. “Variation du rendement de radioluminescence des scintillateurs organiques avec la perte d'énergie et le nombre de charges des particules ionisantes”. *Revue de physique appliquée*, **7**; pp. 127–132 (1972).
- [100] S. Ahlen. “ Z_1^7 stopping-power formula for fast heavy ions”. *Phys. Rev. A*, **17** (3); pp. 1236–1239 (1978).
- [101] G. Tarlé, S. Ahlen, and B. Cartwright. “Cosmic Ray isotope abundances from chromium to nickel”. *Ap. J.*, **230**; pp. 607–620 (1979).
- [102] M. Salamon and S. Ahlen. “Plastic scintillator response to relativistic Ne, Ar, Fe ions”. *Nucl. Instr. and Meth.*, **195** (2-3); pp. 557–568 (1982).
- [103] A. Buffington, C. Orth, and T. Mast. “A measurement of cosmic-ray beryllium isotopes from 200 to 1500 MeV per nucleon”. *Ap. J.*, **226**; pp. 355–371 (1978).
- [104] K. Schwartz, C. Trautmann, and R. Neumann. “Electronic excitations and heavy-ion-induced processes in ionic crystals”. *Nucl. Instr. and Meth. B*, **209**; pp. 73–84 (2003).
- [105] M. Koshimizu, K. Shibuya, K. Asai, and H. Shibata. “Observation of local heating in an ion track by measuring the ion-induced luminescence spectrum”. *Nucl. Instr. and Meth. B*, **206**; pp. 57–60 (2003).
- [106] J. Birks. “The scintillation process in alkali halide crystals”. *IEEE T. Nucl. Sci.*, **NS-11** (3); pp. 4–11 (1964).

- [107] J. S. Butterworth, P. D. Esser, and P. W. Levy. “Formation of color centers in KCl:Tl by gamma irradiation at 21C”. *Phys. Rev. B*, **2** (8); pp. 3340–3353 (1970).
- [108] W. Busjan, K. Wick, and T. Zoufal. “Shortlived absorption centers in plastic scintillators and their influence on the fluorescence light yield”. *Nucl. Instr. and Meth. B*, **152** (1); pp. 89–104 (1999).
- [109] B. Wulkop, K. Wick, W. Busjan, A. Dannemann, and U. Holm. “Evidence for the creation of short-lived absorption centers in irradiated scintillators”. *Nucl. Instr. and Meth. B*, **95** (1); pp. 141–143 (1995).
- [110] W. Busjan, K. Wick, and T. Zoufal. “Radiation induced absorption due to shortlived absorption centers in plastic scintillators”. *Nucl. Phys. B-Proc. Sup.*, **61** (3); pp. 504–508 (1998).
- [111] B. Wulkop, K. Wick, W. Busjan, A. Dannemann, and U. Holm. “On the formation of shortlived absorption centers during irradiation of plastic scintillators,”. *Nucl. Phys. B-Proc. Sup.*, **44** (1-3); pp. 542–546 (1995).
- [112] J. Birks and F. Black. “Deterioration of anthracene under α -particle irradiation”. *Proc. Phys. Soc. A*, **64** (10); pp. 511–512 (1951).
- [113] R. Powell and L. Harrah. “Nonlinear response of poly(vinyl toluene) plastic scintillators at high excitation doses”. *J. Chem. Phys.*, **55** (4); pp. 1878–1884 (1971).
- [114] E. Strauss, W. J. Maniscalco, W. M. Yen, U. C. Kellner, and V. Gerhardt. “Exciton-Exciton Interaction in $KMnF_3$ ”. *Phys. Rev. Lett.*, **44** (4); pp. 824–827 (1980).
- [115] R. Gwin and R. Murray. “Scintillation process in CsI(Tl).I. Comparison with activator saturation model”. *Phys. Rev*, **131** (2); pp. 501–507 (1963).
- [116] M. Salamon and S. Ahlen. “NaI:Tl response to Ne, Ar and Fe ions”. *Phys. Rev. B*, **24** (9); pp. 5026–5036 (1981).
- [117] N. Matsufuji, T. Kanai, H. Komami, and T. Kohno. “Response of a NE102 scintillator to passing-through relativistic heavy ions”. *Nucl. Instr. and Meth. A*, **437** (2-3); pp. 346–353 (1999).
- [118] G. Laustriat. “The luminescence decay of organic scintillators”. *Molecular Crystals*, **4**; pp. 127–145 (1968).
- [119] T. King and R. Voltz. “The time dependance of scintillation intensity in aromatic materials”. *Proceedings of the Royal Society, A.*, **289**; pp. 424–439 (1966).
- [120] P. Harihar, H. Chen, W. Stapor, and A. Knudson. “Scintillation decays in a trans-stilbene crystal”. *Nucl. Instr. and Meth. A*, **336** (1-2); pp. 176–178 (1993).
- [121] N. Balalykin, I. Golutvin, O. Kochetov, V. Kuznetsov, and V.K. Makoveev *et. al.* “Measurement of the plastic scintillator response

-
- in the magnetic field”. *Nucl. Instr. and Meth. A*, **390** (3); pp. 286–292 (1997).
- [122] M. Bertoldi, D. Green, V. Hagopian, J. Marraffino, A. Ronzhin, and J. Thomaston. “Scintillators in magnetic field up to 20 T”. *Nucl. Instr. and Meth. A*, **386** (2-3); pp. 301–306 (1997).
- [123] J. Cumalat, H. Cheung, J. Hased, B. Smith, and A. Bross. “Effects of magnetic fields on the light yield of scintillators”. *Nucl. Instr. and Meth. A*, **293** (3); pp. 606–614 (1990).
- [124] D. Blömker, U. Holm, R. Klanner, and B. Krebs. “Plastic scintillators in magnetic fields”. *Nucl. Instr. and Meth. A*, **311** (3); pp. 505–511 (1992).
- [125] G. Kraft. “Tumor therapy with heavy charged particles”. *Prog. Part. Nucl. Phys.*, **45**; pp. 473–544 (2000).
- [126] C. Zeitlin, A. Fukumura, L. Heilbronn, Y. Iwata, J. Miller, and T. Murakami. “Fragmentation cross sections of 600 MeV/nucleon ^{20}Ne on elemental targets”. *Phys. Rev. C*, **64**; pp. 24 902–24 918 (2001).
- [127] M. R. Shavers, F. A. Cucinotta, and J. W. Wilson. “HZETRN: neutron and proton production in quasi-elastic scattering of GCR heavy-ions”. *Rad. Meas.*, **33** (3); pp. 347–353 (2001).
- [128] S.-I. Ohno, K. Furukawa, M. Taguchi, N. Namba, and H. Watanabe. “Predicted radiolysis yield in a Fricke solution irradiated with various heavy ions”. *Radiat. Phys. Chem.*, **55** (5-6); pp. 503–506 (1999).
- [129] S.-I. Ohno, K. Furukawa, M. Taguchi, T. Kojima, and H. Watanabe. “An ion-track structure model based on experimental measurements and its application to calculate radiolysis yields”. *Radiat. Phys. Chem.*, **60** (4-5); pp. 259–262 (2001).
- [130] M. Buenerd, D. Hendrie, and U. Jahnke *et al.* “Response of Pilot U scintillator to heavy ions”. *Nucl. Instr. and Meth.*, **136** (1); pp. 173–177 (1976).
- [131] U. Bechthold, S. Hagmann, J. Ullrich, B. Bathelt, A. Bohris, R. Moshhammer, U. Ramm, C. Bhalla, G. Kraft, , and H. Schmidt-Bcking. “Intra-atomic double scattering of binary encounter electrons in collisions of fast heavy ions with atoms and molecules”. *Phys. Rev. Lett.*, **79** (3); pp. 2034–2037 (1997).
- [132] M. Rudd. “Differential cross-sections for secondary electron production by proton impact”. *Phys. Rev. A*, **38** (12); pp. 6129–6137 (1988).
- [133] G. N. Ogurtsov. “Energy spectra of electrons ejected in Ion-Atom Collisions”. *Rev. Mod. Phys.*, **44** (1); pp. 1–17 (1972).
- [134] G. N. Ogurtsov. “Erratum: Energy spectra of electrons ejected in Ion-Atom Collisions”. *Rev. Mod. Phys.*, **44** (4); pp. 1–17 (1972).
- [135] M. Pârlog, B. Borderie, M. Rivet, and mboxG. Tăbăcaru *et al.* “Response of CsI(Tl) scintillators over a large range in energy and atomic number

- of ions Part I: recombination and δ -electrons". *Nucl. Instr. and Meth. A*, **482** (3); pp. 674–692 (**2002**).
- [136] A. Quaranta, A. Vomiero, and G. D. Mea. "Scintillation mechanism and efficiency of ternary scintillators thin films". *IEEE T. Nucl. Sci.*, **49** (5); pp. 2610–2615 (**2002**).
- [137] Y. M. Protopopov and V. Vasil'chenko. "Radiation damage in plastic scintillators and optical fibers". *Nucl. Instr. and Meth. B*, **95** (4); pp. 496–500 (**1995**).
- [138] A. Beddar, T. Kinsella, and C. Sibata. "A miniature "scintillator-fiberoptic-PMT" detector system for the dosimetry of small fields in stereotactic surgery". *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **48** (9); pp. 924–928 (**2001**).
- [139] L. Torrasi. "Plastic scintillator investigations for relative dosimetry in proton-therapy". *Nucl. Instr. and Meth. B*, **170**; pp. 523–530 (**2000**).
- [140] L. Torrasi. "Radiation damage in polyvinyltoluene (PVT)". *Radiat. Phys. Chem.*, **63**; pp. 89–92 (**2002**).
- [141] K. K. Okudaira, E. Morikawa, S. Hasegawa, P. T. Sprunger, V. Saile, K. Seki, Y. Harada, and N. Ueno. "Radiation damage of poly(methylmethacrylate) thin films analyzed by UPS". *J. Electron Spectrosc.*, **88-91**; pp. 913–917 (**1998**).
- [142] C. Zorn. "A pedestrian's guide to radiation damage in plastic scintillators". *Nuc. Phys. B (Proc. Suppl.)*, **32**; pp. 377–383 (**1993**).
- [143] K. Wick and T. Zoufal. "Unexpected behaviour of polystyrene-based scintillating fibers during irradiation at low doses and low dose rates". *Nucl. Instr. and Meth. B*, **185** (1-4); pp. 341–345 (**2001**).
- [144] M. Hamada, P. Rela, F. da Costa, and C. de Mesquita. "Radiation damage studies on the optical and mechanical properties of plastic scintillators". *Nucl. Instr. and Meth. A*, **422** (1-3); pp. 148–154 (**1999**).
- [145] U. Holm, D. Horstmann, and S. Schacht. "Oxygen diffusion and recovery of damage in irradiated polystyrene". *Nucl. Instr. and Meth. B*, **151** (1-4); pp. 453–456 (**1999**).
- [146] A. Quaranta, A. Vomiero, S. Carturan, G. Maggioni, and G. D. Mea. "New high radiation resistant scintillating thin films". *Synth. Metals*, **138** (1-2); pp. 275–279 (**2003**).
- [147] A. Quaranta, A. Vomiero, S. Carturan, G. Maggioni, and G. D. Mea. "Polymer film degradation under ion irradiation studied by ion beam induced luminescence (IBIL) and optical analyses". *Nucl. Instr. and Meth. B*, **191** (1-4); pp. 680–684 (**2002**).
- [148] G. Miersch, D. Habs, J. Kenntner, D. Schwalm, and A. Wolf. "Fast scintillators as radiation resistant heavy-ion detectors". *Nucl. Instr. and Meth. A*, **369** (1); pp. 277–283 (**1996**).

-
- [149] Hamamatsu Photonics. *Photon counting Head H7155 series* (1999).
Référence du document : TPHO1012E03.
- [150] P. Martin. *Photoexcitation de la fluorescence de recombinaison différée dans l'ultraviolet lointain et relaxation électronique des états super-excités dans les cristaux moléculaires organiques*. Ph.D. thesis, Université Louis Pasteur de Strasbourg (1993).
- [151] F. Cignoli, G.Zizak, S. Benecchi, and D. Tencalla. *Atlas of fluorescence spectra of aromatic hydrocarbons, Vol. 1*. Consiglio Nazionale delle Ricerche. Istituto Tecnologie dei Materiali e dei Processi Energetici, Milano-Italy (2002). Disponible à <http://www.tempe.mi.cnr.it/zizak/atlas/cld-atlas-eng.html>.
- [152] C. Liu, Z. Zhu, Y. Jin, Y. Sun, M. Hou, and Z.Wang, *et al.* "Study of effects in polyethylene terephthalate films induced by high-energy Ar ion irradiation". *Nucl. Instr. and Meth. B*, **169** (1-4); pp. 453–456 (1999).
- [153] R. Papaléo, R. Hérino, A. Hallén, A. Demirev, and B.U.R Sundqvist. "Swift atomic ion irradiation of C60 films: dependance of the damage cross-section on the primary ion stopping power." *Nucl. Instr. and Meth. B*, **116** (1-4); pp. 274–278 (1996).
- [154] L. Hu, X. Xu, J. Ilconich, S. Ellis, and M. Coleman. "Impact of H⁺ ion irradiation on Matrimid. I. Evolution in chemical structure." *J. of Applied Polymer Science*, **90**; pp. 2010–2019 (2003).
- [155] O. Puglisi, A. Licciardello, S. Pignataro, L. Calgano, and G. Foti. "Primary chemical events in ion bombarded polystyrene films: an infrared study". *Rad. Effects.*, **98**; pp. 161–170 (1986).
- [156] B. Stuart. *Modern Infrared Spectroscopy*. Wiley, New York (1996).
- [157] D. W. Mayo, F. A. Miller, and R. W. Hannah. *Course Notes on the Interpretation of Infrared and Raman Spectra*. John Willey and Sons, London (2004).
- [158] R. Swanepoel. "Determination of the thickness and optical constants of amorphous silicon". *J. Phys. E Sci. Instrum.*, **16** (12); pp. 1214–1222 (1983).
- [159] T. Yamauchi, H.Ichijo, and K.Oda. "Gamma-ray and ions irradiation effects on the optical property of CR-39 detector and their latent track size". In "Proceedings of the First International Symposium on Supercritical Water-cooled Reactors, Design and Technology", Tokyo (2000). ISBN4-901332-00-4.
- [160] T. Yamauchi, D. Mineyama, H. Nakai, K. Oda, and N. Yasuda. "Track core size estimation in CR-39 track detector using atomic force microscope and UV-visible spectrophotometer". *Nucl. Instr. and Meth. B*, **208**; pp. 149–154 (2003).
- [161] T. Yamauchi. "Studies on the nuclear tracks in CR-39 plastics". *Radiat. Meas.*, **36** (1-6); pp. 73–81 (2003).

- [162] R. Katz. “A track physics model of radiation action”. *Radiat. Phys. Chem.*, **37** (1); pp. 125–129 (1991).
- [163] R. Barillon, M. Fromm, A. Chambaudet, R. Katz, J. Stoquert, and A. Pape. “Bond scission cross sections for α -particles in cellulose nitrate (LR115)”. *Rad. Measurements*, **31** (1-6); pp. 71–75 (1999).
- [164] R. Barillon and T. Yamauchi. “Chemical bond scission induced by $^1\text{H}^+$, $^{16}\text{O}^{8+}$ and γ -rays in a cellulose nitrate detector (O-082)”. *Nucl. Instr. and Meth. B*, **208**; pp. 336–339 (2003).
- [165] R. Katz. “Dose”. *Radiat. Res.*, **137**; pp. 125–129 (1994).
- [166] R. R. Wilson. “Range, Straggling and Multiple Scattering of fast protons”. *Phys. Rev.*, **71** (6); pp. 385–386 (1947).
- [167] G. Kraft. “Tumortherapy with ions beams”. *Nucl. Instr. and Meth. A*, **454** (1); pp. 1–10 (2000).
- [168] R. Orecchia, M. Krengli, B. Jerecizeck-Fossa, S. Franzetti, and J. Gerard. “Clinical and research validity of hadrontherapy with ion beams”. *Cr. Rev. Oncol-Hem.*, **51** (2); pp. 81–90 (2004).
- [169] M. Suzuki, Y. Kase, H. Yamaguchi, T. Kanai, and K. Ando. “Relative biological effectiveness for cell-killing effect on various human cell lines irradiated with heavy-ion medical accelerator in Chiba (HIMAC) carbon-ion beams”. *Int J. Radiat. Oncol.*, **48** (1); pp. 241–250 (2000).
- [170] J. R. Alonso. “Review of ion beam therapy: present and future”. In “Proceedings of EPAC 2000”, Vienna (2000).
- [171] U. Amaldi. “Cancer therapy with particle accelerators”. *Nucl. Phys. A*, **654** (1-2); pp. C375–C379 (1999).
- [172] P. Pommier, J. Balosso, M. Bolla, and J. Gérard. “Le projet français ÉTOILE: données médicales actuelles de l’hadronthérapie par ions légers”. *Cancer Radiothérapie*, **6** (6); pp. 369–378 (2002).
- [173] U. Amaldi, G. Arduini, and L. Badano *et al.* “The Italian project for a hadrontherapy centre”. *Nucl. Instr. and Meth. A*, **360** (1-2); pp. 297–301 (1995).
- [174] A. Brahme, R. Lewensohn, U. Ringborg, U. Amaldi, F. Gerardi, and S. Rossi. “Design of a centre for biologically optimised light ion therapy in Stockholm”. *Nucl. Instr. and Meth. B*, **184** (4); pp. 569–588 (2001).
- [175] M. Scholz and G. Kraft. “Track structure and the calculation of biological effects of heavy charged particles”. *Adv. Space Res.*, **18** (1-2); pp. 5–14 (1996).
- [176] G. Noël, L. Feuvret, R. Ferrand, and J.-J. Mazon. “Le traitement par faisceaux de particules: hadronthérapie partie I: bases physiques et expérience clinique de la protonthérapie. Treatment with charged particles beams: hadrontherapy part I: physical basis and clinical experience of treatment with protons”. *Cancer/Radiothérapie*, **7** (5); pp. 321–339 (2003).

-
- [177] J. Besserer, P. Bilski, J. de Boer, and T. Kwiecien *et al.* “Dosimetry of low-energy protons and light ions”. *Phys. Med. Biol.*, **46**; pp. 473–475 (2001).
- [178] M. Durante, G. F. Grossi, M. Pugliese, and G. Gialanella. “Nuclear track detectors in cellular radiation biology”. *Radiat. Meas.*, **26** (2); pp. 179–186 (1996).
- [179] A. N. Golovchenko, R. I. J. Skvarč, S. Slavič, and R. Freeman *et al.* “Dosimetry of 40 and 70 MeV/n ^{16}O beams”. *Radiat. Meas.*, **28** (1-6); pp. 455–462 (1997).
- [180] R. Bonin, A. Boriano, F. Bourhaleb, and R. Cirio *et al.* “A pixel chamber to monitor the beam performances in hadron therapy”. *Nucl. Instr. and Meth. A*, **519** (3); pp. 674–686 (2004).
- [181] A. Fukumura, T. Hiraoka, K. Omata, and M. Takeshita, *et al.* “Carbon beam dosimetry intercomparison at HIMAC”. *Phys. Med. Biol.*, **43** (12); pp. 3459–3463 (1998).
- [182] P. Andreo and D. B. *et al.* “IAEA TRS-398. Absorbed dose determination in external beam radiotherapy: an international code of practice for dosimetry based on standards of absorbed dose to water.” Technical Publication TRS-398, IAEA (2004).
- [183] H. J. Brede, O. Hecker, and R. Hollnagel. “An absorbed dose to water calorimeter for collimated radiation fields”. *Nucl. Instr. and Meth. A*, **455** (3); pp. 721–732 (2000).
- [184] J. Fontbonne, G. Iltis, G. Ban, and A. Battala *et al.* “Scintillating fiber dosimeter for radiation therapy accelerator”. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **49** (5); pp. 2223–2227 (2002).
- [185] R. Nowotny. “LiF:W as a scintillator for dosimetry in diagnostic radiology”. *Phys. Med. Biol.*, **49** (12); pp. 2599–2611 (2004).
- [186] A. Beddar, S. Law, N. Suchowerska, and T. R. Mackie. “Plastic scintillator dosimetry: optimization of light collection efficiency”. *Phys. Med. Biol.*, **48** (3); pp. 1141–1152 (2003).
- [187] T. Kanai, M. Endo, S. Minohara, and N. Miyahara, *et al.* “Biophysical characteristics of HIMAC clinical irradiation system for heavy-ion radiation therapy”. *Int. J. Radiation Oncology Biol. Phys.*, **44** (1); pp. 201–210 (1999).
- [188] J.-M. Denis. “Faisceaux d’ions lourds: conditions dosimétriques nécessaires à l’expérimentation radiobiologique” (2004). Exposé présenté au JECR (Strasbourg).

Annexe du chapitre 1

I Calcul des moments de la DED

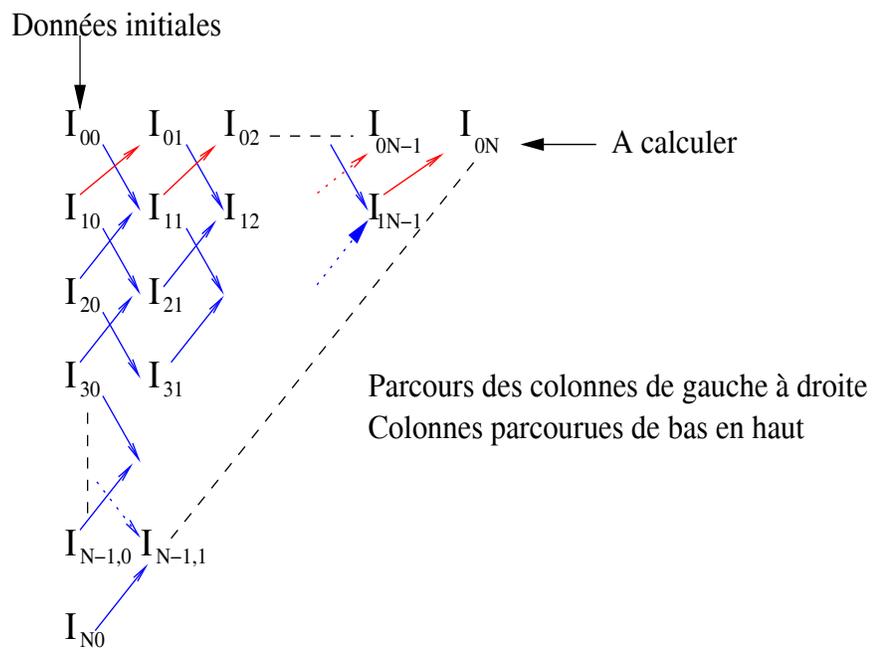


FIG. A-1 – Illustration de la méthode de calcul permettant d'obtenir les moments de la DED, les moments dans la première colonne sont connus et permettent de calculer les autres par récurrence.

II Comparaison des différents modèles de dose radiale

Les graphes ci-après donnent les rapports des valeurs des doses radiales calculées selon le modèle simple de Katz, le modèle de Michaelian et Menchaca-Rocha et notre modèle (noté Transport). L'exemple choisi concerne un ion ^{16}O (énergie nominale 150 MeV/uma) dans l'aluminium. Les rapports sont donnés à différentes énergies le long du parcours.

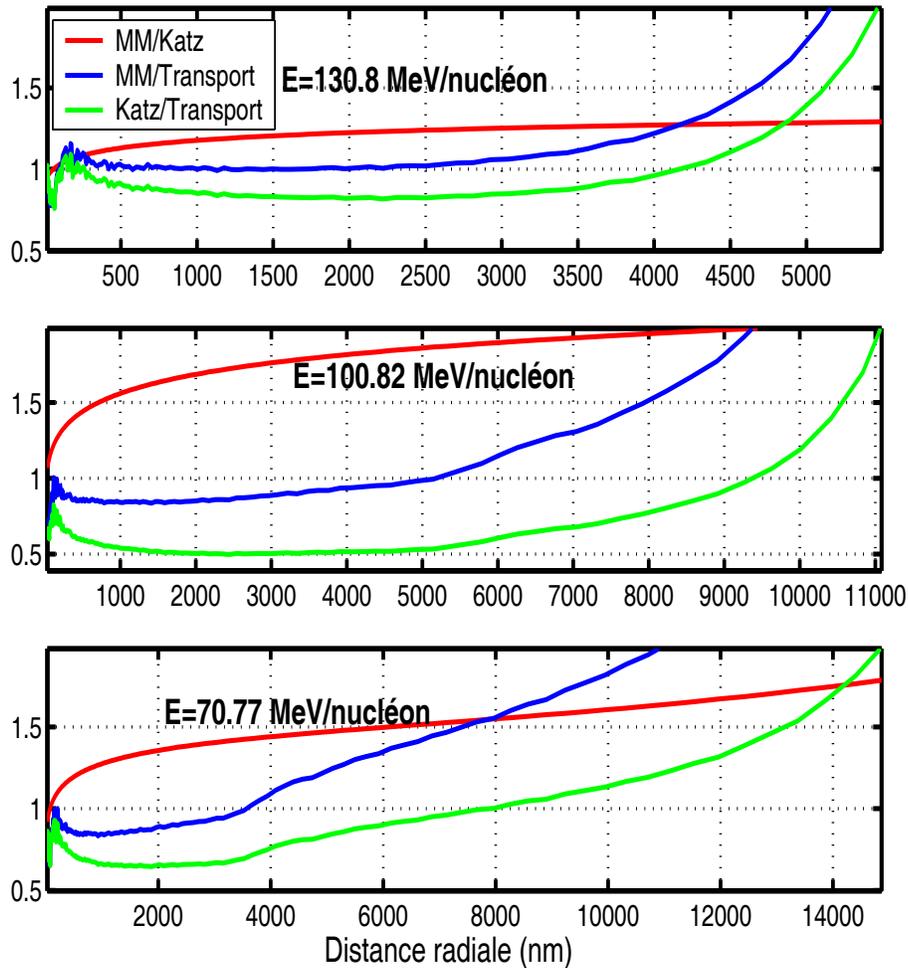


FIG. A-2 – Rapport des différents modèles (1)

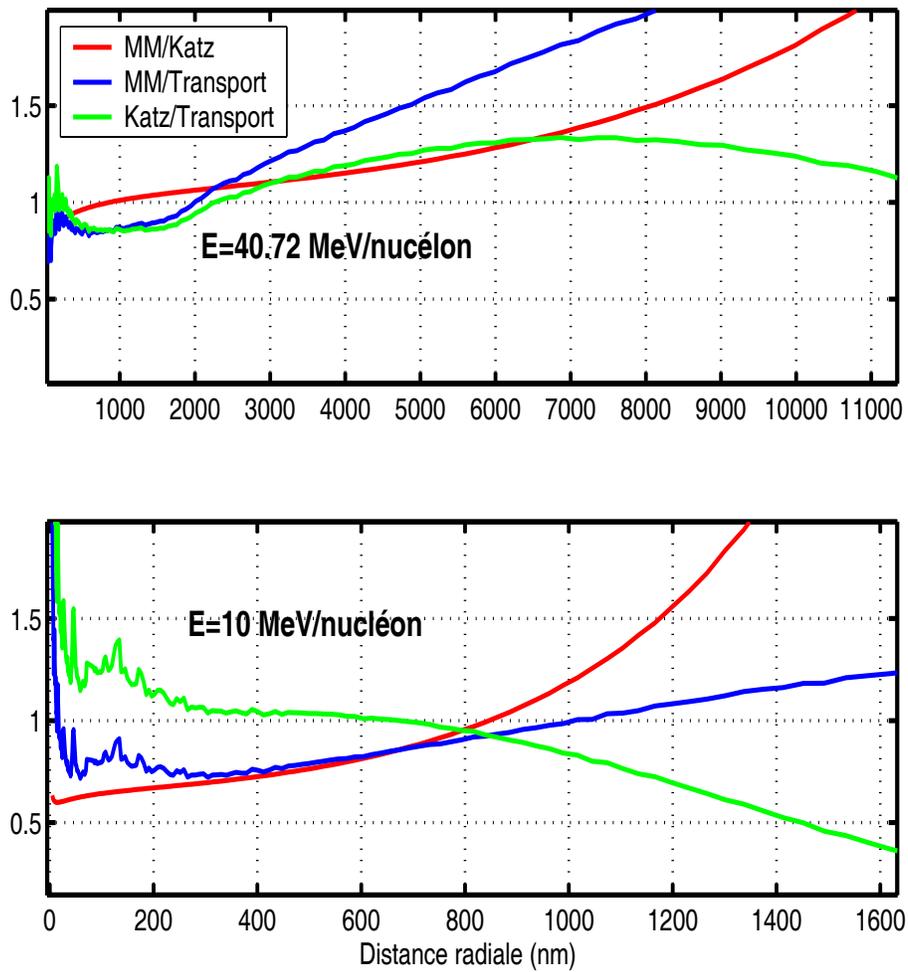


FIG. A-3 – Rapport des différents modèles (2)

III Profils de dose et contribution des électrons le long de la trace

Les graphes ci-dessous montrent les différentes contributions donnant la dose radiale le long de la trace de ^{16}O dans Al. Chaque série de 3 graphes illustre le calcul à une certaine énergie le long du parcours. Le graphe du haut donne la dose radiale qui est calculée en chaque point par l'intégration, le long du parcours de l'ion, d'une fonction du type $\text{DED} \cdot G$. Les graphes du bas donnent, les fonctions DED et $\text{DED} \cdot G$ utilisées pour le calcul.

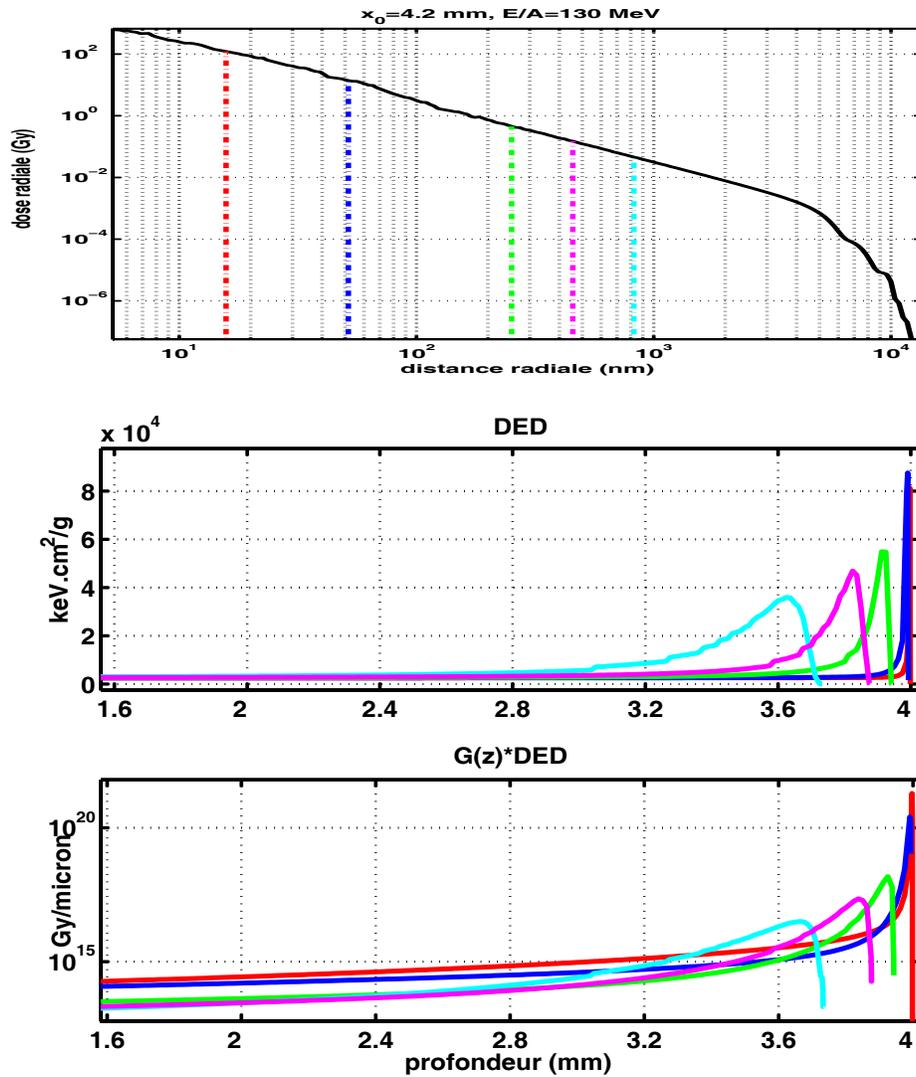


FIG. A-4 – Calcul de la dose radiale à $E/A=130 \text{ MeV}$

III. Profils de dose et contribution des électrons le long de la trace

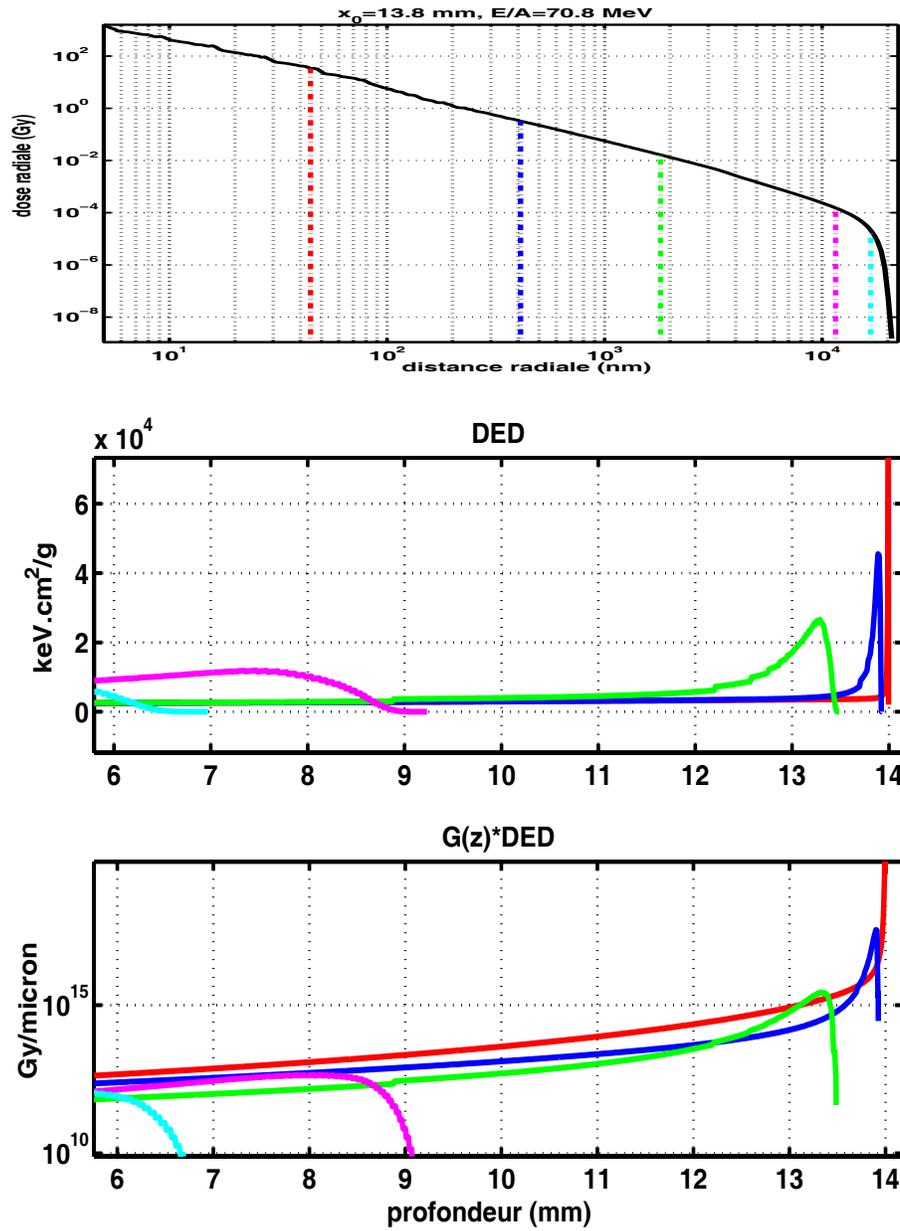


FIG. A-5 – Calcul de la dose radiale à $E/A=70.8 \text{ MeV}$

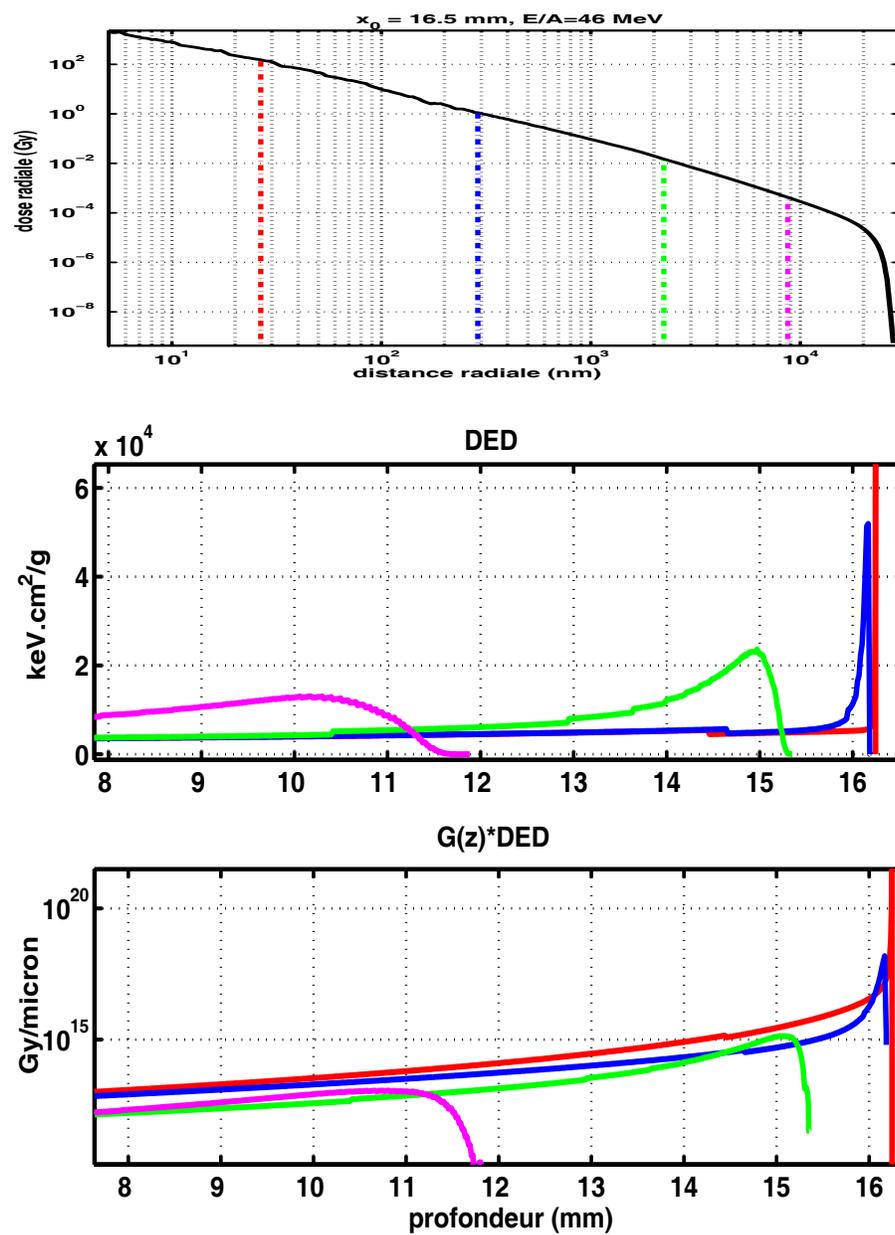


FIG. A-6 – Calcul de la dose radiale à $E/A=46$ MeV

III. Profils de dose et contribution des électrons le long de la trace

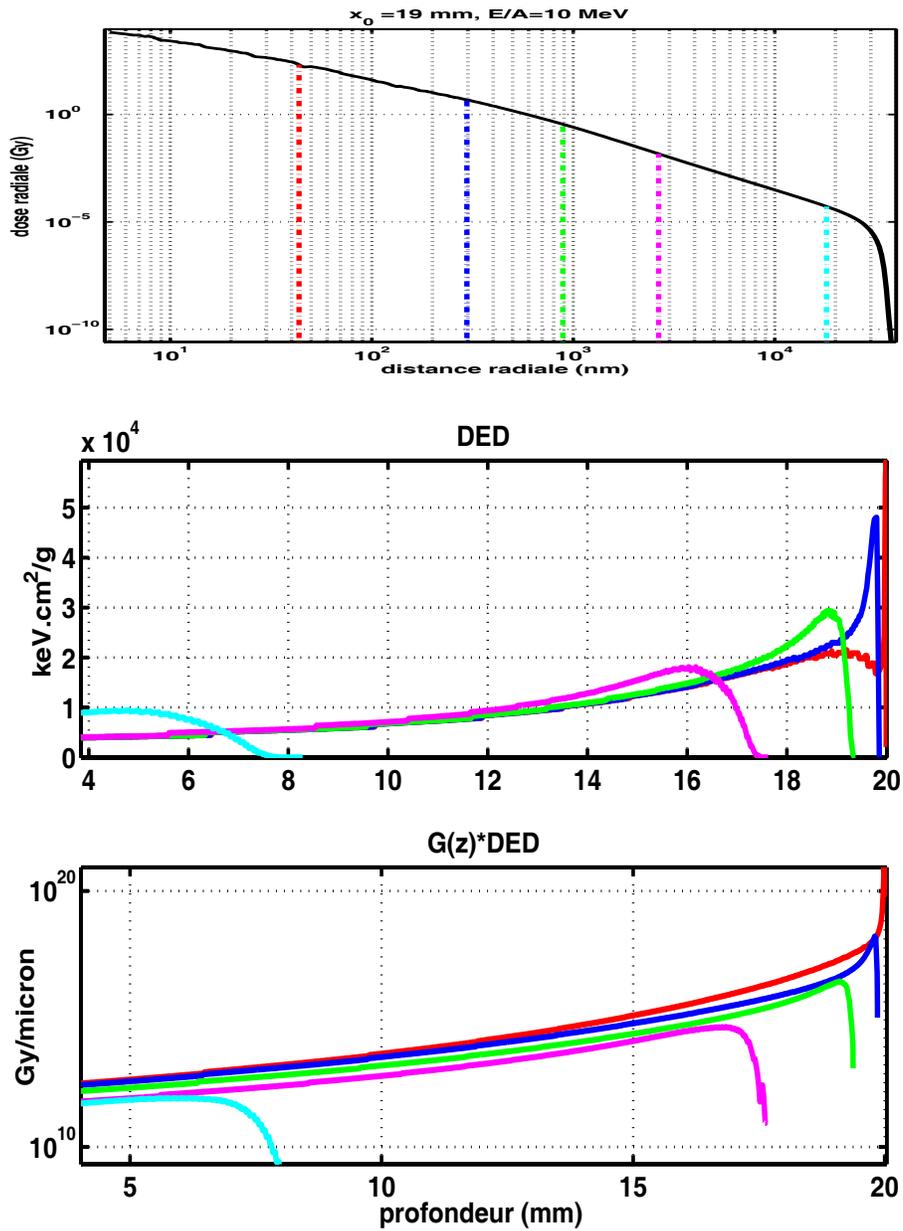


FIG. A-7 – Calcul de la dose radiale à $E/A=10 \text{ MeV}$

IV DED dans NaI et dans Pilot-U

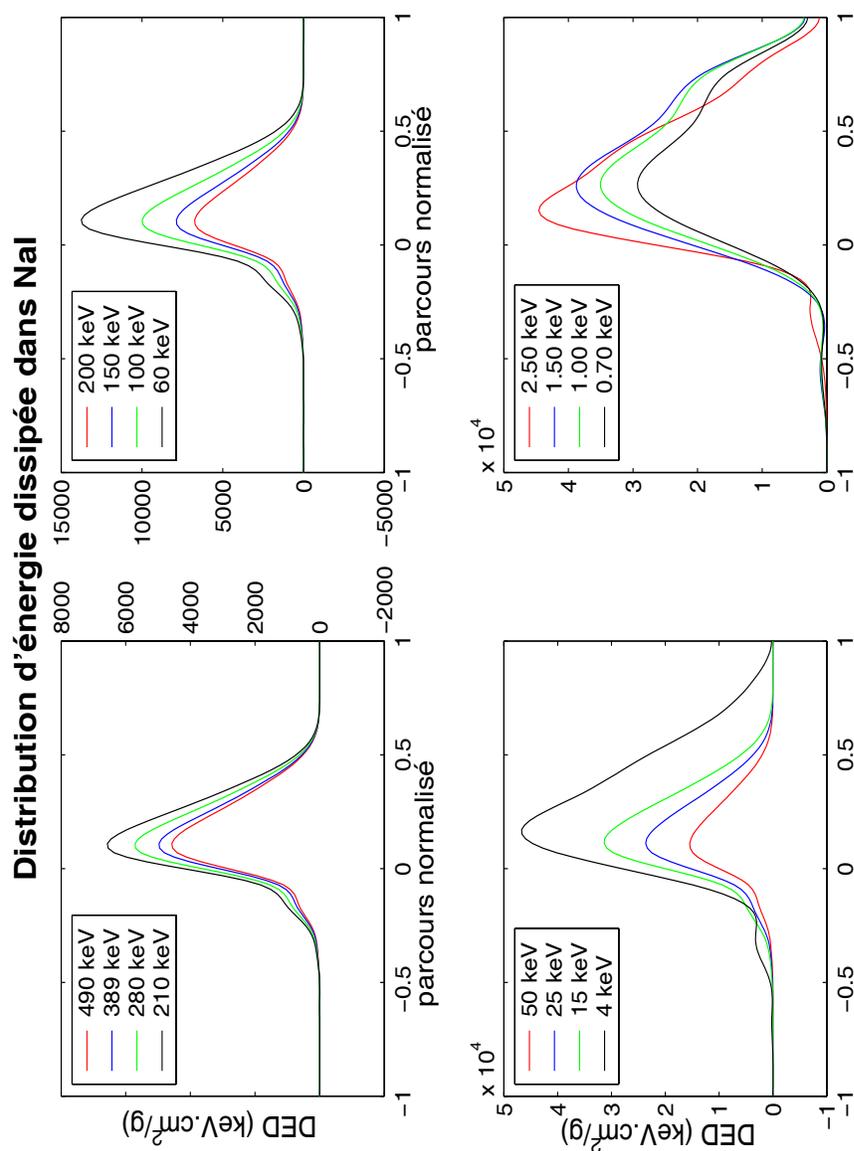


FIG. A-8 – *DED dans NaI*

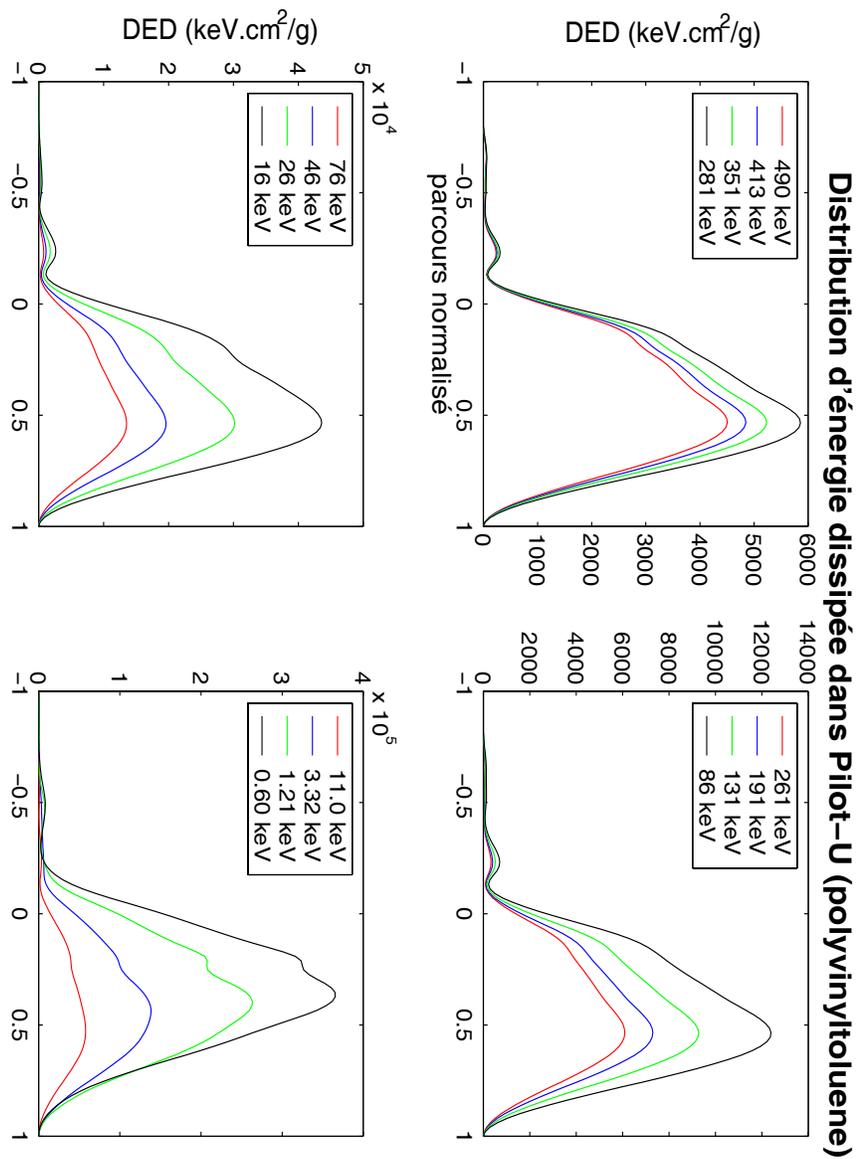


FIG. A-9 – DED dans Pilot-U

Annexe du chapitre 2

Nous donnons ici les ajustements réalisés à l'aide du modèle de Luntz. Les graphes présentent le résultat des ajustements et les variations des constantes de normalisation, comme les graphes donnés dans le corps du chapitre 2.

Modèle de Luntz dans NaI(Tl)

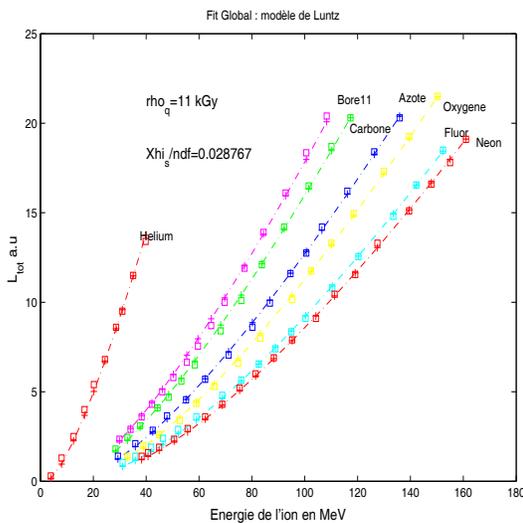


FIG. B-1 – Meilleur ajustement en utilisant notre profil de dose radiale et le modèle de Luntz. Les points expérimentaux sont représentés par des \square et les points calculés par des $+$, les lignes en trait plein sont tracées pour le confort visuel

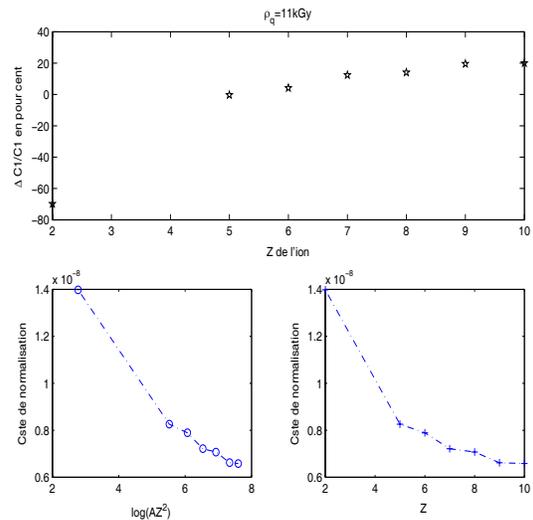


FIG. B-2 – Variation des constantes de normalisation: écart en /constante moyenne et tracé des constantes en fonction de $\log(AZ^2)$ et de Z . Les lignes en pointillé sont tracées pour guider l'oeil

Modèle de Luntz dans Pilot-U

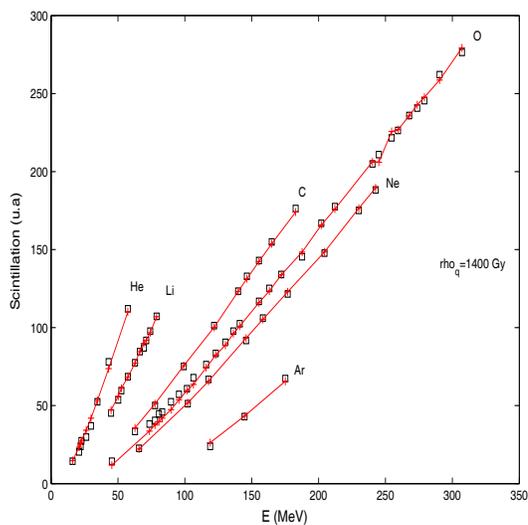


FIG. B-3 – Meilleur ajustement en utilisant notre profil de dose radiale et le modèle de Luntz dans Pilot-U

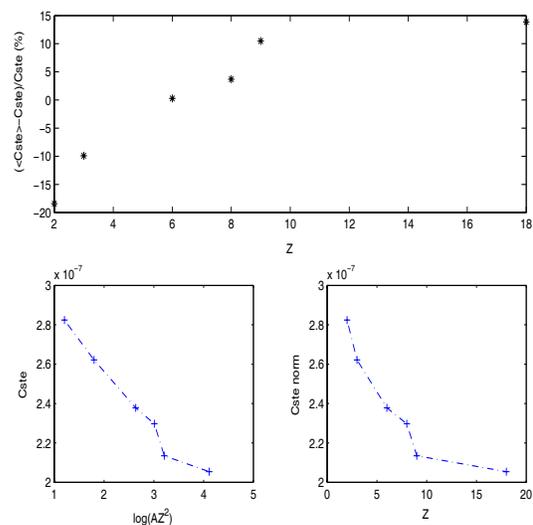


FIG. B-4 – Variation des constantes de normalisation, modèle de Luntz dans Pilot-U

Annexe du Chapitre 3

Calcul des incertitudes sur les absorbances nettes

Si l'on veut évaluer la qualité de différentes hypothèses à l'aide des données expérimentales, il est important de connaître l'incertitude sur les absorbances nettes. Pour ce faire nous avons considéré deux lots de données :

* Spectres pris aux fluences suivantes : 0, (1.3, 3.2, 6.2, 9.3) 10^{10} part.cm⁻²

* 20 spectres pris à différentes fluences entre $1.6 \cdot 10^{11}$ et $1 \cdot 10^{12}$ part.cm⁻².

Pour chaque bande de ces lots nous calculons la moyenne A de l'absorbance nette et la déviation standard associée, (ΔA) , afin d'obtenir l'erreur relative $(\Delta A/A)$. Pour plus de prudence nous considérons comme erreur relative finale l'erreur maximale obtenue dans l'un des lots. Comme on peut le remarquer sur la figure C-1 les différences constatées entre les deux lots sont minimales et les erreurs relatives ainsi déduites sont extrêmement faibles (de l'ordre de 0.2-0.5 %) sauf pour les bandes de faibles amplitudes, comme par exemple l'épaule à 3092 pour lequel on obtient une erreur relative de 5 %. Étant donné que l'évaluation des incertitudes est réalisée sur un échantillon de plus en plus irradié nous pouvons considérer que nous avons majoré l'incertitude. Nous étudions maintenant les liaisons aromatiques, puis aliphatiques et enfin les cas particuliers avant de dresser le bilan.

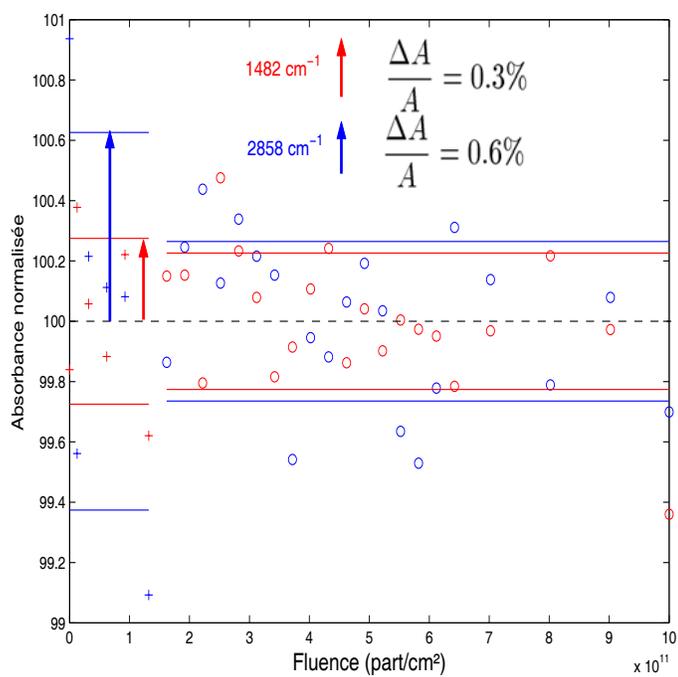


FIG. C-1 – Illustration du calcul des incertitudes prises en compte dans l'évaluation de l'absorbance nette. L'absorbance moyenne des deux bandes est normalisée à 100 pour plus de lisibilité.

Convergence du χ^2 pour le modèle "ion-kill/ γ -kill"

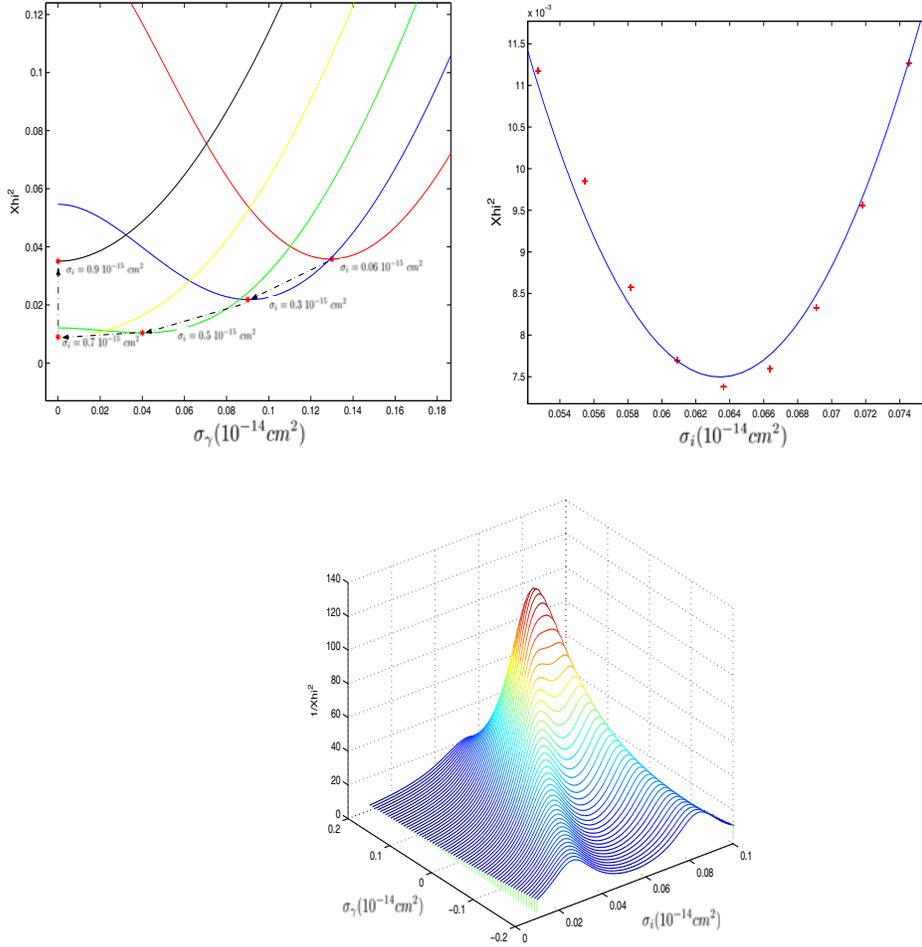


FIG. C-2 – Localisation du minimum du χ^2 dans le cas du modèle "ion-kill/ γ -kill" (3019 cm^{-1} , $m=2$). En haut à gauche: le point rouge représente le minimum du χ^2 sur les lignes à σ_i fixé, ce minimum se déplace vers la ligne $\sigma_\gamma = 0$. On se place alors sur la ligne $\sigma_\gamma = 0$ et on fait varier σ_i pour localiser le minimum du χ^2 . Le graphe du bas illustre le principe sur un graphe tridimensionnel, où l'on a porté $1/\chi^2$ en ordonnée et symétrisé par rapport à $\sigma_\gamma = 0$ pour faciliter la lecture

*Imprimé à l'Institut de Recherches Subatomiques
23 rue du Lœss
BP 28 - 67037 Strasbourg Cedex 2*