

THESIS / THÈSE

MASTER EN SCIENCES PHYSIQUES À FINALITÉ DIDACTIQUE

Mesure précise de la section efficace d'une réaction nucléaire d'intérêt astrophysique 13C(p,y)14N à des énergies inférieures

BASEIL, Lucas

Award date: 2022

Awarding institution: Universite de Namur

Link to publication

General rights Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.

You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain
You may freely distribute the URL identifying the publication in the public portal ?

Take down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.



Faculté des Sciences

Département de Physique

Laboratoire d'Analyse par Réactions Nucléaires (LARN)

MESURE PRÉCISE DE LA SECTION EFFICACE D'UNE RÉACTION NUCLÉAIRE D'INTÉRÊT ASTROPHYSIQUE : ¹³C(p,γ)¹⁴N À DES ÉNERGIES INFÉRIEURES À LA BARRIÈRE COULOMBIENNE

Mémoire présenté pour l'obtention

du grade académique de Master en Sciences Physiques - Finalité Approfondie

Lucas BASEIL

Août 2022

UNIVERSITÉ DE NAMUR FACULTÉ DES SCIENCES Enseignement du Département de Physique Rue de Bruxelles 61 - 5000 NAMUR Téléphone : + 32(0)81.72.44.90 - Téléfax : + 32(0)81.72.44.64 E-mail: enseignement.physique@unamur.be - http://www.unamur.be

Mesure précise de la section efficace d'une réaction nucléaire d'intérêt astrophysique : ¹³C(p,γ)¹⁴N à des énergies inférieures à la barrière coulombienne

BASEIL Lucas

<u>Résumé</u>

Ce travail concerne la mesure de la section efficace de la réaction de capture radiative $^{13}C(p,y)^{14}N$, apparaissant dans le cycle CNO. Plusieurs études de cette réaction nucléaire ont déjà été réalisées en cinématique inverse ¹H(¹³C,y)¹⁴N avec le dispositif à très bas bruit du LARN ([1],[2]). Les résultats obtenus montrent cependant un décalage systématique avec les mesures réalisées en cinématique directe ${}^{13}C(p,y){}^{14}N$ par d'autres dispositifs expérimentaux. L'objectif de ce projet consiste donc à mesurer cette section efficace en cinématique directe avec le système bas bruit du LARN. Pour réaliser les références de ¹³C nécessaires à cette mesure, nous avons implanté du ¹³C⁻ de 36 keV à différentes doses (0,025 – 1,5 10¹⁸ at./cm²) dans des cibles de Si préalablement amorphisées. Un faisceau de deutérons de 1,1 MeV a ensuite été utilisé pour caractériser ces implantations avec la réaction $^{13}C(d,\alpha_0)^{11}B$. Les profils de concentration en ¹³C ont été mesurés via la réaction nucléaire résonante ¹³C(p,y)¹⁴N à une énergie de 1747,6 keV. Ces deux techniques ont ainsi permis de réaliser une étude de la dose retenue en fonction de la dose implantée. L'absence de saturation a pu être expliquée en comparant les résultats expérimentaux aux prédictions de SRIM ainsi qu'à des valeurs simulées tenant compte de l'érosion de la surface et du gonflement de la couche lors de l'implantation. Une dose de 10^{18 13}C⁻/cm² a finalement été choisie pour réaliser la mesure de la section efficace. L'allure de cette dernière autour de l'énergie de résonance (E_{lab} = 550,6 keV) a été estimée avec un détecteur NaI(TI) et comparée à celle déterminée avec un détecteur HPGe dans des conditions identiques à celles des références [1] et [2]. Des mesures ont été effectuées jusqu'à 400 keV et montrent des résultats similaires à ceux obtenus en cinématique inverse dans notre laboratoire. Des profils de concentration en ¹³C ont été réalisés avant et après la mesure de la section efficace et ont permis de mettre en évidence une légère désorption du ¹³C au cours de la mesure.

Mémoire de Master en Sciences Physiques Finalité Approfondie Août 2022 **Promoteur :** G. Terwagne

UNIVERSITÉ DE NAMUR FACULTÉ DES SCIENCES Enseignement du Département de Physique Rue de Bruxelles 61 - 5000 NAMUR Téléphone : + 32(0)81.72.44.90 - Téléfax : + 32(0)81.72.44.64 E-mail: enseignement.physique@unamur.be - http://www.unamur.be

Precise measurement of the cross-section of a nuclear reaction of astrophysical interest : ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$ at energies below the Coulomb barrier

BASEIL Lucas

<u>Abstract</u>

This work concerns the measurement of the cross-section of the radiative capture reaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$, occurring in the CNO cycle. Several studies of this nuclear reaction have already been undertaken in reverse kinematics ${}^{1}H({}^{13}C,\gamma){}^{14}N$ using the very low background system installed at LARN ([1],[2]). However, the obtained results show a systematic discrepancy with the measurements undertaken in direct kinematics ${}^{13}C(p,y){}^{14}N$ using other experimental equipment. The final purpose of this project therefore consists in measuring this cross-section in direct kinematics using LARN's low background system. To manufacture the ¹³C references needed for this measurement, we implanted ¹³C⁻ of 36 keV at different doses (0.025 – 1.5 10¹⁸ at./cm²) into previously amorphized Si targets. A 1.1 MeV deuteron beam was then used to characterize these implantations with the ${}^{13}C(d,\alpha_0){}^{11}B$ reaction. The ${}^{13}C$ concentration depth profiles were measured via the ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$ resonant nuclear reaction at an energy of 1747.6 keV. Those two techniques made it possible to carry out a study of the retained dose as a function of the implanted dose. The absence of saturation was explained by comparing the experimental results to the predictions of SRIM as well as to simulated values considering the erosion of the surface and the swelling of the layer during the implantation. A dose of $10^{18} \, {}^{13}C^{-}/cm^{2}$ was eventually chosen to perform the measurement of the cross-section. The shape of the latter around the energy of resonance ($E_{lab} = 550.6 \text{ keV}$) was estimated with a Nal(TI) detector and compared with the one determined using a HPGe detector under identical conditions to references [1] and [2]. Measurements were carried out up to 400 keV and show results similar to those obtained using reverse kinematics in our laboratory. ¹³C depth profiles were made before and after the measurement of the crosssection and thus allowed to reveal a slight desorption during the measurement.

Master thesis in Physical Sciences Research focus August 2022 Supervisor : G. Terwagne

Remerciements

Comme pour beaucoup, la rédaction de ce mémoire marque pour moi la fin du parcours académique. Je souhaite donc profiter de cette occasion pour remercier certaines des personnes qui ont enrichi mes six années passées à l'Université.

Je tiens donc en premier lieu à remercier mon promoteur, le professeur Guy Terwagne, pour son accompagnement tout au long de ces deux années. Je lui suis reconnaissant pour sa présence, ses conseils, son implication, ainsi que pour sa passion communicative. C'est suite à sa rencontre, un jour de « portes ouvertes » de 2016, que mon parcours universitaire a débuté et c'est donc avec un sentiment tout particulier que je le clôture également sous sa supervision.

La réalisation de ce mémoire n'aurait pas été la même sans l'environnement de travail dans lequel elle s'est déroulée. Je remercie donc tous les membres du LARN pour leur accueil, leur bienveillance et l'aide qu'ils ont pu m'apporter. Je pense en particulier à Adrien Nélis, qui a participé à mon encadrement lors de la première année de Master, et à Coraline Stasser, avec qui j'ai pu travailler à plusieurs reprises au cours de cette année et qui a consacré du temps à la réalisation des simulations présentées dans ce travail.

Évidemment, aucune mesure ou autre implantation n'aurait été possible sans l'appui de Tijani Tabarrant. Merci à lui pour son aide précieuse à chaque heure du jour et de la nuit, sa patience, sa prévoyance et sa bonne humeur légendaire. J'espère que ces remerciements, bien qu'inférieurs aux trois pages convenues, lui feront plaisir.

Toutes ces heures de cours auraient aussi été bien différentes sans la présence de Mathilde. Son soutien en tant que « camarade de galère », tant dans les moments difficiles que dans ceux couronnés de succès, m'a été très précieux. Je la remercie donc d'avoir réussi à me supporter pendant toutes ces années, mais aussi de m'avoir permis de lui voler une quantité inavouable de notes de cours.

La vie académique, c'est du travail mais pas uniquement. C'est pourquoi je souhaite également remercier tous les membres de la Revue Sciences, en particulier Loïc, François, Nathan et Théo, qui m'ont permis de passer certains de mes plus beaux moments de ces six dernières années.

Enfin, je tiens à remercier mes proches, mes parents et Nina, pour avoir su me redonner courage quand j'en avais besoin, me secouer quand c'était nécessaire, et de façon générale pour leur soutien inconditionnel.

Table des matières

1	I	INTRODUCTION1				
2	RAPPELS THÉORIQUES3					
	2.1 IMPLANTATION IONIQUE					
	2.2 TECH		NIQUES D'ANALYSE PAR FAISCEAUX D'IONS	4		
	2	2.2.1	Spectroscopie de rétrodiffusion Rutherford (RBS)	4		
	2.2.2		Canalisation (RBS/C)	5		
	2.2.3		Analyse par réaction nucléaire (NRA)	7		
	2	2.2.4	Analyse par réaction nucléaire résonante (RNRA)	8		
	2	2.2.5	Spectroscopie par émission de rayon γ induite par une particule (PIGE)	10		
	2.3 Détecteurs		CTEURS	13		
	2	2.3.1	Scintillateurs	13		
	2	2.3.2	Détecteurs à semi-conducteur	14		
3	[DÉVELC	DPPEMENT DES CIBLES DE ¹³ C	17		
	3.1 Mise en contexte et état de l'art					
3.2 Projet de recherche de Master 1				18		
	3.3	Амо	RPHISATION	21		
	3.4	IMPL	ANTATIONS DE ¹³ C	22		
	3.5	CARA	CTÉRISATION PAR RÉACTION (D,A)	22		
	3.6	CARA	CTÉRISATION PAR LA RÉACTION RÉSONANTE 13 C(P, Γ) 14 N à 1747,6 keV	24		
	3.7	Résu	LTATS ET DISCUSSION	29		
	3.8	Prof	ILS DE CONCENTRATION ET ÉVALUATION DE LA QUALITÉ DES STANDARDS	33		
4	ſ	MESUR	E DE LA SECTION EFFICACE	35		
4.1 Mise en contexte et état de l'art				35		
	4.2 Systè		ME DE DÉTECTION	39		
	4.2.1		Choix du détecteur	39		
	4.2.2		Système bas-bruit	41		
	4.3	Mesu	JRE DE L'EFFICACITÉ DU DÉTECTEUR HPGE	45		
	4.3.1		Utilisation de sources radioactives calibrées	45		
	4	1.3.2	Utilisation de la réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$	47		

	4.4	Mesu	RE DE LA SECTION EFFICACE DE LA RÉACTION 13 C(P, Γ) 14 N	48		
	4.4	4.1	Mesure avec le détecteur NaI(TI)	48		
	4.4	4.2	Mesure avec le détecteur HPGe	50		
5	CONCLUSION ET PERSPECTIVES					
6	ANNEXES					
	6.1	Déter	RMINATION DES BARRES D'ERREUR	61		
	6.2	Donn	IEES COMPLETES POUR LA SECTION EFFICACE TOTALE	62		
7	BIBLIOGRAPHIE					

1 Introduction

Depuis toujours, l'humanité scrute le ciel avec l'espoir d'assouvir sa soif de connaissances et de compréhension de l'Univers qui l'entoure. Encore aujourd'hui, les images en provenance du télescope spatial *James Webb*, les plus nettes et lointaines jamais observées, sont à l'origine d'un incroyable engouement tant de la part du public que du monde scientifique. Parmi les différents objets d'étude qui peuplent le cosmos, les étoiles ont pendant longtemps laissé perplexes les scientifiques qui étudiaient leur fonctionnement. Ce n'est qu'au cours de la première moitié du XX^{ème} siècle que les travaux d'Eddington, Bethe, Gamow puis ceux de Burbidge, Burbidge, Fowler et Hoyle ont permis d'expliquer, par des raisonnements basés sur les réactions nucléaires, le temps de vie des étoiles, leur évolution ainsi que la production et l'abondance des différents éléments présents dans l'Univers [3]–[5]. Ce tout nouveau domaine de recherche, baptisé *astrophysique nucléaire*, était alors appelé à se développer pendant les dizaines d'années suivantes, de façon à comprendre au mieux les différents mécanismes d'évolution stellaire et à en établir des modèles de plus en plus précis.

Pour ce faire, il est nécessaire de recueillir un maximum de données sur les réactions nucléaires qui se déroulent dans le cœur des étoiles. L'obtention de telles informations passe notamment par l'utilisation d'accélérateurs de particules, qui permettent de recréer en laboratoire ces différents phénomènes stellaires. Le rôle des physiciens nucléaires est alors d'étudier ces réactions d'intérêt astrophysique et d'en dégager les paramètres utiles pour les astrophysiciens théoriciens. Parmi ceuxci, la *section efficace* $\sigma(E)$, qui correspond à la probabilité d'occurrence d'une telle réaction, constitue une donnée fondamentale pour comprendre, décrire et prédire l'évolution des étoiles.

Pour que ces paramètres présentent un intérêt astrophysique, ils doivent être déterminés à des énergies similaires à celles qui sont mises en jeu lors des réactions stellaires. Contrairement à ce que l'on pourrait croire, celles-ci sont relativement faibles par rapport aux énergies habituellement utilisées en laboratoire dans le domaine de l'analyse par faisceaux d'ions (~ MeV). En effet, l'énergie disponible dans les étoiles est purement thermique. Cela signifie que, malgré les températures extrêmes qui y règnent (~ $10^7 - 10^8$ K), les réactions nucléaires qui s'y déroulent se produisent à une énergie k_BT de l'ordre du keV ou de la dizaine de keV seulement [6],[7]. En particulier, le *taux de réaction* de chacune de ces réactions stellaires présente un maximum à une énergie appelée énergie de Gamow, qui s'élève à quelques dizaines de keV pour les principales réactions de capture radiative.

En laboratoire, réaliser des mesures à ces énergies bien inférieures à la barrière coulombienne s'avère virtuellement impossible étant donné que la section efficace diminue fortement aux basses énergies [8]. La méthode généralement employée consiste alors à mesurer la section efficace à l'énergie la plus basse possible puis à réaliser une extrapolation jusqu'à l'énergie de Gamow. Les faibles valeurs de section efficace à basse énergie entraînent une chute du taux de comptage qui rend les mesures très sensibles au bruit. Pour mesurer la section efficace à basse énergie, il est donc nécessaire d'utiliser un système de détection bas-bruit de manière à purifier au mieux le signal d'intérêt.

C'est pour cette raison qu'un tel système de détection a été développé au LARN par Gilles Genard et Paul-Louis Debarsy dans le cadre de leur thèse [1],[2]. Ceux-ci l'ont alors appliqué à l'étude de la réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$ intervenant dans le cycle CNO. En particulier, ils ont mesuré la section efficace de cette réaction en cinématique inverse, c'est-à-dire en inversant le rôle de la cible et du projectile (réaction ${}^{1}H({}^{13}C,\gamma){}^{14}N)$. Les résultats obtenus lors de ces deux mesures montrent des différences

systématiques avec les valeurs de section efficace déterminées en cinématique directe ¹³C(p,γ)¹⁴N dans d'autres laboratoires [9]–[13]. Ces écarts sont visibles à la Figure 24. L'objectif de ce mémoire consistait donc à réaliser cette mesure de section efficace en cinématique directe en utilisant le même système de détection que Paul-Louis Debarsy afin d'expliquer cette différence de résultats.

Ce manuscrit s'ouvre par différents rappels théoriques sur les procédés et techniques d'analyse utilisés au cours de ce mémoire. La section 3 s'intéresse ensuite à la réalisation et à la caractérisation des références de ¹³C développées pour procéder à la mesure de section efficace. Quelques éléments de contexte et un bref état de l'art sont présentés en début de section. L'évolution de la concentration en ¹³C des échantillons au cours des analyses y est également étudiée. La dernière partie de ce travail présente enfin les résultats de mesure de la section efficace de la réaction ¹³C(p, γ)¹⁴N et les compare aux données de la littérature obtenues dans les deux cinématiques de réaction.

2 Rappels théoriques

Cette section a pour objectif de résumer quelques concepts utiles à la compréhension de ce travail. Le premier point s'attarde ainsi sur l'implantation ionique, procédé utilisé lors de la fabrication des cibles de ¹³C. Le deuxième point présente quant à lui les différentes techniques mises en œuvre pour leur caractérisation. Enfin, le troisième point résume brièvement le principe de fonctionnement des différents types de détecteurs utilisés dans le cadre de ce mémoire.

2.1 Implantation ionique

L'implantation ionique est un procédé qui consiste à envoyer des ions d'énergie relativement élevée (> keV) dans une matrice donnée. Ces ions, accélérés à l'aide d'un implanteur ou d'un accélérateur de particules, pénètrent alors dans la cible et perdent leur énergie par interaction avec les atomes qui la constituent. Une fois l'entièreté de leur énergie perdue, ces ions sont dits *implantés* au sein de la matrice. La perte d'énergie (et donc la profondeur de pénétration) dans un matériau donné est régie par une grandeur appelée *pouvoir d'arrêt*. Ce dernier, qui décrit plus particulièrement la perte d'énergie par unité de longueur de matériau traversée, est proportionnel au numéro atomique de la cible ($\propto Z$), au numéro atomique du projectile ($\propto z^2$) et inversement proportionnel à la vitesse de ce dernier ($\propto \frac{1}{B^2}$).

Les collisions que subissent les ions incidents lors de la traversée de la cible sont soumises à des fluctuations statistiques, de sorte que tous ne perdent pas la même quantité d'énergie par unité de longueur. Dès lors, des particules de même nature et de même énergie incidente n'auront pas toutes la même énergie après la traversée d'une même épaisseur de matière. Ce phénomène porte le nom de *straggling* ou *étalement énergétique*. Il en découle que les ions incidents ne sont pas tous implantés à la même profondeur. Généralement, le profil d'implantation a en effet l'allure d'une gaussienne dont la moyenne (moment d'ordre 1) correspond au *range* ou *parcours projeté* des projectiles au sein de la matrice. Ce dernier est ainsi défini comme la profondeur d'implantation moyenne des ions incidents.

Lors de la collision entre un ion incident et un atome de la cible, il est possible que l'énergie transférée à ce dernier soit suffisante pour l'éjecter de sa position initiale. Si son énergie cinétique est assez élevée, il peut lui-même entrer en collision et provoquer le déplacement d'un autre atome de la matrice. Ces déplacements multiples induits par le faisceau incident portent le nom de *cascades de collisions*. Lors de l'implantation d'ions énergétiques dans une matrice cristalline, on comprend donc que ces cascades peuvent induire une amorphisation de la zone implantée, c'est-à-dire une destruction de l'ordre cristallin. Les cascades de collisions peuvent également se solder par l'expulsion d'un atome de surface.

Enfin, la littérature montre que l'implantation ionique à basse énergie s'accompagne, à haute dose, d'une saturation de la dose retenue au sein de l'échantillon. En effet, les ions incidents sont capables de pulvériser les ions de la cible, y compris les ions précédemment implantés. Il existe donc une dose au-delà de laquelle les ions incidents ne plus sont retenus dans la cible et servent uniquement à pulvériser les ions déjà implantés. Il est donc inutile d'implanter plus d'ions que cette dose limite, laquelle est elle aussi caractéristique de la nature et de l'énergie des éléments considérés. [14]–[16].

2.2 Techniques d'analyse par faisceaux d'ions

2.2.1 Spectroscopie de rétrodiffusion Rutherford (RBS)

La spectroscopie de rétrodiffusion Rutherford est historiquement la première méthode IBA (*Ion Beam Analysis*) à avoir été développée. Elle est principalement utilisée pour analyser des éléments lourds dans une matrice contenant des éléments légers. Une mesure RBS consiste à envoyer sur l'échantillon à étudier un faisceau mono-énergétique de noyaux légers, généralement constitué de protons ou de noyaux ⁴He²⁺. Suite à l'interaction coulombienne avec les éléments lourds de l'échantillon, ces particules légères sont alors rétrodiffusées ($\theta > 90^\circ$) élastiquement puis collectées par des détecteurs positionnés dans certaines directions de rétrodiffusion (Figure 1). La probabilité de rétrodiffusion dans une direction donnée est définie par la section efficace différentielle de Rutherford, qui peut être décrite par une expression analytique relativement simple. Le spectre en énergie de ces particules rétrodiffusées permet alors d'identifier et de quantifier les éléments présents dans l'échantillon mais aussi d'en évaluer la distribution en profondeur sur quelques centaines de nanomètres [17].



Figure 1 : Représentation d'un dispositif de mesures RBS. Des détecteurs PIPS (Passivated Implanted Planar Silicon) sont positionnés selon deux directions de rétrodiffusion, à 135° et 165° par rapport à la direction du faisceau incident. L'angle θ est défini comme l'angle de diffusion des particules.

L'énergie du faisceau incident, généralement de l'ordre du MeV, est choisie notamment de manière à ne pas induire de réaction nucléaire avec les noyaux cibles. Comme indiqué ci-dessus, la méthode RBS se base bel-et-bien sur une diffusion élastique de particules, ce qui signifie l'absence de réaction nucléaire et un bilan énergétique Q = 0.

L'identification des éléments constitutifs de l'échantillon se base sur la masse de ces derniers. En effet, plus l'élément cible est lourd et plus l'énergie de la particule rétrodiffusée est importante, ce qui permet souvent d'observer sur les spectres RBS une différenciation des pics correspondant aux différents éléments de l'échantillon. Cette dépendance de la masse est traduite par une grandeur appelée *facteur cinématique* et définie (dans le système laboratoire) comme

$$k = \frac{E_1}{E_0} = \left(\frac{\sqrt{M_2^2 - M_1^2 \sin^2 \theta} + M_1 \cos \theta}{M_1 + M_2}\right)^2 \tag{1}$$

où E_0 et E_1 correspondent respectivement aux énergies du projectile avant et après diffusion, où M_1 et M_2 représentent les masses respectives de la particule incidente et du noyau cible et où θ correspond à l'angle de diffusion [18].

Lorsque le noyau cible se trouve en surface de l'échantillon, l'énergie de la particule rétrodiffusée vaut kE_0 . Si cet élément constitue une couche d'épaisseur t, la particule incidente peut être rétrodiffusée à une certaine profondeur au sein de cette couche, ce qui signifie qu'elle perd une certaine quantité d'énergie ΔE avant mais aussi après rétrodiffusion. Sur le spectre RBS, le pic correspondant à une telle couche est ainsi délimité par l'énergie maximale (kE_0) et minimale ($kE_0 - 2\Delta E$) des particules rétrodiffusées au sein de la couche. Le pic est donc d'autant plus large que la couche est épaisse.

Cette épaisseur relative des pics trouve ainsi son origine dans le pouvoir d'arrêt des projectiles au sein de la cible. Nous verrons plus tard que la situation est totalement différente dans le cas où les particules détectées sont des photons et non des particules chargées.

La quantification des éléments par RBS, quant à elle, se base sur l'intensité du signal (*yield*) au niveau des pics, laquelle permet via une formule très simple de déterminer la densité surfacique (at./cm²) pour chaque élément. La précision de cette technique en termes de quantification d'un élément dans une couche mince est de l'ordre de 1% [19]. Le RBS fait également preuve d'une bonne résolution en profondeur, de l'ordre de 10 nm à proximité de la surface [20]. Plus en profondeur dans le matériau, cette résolution se détériore à cause du *straggling* plus important, tant pour les particules incidentes que rétrodiffusées.

Notons enfin que cette technique, en plus d'être non-destructive et idéale pour l'analyse de couches minces, permet de déterminer facilement le nombre de particules incidentes sur un échantillon. Ceci est possible dans le cas où la section efficace, facilement calculable à énergie modérée, est connue et où les particules incidentes ne subissent pas le phénomène de *canalisation* à travers la cible.

2.2.2 Canalisation (RBS/C)

Le phénomène de canalisation, ou *channeling*, survient lorsque des particules pénètrent dans un échantillon cristallin selon l'une de ses directions préférentielles. Dans de telles directions, c'est-à-dire le long d'un axe ou d'un plan cristallographique, le réseau d'atomes constituant le cristal est organisé de sorte à présenter des *canaux* dans lesquels peuvent se propager ces particules. La Figure 2 représente ainsi le « point de vue » d'un faisceau pénétrant dans une cible cristalline selon une direction de canalisation (a) ou suivant une direction quelconque (b).



Figure 2 : Représentation d'une matrice de Si(100) observée selon la direction canalisée (a) et selon une direction quelconque (b). Les canaux formés par les atomes du cristal sont bien visibles à la Figure (a).

En se propageant dans de tels couloirs, les ions incidents interagissent très peu avec la cible et ne perdent donc qu'une faible quantité d'énergie par unité d'épaisseur traversée. Cela se traduit par une forte augmentation de leur profondeur de pénétration par rapport à la situation d'une direction incidente quelconque. Il est donc important de souligner que pour un échantillon cristallin donné, le pouvoir d'arrêt dépend de la direction considérée [21].

S'il est de nombreuses situations lors desquelles on cherche à éviter le phénomène de canalisation (amorphisation, implantation, mesures de concentration), il est également possible de le mettre à profit lors de mesures RBS pour caractériser la structure cristalline de l'échantillon étudié. Le RBS/C n'est donc pas une technique à part entière mais consiste simplement en un cas particulier de la méthode RBS où la direction du faisceau incident correspond à une direction canalisée de l'échantillon. Les spectres obtenus en RBS/C permettent alors de caractériser le dopage (*interstitiel* ou de *substitution*) d'un échantillon, d'établir un profil de dégâts dans un échantillon cristallin ou de façon plus générale d'en évaluer la « qualité cristalline » [17],[22].

Ce dernier point repose sur la capacité de la méthode RBS/C à distinguer les zones amorphe et cristalline d'un échantillon. En effet, lorsqu'un faisceau d'ions rencontre un matériau amorphe, les particules interagissent avec celui-ci de la même manière quelle que soit la direction incidente considérée. La probabilité de rencontrer un atome de la cible est alors importante ce qui, pour des particules légères, se traduit par une probabilité de rétrodiffusion importante. Par-contre, il a été dit plus haut que des particules pénétrant dans un échantillon cristallin selon une direction de canalisation n'interagissaient que très peu avec celui-ci. Les chances pour une particule incidente de rencontrer un atome de la cible au sein des *canaux* sont donc faibles, tout comme la probabilité de rétrodiffusion.

Cette situation est illustrée à la Figure 3 dans le cas où une zone amorphe précède la région cristalline d'un échantillon. L'allure du spectre RBS obtenu dans la direction de canalisation du cristal est esquissée à la Figure (b). La largeur du plateau visible sur ce spectre permet alors de déterminer l'épaisseur de la zone amorphe de l'échantillon.



Figure 3 : Représentation d'un échantillon composé d'une région cristalline précédée d'une zone amorphe (a). Allure du spectre RBS/C obtenu pour un tel échantillon (b).

2.2.3 Analyse par réaction nucléaire (NRA)

Lorsque l'énergie du faisceau est suffisante pour franchir la barrière coulombienne, il est possible d'induire une réaction nucléaire entre les particules incidentes et certains éléments de la cible. Alors que la méthode RBS se basait sur la détection de particules rétrodiffusées élastiquement (Q = 0), la technique NRA repose sur la détection de produits de réactions nucléaires ($Q \neq 0$) tels que des particules chargées, des rayons γ (PIGE) ou encore des neutrons [39],[42].

Cette technique est utilisée pour détecter et quantifier des éléments de faible numéro atomique. Ceci est à mettre en lien avec les gammes d'énergies généralement accessibles par les accélérateurs (de l'ordre de quelques MeV au maximum). À ces énergies, le franchissement de la barrière coulombienne est en effet possible lorsque des particules légères (p, d, ³He, α) sont envoyées sur des noyaux légers (~ Z<15) [39],[42],[43].

La quantification de ces éléments légers est alors relativement aisée dans le cas d'une couche mince en surface. Puisque seuls des éléments légers interviennent dans la réaction et que le pouvoir d'arrêt des particules chargées dans la matière est proportionnel à Z (matériau traversé) et z^2 (particule incidente), la perte d'énergie des particules incidentes lors de la traversée de la couche est très faible. La section efficace peut alors être considérée comme constante sur toute l'épaisseur de la couche ($\sigma(E) \approx \sigma(E_0)$). Le nombre de coups dans un pic d'aire A est donné par

$$A = \frac{Q_c \,\Omega \,\sigma(E_0) \,Nt}{\cos(\alpha_{inc})} \tag{2}$$

où Q_c représente la charge intégrée, Ω l'angle solide de détection, Nt la densité surfacique de l'élément d'intérêt ([at/cm²]) et où α_{inc} correspond à l'angle d'incidence [14].

Les techniques RBS et NRA sont très souvent utilisées de façon complémentaire, étant donné que la première permet la détection d'éléments lourds tandis que la seconde est uniquement sensible aux éléments légers [24]. Notons enfin que les sections efficaces mises en jeu dans ces deux techniques sont très différentes ($\sigma_{NRA} \ll \sigma_{RBS}$).

2.2.4 Analyse par réaction nucléaire résonante (RNRA)

La technique RNRA est un cas particulier de la technique NRA qui repose sur l'utilisation d'une réaction nucléaire *résonante*, qui est une réaction dont la section efficace présente un pic étroit pour une ou plusieurs gamme(s) d'énergie. La probabilité d'occurrence de cette réaction augmente donc drastiquement sur d'étroites plages d'énergie.

Ces résonances apparaissent lorsque l'énergie totale de la particule incidente et du noyau cible correspond exactement à l'énergie d'un niveau excité du noyau composé. Pour rappel, la réaction nucléaire entre un projectile a et un noyau cible A donne généralement¹ naissance à un noyau composé C, alors dans un état excité C^* . Ce noyau regroupe l'ensemble des nucléons ayant participé à la réaction et oublie la voie d'entrée via laquelle il a été formé (*hypothèse de Bohr*). Différentes voies de sortie sont alors possibles pour sa désexcitation, chacune étant caractérisée par un certain facteur de branchement f_b . Si le noyau composé se désexcite par émission d'un γ , la réaction de capture radiative se note sous la forme

$$a + A \to C^* \to C + \gamma \tag{3}$$

Une résonance apparaît donc dans la section efficace lorsque l'énergie totale du système (a + A) correspond à l'énergie d'un niveau excité du noyau composé. Cette situation est illustrée à la Figure 4 tirée de [6].



Figure 4 : Représentation d'une réaction de capture radiative $A(a,\gamma)B$ dans laquelle l'énergie totale $(Q + E_R)$ du système (a+A)correspond exactement à l'énergie E_r d'un état excité du noyau composé. À de telles énergies de résonance E_R , la section efficace présente un important maximum, comme illustré dans la partie droite de la Figure. Illustration tirée de [6].

Les réactions nucléaires résonantes sont ainsi très souvent utilisées pour la réalisation de profils en profondeur d'éléments légers [20], [26], [27]. En effet, comme évoqué ci-dessus, la section efficace

¹ Le noyau composé est considéré comme un objet distinct si son temps de vie est supérieur au temps de transit de la particule incidente au sein du noyau cible $(10^{-22}s)$. Dans le cas contraire, on parlera de *réaction nucléaire directe* [25].

de ces réactions est très importante pour une énergie donnée, appelée *énergie de résonance*, et très basses aux énergies supérieures et inférieures. La résonance peut donc être utilisée comme une sonde locale pouvant être déplacée en profondeur dans l'échantillon par incrémentation progressive de l'énergie des particules incidentes [20].

Pour illustrer cela, il suffit de considérer une réaction résonante dont l'énergie de résonance est de x MeV. Si l'échantillon à étudier est bombardé à cette énergie, seuls les noyaux cible présents en surface sont détectés. Le taux de réaction est alors proportionnel à la concentration de l'élément étudié. Plus en profondeur dans le matériau, les ions incidents perdent de l'énergie et atteignent une énergie de ($x - \Delta E$) MeV, inférieure à l'énergie de résonance.

Si l'énergie du faisceau est augmentée, aucune réaction n'a lieu à la surface de l'échantillon car l'énergie des ions incidents est alors de $(x + \Delta E)$ MeV, supérieure à l'énergie de résonance. En pénétrant dans l'échantillon, les particules perdent de l'énergie et, à une certaine profondeur, atteignent l'énergie de résonance de x MeV. Seuls seront donc détectés les noyaux d'intérêt à cette profondeur [26]. Cette situation est illustrée à la Figure 5, où différents schémas montrent la position de la résonance (en rouge) en fonction de l'énergie du faisceau incident.



Figure 5 : Représentation de la position de la résonance (en rouge) au sein d'un échantillon en fonction de l'énergie du faisceau incident. L'échantillon est ici composé d'une couche mince (gris clair) positionnée en surface d'une matrice donnée tandis que le faisceau est constitué de protons.

Cette technique non-destructive permet ainsi de réaliser des profils de concentration d'éléments légers avec une sensibilité de quelques ppm et une résolution en profondeur de l'ordre du nanomètre, d'autant meilleure que la résonance est étroite [20]. La détermination de concentrations absolues nécessite cependant des mesures préliminaires sur un *standard* de concentration connue en l'élément d'intérêt.

Pour clôturer ce point, il est intéressant de rappeler brièvement les notions de système laboratoire et de système centre de masse, souvent utilisées dans le domaine des réactions nucléaires. Si une particule incidente a est accélérée vers un noyau cible A à une énergie E_{lab} dans le système laboratoire, l'énergie E_{CM} dans le système centre de masse est donnée par l'équation 4 dans laquelle les M_i correspondent aux masses des particules mises en jeu lors de la réaction.

$$E_{CM} = \frac{M_A}{M_a + M_A} E_{lab} \tag{4}$$

Cette énergie E_{CM} représente en réalité la fraction de E_{lab} disponible pour la réaction. E_{lab} , qui n'est autre que l'énergie cinétique du noyau a, peut en effet être décomposée sous la forme

$$E_{lab} = E_{CM} + E_{déplacement} \tag{5}$$

où $E_{déplacement}$ correspond à l'énergie nécessaire pour déplacer le centre de masse du système (a + A). Puisque ce dernier est immobile dans le système centre de masse, l'entièreté de l'énergie E_{CM} est disponible pour la réaction.

2.2.5 Spectroscopie par émission de rayon γ induite par une particule (PIGE)

Dans les sections précédentes, nous avons vu que le noyau composé pouvait se désexciter vers son état fondamental par émission d'un ou de plusieurs rayons γ . Autrement dit, il est possible qu'une réaction nucléaire provoque l'émission de photons γ en plus ou à la place de particules chargées. La technique PIGE peut être définie comme un cas particulier de NRA où le produit de réaction détecté est un γ [20]. Cette technique demande ainsi des explications supplémentaires, puisque le comportement des photons vis-à-vis de la matière est très différent de celui des particules chargées.

Ce comportement peut en premier lieu être illustré par l'équation d'atténuation d'un faisceau de photons par la matière. Cette dernière montre que le nombre de photons parvenant à traverser une épaisseur x de matière suit une loi de décroissance exponentielle selon x. Dans cette équation, N_0 correspond au nombre de photons incidents et μ au coefficient d'atténuation linéique caractérisant le matériau traversé et exprimé soit en [cm⁻¹] soit en [cm²/gr].

$$N(x) = N_0 \exp(-\mu x) \tag{6}$$

Plusieurs possibilités s'offrent ainsi aux photons traversant une épaisseur de matière ; être transmis, transférer une partie ou l'entièreté de leur énergie, ... Ce comportement est en réalité régi par les trois principaux mécanismes d'interaction des photons avec la matière, illustrés à la Figure 6 : l'effet photoélectrique, l'effet Compton et la production de paires électron-positron [28]. Chacun de ces mécanismes possède une section efficace qui lui est propre et qui dépend de l'énergie hv des photons et du numéro atomique Z du matériau traversé.

$$\sigma_{photoélectrique} \propto \frac{Z^5}{(h\nu)^{7/2}}$$
 (7)

$$\sigma_{Compton} \propto \frac{1}{h\nu} \tag{8}$$

$$\sigma_{paires} \propto Z \ln(h\nu) \tag{9}$$

Notons que l'effet photoélectrique n'est envisageable que pour des photons d'énergie supérieure à l'énergie d'ionisation E_I d'un électron. La création de paires, quant à elle, n'est possible que pour des photons d'au moins 1022 keV, soit l'équivalent des énergies de masse au repos d'un électron et d'un positron. Chacun des mécanismes évoqués ci-dessus peut être dominant par rapport aux autres selon les valeurs de Z et hv considérées. Ceci est illustré à la Figure 7, où la Figure (a) montre cette dépendance selon Z et hv tandis que la Figure (b) s'intéresse aux phénomènes dominant dans le germanium en fonction de l'énergie des photons.



Figure 6 : Mécanismes d'interaction photon-matière. Les pics d'échappement sont également représentés.

Bien entendu, le détecteur utilisé dans le cadre de la technique PIGE est soumis à ces différents mécanismes d'interaction photon-matière. Aux énergies de γ qui nous occupent dans ce travail, comprises entre le MeV et la dizaine de MeV, la Figure 7 montre que l'effet Compton et la production de paires sont les phénomènes dominants. Ces derniers sont donc responsables de l'apparition de pics caractéristiques sur les spectres obtenus via PIGE.



Figure 7 : Dépendance en énergie et selon Z des différents mécanismes d'interaction photon-matière (a). Coefficients d'atténuation pour les différents mécanismes d'interaction photon-matière dans du germanium (b). Ces courbes ont été obtenues grâce au logiciel XmuDat (https://www-nds.iaea.org/publications/iaea-nds/iaea-nds/0195.htm).

La Figure 8 présente ainsi un spectre d'émission gamma de la réaction ¹³C(p, γ)¹⁴N obtenu avec un détecteur HPGe à une énergie $E_{p \ lab} = 558,11$ keV. Comme évoqué plus haut, le noyau composé obtenu à cette énergie se désexcite notamment par émission d'un γ de 8,06 MeV. Le pic le plus à droite sur ce spectre est appelé *pic photoélectrique* ou *full energy peak*. Il correspond à la situation où le photon dépose l'entièreté de son énergie au sein du détecteur. Dans le cas illustré, ce pic apparaît donc à une énergie de 8,06 MeV.



Figure 8 : Spectre obtenu par mesure des γ de la réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$ à une énergie de 558,11 keV dans le système laboratoire. Le détecteur utilisé était un High Purity Germanium (HPGe). On observe bien les pics d'échappement, respectivement espacés de 511 keV et 1022 keV du pic photoélectrique.

Les deux autres pics sont appelés *pics d'échappement*. Plus précisément, on distingue le *single escape peak* (au milieu) et le *double escape peak* (à gauche). L'origine de ces pics réside dans la production de paires électron-positron. Lorsqu'une telle paire est créée par un photon de haute énergie, les deux particules émises perdent leur énergie dans le détecteur. Quand le positron a perdu toute son énergie, il peut s'annihiler avec un électron libre du cristal, provoquant ainsi l'émission de deux photons γ de 511 keV chacun. Si cette annihilation a lieu aux alentours des bords du détecteur, il est possible que l'un de ces γ (voire les deux) quitte le détecteur sans y déposer son énergie. Cette situation est illustrée à la Figure 6. Le pic de *single escape* apparaît donc à une énergie $E_{FE} - 511$ keV et correspond au cas où un seul des deux γ quitte le détecteur. Le pic de *double escape* apparaît quant à lui à $E_{FE} - 1022$ keV et correspond à la situation où les deux γ s'échappent, E_{FE} représentant ici l'énergie du pic photoélectrique. D'autres pics caractéristiques seront abordés plus tard dans ce travail.

Les spectres obtenus par PIGE peuvent également être impactés par l'effet Doppler, qui provoque l'élargissement de certains pics. L'apparition de l'effet Doppler est ici à mettre en lien avec le temps de vie de l'état excité du noyau composé. Suite à la collision qui l'a fait naître, ce dernier possède une énergie cinétique non nulle et met donc un certain temps à s'arrêter. Si le temps de vie de l'état excité C^* (autrement dit le temps nécessaire au noyau composé pour se désexciter) est plus court que le temps dont il a besoin pour s'arrêter, l'émission du γ a lieu lorsque le noyau est toujours en mouvement. Selon la position du détecteur, l'énergie détectée E' est alors plus grande ou plus petite que celle correspondant à la transition de l'état excité vers le fondamental :

$$E' = \left(E_0 - \frac{E_0^2}{2Mc^2}\right) \left(1 + \frac{v}{c}\cos(\theta)\right)$$
(10)

où E_0 correspond à l'énergie de la transition, M la masse du noyau composé, θ l'angle du détecteur et v la vitesse du noyau composé lors de l'émission du rayon γ . Une illustration de l'effet Doppler sera évoquée à la section 4.

2.3 Détecteurs

2.3.1 Scintillateurs

Le premier type de détecteur à être abordé repose sur l'utilisation de matériaux appelés *scintillateurs*. Lorsqu'ils pénètrent dans un tel matériau, les photons et les particules chargées y déposent une certaine quantité d'énergie. Celle-ci est alors absorbée par les molécules du scintillateur, lesquelles voient ainsi un de leurs électrons promu vers un niveau d'énergie supérieur. Lorsque la molécule se désexcite et que l'électron regagne son état fondamental, un photon est émis dans le domaine visible (souvent bleu). C'est le phénomène de *scintillation*.



Figure 9 : Fonctionnement d'un détecteur à scintillation. Lorsqu'un rayonnement de haute énergie (en rouge) traverse un matériau scintillateur (en jaune), il provoque l'excitation des molécules de ce matériau le long d'une certaine trajectoire (en vert foncé). Lorsque ces molécules se désexcitent, des photons du domaine visible (en bleu) sont émis dans toutes les directions. Une partie d'entre eux gagne alors le tube photomultiplicateur en sortie du scintillateur. Adaptation d'une illustration de [29].

Pour transformer cette bouffée de photons en une information pouvant être traitée par une chaîne de détection, il est nécessaire que le scintillateur soit suivi d'un *tube photomultiplicateur*. Le dispositif dans son ensemble est représenté à la Figure 9. Une partie des photons émis au sein du scintillateur arrivent sur une *photocathode* où ils sont convertis en électrons par effet photoélectrique. Ceux-ci alors accélérés vers une première dynode, sur laquelle est appliquée une tension positive. Lorsqu'un électron percute cette électrode, il produit des électrons secondaires (3 à 5) qui sont ensuite accélérés vers la dynode suivante et ainsi de suite jusqu'à l'anode collectrice.

Dans la plupart des matériaux, les photons émis sont réabsorbés par le matériau lui-même, participant donc uniquement à une augmentation de l'énergie thermique de ce dernier [6]. Les scintillateurs, quant à eux, se distinguent par la propriété d'être transparents à leur propre scintillation. Les photons émis peuvent donc quitter le matériau et être détectés en-dehors de celui-ci.

Le nombre de photons émis dans un scintillateur est directement proportionnel à l'énergie déposée par le rayonnement ionisant. Pour cette raison, les scintillateurs sont très souvent utilisés dans des dispositifs de détection de rayonnements ou de particules. Ces détecteurs se caractérisent notamment par un temps de réponse rapide, allant de la nanoseconde à la centaine de nanosecondes selon le type de scintillateur considéré.

Les scintillateurs peuvent être de deux types selon le matériau qui les compose : organiques (également appelés plastiques) ou inorganiques.

Les scintillateurs plastiques sont ainsi constitués de matériaux organiques (C, H, O, ...) et peuvent se présenter sous différentes formes (solide, liquide, ...). Dans ce type de scintillateurs, la propriété de scintillation est en effet propre au matériau considéré et non à son état. L'anthracène (C₁₄H₁₀) utilisée lors de ce mémoire, par exemple, scintille de la même façon qu'elle soit sous forme solide, gazeuse ou parmi d'autres composants en solution. Ils diffèrent en cela des scintillateurs inorganiques comme le Nal(TI) pour lesquels le processus de scintillation nécessite l'existence d'un réseau cristallin [28].

Comme la plupart des scintillateurs de ce type, les scintillateurs organiques utilisés dans le cadre de ce travail sont composés de plus d'une espèce moléculaire. Généralement, on distingue en effet le *solvant* (constitué dans notre cas d'un mélange polyvinyltoluène PVT) et le *soluté* (dans notre cas l'anthracène C₁₄H₁₀), présent en petite dose mais caractérisé par une grande efficacité de scintillation. Bien que l'énergie déposée dans le détecteur soit en grande majorité absorbée par le solvant, une petite partie peut être captée par le soluté, lequel constitue donc le principal émetteur de lumière du dispositif.

Les scintillateurs inorganiques sont quant à eux constitués de matériaux cristallins, comme évoqué précédemment. C'est dès lors dans ce caractère cristallin que réside dans ce cas l'origine de la scintillation. Lorsqu'une radiation ionisante traverse le scintillateur, l'énergie déposée permet de promouvoir des électrons de la bande de valence vers la bande de conduction. La bande interdite de l'iodure de sodium (Nal) utilisée dans ce travail a une largeur d'environ 6 eV, ce qui signifie que la radiation doit déposer au moins 6 eV pour promouvoir un électron vers la bande de conduction.

Pour éviter l'auto-absorption des photons émis, ces cristaux doivent présenter une certaine quantité d'impuretés. Le scintillateur Nal(Tl) est par exemple constitué de Nal dopé au thallium. Les impuretés du cristal constituent en réalité des centres de luminescence. En effet, leur présence mène à l'apparition de niveaux d'énergie au sein de la bande interdite, permettant ainsi l'obtention d'un *gap* plus étroit que celui du cristal non-dopé (3 eV dans le Nal(Tl) contre 6 eV dans le Nal). Les photons émis au niveau de ces centres de luminescence ont donc une énergie inférieure à l'énergie nécessaire pour exciter un électron du cristal et ne sont donc pas réabsorbés par le scintillateur.

2.3.2 Détecteurs à semi-conducteur

Les détecteurs à semi-conducteur, également appelés détecteurs à jonction p-n, constituent la seconde catégorie de détecteurs utilisés dans le cadre de ce mémoire. En effet, les détecteurs PIPS (utilisés pour caractériser les implantations de ¹³C) et le détecteur HPGe (utilisé pour mesurer la section efficace), bien que très différents, appartiennent tous les deux à cette catégorie. Comme son nom l'indique, un détecteur à semi-conducteur repose sur l'utilisation d'une jonction p-n dont le champ

électrique permet de séparer les électrons et les trous créés par le passage d'une radiation ionisante dans le détecteur. Notons que ces dispositifs sont sensibles aux photons et aux particules chargées mais que la discussion qui suit est plus orientée sur la détection de γ par un détecteur de type HPGe, qui constitue le cœur de ce travail.

Lorsqu'un photon γ traverse la zone déplétée de la jonction, il interagit avec la matière environnante suivant l'un des trois mécanismes décrits précédemment (effet photoélectrique, effet Compton, création de paires). L'électron émis par le mécanisme considéré provoque alors une ionisation de la matière, créant ainsi un grand nombre de paires électron-trou. Les électrons et les trous sont alors séparés par le champ électrique présent dans la zone de déplétion et collectés de façon à former une impulsion électrique représentative de l'énergie déposée dans le détecteur.

Le nombre de paires électron-trou générées dépend donc de l'énergie du photon, mais également de la largeur de la bande interdite du semi-conducteur utilisé. En effet, la création d'une telle paire repose sur la promotion d'un électron de la bande de valence vers la bande de conduction. Étant donné que le *band gap* du germanium est très faible (de l'ordre de 0,68 eV [30]), il est « facile » de créer une paire électron-trou. Ce type de détecteur est ainsi caractérisé par une excellente résolution mais aussi par la possibilité de détecter des rayonnements d'énergie relativement faible (à partir de 20 keV) [31]. L'inconvénient de cette faible largeur de *gap* est que l'agitation thermique (k_BT) est suffisante pour générer un nombre important de paires électron-trou, ce qui peut causer des dommages au détecteur si celui-ci est sous tension. Pour cette raison, le détecteur HPGe doit être refroidi à l'azote liquide lorsqu'il est utilisé. Un Dewar précédant le cristal de germanium permet ainsi de stocker et d'alimenter le détecteur en azote liquide pendant de longues périodes (jusqu'à 3 jours).

Comme nous l'avons dit, la région sensible d'un détecteur à semi-conducteur est la zone déplétée de la jonction p-n. Lors de la détection, il convient donc d'élargir cette zone de déplétion, ce qui se fait en polarisant la jonction dans le sens bloquant. L'épaisseur *d* de la zone déplétée est ainsi donnée par l'expression

$$d = \sqrt{\frac{2\varepsilon V}{Ne}} \tag{11}$$

où ε représente la constante diélectrique, V la tension appliquée dans le sens bloquant et où N correspond à la concentration d'impuretés dans le semiconducteur [28],[31].

Le schéma simplifié de la Figure 10 permet de comprendre pourquoi l'impulsion générée suite au passage d'une radiation ionisante est caractéristique de l'énergie déposée dans le détecteur. La tension V_0 correspond à la tension continue appliquée pour polariser la jonction p-n dans le sens bloquant. Lorsqu'une radiation traverse le détecteur, elle génère une quantité de paires électron-trou proportionnelle à l'énergie déposée. Les électrons émis vont alors s'accumuler sur le condensateur, provoquant ainsi une chute de potentiel dont l'amplitude est proportionnelle au nombre d'électrons, et donc à l'énergie déposée. Le condensateur se recharge ensuite à travers la résistance, ce qui explique la forme des impulsions détectées.



Figure 10 : Représentation simplifiée d'un détecteur à semi-conducteur. La tension V₀ correspond à la tension continue appliquée pour polariser la jonction p-n dans le sens bloquant. La bouffée d'électrons émise suite au passage d'une radiation ionisante dans le détecteur provoque une chute de potentiel aux bornes du condensateur. Ce dernier se recharge ensuite à travers la résistance, ce qui explique la forme de l'impulsion représentée.

3 Développement des cibles de ¹³C

3.1 Mise en contexte et état de l'art

Mesurer la section efficace de la réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$ en cinématique directe nécessite l'utilisation de cibles de ${}^{13}C$ présentant certaines caractéristiques spécifiques. Celles-ci se doivent en effet d'être minces, conductrices, reproductibles, de contenir une forte concentration en ${}^{13}C$ et de présenter une bonne stabilité dans le temps et sous irradiation. On parle plus généralement de *standards* ou *références* pour des cibles présentant de telles propriétés.

L'implantation ionique est l'une des méthodes permettant de développer de telles cibles. Elle est notamment reconnue pour le contrôle qu'elle permet à l'utilisateur quant à l'énergie des particules incidentes, la dose implantée, la sélection isotopique ou encore l'homogénéité de l'implantation. Le faisceau peut en effet être balayé horizontalement et verticalement grâce à des plaques déflectrices et la zone implantée peut ensuite être délimitée par un jeu de fentes et de collimateurs. L'implantation ionique a ainsi été utilisée par Genard *et al.* et Debarsy *et al.* pour développer des références d'hydrogène, permettant notamment de mesurer la section efficace de la réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$ en cinématique inverse [32],[33]. De façon plus générale, l'implantation ionique de carbone dans des matrices de silicium est assez répandue dans l'industrie de l'électronique pour la fabrication de SiC [34]. Notons enfin que cette méthode permet dans notre cas une autonomie complète pour la réalisation des cibles de ${}^{13}C$, puisque toutes les étapes peuvent être effectuées à l'aide de l'accélérateur ALTAÏS².

Dans la littérature, il est possible de trouver des publications concernant l'implantation d'ions de ¹³C à des énergies, doses et dans des matrices différentes [27], [35]–[37]. Parmi celles-ci, c'est la référence [37] qui semble s'approcher au mieux de nos conditions d'implantation. Celle-ci présente en effet l'implantation d'ions de ¹³C de 40 keV dans une matrice de silicium (cristallin) à des doses allant jusqu'à 6×10^{17} at/cm². Pour une telle dose implantée, la dose retenue s'élève elle aussi à environ 6×10^{17} at/cm², ce qui signifie que la saturation n'est pas encore apparue. La concentration en ¹³C de cet échantillon s'élève à 62 % atomiques au maximum de la gaussienne.

Parmi les auteurs qui ont mesuré la section efficace de la réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$, Gilles Genard et Paul-Louis Debarsy sont les seuls à avoir utilisé l'implantation ionique pour la réalisation de leurs cibles. Comme évoque précédemment, il s'agissait alors de standards d'hydrogène. Notons aussi que dans leur travail, Galster *et al.* ont utilisé une cible gazeuse de H₂ [38]. Les cibles de ¹³C utilisées par les autres auteurs étaient plus généralement obtenues par des méthodes chimiques ou de dépôt sous vide. Un dépôt sur substrat de tantale a ainsi permis à King *et al.* d'obtenir des cibles dont la concentration en ¹³C s'élevait à 99 % [9]. Hebbard et Vogl ainsi que Woodbury et Fowler ont quant à eux opté pour une méthode de craquage d'iodure de méthyle CH₃I enrichie en ¹³C à 66 % pour Hebbard et Vogl et à 61 % pour Woodbury et Fowler [11],[13]. Enfin, Hester et Lamb ont choisi d'utiliser des cibles de graphite dont la concentration en ¹³C est de 1,1 % [12]. Soulignons donc qu'à notre

² Accélérateur Linéaire Tandetron pour l'Analyse et l'Implantation des Solides

connaissance, nous sommes les premiers à réaliser une mesure de la section efficace de la réaction ${}^{13}C(p,\gamma)^{14}N$ en cinématique directe en utilisant des cibles de ${}^{13}C$ réalisées par implantation ionique.

3.2 Projet de recherche de Master 1

Lors du projet de recherche de Master 1, des références de ¹³C ont été réalisées par implantation ionique de ¹³C⁻ de 36 keV dans des matrices de silicium (100) préalablement amorphisées. L'objectif de cette amorphisation était de détruire l'ordre cristallin du silicium sur une certaine épaisseur de l'échantillon. De ceci découle alors une augmentation du nombre de liaisons pendantes dans la zone amorphisée, ce qui permet de maximiser les possibilités pour le ¹³C de se lier au silicium [1]. Une telle amorphisation permet également d'éviter (ou du moins de limiter) l'apparition du phénomène de canalisation au cours des implantations de ¹³C et des mesures qui s'ensuivent. La réponse du silicium lors de la rétrodiffusion de particules légères peut ainsi être considérée comme homogène.

Un faisceau de ²⁸Si⁺ de 300 keV a donc été utilisé de manière à implanter dans chaque échantillon une dose de 5 × 10¹⁵ ²⁸Si⁺/cm². Lors de cette amorphisation, les cibles de Si ont été inclinées pour limiter le phénomène de canalisation. Des mesures RBS/C ont ensuite été réalisées afin de déterminer l'épaisseur de la zone amorphisée. Pour ce faire, les échantillons de silicium ont été exposés à un faisceau de ⁴He²⁺ de 2 MeV. Un détecteur PIPS³ a été placé à 165° par rapport à la direction du faisceau incident de manière à détecter les particules rétrodiffusées. Deux acquisitions de 10 μ C ont été réalisées, l'une dans la direction de canalisation et l'autre dans une direction quelconque de l'échantillon. Les résultats obtenus sont illustrés à la Figure 11.



Figure 11 : Spectre RBS obtenu avec un faisceau de ⁴He²⁺ de 2 MeV dirigé selon la direction de canalisation (en noir) et selon une direction quelconque (en rouge). Le détecteur, de type PIPS, était placé à 165° par rapport à la direction du faisceau incident. Une courbe simulée obtenue via SIMNRA (en bleu) permet de déterminer l'épaisseur de la zone amorphisée.

³ Passivated Implanted Planar Silicon detector

On constate que les mesures effectuées dans la direction de canalisation permettent de distinguer clairement la zone amorphe et la zone cristalline. En utilisant le logiciel SIMNRA [39], il a été possible d'ajuster une courbe simulée (en bleu) aux données expérimentales caractérisant la région amorphe. Cet ajustement a permis de déduire une épaisseur de 590 nm pour la zone amorphisée. Cette valeur est supérieure aux prédictions de SRIM [40] et SUSPRE [41], s'élevant respectivement à 450 nm et 500 nm.

Cette différence peut s'expliquer par une éventuelle apparition du phénomène de canalisation au cours de l'amorphisation, ce malgré l'inclinaison apportée aux cibles de Si [33]. Ce dernier aurait alors permis aux ions incidents de pénétrer plus en profondeur au sein de l'échantillon et ainsi de générer des dégâts sur une épaisseur plus importante. Il est également possible que ces dégâts soient dus à des ions de recul et/ou à des cascades de collisions ayant eu lieu au cours de l'amorphisation. Ceux-ci, qui ne sont pas totalement pris en compte par SRIM et SUSPRE, peuvent en effet provoquer des dégâts à des profondeurs plus importantes que le *range* des particules incidentes.

L'étape suivante a alors consisté à implanter des ions ${}^{13}C^{-}$ de 36 keV à différentes doses (0,25 – 6 × 10¹⁷ at./cm²) dans les cibles de Si amorphisées. Les profils de concentration en ${}^{13}C$ dans les différents échantillons ont alors été mesurés par RNRA-PIGE en utilisant la résonance à 1747,6 keV (E_{lab}) de la réaction ${}^{13}C(p,\gamma)^{14}N$. Les résultats obtenus sont illustrés à la Figure 12.



Figure 12 : Superposition des profils de concentration en ¹³C des échantillons implantés (entre 0.25 et 6 × 10¹⁷ at/cm²). Tous ces profils ont une allure gaussienne. Les barres d'erreur tiennent compte de l'erreur statistique sur la mesure.

On constate que, quelle que soit la valeur de la dose implantée, les profils montrent une allure gaussienne. Dans le cas de l'échantillon le plus implanté, on observe une concentration de l'ordre de 80 % atomiques au niveau du maximum. En intégrant ces profils, il a été possible de réaliser une première étude de la dose retenue en fonction de la dose implantée. Celle-ci est illustrée à la Figure 13.

Les implantations de ¹³C ont également été caractérisées à l'aide d'un faisceau de deutérons de 1,1 MeV. La détection des noyaux ⁴He²⁺ émis par la réaction ¹³C(d, α_0)¹¹B a permis de déterminer la quantité de ¹³C présente dans chaque échantillon. Il a alors été possible de réaliser une nouvelle étude

de la dose retenue en fonction de la dose implantée, dont les résultats sont également montrés à la Figure 13.



Figure 13 : Graphe de la dose retenue en fonction de la dose implantée. Résultats obtenus par NRA (réaction ¹³C(d,α₀)¹¹B) (disques verts), par RNRA (triangles rouges), par intégration des profils déterminés par SRIM (courbe bleue) et par intégration de profils obtenus via une simulation tenant compte du gonflement de la couche implantée et de l'érosion de la surface de l'échantillon par le faisceau incident (courbe rouge). Les résultats expérimentaux ne montrent pas de saturation. La courbe simulée (rouge) prédit l'apparition de la saturation pour une dose implantée d'environ 1,3 × 10^{18 13}C/cm².

Quelle que soit la technique de caractérisation utilisée, on observe sur cette Figure que les résultats expérimentaux ne montrent pas de saturation. La dose à laquelle apparaît cette saturation reste néanmoins une donnée importante pour la réalisation de références de ¹³C par implantation ionique, comme expliqué à la section 2.1. Pour déterminer cette dose-seuil, des simulations d'implantations de ¹³C à plus haute dose ont donc été réalisées à l'aide du logiciel SRIM. L'intégration des profils simulés a alors permis d'établir la courbe bleue présentée à la Figure 13. Comme on peut le constater, aucune saturation n'a pu être mise en évidence par cette simulation. Celle-ci prédit en effet une évolution linéaire de la dose retenue pour des doses implantées allant jusqu'à 3 × 10¹⁸ at./cm².

L'explication d'une telle évolution réside dans le fait que SRIM ne tient pas compte du gonflement de la couche implantée et de l'érosion de la surface de l'échantillon ayant lieu lors d'implantations à haute dose. Cette limitation de SRIM est assez connue dans la littérature. Les auteurs des références [42] et [43] rappellent en effet que TRIM ne permet pas d'estimer correctement les profils de concentration pour des implantations à haute dose d'ions de basse énergie. Ils avancent même qu'à basse énergie, la dose implantée doit être inférieure à 10¹⁵ at/cm² pour que le profil simulé soit fiable. Ils attribuent ce phénomène au fait que TRIM ne prend pas en compte les effets dynamiques liés à l'érosion de la surface et à la variation de la composition de la cible. Au vu des doses de ¹³C implantées dans le cadre du présent travail, ces effets sont pourtant loin d'être négligeables. L'idéal serait donc d'utiliser un programme *dynamique* tenant compte de ces effets.

D'autres simulations ont ainsi été réalisées à l'aide d'un programme développé sous Excel et baptisé « programme *Moments* ». Ce dernier se base sur les profils déterminés par SRIM mais a

l'avantage de tenir compte du gonflement de la couche implantée et de l'érosion de la surface de l'échantillon par le faisceau incident. Des simulations d'implantations de ¹³C à haute dose ont ainsi été réalisées à l'aide de ce programme et l'intégration des profils obtenus a permis d'établir la courbe rouge de la Figure 13. Celle-ci semble prédire l'apparition d'une saturation de la dose retenue à partir d'une dose implantée de 1,3 × 10¹⁸ at./cm². Lors de ce mémoire, des implantations de ¹³C ont donc été réalisées à des doses allant jusqu'à 1,5 × 10¹⁸ at./cm² de façon à vérifier cette prédiction.

3.3 Amorphisation

Des galettes de silicium monocristallin d'orientation (100) de 400 µm d'épaisseur ont été coupées en échantillons rectangulaires de 20mm × 13mm avant de subir un traitement visant à diminuer leur contamination en surface. Ces échantillons ont ainsi été successivement plongés dans de l'acétone et de l'isopropanol et placés dans un bain à ultrasons avant de subir une exposition aux UV. Comme lors du projet de recherche, ces cibles cristallines ont ensuite été implantées avec des ions de ²⁸Si⁺ de 300 keV, à raison de 5 × 10¹⁵ ions/cm². L'intensité du courant était de l'ordre de 2 µA pour chacune des implantations. Pour garantir l'homogénéité latérale de l'amorphisation, un balayage du faisceau a été effectué verticalement et horizontalement en appliquant une tension triangulaire sur deux paires de plaques déflectrices positionnées autour du faisceau. Soulignons que d'autres ions peuvent être utilisés pour amorphiser un échantillon cristallin, mais que l'utilisation d'ions de silicium présente ici l'avantage de ne pas apporter d'impuretés inutiles au sein de la matrice.

Lors de sa thèse, Paul-Louis Debarsy a réalisé différents aménagements du bout de ligne utilisé pour les amorphisations. Ceux-ci visent notamment à assurer une lecture de courant fiable grâce à l'application d'une tension de -200 V avant la cage de Faraday ainsi qu'une contamination moindre des échantillons, permise par la présence d'un *doigt froid*. Pour une description plus précise de ces aménagements, le lecteur est invité à consulter les références [1],[33].

Le porte-échantillons utilisé a lui aussi été spécialement usiné pour la réalisation d'amorphisations. Ce dernier accueille en effet un circuit de refroidissement dans lequel circule du Syltherm[™], un fluide caloporteur lui-même partiellement plongé dans la glace [44]. L'utilisation d'un système de refroidissement peut en effet s'avérer nécessaire lorsque les intensités de faisceaux utilisées sont importantes. Les irradiations mènent alors à un échauffement de l'échantillon pouvant conduire à sa dégradation ou sa recristallisation, ce qui n'est évidemment pas souhaité lors d'une amorphisation. La circulation du Sytherm[™] dans le porte-échantillons permet donc de refroidir l'échantillon, le maintenant ainsi à une température modérée. Pour éviter le phénomène de canalisation et ainsi garantir une bonne amorphisation de la cible cristalline, le porte-échantillons a également été conçu de manière à incliner les échantillons par rapport au faisceau incident. Ces derniers ont donc été positionnés de façon à présenter un angle de *twist* de 5° et un angle de *tilt* de 7°, comme illustré à la Figure 14. Ces valeurs ont été déterminées par Paul-Louis Debarsy dans le cadre de sa thèse, de manière à optimiser l'amorphisation des cibles.



Figure 14 : Représentation des angles de twist et de tilt donnés à l'échantillon pour limiter le phénomène de canalisation et ainsi optimiser l'amorphisation.

3.4 Implantations de ¹³C

L'étape suivante a consisté à implanter des ions ¹³C⁻ de 36 keV dans ces cibles de silicium à raison de 8 × 10¹⁷, 10¹⁸ et 1,5 × 10¹⁸ at./cm². Pour ce faire, nous avons utilisé l'implanteur basse énergie de l'accélérateur ALTAÏS, situé juste avant la colonne d'accélération. Les ions de ¹³C proviennent d'une source solide de KCN enrichie en ¹³C. Un balayage vertical du faisceau a été réalisé en appliquant une tension triangulaire sur une paire de plaques déflectrices horizontales. L'implanteur ne disposant pas de plaques déflectrices verticales, le balayage horizontal du faisceau a été réalisé en faisant varier périodiquement le courant dans l'électroaimant situé juste avant la cible. Le courant du faisceau après balayage était d'environ 8 µA. Les dimensions de la zone implantée sont de 12 mm × 6 mm.

L'énergie des ions a été choisie assez faible de manière à créer une couche mince de ¹³C en surface de l'échantillon. C'est en effet la configuration qui permet la meilleure certitude sur l'énergie des protons au moment de la réaction. Dans le cas d'une couche trop épaisse, la réaction peut se produire au début comme à la fin de la couche, où les protons ont perdu une certaine quantité d'énergie. Puisque la perte d'énergie des ions dans la matière est soumise à des fluctuations statistiques (phénomène de *straggling*), l'incertitude sur l'énergie des protons au moment de la réaction est alors assez élevée. Le même problème se pose dans le cas d'une couche d'intérêt située en profondeur dans un échantillon.

Comme évoqué au point 3.2, les doses implantées ont ici été choisies de manière à vérifier la prédiction du programme *Moments* quant à l'apparition d'une saturation à partir de 1,3 × 10^{18 13}C/cm² implantés.

3.5 Caractérisation par réaction (d, α)

Ces cibles ont alors été caractérisées par NRA en suivant la même méthodologie que celle développée lors du projet de recherche. Les échantillons ont donc été exposés à un faisceau de deutérons de 1,1 MeV. Cette énergie a été choisie de manière à se placer au maximum de la section efficace de la réaction ¹³C(d, α_0)¹¹B, utilisée ici pour déterminer la quantité de ¹³C implantée dans chacun des échantillons [53],[54].

Deux détecteurs PIPS ont été placés à 135° et 165° par rapport à la direction du faisceau incident (dispositif similaire à la Figure 1). Le calibrage en énergie de ces détecteurs a été réalisé en utilisant les

pics de différentes réactions nucléaires induites par le faisceau de deutérium. Un échantillon de carbone vitreux et un autre de kapton ont ainsi été utilisés pour cet étalonnage. Une acquisition de 5 μ C a été réalisée sur chacun d'entre eux.

Les cibles implantées ont alors été disposées sur le porte-échantillons de façon à présenter des angles de *twist* et de *tilt* similaires à ceux utilisés lors de l'amorphisation. En effet, l'objectif est ici d'utiliser les deutérons rétrodiffusés par le silicium comme moniteur de courant, permettant ainsi de déterminer le nombre de particules incidentes sur la cible lors de chaque acquisition. Comme indiqué à la section 2.2.2, ceci nécessite d'éviter le phénomène de canalisation, ce qui explique ce positionnement des cibles sur le porte-échantillons.

Deux points de mesure ont été pris sur chaque échantillon de manière à vérifier l'homogénéité latérale des implantations. La charge intégrée lors de chaque acquisition était de 20 μ C. Le courant sur cible était de l'ordre de 40 nA. Pour chaque point de mesure, une région d'intérêt a été placée au niveau du pic de la réaction ¹³C(d, α_0)¹¹B afin de déterminer le nombre de coups correspondant. Ce pic est visible sur le spectre de la Figure 15. Chaque spectre a également été simulé à l'aide des logiciels SIMNRA [47] et SIMTarget [48] afin d'évaluer le nombre de particules incidentes par stéradian, en se basant sur le front de la réaction ²⁸Si(d,d₀)²⁸Si. Ces simulations tenaient notamment compte du phénomène de *pile-up* et de la zone morte des détecteurs.



Figure 15 : Spectre expérimental obtenu lors de l'irradiation d'un échantillon implanté en ¹³C par un faisceau de ²H de 1,1 MeV. Le détecteur était placé à 135° par rapport à la direction du faisceau incident. La notation utilisée pour identifier les pics est la suivante : le noyau cible est indicé par la particule émise et le niveau d'énergie du noyau cible dont elle est originaire. Ainsi la notation ¹³C_{a0} correspond à la réaction ¹³C(d, α_0)¹¹B.

Toutes ces données ont alors été injectées dans l'équation 2, permettant ainsi de déterminer la dose de ¹³C retenue dans les échantillons. Les résultats obtenus ont été ajoutés à ceux du projet de recherche, caractérisant les échantillons les moins implantés. La Figure 19 montre ainsi la totalité de ces résultats sous la forme d'un graphe de la dose retenue en fonction de la dose implantée. Les barres d'erreur tiennent compte de l'erreur statistique sur la mesure, de l'erreur sur la valeur de la section efficace ainsi que de l'imprécision sur la mesure du courant et la valeur de l'angle d'incidence.

3.6 Caractérisation par la réaction résonante ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$ à 1747,6 keV

Une technique RNRA-PIGE a ensuite été utilisée de façon à établir les profils de concentration en ¹³C des différents échantillons implantés. Comme lors du projet de recherche, ceux-ci ont été sondés en profondeur via la réaction ¹³C(p, γ)¹⁴N, qui présente une résonance très étroite ($\Gamma = 75$ eV) à une énergie de 1747,6 keV dans le système laboratoire [27],[37],[49],[50]. Une telle résonance permet donc, comme évoqué précédemment, d'obtenir une bonne résolution en profondeur lors de la réalisation des profils.

Pour déterminer une concentration absolue en ¹³C sur base de ces profils, il est nécessaire de réaliser des mesures préliminaires sur un échantillon de concentration connue, comme indiqué à la section 2.2.4. Des mesures ont donc été effectuées sur un échantillon de carbone vitreux. Ce dernier présentant les abondances isotopiques du carbone naturel, il est caractérisé par une concentration en ¹³C de 1,07 %, homogène sur toute son épaisseur. La réaction ¹³C(p, γ)¹⁴N a donc été induite sur cet échantillon, à des énergies inférieures et supérieures à l'énergie de résonance.

Pour des énergies inférieures à l'énergie de résonance, la probabilité d'occurrence de la réaction ¹³C(p,γ)¹⁴N est très faible. Les coups détectés à ces énergies sont donc considérés comme du bruit.

Lorsque le faisceau est à l'énergie de résonance, la section efficace augmente brusquement. La probabilité de réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$ entre les protons incidents et les noyaux de ${}^{13}C$ situés en surface de l'échantillon devient donc très importante et le nombre de coups détectés augmente. Plus en profondeur dans l'échantillon, les protons perdent de l'énergie et la probabilité de réaction retombe à son niveau « hors résonance ».

Enfin, lorsque l'énergie des protons est supérieure 1747,6 keV en sortie de l'accélérateur, ils n'atteignent l'énergie de résonance qu'après traversée d'une certaine épaisseur de matière, au cours de laquelle le pouvoir d'arrêt permet de diminuer leur énergie jusqu'à 1747,6 keV. La situation est alors différente de celle présentée à la Figure 5 pour des couches minces. En effet, contrairement au cas d'une couche mince de ¹³C implantée dans une matrice donnée, qui présente une concentration élevée en ¹³C sur une petite portion de l'échantillon seulement, la cible de carbone vitreux utilisée ici présente une concentration en ¹³C homogène sur toute son épaisseur. Autrement dit, quelle que soit la profondeur à laquelle survient la résonance, la concentration en ¹³C est toujours la même.

Cette situation est illustrée à la Figure 16, où les différents schémas placés au-dessus du graphe montrent la position de la résonance (en rouge) au sein de l'échantillon de carbone vitreux en fonction de l'énergie des protons incidents. Le graphe visible sur cette Figure résulte quant à lui des mesures réalisées sur ce même échantillon. On y distingue deux plateaux, apparaissant en-deçà et au-delà de

l'énergie de résonance. Ceux-ci correspondent respectivement au *bruit* évoqué précédemment et aux *coups* provenant de la résonance.



Figure 16 : Nombre de coups détectés par μC sur un échantillon de carbone vitreux pour différentes valeurs d'énergie des protons incidents. Chaque point résulte d'une acquisition de 20 μC. La ROI a été définie de manière à détecter les γ de 9,17 MeV provenant de la désexcitation du ¹⁴N* vers le fondamental. Un schéma illustrant la position de la résonance (en rouge) a été placé au-dessus de chaque zone d'intérêt du graphe.

Calculer la différence entre ces deux plateaux permet de déterminer le nombre de coups par μ C correspondant à une concentration de 1,07 % de ¹³C. C'est grâce à cette donnée que des valeurs absolues de concentration peuvent être déterminées sur base des profils. Le nombre de coups détectés en chaque point de mesure d'un profil peut en effet être comparé à ce nombre de coups de référence, duquel peut être déduite la concentration en ¹³C.

Les mesures illustrées à la Figure 16 ont été réalisées à l'aide d'un scintillateur inorganique puits de type Nal(Tl) placé au centre d'un *château de plomb* utilisé comme blindage passif contre la radioactivité naturelle. Ce dispositif sera explicité plus en profondeur à la section 4.2.2. Comme illustré dans la référence [32], la géométrie de détection 4π offerte par ce détecteur permet de détecter l'entièreté des photons γ émis lors de la réaction et ce quelle que soit leur direction. Préalablement aux mesures, le scintillateur Nal(Tl) a été calibré grâce à des sources de ¹³⁷Cs et de ⁶⁰Co. Les énergies des γ émis par ces sources sont respectivement de 662 keV pour le ¹³⁷Cs et de 1173 keV et 1332 keV pour le ⁶⁰Co.

Les différents points de la Figure 16 ont donc été obtenus en réalisant des acquisitions à différentes énergies de faisceau incident, de part et d'autre de l'énergie de résonance. Les spectres ont été enregistrés à chaque énergie et les régions d'intérêt ont été définies de manière à détecter les rayons γ provenant de la désexcitation du niveau excité à 9,17 MeV du ¹⁴N* vers le niveau fondamental.

Des mesures similaires ont ensuite été réalisées sur les échantillons implantés à 8×10^{17} , 10^{18} et 1.5×10^{18} 13 C⁻/cm². Un faisceau de protons de 6×3 mm² a été utilisé, permettant d'obtenir un courant sur cible de 150 nA. La charge intégrée lors de chaque acquisition était de 2 µC. Des pas en tension de 0,2 keV ont été réalisés.

Comme cela vient d'être évoqué, la région d'intérêt a été choisie pour permettre la détection du γ de 9,17 MeV émis lors de la désexcitation du ¹⁴N*. Cette zone d'intérêt a cependant dû être modifiée par rapport à celle définie lors du projet de recherche pour la mesure des profils des échantillons moins implantés. Cette dernière avait en effet été définie entre 7600 et 9200 keV, de manière à avoir une statistique importante et ainsi diminuer l'erreur sur le nombre de coups.

Le problème avec cette zone d'intérêt réside dans l'existence d'une résonance intense à une énergie $E_{lab} = 1340$ keV. Cette dernière, dont les principales propriétés sont indiquées à la Table 1, mène à l'émission d'un rayon γ de 8,79 MeV. Fondamentalement, ce rayonnement provient de la réaction ¹³C(p, γ)¹⁴N et constitue donc une source d'informations sur la présence de ¹³C au même titre que le γ de 9,17 MeV. Cependant, à cause de la distribution en ¹³C très différente entre l'échantillon de carbone vitreux et les échantillons implantés, ce rayon γ de 8,79 MeV ne peut être émis qu'au sein de l'échantillon de carbone vitreux.

E _{lab} (keV)	Ε _γ (keV)	Γ _{cm} (keV)	ωΓ _γ (eV)	
550,6	8,06	30	9,2	
1340	8,79	460	12,8	
1747,6	9,17	0,075	14,8	

Table 1 : Principales propriétés des résonances les plus intenses dont les γ sont émis dans la région d'intérêt définie entre 7600 keV et 9200 keV. La force de la résonance est donnée par la grandeur $\omega\Gamma_{\gamma}$. Données tirées de la référence [50].

Considérons tout d'abord la distribution en ¹³C au sein des échantillons implantés. Au vu des profils déterminés lors du projet de recherche de Master 1, il est vraisemblable d'imaginer que le ¹³C forme une couche mince proche de la surface et large de quelques centaines de nanomètres. En supposant une couche du type Si₂₀¹³C₈₀ de 2500 × 10¹⁵ at/cm² d'épaisseur et en calculant le pouvoir d'arrêt correspondant via SRIM [40], on estime la perte d'énergie du faisceau lors de la traversée de la couche à environ 10 keV. Autrement dit, un faisceau de protons de 1747,6 keV en sortie de l'accélérateur atteindra au minimum une énergie de 1736 keV au sein de la couche. Cette valeur reste bien supérieure à l'énergie $E_R = 1340$ keV de la résonance « parasite ». Les γ de 8,79 MeV ne peuvent donc pas être émis dans les échantillons implantés.

Comme évoqué précédemment, l'échantillon de carbone vitreux présente par-contre une concentration en ¹³C homogène et ce sur une épaisseur de plusieurs millimètres. Cette épaisseur est dès lors suffisante pour que les protons incidents, dont l'énergie varie entre 1740 et 1765 keV environ

lors de la mesure du profil, soient ralentis jusqu'à 1340 keV dans une zone contenant toujours 1,07 % de ¹³C. Les rayons γ de 8,79 MeV peuvent donc être émis au sein de l'échantillon de carbone vitreux. L'épaisseur de cette cible est telle que les protons peuvent même atteindre une énergie de 550,6 keV correspondant à une autre résonance, dont les propriétés sont également montrées à la Table 1. Les rayons γ émis ont une énergie de 8,06 MeV et sont donc eux aussi détectés dans la région d'intérêt entre 7600 et 9200 keV.

Ceci est d'ailleurs visible à la Figure 17 où sont comparés des spectres obtenus respectivement sur le carbone vitreux et sur un échantillon implanté à 10^{18} 13 C/cm². On peut observer que les rayons γ de 8,06 MeV apparaissent pour le carbone vitreux mais pas pour l'échantillon implanté.

En définissant la région d'intérêt entre 7600 keV et 9200 keV, on détecte ainsi les rayons γ de 8,79 MeV et 8,06 MeV lors des mesures sur le carbone vitreux mais pas lors des mesures sur les échantillons implantés. La conséquence est alors une surestimation du nombre de coups de référence par μ C correspondant à 1,07 % de ¹³C. Les valeurs de concentration déterminées lors des mesures de profil sur les échantillons implantés risquent ainsi d'être sous-évaluées. Pour éviter cela, la région d'intérêt a donc été modifiée et définie entre 8800 et 9200 keV, de manière à ne plus prendre en compte ces contributions non désirées. L'erreur statistique sur la mesure est alors plus importante, mais le rapport signal sur bruit se trouve amélioré.

Pour éviter ou limiter ce genre de problèmes liés à la présence de résonances voisines, il est généralement conseillé de travailler avec des résonances à plus basse énergie. En effet, plus l'énergie est basse et moins il y a de voies de désexcitation accessibles.

Les profils de concentration en ¹³C des différents échantillons implantés ont donc été mesurés en tenant compte de ce changement de région d'intérêt. Comme déjà évoqué lors du projet de recherche, le profil expérimental obtenu sur base de ces mesures ne correspond pas encore au profil de concentration de l'échantillon. Comme illustré dans ce projet de recherche pour les échantillons les moins implantés, ce profil présente en effet l'allure d'une gaussienne asymétrique (caractérisée par un coefficient d'asymétrie (*skewness*) positif).



Figure 17 : Spectres obtenus lors de l'irradiation d'un échantillon de carbone vitreux (en haut) et d'un échantillon implanté à 10^{18 13}C/cm² (en bas) par un faisceau de protons de 1752 keV. Les rayons γ de 8,06 MeV émis par une résonance de plus basse énergie sont uniquement visibles dans le cas du carbone vitreux. Ces mesures ont été réalisées à l'aide d'un détecteur HPGe de façon à obtenir une bonne résolution en énergie.

À ce stade, le profil expérimental correspond en réalité à la convolution de plusieurs grandeurs que sont la largeur de la résonance (75 eV), la résolution en énergie de l'accélérateur (200 eV), l'étalement énergétique dû au phénomène de *straggling* et enfin le profil réel de concentration en ¹³C. Le signal mesuré peut donc être décrit par l'équation

$$Y(E_0) = \int_{x=0}^{R} c(x) F(E_0, x) dx$$
(12)

dans laquelle *R* correspond à la largeur de l'échantillon, c(x) au profil réel de concentration en ¹³C et où la fonction $F(E_0, x)$ tient compte de la largeur de la résonance et de la fonction de *straggling* définie sur base des distributions de Vavilov [51]. Ce sont ces distributions et, par conséquent, le phénomène de *straggling* qui sont responsables de l'allure asymétrique du profil mesuré.

Une déconvolution de ce signal a donc été réalisée en utilisant le programme *Vavlov* [51]. Sur base des données obtenues lors des mesures sur le carbone vitreux, le programme *Mkpro* a ensuite permis de déterminer les valeurs absolues de concentration. Les profils ainsi obtenus sont montrés à la Figure 18. En intégrant ces profils, il a été possible de réaliser une nouvelle étude de la dose retenue en fonction de la dose implantée. Ces résultats ont donc été ajoutés à ceux du projet de recherche et sont montrés à la Figure 19.



3.7 Résultats et discussion

Figure 18 : Superposition des profils de concentration en ¹³C des différents échantillons implantés (à 8, 10 et 15 × 10¹⁷ at/cm²). Les barres d'erreur tiennent compte de l'erreur statistique sur la mesure.


Figure 19 : Étude de la dose retenue en fonction de la dose implantée. Les points expérimentaux ont été obtenus via les méthodes NRA et RNRA-PIGE détaillées précédemment. Pour la RNRA-PIGE, les barres d'erreur tiennent compte de l'erreur statistique sur la mesure. Pour la NRA, elles tiennent compte de l'erreur statistique, de l'erreur sur la section efficace, sur l'angle d'incidence et sur la charge intégrée. Les simulations ont été réalisées via SRIM et un programme tenant compte de l'érroison et du gonflement de la cible lors de l'implantation. Deux coefficients de sputtering différents ont été utilisés.

Comme évoqué précédemment, deux points de mesures ont été pris sur chaque échantillon lors de l'étude par NRA afin de vérifier l'homogénéité latérale des implantations de ¹³C. Comme l'indique la Table 2, le nombre de coups détectés était très proche pour tous les points d'un même échantillon, prouvant ainsi cette homogénéité.

Dose implantée (at/cm²)	165° point 1	165° point 2	135° point 1	135° point 2
8 × 10 ¹⁷	3151	2992	2861	2822
10 ¹⁸	3605	3636	3334	3427
1,5 × 10 ¹⁸	6126	6220	5430	5718

Table 2 : Nombre de coups mesurés via la réaction ${}^{13}C(d, \alpha_0){}^{11}B$ pour deux points de mesure sur chaque échantillon implanté. Deux détecteurs PIPS, placés à 135° et 165° par rapport à la direction du faisceau incident, ont permis de détecter les particules α émises lors de la réaction. Ces mesures permettent de confirmer l'homogénéité de l'implantation de ${}^{13}C$.

À la Figure 18, on constate que l'allure des profils de concentration obtenus par RNRA n'est plus gaussienne, contrairement à ce qui avait été observé lors du projet de recherche (voir Figure 12). Les résultats montrent en effet un important élargissement des profils, principalement visible pour l'échantillon le plus implanté. De tels élargissements sont également visibles dans la référence [52], dans le cas d'une implantation d'ions de bore de 35 keV dans une matrice de silicium. Les profils, gaussiens pour les doses les plus modérées, s'élargissent lorsque la dose implantée augmente. Ce phénomène est en réalité lié au *gonflement* de la cible survenant au cours de l'implantation. Dans la littérature, l'implantation ionique et les changements de volume et de densité qu'elle induit au sein du matériau irradié sont en effet souvent associés à une expansion de la région implantée, appelée *gonflement* [53]. Notons que l'apparition de ce phénomène dépend notamment de l'énergie des ions incidents et du matériau constituant la cible. Ainsi, les profils déterminés par Colaux et al. suite à l'implantation d'ions de ¹³C de 400 keV dans une matrice de cuivre montrent une allure gaussienne même à des doses supérieures à 1.5×10^{18} at./cm² [35].

Chacun des profils visibles à la Figure 18 montre un maximum de concentration supérieur à 80 % atomiques de ¹³C. Un plateau à 90 % atomiques peut même être observé dans le cas de l'échantillon le plus implanté. L'implantation ionique à haute dose permet donc d'atteindre une concentration en ¹³C très élevée. Celle-ci reste inférieure aux valeurs obtenues par PVD (de l'ordre de 98 % [53],[64]) mais cette différence est compensée par la meilleure tenue sous faisceau des échantillons obtenus par implantation ionique. La concentration en ¹³C de nos références est par-contre bien plus élevée que la concentration en hydrogène des standards réalisés par Gilles Genard (20 % at. max) et Paul-Louis Debarsy (35 % at. max) dans le cadre de leur thèse. Cela signifie que pour obtenir un même nombre de coups au moment de la mesure de la section efficace, il sera possible d'utiliser des intensités de faisceau moins élevées ou de réduire les temps d'irradiation par rapport à ce qui avait été utilisé lors de ces thèses. Ceci permettra donc vraisemblablement de limiter quelque peu les dégâts induits aux échantillons au cours de la mesure.

La Figure 19 montre quant à elle un excellent accord entre les valeurs de dose retenue obtenues par NRA et RNRA. Les points coïncident (ou, à défaut, leurs barres d'erreur se croisent) pour tous les échantillons à l'exception de celui implanté à 6 × 10¹⁷ ¹³C/cm². La différence qui apparaît alors entre les deux résultats provient peut-être de l'incertitude liée à certains paramètres utilisés lors de la déconvolution des profils expérimentaux. Parmi ceux-ci, le nombre de coups de référence déterminés grâce au standard de carbone vitreux ou la définition du pouvoir d'arrêt de l'échantillon peuvent par exemple avoir constitué une source d'erreur. En effet, pour les doses implantées les plus élevées, la composition de cet échantillon ne peut plus être approximée par du silicium pur comme c'est le cas pour les doses inférieures. Une certaine proportion de ¹³C a ainsi été introduite pour le calcul du pouvoir d'arrêt via SRIM. L'incertitude sur cette valeur mène vraisemblablement à une certaine imprécision.

Lors du projet de recherche, des simulations ont été effectuées afin de prédire la dose implantée à partir de laquelle apparaîtrait une saturation de la dose retenue. Ces simulations ont été réalisées à l'aide d'un programme Excel (appelé programme *Moments*) permettant de simuler des implantations de ¹³C en se basant sur des profils déterminés par SRIM. Toutefois, à la différence de SRIM, ce programme considère l'érosion de la surface de l'échantillon et le gonflement de la couche implantée qui surviennent au cours d'une implantation à haute dose. La courbe simulée, en rouge sur la Figure 19, avait alors permis de prédire une saturation à partir d'une dose implantée de 1,3 × 10¹⁸ ¹³C/cm². Les

résultats expérimentaux illustrés sur cette même Figure ne font cependant apparaître aucune saturation.

Une comparaison entre les profils de concentration simulés par le programme *Moments* et les profils expérimentaux de la Figure 18 nous a permis de constater que l'érosion de la surface étant grandement surestimée dans la simulation. Celle-ci prédit par exemple une érosion de surface de 148 nm pour l'échantillon le plus implanté, ce qui est loin de correspondre aux résultats expérimentaux. On déduit de ce constat que le problème réside vraisemblablement dans la simulation de l'érosion de la surface.

Cette dernière utilise sur le coefficient de *sputtering* défini par SRIM et valant 0,48. Contrairement à SRIM, la référence [54] se base sur des valeurs empiriques pour déterminer le coefficient d'érosion (sputtering *yield*). Dans le cas d'une implantation d'ions de carbone de 36 keV dans du silicium, elle renseigne une valeur de 0,24. De nouvelles simulations ont donc été réalisées avec le programme *Moments* en utilisant cette valeur. La courbe obtenue est représentée en vert à la Figure 19.

Cette nouvelle simulation prédit l'apparition de la saturation aux alentours de 3 × 10¹⁸ ¹³C/cm² implantés. On observe un très bon accord entre les points expérimentaux et la courbe simulée, sauf pour l'échantillon le plus implanté. Pour ce dernier, on peut vraisemblablement suspecter une erreur sur la lecture courant au moment de l'implantation. Les deux méthodes expérimentales s'accordent en effet pour montrer que la dose retenue est supérieure à la dose théoriquement implantée, ce qui est bien sûr impossible dans notre cas.

L'apparition de la saturation à une dose aussi élevée signifie qu'une quantité très importante de ¹³C peut être implantée dans les matrices de silicium. Ce résultat peut donc, à première vue, être considéré comme très positif. En effet, lors de la mesure de la section efficace, la probabilité d'occurrence de la réaction ¹³C(p, γ)¹⁴N sera d'autant plus importante que la concentration en ¹³C de l'échantillon est grande. Ceci est d'ailleurs exprimé par l'équation 13 qui montre qu'à paramètres identiques, le nombre de coups détectés est directement proportionnel à la concentration en ¹³C.

Cependant, en observant à la Figure 18 les profils obtenus pour les doses les plus importantes, on constate qu'il ne serait pas judicieux d'implanter plus de ¹³C. En effet, la cible idéale pour une mesure de section efficace consisterait en une couche d'épaisseur tendant vers 0 et de concentration en ¹³C proche de 100 %. Une telle épaisseur permettrait ainsi une précision maximale sur l'énergie des protons au moment de la réaction, ce qui est évidemment souhaitable pour une mesure de section efficace. Une largeur de couche comme celle visible à la Figure 18 pour l'échantillon implanté à 1,5 × 10¹⁸ ¹³C/cm² entraîne une erreur importante sur l'énergie de réaction.

Au vu de ces différentes considérations, il a finalement été choisi de réaliser les mesures de section efficace sur l'échantillon implanté à 10¹⁸ ¹³C/cm².

3.8 Profils de concentration et évaluation de la qualité des standards

Il est important de vérifier la bonne tenue sous irradiation de nos références de ¹³C dans des conditions de mesure de section efficace. Pour ce faire, le profil de concentration de l'échantillon implanté à 10¹⁸ ¹³C/cm² a été établi par RNRA-PIGE avant et après de longues irradiations. La Figure 20 montre l'évolution de ce profil avant et après irradiation, pour une charge intégrée totale de 6,1 mC.



Figure 20 : Profils de concentration en ¹³C avant (triangles bleus) et après (disques rouges) irradiation. La charge totale intégrée au cours des mesures est de 6,1 mC. Le faisceau de protons incident couvrait une surface de 18 mm². Le courant sur cible était compris entre 150 nA et 500 nA.

Cette Figure montre deux tendances distinctes. Premièrement, on observe que le profil tend à s'étaler en profondeur. Ce comportement peut vraisemblablement être attribué à l'échauffement et aux dégâts produits par le faisceau incident au cours de l'irradiation. Deuxièmement, on constate une diminution globale de la concentration en ¹³C. La désorption a lieu sur toute la largeur du profil et ne semble donc pas apparaître préférentiellement en surface ou en profondeur dans l'échantillon. La concentration non nulle pour une profondeur inférieure à 250×10^{15} at/cm² semble montrer une diffusion de ¹³C vers la surface. Celle-ci indique donc peut-être une perte de ¹³C au niveau de la surface.

Malgré ces deux effets, la quantité de ¹³C au sein de l'échantillon varie très peu au cours de l'irradiation. L'intégration de ces profils montre en effet que la dose retenue passe de 9,96 × 10^{17} ¹³C/cm² à 9,58 × 10^{17} ¹³C/cm², soit une perte de ¹³C de l'ordre de 3,8 %. On peut donc tout à fait considérer que nos échantillons tiennent bien sous irradiation dans les conditions de mesure utilisées. Pour déterminer la concentration en ¹³C intervenant dans le calcul de la section efficace via l'équation 13, il a été décidé de considérer la moyenne des valeurs déduites de ces profils. La valeur adoptée était donc de 9,77 × 10^{17} ¹³C/cm².

La Figure 21 montre une photographie de l'échantillon prise après la longue irradiation. Sur celleci, on observe clairement un noircissement de l'échantillon au niveau de la zone frappée par le faisceau lors des mesures. Ce phénomène peut être attribué au *carbon build-up*. Ce dernier est directement lié à la qualité du vide dans lequel se déroulent les mesures. En effet, avant d'arriver sur l'échantillon, il est possible que le faisceau heurte une espèce chimique provenant du vide résiduel et l'amène ainsi sur la surface de l'échantillon étudié. Étant donné que de tels contaminants sont généralement des composés organiques, ceci entraîne la formation d'une couche carbonée sur la surface frappée par le faisceau [1].

Lors de la caractérisation des implantations de ¹³C par NRA, les spectres obtenus montraient un pic provenant de la réaction nucléaire ¹²C(d,p)¹³C, permettant de caractériser la présence de ¹²C au sein de l'échantillon. La réalisation d'une mesure similaire sur l'échantillon implanté à 10^{18} at/cm² après la longue irradiation permettrait vraisemblablement d'observer une augmentation du nombre de coups contenus dans ce pic. Ceci confirmerait alors la contamination en ¹²C à la surface de l'échantillon, due au phénomène de *carbon build-up* [35].



Figure 21 : Photographie de l'échantillon implanté à 10¹⁸ ¹³C/cm² après mesure de la section efficace. La zone noircie correspond à la zone frappée par le faisceau de protons lors des mesures. Ce noircissement provient vraisemblablement du phénomène de carbon build-up. En bleu et en vert sont respectivement représentés les contours de la zone amorphisée et de la zone implantée en ¹³C.

4 Mesure de la section efficace

4.1 Mise en contexte et état de l'art

Au début de ce travail, nous avons mentionné que la réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$ intervenait dans le cycle CNO, qui est un processus proposé par Bethe en 1939 pour expliquer la fusion de l'hydrogène en hélium dans les étoiles chaudes et massives (T > 2 × 10⁷ K) [3]. C'est en effet dans ce type d'étoiles que le cycle CNO, en compétition avec la chaîne p-p, est le processus dominant. La fusion de l'hydrogène, constituant principal d'une étoile jeune, se déroule pendant la plus grande partie de la vie de l'étoile. Pendant cette période, elle appartient à la *séquence principale* du diagramme de Hertzsprung-Russel, qui permet de classifier les étoiles en fonction de leur température et de leur luminosité. Comme son nom l'indique, dans le cycle CNO, la fusion de l'hydrogène est catalysée par le carbone, l'azote et l'oxygène, formant ainsi le cycle de réactions représenté à la Figure 22.



Figure 22 : Représentation du cycle CNO. Image obtenue à l'adresse https://commons.wikimedia.org/wiki/File:CNO_Cycle.svg#/media/Fichier:CNO_Cycle.svg

La réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$ est très importante car c'est elle qui permet de fournir le ${}^{14}N$ utile à la réaction ${}^{14}N(p,\gamma){}^{15}O$, qui est la plus lente du cycle CNO. C'est donc cette réaction qui régit en bonne partie le temps de vie de l'étoile. Il est dès lors important de connaître la quantité de ${}^{14}N$ présente au sein de l'étoile au cours de son évolution. La réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$ joue également un rôle au niveau du *s-process*, qui est un processus survenant dans les étoiles de type AGB (branche asymptotique des géantes) et conduisant à la nucléosynthèse de nombreux éléments chimiques. En effet, ce processus repose sur la capture de neutrons lents pour former des éléments lourds. Or, la principale source de neutrons lents dans les étoiles AGB est la réaction ${}^{13}C(\alpha,n){}^{16}O$ [7]. La réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$ est donc en compétition directe avec cette dernière car elle peut consommer le ${}^{13}C$ qui lui est nécessaire [55],[56].

En laboratoire, il est possible de déterminer la section efficace d'une réaction de capture radiative en mesurant le nombre de rayons γ émis pour différentes énergies de projectile. En partant d'une définition de la section efficace différentielle et en supposant une transition pour laquelle la distribution angulaire des γ émis est isotrope, la section efficace de réaction peut être donnée par l'expression

$$\sigma = f_c \frac{N_{\gamma}}{\varepsilon \, [^{13}C] \, N_0} \tag{13}$$

dans laquelle f_c représente l'inverse du facteur de branchement associé à la transition étudiée, N_{γ} le nombre de photons γ détectés, ε l'efficacité du détecteur, $[{}^{13}C]$ la concentration en 13 C exprimée en at/cm² et N_0 le nombre de particules incidentes. Le détail du calcul pour arriver à cette expression est donné dans les thèses de Gilles Genard et Paul-Louis Debarsy. Notons que la mesure des rayonnements γ émis n'est pas la seule façon de déterminer la section efficace de réactions de capture radiative. Le dispositif ERNA, utilisé dans la référence [7], permet par exemple d'établir ces sections efficaces par mesure des noyaux de recul.

Pour déterminer les taux de réactions stellaires, les astrophysiciens théoriciens ont besoin des valeurs de section efficace à basse énergie, et plus particulièrement à l'énergie de Gamow. Celle-ci, déjà évoquée dans l'introduction, correspond en réalité à la superposition de la distribution de Maxwell-Boltzmann (qui régit la distribution en vitesse et donc en énergie des espèces impliquées dans la réaction) et de la probabilité de pénétration (par effet tunnel) de la barrière coulombienne. Ce dernier paramètre correspond en fait à la section efficace de la réaction considérée. Cette fenêtre de Gamow est représentée à la Figure 23 dans le cas de la réaction ${}^{13}C(p,\gamma)^{14}N$ se déroulant à une température de 2 × 10⁷ Kelvin. Dans les conditions qui nous occupe, le taux de réaction maximal apparaît vers 25 keV dans le système centre de masse.

Étant donné qu'il est virtuellement impossible de mesurer la section efficace à de telles énergies, la méthode habituellement utilisée consiste à réaliser des mesures aux énergies les plus basses possibles, puis à réaliser une extrapolation jusqu'à l'énergie de Gamow. Généralement, cette extrapolation ne se fait pas sur la section efficace $\sigma(E)$ mais sur un facteur qui lui est directement proportionnel, appelé *facteur astrophysique* et défini par

$$S(E) = \sigma(E) E 2\pi\eta \tag{14}$$

où les énergies sont exprimées dans le système centre de masse et où le facteur η correspond au paramètre de Sommerfeld qui peut être défini comme

$$\eta = \alpha Z_1 Z_2 \sqrt{\left(\frac{\mu c^2}{2E}\right)}$$
(15)

où α représente la constante de structure fine, Z_i le numéro atomique du noyau *i* et μ la masse réduite de ces deux noyaux [6],[57]. En effet, le facteur astrophysique varie moins avec l'énergie que la section efficace, ce qui facilite l'extrapolation aux basses énergies.



Figure 23 : Distribution de Maxwell-Boltzmann à une température de 2 × 10⁷ K (en noir) et probabilité de pénétration de la barrière coulombienne par effet tunnel dans le cas d'une réaction entre un proton et un noyau de ¹³C (en rouge). La courbe bleue, qui correspond au produit de ces deux grandeurs, montre l'apparition du pic de Gamow à une énergie d'environ 25 keV dans le système centre de masse. C'est à cette énergie que le taux de réaction est maximal, dans les conditions considérées. Illustration tirée de [1].

La mesure de la section efficace de la réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$ a déjà fait l'objet de plusieurs publications [9], [11]–[13], [58]. Les différentes mesures réalisées permettent aujourd'hui de couvrir une gamme d'énergie s'étendant de 900 keV à 90 keV dans le système centre de masse. L'article faisant office de référence dans ce domaine est sans aucun doute celui publié par King *et al.* en 1994 [9]. Ces auteurs sont en effet les seuls à avoir étudié toutes les voies de désexcitations du noyau ${}^{14}N^*$ tandis que les autres se sont concentrés uniquement sur la transition entre l'état excité à 8,06 MeV et l'état fondamental. Ils ont également étudié la distribution angulaire des rayons γ émis lors de cette transition et ont pu vérifier qu'elle était isotrope. Gilles Genard a lui aussi effectué cette vérification dans le cadre de sa thèse. Cette indépendance vis-à-vis de l'angle de détection justifie donc l'utilisation de l'équation 13.

Depuis l'article de Gilles Genard [58], aucune mesure de section efficace de la réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$ n'a fait l'objet d'une publication. Cependant, les auteurs de la référence [59] publiée en décembre 2021 indiquent que le laboratoire LUNA a récemment procédé à de nouvelles mesure de cette section efficace, en utilisant des cibles solides. Un premier set de mesures réalisées avec un détecteur HPGe en géométrie proche leur aurait permis d'atteindre une énergie de 80 keV dans le système laboratoire. Dans cet article, les auteurs avancent également avoir réalisé une seconde session de mesures à l'aide d'un scintillateur BGO (germanate de bismuth Bi₄Ge₃O₁₂) qui leur aurait permis d'atteindre des énergies encore plus basses. Au moment de la publication, les données étaient toujours en cours de traitement et aucun résultat n'avait été publié.

Sur base des mesures de section efficace réalisées, certains auteurs précédemment cités ont extrapolé le facteur astrophysique à basse énergie. C'est notamment le cas de King *et al.* [9], Vogl [10], Genard *et al.* [58] ainsi que Paul-Louis Debarsy dans le cadre de sa thèse [1]. D'autres auteurs n'ont

pas réalisé eux-mêmes de mesure de la section efficace, mais ont repris les résultats d'autres publications et ont procédé à leur propre extrapolation du facteur astrophysique. C'est notamment le cas de Mukhamedzanov *et al.* [56], Chakraborty *et al.* [60] et Li *et al.* [61] mais aussi de Bertulani et Guimaraes [62] et plus récemment de Moghadasi *et al.* [63]. Toutes ces extrapolations mènent à des valeurs relativement différentes du facteur astrophysique à énergie nulle S(0). La valeur déterminée par Gilles Genard est la plus basse de toutes.

Comme nous l'avons déjà évoqué précédemment, Gilles Genard et Paul-Louis Debarsy sont les seuls auteurs à avoir mesuré cette section efficace en cinématique inverse, c'est-à-dire en irradiant une cible riche en hydrogène à l'aide d'un faisceau d'ions de ¹³C. On peut tout de même évoquer le travail de Galster *et al.*, qui ont également utilisé la cinématique inverse pour étudier cette réaction [38]. Leurs mesures n'étaient toutefois que des mesures relatives, utilisées pour valider une cible gazeuse de H₂, et ne cherchaient pas à descendre à des énergies d'intérêt astrophysique.

La Figure 24 compare les valeurs du facteur astrophysique obtenues par différents auteurs. Notons que les données représentées correspondent uniquement à la transition de l'état excité à 8,06 MeV vers l'état fondamental. On constate très clairement sur cette figure que les résultats obtenus par Genard et Debarsy sont systématiquement plus bas que ceux déterminés par les autres auteurs, dans la gamme d'énergie comprise entre 250 et 450 keV. À plus haute et plus basse énergie, leurs valeurs rejoignent celles de la littérature (les barres d'erreur se croisent). Ce résultat est d'autant plus interpelant que Genard et Debarsy sont les seuls à avoir mesuré cette section efficace en cinématique inverse. L'objectif de nos mesures, réalisées en cinématique directe, est donc de déterminer si l'origine de cette différence réside dans l'utilisation de la cinématique inverse ou si d'autres explications doivent être envisagées.



Figure 24 : Valeurs du facteur astrophysique de la réaction ¹³C(p,γ)¹⁴N obtenues par différents auteurs. Seules les valeurs de Genard et al. et de Debarsy ont été obtenues en cinématique inverse. Les données correspondent ici à la transition de l'état excité à 8,06 MeV et l'état fondamental.

4.2 Système de détection

4.2.1 Choix du détecteur

Une fois la cible choisie, il est nécessaire d'identifier le détecteur le plus adapté à la mesure que l'on souhaite réaliser. Dans le cadre de mesures bas-bruit, la caractéristique à privilégier est sans aucun doute la résolution. Plus celle-ci est élevée et meilleur sera le rapport signal sur bruit.

Cette nécessité d'avoir une excellente résolution en énergie nous a ainsi poussé à opter pour un détecteur *High Purity Germanium*, ou HPGe. Ces derniers se distinguent en effet par leur résolution, bien meilleure que celle des scintillateurs Nal(Tl) tels qu'utilisés pour réaliser les profils évoqués dans un point précédent. Ces scintillateurs se distinguent par-contre par leur excellente efficacité de détection [64], [65].

Des mesures de calibration ont été réalisées en plaçant une source de ⁶⁰Co à proximité de ces détecteurs. Pour rappel, le ⁶⁰Co se désintègre en ⁶⁰Ni* par émission d'un électron β^- . Cet état excité du nickel rejoint alors l'état fondamental par émission successive de deux rayons γ de 1,173 MeV et 1,332 MeV [66]. Les spectres obtenus sont montrés à la Figure 25 où peut être clairement observée la différence de résolution entre les détecteurs. Celle-ci peut être déterminée en mesurant la largeur à mi-hauteur (FWHM) des pics provenant de la source de ⁶⁰Co. Le HPGe présente ainsi une résolution de 1,92 keV à 1332 keV tandis que celle du Nal(TI) s'élève à 89,73 keV à la même énergie⁴.

Comme cela a déjà été évoqué plus haut, les spectres obtenus par spectroscopie gamma présentent souvent des pics ne correspondant pas directement aux transitions caractéristiques des noyaux étudiés, mais provenant plutôt de comportements particuliers des rayonnements γ au sein du détecteur. La section 2.2.5 a par exemple déjà abordé les pics de *single escape* et de *double escape*. Le spectre de la Figure 25 mesuré avec le détecteur HPGe présente lui aussi certains pics particuliers dont il peut être intéressant d'expliquer l'origine.

Pour commencer, on peut voir sur ce spectre un ensemble de trois pics, à des énergies respectives de 2346 keV, 2505 keV et 2664 keV. Ces pics sont dus au phénomène de *pile-up*, déjà évoqué dans le point précédent. Celui-ci survient lorsque deux rayonnements (ou deux particules) parviennent au détecteur en étant séparés par un intervalle de temps inférieur au temps nécessaire pour que ces deux informations soient distinguées. Dans cette situation, le détecteur ne parvient donc pas à distinguer les deux rayonnements d'énergies respectives *a* et *b* keV et considère ainsi avoir détecté un seul rayonnement d'énergie (a + b) keV. Les trois pics abordés ci-dessus proviennent donc respectivement de la superposition d'un γ de 1173 keV et d'un γ de 1332 keV (pic à 2505 keV), de deux γ de 1173 keV (pic à 2346 keV) et de deux γ de 1332 keV (2664 keV).

⁴ En termes simples, cela signifie que ce détecteur HPGe est capable de distinguer deux radiations de 1332 keV et 1333,92 keV. Le scintillateur Nal(TI), quant à lui, ne peut distinguer un rayonnement de 1332 keV de tous ceux se trouvant dans un intervalle de 45 keV de part et d'autre de ce dernier.



Figure 25 : Spectre de calibration obtenu en plaçant une source de ⁶⁰Co à proximité d'un détecteur HPGe (en noir) et d'un scintillateur NaI(TI) (en rouge). Les géométrie et temps d'acquisition ne sont pas les mêmes pour les deux mesures.

À 960 keV et 1117 keV peuvent être observés les *fronts Compton* respectifs des γ de 1173 et 1332 keV du ⁶⁰Co. En effet, nous savons que l'effet Compton fait partie des principaux mécanismes d'interaction des photons avec la matière. Pour des photons d'énergie intermédiaire, comme ceux émis par les sources qui nous occupent, ce mécanisme est même dominant (voir Figure 7). Les photons se propageant dans le détecteur HPGe sont donc tout à fait susceptibles de subir l'effet Compton. Ce dernier, pour rappel, consiste en une diffusion inélastique d'un photon par un électron de la matière traversée. La diffusion est dite *inélastique* étant donné que le photon perd de l'énergie lors du processus. En considérant que ce dernier est diffusé à un angle θ par rapport à la direction incidente, l'énergie du photon après diffusion est donnée par

$$E_{\gamma'} = \frac{E_{\gamma}}{1 + \frac{E_{\gamma}}{m_e c^2} (1 - \cos \theta)}$$
(16)

où E_{γ} et E'_{γ} correspondent respectivement à l'énergie du photon avant et après diffusion et où $m_e c^2$ correspond à l'énergie de masse au repos d'un électron.

Les photons γ subissant l'effet Compton dans le détecteur vont ainsi être diffusés aléatoirement dans toutes les directions (autrement dit selon toutes les valeurs possibles de l'angle θ). Sur le spectre, ceci mène à l'apparition d'un *fond Compton* ou *continuum Compton* couvrant toutes les énergies $E_{\gamma'}$ accessibles à partir d'une E_{γ} donnée.

Le front Compton correspond à la plus haute valeur d'énergie de ce continuum, c'est-à-dire à la valeur de θ pour laquelle l'énergie déposée dans le détecteur est maximale. Puisqu'elle est définie comme $E_{\gamma} - E_{\gamma'}$, on déduit que l'énergie déposée est maximale lorsque l'énergie $E_{\gamma'}$ du γ diffusé est

minimale. Autrement dit, par l'Equation 16, le *front Compton* correspond à un angle de diffusion $\theta = 180^{\circ}$. Le photon est alors rétrodiffusé tandis que l'électron Compton est diffusé vers l'avant.

Notons que l'existence de ce fond Compton est également conditionnée par les dimensions du détecteur. Pour qu'il apparaisse, il est en effet nécessaire que le photon diffusé quitte le détecteur, comme cela est illustré à la Figure 6. L'énergie déposée dans le détecteur provient alors uniquement de l'électron diffusé, ce qui donne naissance au fond Compton. Dans le cas hypothétique d'un détecteur aux dimensions infinies entourant une source, il serait impossible pour le photon diffusé de quitter le détecteur. Toute l'énergie serait donc déposée au sein du détecteur et seul le *full energy peak* apparaîtrait sur le spectre [28].

Enfin, le pic visible aux alentours de 218 keV correspond au pic de *rétrodiffusion*. Son origine réside dans l'interaction des photons émis par les sources avec les matériaux qui entourent le détecteur (par exemple « l'enveloppe » du détecteur). Ces photons y subissent l'effet Compton, dominant à ces énergies, et sont donc diffusés à des angles allant jusqu'à 180°. Ces photons diffusés de basse énergie peuvent alors se retrouver dans le détecteur, formant ainsi le pic de rétrodiffusion [29].

4.2.2 Système bas-bruit

Comme cela a été évoqué à plusieurs reprises, la section efficace de la réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$ diminue à basse énergie, ce qui provoque une importante chute du taux de comptage. À de telles énergies, les mesures sont donc très sensibles au bruit environnant. Ce dernier peut avoir différentes origines, parmi lesquelles on retiendra principalement la radioactivité naturelle, les rayonnements cosmiques et le bruit électronique. Durant leur thèse, Gilles Genard et Paul-Louis Debarsy ont développé un système de détection bas-bruit permettant de réduire de plusieurs ordres de grandeur l'influence de ces différentes sources de bruit. Ce point a donc pour objectif d'expliquer brièvement les différents types de bruit ainsi que les moyens développés par Genard et Debarsy pour s'en affranchir. Pour des explications plus détaillées et une caractérisation précise de ce dispositif, nous invitons le lecteur à consulter les thèses [1],[2] et les références qui s'y trouvent.

4.2.2.1 Radioactivité naturelle

La radioactivité naturelle est partout autour de nous, depuis l'air que nous respirons jusqu'au sol sur lequel nous marchons en passant par les briques qui construisent nos laboratoires. Cette radioactivité provient donc de la présence, dans notre environnement, de noyaux instables tels que le ⁴⁰K, le ²⁰⁸Tl, le ²¹⁴Bi ou encore le ²²²Rn [67]. De manière générale, l'énergie des rayons γ constituant la radioactivité naturelle est comprise entre 0 et 3 MeV.



Figure 26 : Représentation des différentes couches constituant le château de plomb. Illustration inspirée de [1].

Pour lutter contre cette source de bruit, Gilles Genard et Paul-Louis Debarsy ont développé un blindage passif⁵ constitué d'un château de plomb permettant d'atténuer la contribution de la radioactivité naturelle au signal d'intérêt. La réaction se déroule alors au centre du château de plomb, où est également placé le détecteur qui est situé juste devant la cible irradiée. La Figure 26 montre que ce dispositif est en réalité constitué de plusieurs couches de matériaux et de rôles différents.

Les deux épaisses couches de plomb permettent ainsi d'atténuer fortement les rayons γ d'énergie inférieure à 3 MeV provenant de la radioactivité naturelle. Ces photons interagissent en effet avec le plomb via les 3 mécanismes décrits à la section 2.2.5. L'utilisation d'un matériau de numéro atomique élevé permet de maximiser la probabilité d'effet photoélectrique. Le choix de plomb (ultra-) basse activité pour ces couches n'est pas anodin. L'émission de rayonnements β^- par le ²¹⁰Pb (isotope peu présent dans le plomb basse activité) peut en effet entraîner l'émission de rayons X par Bremsstrahlung et ainsi polluer le signal d'intérêt. Rappelons en effet que la section efficace de Bremsstrahlung est proportionnelle au numéro atomique de la cible ($\propto Z^2$) et inversement proportionnelle à la masse du projectile ($\propto \frac{1}{m_z^2}$).

La couche de cuivre permet ainsi d'arrêter ces éventuels β^{-} émis par le plomb tout en limitant la production de RX par Bremsstrahlung grâce à son numéro atomique relativement faible. Enfin, le rôle du plexiglas est de stopper les neutrons qui pourraient être produits par l'interaction des rayonnements cosmiques (muons) avec le plomb.

4.2.2.2 Rayonnements cosmiques

Notre planète est en permanence bombardée par un ensemble de particules de haute énergie provenant de l'espace appelé *rayonnement cosmique primaire*. Ce dernier est constitué majoritairement de particules chargées telles que des noyaux d'hélium, des électrons ou encore des protons, qui le composent à environ 90 % [68]. L'interaction de ces particules avec les molécules de l'atmosphère provoque l'émission de gerbes de particules secondaires au sein de la haute atmosphère.

⁵ À la différence d'un blindage *actif*, le blindage passif repose uniquement sur le matériau dont il est constitué et ne nécessite aucun traitement ultérieur du signal.

On parle alors de *rayonnement cosmique secondaire*. Celui-ci est notamment constitué de *pions* (ou mésons π) qui, en se désintégrant, vont produire des *muons* à une altitude d'environ 15 kilomètres audessus du niveau de la mer.

Les muons sont généralement considérés comme des *électrons lourds* car ces deux particules partagent un grand nombre de propriétés physiques, bien que la masse du muon s'élève à 105,66 MeV/c² et soit ainsi 207 fois plus importante que celle de l'électron. Les muons ont une durée de vie de l'ordre de 2,2 µs et se désintègrent selon la relation

$$\mu^- \to e^- + \overline{\nu}_{e^-} + \nu_{\mu} \tag{17}$$

dans laquelle v_e^- est un antineutrino électronique et v_{μ} un neutrino muonique. Malgré ce temps de vie très court, les muons constituent le flux de particules chargées le plus abondant au niveau de la mer (1 muon/minute/cm²). Ceci peut être expliqué par l'énergie très importante des muons au moment de leur émission (de l'ordre de quelques GeV) et par leur vitesse proche de celle de la lumière qui permet d'utiliser un raisonnement relativiste.

Comme toutes les particules chargées, les muons interagissent avec la matière selon trois mécanismes principaux que sont l'excitation/ionisation (interaction électromagnétique), le Bremsstrahlung et la création de paires. En traversant un détecteur, un muon peut déposer des quantités importantes d'énergie (de l'ordre de la dizaine de MeV selon la taille du détecteur), ce qui induit bien évidemment l'apparition de bruit dans le signal d'intérêt. De tels ordres de grandeur peuvent paraître très importants, en particulier par rapport à l'énergie des rayons γ considérés dans ce travail, mais ils ne correspondent qu'à une petite fraction de l'énergie des muons, qui est encore de l'ordre du GeV après traversée de l'atmosphère. Les muons sont donc caractérisés par un pouvoir de pénétration dans la matière très important, rendant presque impossible l'utilisation d'un blindage passif pour s'en prémunir. Pour cette raison, certains laboratoires se sont installés à plusieurs centaines de mètres sous terre afin d'atténuer ce flux de muons. Citons par exemple le laboratoire LUNA, établi sous la montagne Gran Sasso, en Italie. Dans ce laboratoire, situé à 1400 mètres de profondeur, le flux de muons est diminué de 6 ordres de grandeur [67].

Une autre possibilité consiste à utiliser une méthode de blindage *actif* [69]. Un tel blindage consiste à entourer le détecteur principal (ici le HPGe) d'un autre détecteur sensible aux particules chargées (par exemple un scintillateur organique) et à les mettre en *anticoïncidence*. Cela signifie que si un événement est mesuré au niveau des deux détecteurs endéans un intervalle de temps relativement court, ce dernier est retiré du spectre du détecteur γ . Le dispositif développé au LARN, illustré à la Figure 27, utilise deux scintillateurs plans et un scintillateur hémicylindrique de manière à couvrir toute la région du château de plomb accessible par les muons atmosphériques. Ces derniers présentent en effet une distribution en $cos^2\theta$, où θ correspond à l'angle zénital. Au vu de leur important pouvoir de pénétration, seuls les muons sont capables de traverser les épaisses couches de plomb du blindage passif et ainsi d'être comptabilisés par les scintillateurs et le détecteur γ au centre du château de plomb. Les événements détectés en coïncidence par les scintillateurs et le détecteur HPGe peuvent donc être attribués aux muons avec une grande certitude.



Figure 27 : Photographie du système de détection bas-bruit développé au LARN. On peut y observer le détecteur HPGe et le château de plomb entouré par le scintillateur hémicylindrique et deux scintillateurs plans. Illustration tirée de [1].

4.2.2.3 Bruit électronique

Cette troisième source de bruit se manifeste principalement par une diminution de la résolution du détecteur ou encore par des oscillations du signal. De telles oscillations sont généralement dues à des problèmes d'impédance des câbles transportant le signal. En effet, dans le cas où deux câbles d'impédance différentes sont raccordés, il est possible qu'une partie du signal soit réfléchie au niveau de l'interface.

De manière générale, pour limiter le bruit électronique, il est conseillé de réduire au maximum la longueur des câbles utilisés. Une solution consiste également à numériser le signal le plus rapidement possible en sortie du détecteur, de façon à ce qu'il ne doive pas parcourir des dizaines de mètres de câbles avant d'atteindre un ADC (*analogic to digital converter*). Cette digitalisation rapide a été rendue possible par la chaîne de détection numérique développée par Paul-Louis Debarsy dans le cadre de sa thèse. En effet, en sortie du détecteur, le signal doit parcourir seulement quelques dizaines de centimètres avant d'atteindre un pré-amplificateur qui inverse le signal et l'amplifie légèrement. La numérisation a ensuite lieu dès la sortie du pré-amplificateur. À titre de comparaison, la chaîne de détection analogique ne procède à la digitalisation du signal qu'après que ce dernier ait parcouru plusieurs dizaines de câble et ait été traité par différents éléments électroniques (pré-amplificateur, amplificateur, ...). Pour plus de détails concernant la chaîne de détection numérique, le lecteur est invité à consulter la référence [1].

Notre mode opératoire présente une légère simplification (et donc une amélioration) par rapport à celui utilisé par Paul-Louis Debarsy. Contrairement à lui, nous avons superposé les signaux provenant des différents scintillateurs et les avons introduits dans le même canal du *digitiser*. De ce fait, il est beaucoup plus facile de générer l'anti-coïncidence.

4.3 Mesure de l'efficacité du détecteur HPGe

4.3.1 Utilisation de sources radioactives calibrées

Pour déterminer des valeurs absolues de section efficace lors d'une mesure, il est nécessaire de connaître l'efficacité de détection du détecteur utilisé. Ce paramètre, noté ε , intervient d'ailleurs dans l'équation 13. En termes simples, l'efficacité de détection peut être définie comme la fraction des rayons γ émis par une source qui sont réellement détectés par le détecteur. L'efficacité peut donc être définie par

$$\varepsilon(E) = \frac{N_{\gamma \, \text{détectés}}}{N_{\gamma \, \text{émis}}} \tag{18}$$

où $N_{\gamma \text{ détectés}}$ correspond au nombre de γ détectés dans le *full energy peak* défini précédemment et où $N_{\gamma \text{ émis}}$ représente le nombre de γ émis par la source. Cette équation exprime aussi la dépendance en énergie de l'efficacité. Cette dernière varie en effet selon l'énergie des rayons γ mesurés.

Pour notre mesure de section efficace, cette donnée permet donc de faire le lien entre le nombre de rayons γ détectés par le HPGe et le nombre d'occurrences réelles de la réaction nucléaire ¹³C(p, γ)¹⁴N. L'expression donnée à l'équation 18 ne tient pas compte de la géométrie de détection ce qui signifie que l'efficacité de détection doit être redéterminée pour chaque nouvelle position du détecteur par rapport à la source. Il est cependant possible de définir l'*efficacité intrinsèque* du détecteur qui dépend explicitement de l'angle solide de détection. Celle-ci est alors donnée par l'expression

$$\varepsilon(E) = \frac{N_{\gamma \text{ détectés}}}{N_{\gamma \text{ émis}}} \frac{4\pi}{\Omega}$$
(19)

dans laquelle Ω est l'angle solide du détecteur.

La mesure de l'angle solide de détection est assez ardue et souvent entachée d'une erreur non négligeable. Pour être indépendant de cette valeur, nous avons choisi de mesurer l'efficacité avec la même géométrie que celle utilisée lors des mesures de section efficace. Le château de plomb a donc été positionné de manière à placer le détecteur au plus près du porte-échantillons. Des sources radioactives *calibrées* de ⁶⁰Co (0,261 MBq), ¹³³Ba (23,37 kBq), ¹⁵²Eu (2,20 kBq) et ²⁴¹Am (0,380 MBq) ont successivement été insérées à la place de l'échantillon de ¹³C. Leurs facteurs de branchement sont connus. Ces sources ont été choisies pour obtenir de nombreux points de mesure entre 59,5 et 1408,01 keV [70]–[72]. Généralement, les rayons γ émis par des sources radioactives ne permettent cependant pas de dépasser 3,5 MeV [73].

Une acquisition a donc été réalisée à l'aide du détecteur HPGe pour chacune des sources. Puisque l'on connaît précisément leur activité et les rapports de branchement des différentes raies γ , il est possible de déterminer le nombre de photons émis par la source dans chacune de ces raies. Celui-ci est alors comparé au nombre de γ détectés dans ces régions par le HPGe et le rapport des deux permet de déterminer l'efficacité du détecteur aux différentes énergies. Les résultats obtenus sont illustrés à la Figure 28. L'efficacité du HPGe a ensuite été simulée à l'aide du code Geant4 [74]. Ce dernier a permis de modéliser le détecteur, le porte-échantillon, le système bas-bruit et la source de photons γ de sorte de l'évolution de l'efficacité en fonction de l'énergie de ces photons a pu être déterminée théoriquement. Les données obtenues sont montrées à la Figure 28.



Figure 28 : Évolution de l'efficacité du détecteur HPGe en fonction de l'énergie des photons γ détectés. Les points expérimentaux (disques rouges) ont été obtenus en utilisant des sources calibrées de ⁶⁰Co, ¹³³Ba, ¹⁵²Eu et ²⁴¹Am. Le point obtenu grâce au γ à 8,06 MeV de la réaction ¹³C(p, γ)¹⁴N est également montré. Les points simulés ont quant à eux été déterminés grâce au code Geant4. Les données expérimentales et théoriques ont été ajustées à l'aide d'un polynôme de degré 8.

Pour mesurer la section efficace de la réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$, nous nous intéressons au rayon γ émis à 8,06 MeV. C'est donc l'efficacité à 8,06 MeV qui doit être déterminée ici. Pour ce faire, une possibilité consisterait à utiliser la valeur déterminée par Geant4 à cette énergie. Bien que les données expérimentales et théoriques suivent la même allure générale, la Figure 26 montre que ces points ne donnent pas les mêmes valeurs d'intensité. On observe en effet un léger décalage entre les points expérimentaux et simulés. Entre ces deux ensembles de résultats, c'est aux données expérimentales qu'il faut préférentiellement faire confiance puisqu'elles ont été obtenues dans une géométrie identique à celle qui sera utilisée pour la mesure de la section efficace.

En termes d'évolution en fonction de l'énergie, il est par-contre tout à fait raisonnable de croire aux valeurs simulées. Dans sa thèse, Paul-Louis Debarsy se base sur un article de Molnár et al. [72] et propose d'ajuster les données simulées par Geant4 à l'aide d'un polynôme de degré 8 de la forme

$$\log_{10}(\varepsilon) = \sum_{i=0}^{8} B_i (\log_{10}(E))^i$$
(20)

Ce polynôme, illustré à la Figure 28 par la courbe grise, s'ajuste parfaitement aux points théoriques. Il est alors possible d'ajuster le même polynôme aux données expérimentales en lui appliquant un facteur de normalisation. Si on note $P_8(X)$ le polynôme défini à l'équation 20, on peut exprimer l'ajustement de l'efficacité aux données expérimentales comme [2] :

$$\varepsilon(E) = \alpha \, 10^{P_8(X)} \tag{21}$$

La valeur du facteur de normalisation α pour laquelle cette expression s'ajuste au mieux aux données expérimentales est de 0,81. La courbe correspondant est visible en rouge à la Figure 28. Cet ajustement a finalement permis de déterminer une efficacité de 5,79 × 10⁻³ pour une énergie de 8,06 MeV.

4.3.2 Utilisation de la réaction ¹³C(p,γ)¹⁴N

Comme évoqué au point précédent, la faible gamme d'énergie (< 3,5 MeV) couverte par les sources radioactives rend souvent difficile la détermination de l'efficacité d'un détecteur à haute énergie. Une autre méthode consiste donc à utiliser des réactions nucléaires pour obtenir des rayons γ d'énergie supérieure. Les références [72] et [73] évoquent par exemple l'utilisation des réactions ¹⁴N(n, γ)¹⁵N et ²⁷Al(p, γ)²⁸Si offrant une grande variété de raies γ d'intensités relatives connues sur une gamme comprise entre 1,5 et 10,8 MeV. Dans le cas qui nous occupe, il est possible d'utiliser la résonance à 550,6 keV de la réaction ¹³C(p, γ)¹⁴N.

En effet, bien que les mesures de section efficace de cette réaction montrent des différences systématiques à basse énergie, les valeurs déterminées au maximum de la résonance sont toujours du même ordre de grandeur. Ce point peut donc être utilisé comme référence pour calculer l'efficacité du détecteur HPGe à 8,06 MeV. Pour ce faire, l'équation 13 peut être réécrite comme

$$\varepsilon = f_c \frac{N_{\rm Y}}{\sigma \,[^{13}C] \,N_0} \tag{22}$$

où f_c représente l'inverse du facteur de branchement de la transition considérée (ici 8,06 MeV vers l'état fondamental), N_{γ} le nombre de rayons γ détectés durant le *preset*, σ la section efficace exprimée en [b], [¹³C] la concentration en ¹³C exprimée en [at/cm²] et N_0 le nombre de protons incidents.

La valeur de f_c choisie est l'inverse du facteur de branchement de 80,3 % défini par Ajzenberg-Selove dans la référence [50]. Cette valeur correspond à celle déterminée par Paul-Louis Debarsy (1,25) et est très proche de celle établie par Gilles Genard (1,23). Rappelons que ces derniers ont tous les deux remesuré les facteurs de branchement associés aux différentes transitions possibles de l'état excité à 8,06 MeV du ¹⁴N* vers l'état fondamental. La section efficace choisie correspond quant à elle à la moyenne des valeurs déterminées au maximum de la résonance par Genard [58], King et al. [9] et Vogl [10]. Cette valeur s'élève donc à 9,47 × 10⁻⁴ b. Le nombre de particules incidentes a simplement été déterminé en divisant le *preset* par la charge élémentaire, les protons incidents étant des particules d'état de charge q = 1. Enfin, pour ce qui est de la concentration en ¹³C, deux échantillons différents, respectivement implantés à 6 × 10¹⁷ et 10^{18 13}C/cm², ont été utilisés pour la mesure. Pour plus de précision, la région d'intérêt a été définie sur une gamme d'énergie très étroite, centrée sur le pic à 8,06 MeV. Comme expliqué précédemment, ceci a pour inconvénient de diminuer la statistique mais permet d'améliorer le rapport signal sur bruit.

Les mesures réalisées sur les deux échantillons ont permis d'obtenir des valeurs d'efficacité très proches l'une de l'autre. La valeur moyenne de ces résultats est de 5,45 × 10⁻³. L'erreur relative sur cette grandeur, dont la méthode de calcul sera donnée au point 6.1 en annexe, est de 13,8 %. Cette valeur, très importante par rapport aux 4 % déterminés par Paul-Louis Debarsy et aux 3,6 % de Gilles Genard, s'explique simplement par la méthode utilisée. La méthode des sources radioactives utilisée au point précédent n'est entachée que de quelques sources d'erreur assez minimes (erreur sur les données fournies par Geant4, la position du détecteur, les sections efficace d'interaction et l'ajustement) [1]. Toutes ces erreurs relatives sont de l'ordre du pourcent ou du dixième de pourcent.

La méthode développée dans ce point, que l'on pourrait qualifier de « purement expérimentale », s'accompagne quant à elle d'incertitudes beaucoup plus importantes. Les principales contributions sont l'erreur sur la section efficace (~ 10 %) et l'erreur sur la concentration en ¹³C (~ 8 %). L'incertitude sur la lecture courant a été estimée à 3 %. Enfin, le facteur de branchement et le nombre de coups sont entachés d'une erreur inférieure au pourcent.

On constate finalement que les valeurs d'efficacité déterminées par les deux méthodes, utilisant respectivement les sources radioactives et la réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$, sont du même ordre de grandeur. La différence relative entre ces deux résultats est de l'ordre de 6 %. Pour la mesure de la section efficace, il a été choisi d'utiliser la valeur moyenne de ces deux résultats, à savoir une efficacité de détection de 5,62 × 10⁻³.

4.4 Mesure de la section efficace de la réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$

4.4.1 Mesure avec le détecteur Nal(Tl)

Avant de procéder à la mesure précise de section efficace avec le détecteur HPGe et d'ainsi déterminer des valeurs absolues de cette grandeur, il a été convenu de réaliser une mesure préliminaire avec le scintillateur Nal(TI) afin de profiter de son excellente efficacité de détection. Étant donné que nous ne connaissons pas la valeur de cette efficacité, ces mesures n'étaient que qualitatives mais ont au moins eu le mérite de nous donner une première estimation de l'allure de la section efficace.

On pourrait penser que l'efficacité du Nal(Tl) aurait pu être déterminée à partir de l'efficacité du détecteur HPGe déterminée au point précédent et de son efficacité relative de 124 % par rapport à un scintillateur Nal(Tl) renseignée par le fabricant. Cependant, cette valeur est donnée par rapport à un scintillateur Nal(Tl) de 3'' × 3'' alors que les dimensions de celui utilisé dans notre cas sont de 4'' × 4''. De plus, cette valeur d'efficacité n'a vraisemblablement pas été mesurée dans le même environnement et la même géométrie de détection que la mesure effectuée ici.

Notons également qu'à cause de son importante efficacité de détection, il peut être difficile de réaliser une mesure sur des sources radioactives en géométrie proche avec le scintillateur Nal(TI). En

effet, si l'activité de la source est trop importante, on peut observer des valeurs très élevées de temps mort du détecteur. Cela signifie que la quantité d'informations reçues tend à faire « saturer » le détecteur. Pendant un temps important, celui-ci est ainsi occupé à traiter les signaux reçus et n'est pas disponible pour la détection. Cet effet est d'autant plus important que le détecteur est proche de la source de radiations, comme c'est le cas dans la géométrie utilisée pour la mesure de section efficace.

Pour estimer l'allure de la section efficace, des acquisitions de 50 μC ont été réalisées à différentes énergies de faisceau incident sur l'échantillon implanté à 10¹⁸ ¹³C/cm². Ces mesures ont permis de couvrir une gamme d'énergie allant de 490,6 à 631,5 keV. Les pas en tension séparant chacune des acquisitions étaient de 5 kV, correspondant ainsi à des pas en énergie de 10,07 keV dans le système laboratoire. Le courant sur cible était de l'ordre de 150 nA et le temps mort n'a jamais dépassé 0,37 %. Les résultats obtenus sont montrés à la Figure 29.

Pour pouvoir comparer ces résultats à ceux obtenus par Gilles Genard dans le cadre de sa thèse, ces derniers ont été multipliés par un facteur correctif de sorte à amener les deux ensembles de mesures dans un même ordre de grandeur. La Figure 29 montre un très bon accord entre nos points de mesure et ceux de Gilles Genard.



Figure 29 : Comparaison qualitative des mesures de section efficace obtenues dans le cadre de ce travail avec un scintillateur NaI(TI) (disques verts) et obtenues par Gilles Genard avec un détecteur HPGe (cercles rouges).

L'énergie E_{CM} représentée en abscisse sur la Figure 29 correspond à l'énergie (dans le système centre de masse) des projectiles au centre de la couche de ¹³C de l'échantillon. En effet, la réaction ¹³C(p, γ)¹⁴N peut avoir lieu sur toute l'épaisseur de cette couche de sorte qu'il convient de définir une énergie *moyenne* et d'indiquer les barres d'erreur. Cette énergie au centre de la couche peut ainsi être définie comme

$$E_{centrale} = E_{inc} - \frac{\Delta E}{2} \tag{23}$$

où E_{inc} représente l'énergie des protons en sortie de l'accélérateur et où ΔE correspond à la perte d'énergie lors de la traversée de la couche de ¹³C. Les barres d'erreur couvrent donc une gamme comprise entre E_{inc} et $E_{inc} + \Delta E$. Pour définir cette perte d'énergie ΔE , nous nous sommes basés sur le profil de concentration de l'échantillon 10¹⁸ at/cm² montré à la Figure 18. Une fois l'épaisseur connue, il a fallu estimer la composition de cette couche de Si_xC_{1-x} et calculer, aux énergies considérées, le pouvoir d'arrêt correspondant.

4.4.2 Mesure avec le détecteur HPGe

Avant de réaliser les mesures de section efficace, le détecteur HPGe a été calibré grâce à des sources de ¹³⁷Cs et de ⁶⁰Co de façon similaire à ce qui a été évoqué précédemment. Pour améliorer le calibrage à plus haute énergie, une source d'américium-béryllium (²⁴¹Am⁹Be) a également été utilisée. En effet, celle-ci permet d'obtenir des γ de 4,438 MeV provenant de la désexcitation du ¹²C* produit par la réaction ⁹Be(α ,n)¹²C entre les noyaux de béryllium de la source et les particules α émises par la désintégration du ²⁴¹Am [60],[61]. Cependant, le pic correspondant à cette transition apparaît très élargi sur les spectres de calibration. Comme expliqué à la section 4.2.1, cet élargissement est dû à l'effet Doppler. Le temps de vie de l'état excité ¹²C* est très court, de sorte que le rayon γ est émis alors que le noyau de ¹²C est encore en mouvement suite à la réaction nucléaire. Le rayon γ est donc soumis à l'effet Doppler et l'énergie détectée est régie par l'équation 16. La largeur du pic le rendant difficilement exploitable pour un calibrage précis, il a finalement été supprimé.

La calibrage en énergie du détecteur a tout de même pu être améliorée à haute énergie en utilisant le γ de 6,13 MeV émis par la réaction ¹⁹F(p, $\alpha\gamma$)¹⁶O [77]. Cette dernière présente une résonance à 872,11 keV. La réaction a été induite au niveau du verre utilisé pour mettre en forme le faisceau. Celui-ci contient une faible proportion de ¹⁹F qui a pu réagir avec les protons incidents. Contrairement au ¹²C*, l'état excité ¹⁶O* a un temps de vie relativement long, ce qui signifie que le noyau a le temps de s'arrêter avant que le rayon γ ne soit émis. Le pic correspondant est donc très étroit et a pu être utilisé pour le calibrage.

Pour déterminer la section efficace de la réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$ sur base de nos mesures, il nous a fallu déterminer au mieux chacun des termes de l'équation suivante.

$$\sigma = f_c \frac{N_{\gamma}}{\varepsilon \, [^{13}C] \, N_0} \tag{24}$$

Notons que sous cette forme, cette expression permet de déterminer la section efficace *totale* de la réaction, c'est-à-dire tenant compte de toutes les transitions en provenance du niveau excité à 8,06 MeV. La raison en est la présence du facteur f_c , qui correspond pour rappel à l'inverse du facteur de branchement de la transition entre l'état excité à 8,06 MeV et l'état fondamental. La région d'intérêt utilisée lors de nos mesures couvrait uniquement le *full energy peak* lié à cette transition. Diviser N_{γ} ainsi obtenu par le facteur de branchement correspondant à la transition permet donc belet-bien de déterminer la section efficace totale. En retirant le facteur f_c de l'équation 24, on obtient par-contre les valeurs de section efficace correspondant uniquement à la transition de l'état excité à 8,06 MeV vers l'état fondamental.

Comme évoqué au point 4.3.2, la valeur de f_c utilisée ici correspond à l'inverse du facteur de branchement défini par Ajzenberg-Selove [50]. Notons cependant que, comme le précise Paul-Louis Debarsy dans sa thèse, ce rapport de branchement ne reste pas nécessairement constant avec l'énergie [1]. King *et al.* ont ainsi montré que le facteur de branchement de la transition entre 8,06 MeV et l'état fondamental variait entre 81 % pour une énergie de réaction de 513 keV et 63 % pour une énergie de 112 keV [9]. Il faut donc garder à l'esprit que le facteur f_c que nous utilisons n'est réellement valable qu'à l'énergie de résonance.

Le facteur N_{γ} correspond au nombre de coups détectés pour chaque point de mesure après application de l'anticoïncidence. Ce facteur est donc mesuré au niveau du signal débarrassé de la contribution des muons. Comme évoqué ci-dessus, la région d'intérêt choisie couvrait uniquement le *full energy peak* correspondant au rayon γ de 8,06 MeV. Rappelons que l'utilisation d'une zone d'intérêt aussi étroite (environ 30 keV de large) permet d'améliorer le rapport signal sur bruit. Au cours des acquisitions, nous avons remarqué que la région d'intérêt devait être déplacée pour chaque point de mesure, le pic d'intérêt n'apparaissant pas aux mêmes canaux selon l'énergie du faisceau incident (les mesures ont été prises entre 628,6 et 397,1 keV dans le système laboratoire). Ce phénomène s'explique par la largeur de la lorenztienne correspondant à la résonance. Comme illustré à la Figure 30, l'état excité à 8,06 MeV correspond à l'état accessible à l'énergie de résonance ($E_{CM} = 511$ keV). Lorsque l'énergie de réaction est légèrement supérieure ou inférieure à cette valeur, le niveau atteint est respectivement plus ou moins énergétique que cet état à 8,06 MeV, ce qui explique les différentes énergies du rayon γ détecté. Plus simplement, en termes d'énergie du système laboratoire, on peut montrer que l'énergie du rayon γ émis est donnée par

$$E_{\gamma} = E_{inc} + Q \tag{25}$$

où E_{inc} représente l'énergie des protons incidents dans le système laboratoire et où Q correspond au bilan énergétique de la réaction (de l'ordre de 7,55 MeV pour la réaction ¹³C(p, γ)¹⁴N). Plus l'énergie du faisceau est importante, plus l'énergie du photon émis sera importante.



Figure 30 : Niveaux d'énergie du ¹⁴N entre 0 et 9,17 MeV. L'allure de la section efficace autour de la résonance à 550,6 keV dans le système laboratoire est représentée dans la partie droite de l'illustration. Celle-ci est bel-et-bien centrée sur l'état à 8,06 MeV et présente une certaine largeur de part et d'autre de cet état. Illustration tirée de [50].

Comme évoqué précédemment, le facteur N_0 intervenant dans l'équation 24 correspond au nombre de particules incidentes et peut être obtenu en divisant le *preset* (charge intégrée lors de la mesure) par la charge élémentaire, étant donné que les protons incidents ont un état de charge unitaire. L'efficacité de détection ε choisie correspond quant à elle à la moyenne des valeurs obtenues par les deux méthodes présentées à la section 4.3. Cette valeur est donc de 5,62 × 10⁻³. Enfin, le facteur [¹³*C*] représente la concentration en ¹³C de l'échantillon utilisé. Comme annoncé à la section 3.7, notre choix s'est porté sur la cible implantée à 10¹⁸ at./cm². Pour déterminer la concentration en ¹³C présente dans cet échantillon lors des mesures de section efficace, nous avons réalisé un profil de concentration par RNRA-PIGE avant et après chaque session de mesures. L'intégration de ces profils a permis de montrer que la concentration en ¹³C variait entre 9,96 × 10¹⁷ et 9,58 × 10¹⁷ at./cm² entre le début et la fin des mesures de section efficace. La valeur adoptée correspond finalement à la moyenne de ces deux mesures, c'est-à-dire 9,77 × 10^{17 13}C/cm².

Comme cela vient d'être dit, nos mesures de section efficace ont été réalisées sur une plage d'énergie comprise entre 628,6 et 397,1 keV dans le système laboratoire. Les paramètres intéressants caractérisant chaque point de mesure sont résumés à la Table 3. L'énergie dans le système centre de masse E_{CM} a été déterminée en tenant compte de l'épaisseur de la couche de ¹³C comme décrit au

point 4.4.1. Une correction supplémentaire, tenant compte de la couche de carbone en surface de l'échantillon due au phénomène de *carbon build-up*, a également été effectuée.

La Table 3 renseigne aussi l'erreur statistique qui entache chaque point de mesure. Lors d'une acquisition, il est généralement recommandé de mesurer au moins 1000 coups dans la région d'intérêt, de manière à obtenir une erreur statistique inférieure à 3 %. On observe cependant que la plupart de nos points de mesure sont entachés d'une erreur plus importante, dépassant la dizaine de pourcents pour certains points à basse énergie. Ces valeurs s'expliquent par le faible taux de comptage qui caractérise les mesures à basse énergie et par le temps disponible pour réaliser ces mesures. Pour obtenir des erreurs inférieures à 3 %, chaque mesure hors résonance aurait dû durer au moins une demi-heure, voire beaucoup plus pour les points à plus basse énergie. Ainsi, malgré 52 minutes de mesure à E_{lab} = 397,1 keV, seuls 80 coups ont été détectés. La réalisation de mesures plus longues s'avère difficile dans le cadre d'un mémoire comme celui-ci.

E _{lab} (keV)	Е _{см} (keV)	No	Courant particule (nA)	Temps mesure (min)	Νγ	Erreur stat. (%)	Dead Time (%)
628,6	574,3	3,12E+14	240	3,28	131	8,74	
623,6	569,1	3,12E+14	200	4,88	135	8,61	
618,6	564,8	3,12E+14	200	3,95	163	7,83	0,00
613,5	559,7	3,12E+14	200	3,97	178	7,50	
608,5	555,5	3,12E+14	240	3,87	218	6,77	
603,5	550,4	3,12E+14	200	3,98	237	6,50	
598,4	546,1	3,12E+14	240	3,45	295	5,82	
593,4	540,9	3,12E+14	200	3,97	363	5,25	
588,3	536,7	3,12E+14	210	3,58	451	4,71	0,17
583,3	531,6	3,12E+14	200	4,32	642	3,95	
578,3	527,3	3,12E+14	210	3,58	770	3,60	
573,2	522,1	3,12E+14	250	3,73	947	3,25	
568,2	518,0	3,12E+14	220	3,58	1158	2,94	1,32
563,2	512,8	3,12E+14	250	3,17	1352	2,72	
558,9	508,6	3,12E+14	220	3,48	1290	2,78	
557,8	507,2	5,62E+15	220	98,52	15779	0,80	0,21
553,1	503,3	3,12E+14	350	2,05	1133	2,97	
548,0	499,2	3,12E+14	220	3,48	880	3,37	

543,0	494,0	3,12E+14	350	2,12	682	3,83	
538,0	489,7	3,12E+14	220	3,53	461	4,66	
532,9	484,5	3,12E+14	350	2,15	396	5,03	
527,9	480,4	3,12E+14	220	3,77	290	5,88	
517,8	470,9	3,12E+14	220	3,45	167	7,74	
507,7	461,6	3,12E+14	220	3,47	127	8,87	
497,7	452,0	3,12E+14	200	3,43	97	10,15	
487,6	442,7	3,12E+14	200	3,57	58	13,13	
477,5	432,5	6,24E+14	220	5,80	59	13,02	0,08
467,4	423,5	1,25E+15	200	11,57	149	8,19	0,26
457,4	413,7	1,56E+15	200	14,15	166	7,76	3,96
447,3	404,1	1,56E+15	210	14,07	106	9,71	
437,2	394,2	2,19E+15	220	20,09	126	8,91	0,50
427,1	384,5	2,50E+15	230	27,48	91	10,48	0,64
417,1	375,4	6,24E+15	270	58,90	197	7,12	
397,1	357,0	3,12E+15	150	52,82	80	11,18	

Table 3 : Récapitulatif des paramètres importants utilisés lors des mesures de section efficace de la réaction $^{13}C(p,\gamma)^{14}N$.

En comparant les différents paramètres de la Table 3 à ceux utilisés par Gilles Genard et Paul-Louis Debarsy, on peut cependant constater que des intensités de faisceau et des temps d'acquisition moins élevés ont été nécessaires pour obtenir un nombre de coups supérieur. En particulier, à l'énergie de résonance, Paul-Louis Debarsy a réalisé une acquisition de 24 minutes avec un faisceau de 614 nA pour mesurer 999 événements. À la même énergie, une acquisition de 3 minutes avec 250 nA de courant nous a permis de détecter 1352 coups. Comme évoqué précédemment, ceci est une conséquence de la concentration en ¹³C de nos échantillons, qui est bien plus élevée que la concentration en hydrogène des standards réalisés par Genard et Debarsy. On peut donc souligner ici cet avantage de la cinématique directe qui permet, au vu de la concentration très importante des échantillons, d'optimiser la mesure de la section efface. De plus, l'utilisation de courants et de temps d'acquisition moins élevés entraîne vraisemblablement une détérioration moindre des cibles lors de la mesure.

Remarquons enfin que le *temps mort* du détecteur a été relevé à plusieurs reprises lors de nos mesures et est toujours resté de l'ordre du pourcent.

Toutes ces données nous ont finalement permis de déterminer les valeurs de section efficace proprement dite. Nos résultats sont illustrés à la Figure 31 et comparés à ceux obtenus par d'autres auteurs. Notons que seules les données relatives à la transition de l'état excité à 8,06 MeV vers l'état

fondamental ont été représentées (ce qui signifie que le facteur f_c n'a pas été inclus dans l'équation 24). Les données complètes obtenues pour la section efficace totale (en appliquant le facteur f_c) sont données au point 6.2 situé en Annexe.



Figure 31 : Valeurs de section efficace de la réaction ¹³C(p,γ)¹⁴N obtenues dans le cadre de ce travail en supposant une efficacité de détection de 5,62E-3. Nos données sont comparées à celles déterminées par d'autres auteurs. Parmi celles-ci, seules les valeurs de Genard et al. et de Debarsy ont été obtenues en cinématique inverse. Les données illustrées correspondent à la transition de l'état excité à 8,06 MeV vers l'état fondamental.

On observe que nos données suivent globalement la même allure que les résultats de la littérature. Les données collent relativement bien à celles de Gilles Genard et Paul-Louis Debarsy. Cependant, nos barres d'erreur importantes croisent presque à chaque fois les points de King et de Vogl. La différence n'est donc pas significative. La seule exception à basse énergie semble être le point vers 387,5 keV. Au-delà de la résonance, nos résultats concordent également avec ceux de Gilles Genard et Paul-Louis Debarsy, mais les barres d'erreur croisent tout de même les points de King et Vogl. Comme nous l'avons évoqué plus tôt, l'importance des barres d'erreur qui entachent nos valeurs de section efficace est due en bonne partie à l'erreur sur l'efficacité. Puisque nous avons utilisé une méthode « purement expérimentale », l'incertitude est en effet plus élevée que lors de l'utilisation d'une méthode basée sur des simulations.

Dans la thèse de Paul-Louis Debarsy, la différence entre les résultats obtenus en cinématiques directe et inverse étaient plus clairement visibles pour le facteur astrophysique. Nous avons donc utilisé l'équation 14 pour déterminer ce facteur astrophysique sur base de nos mesures. À nouveau, nos résultats concordent bien avec ceux de Genard et Debarsy, mais pour beaucoup de points, les importantes barres d'erreur croisent également les données obtenues en cinématique directe. À cause de cette incertitude, il est donc assez délicat d'affirmer que nos données montrent exactement la même différence que celles de Genard et Debarsy dans la gamme d'énergie allant de 250 keV à 450 keV.

Outre par la cinématique utilisée, nos mesures diffèrent également de celles de Genard et Debarsy par l'efficacité de détection. En effet, notre valeur de $5,62 \times 10^{-3}$ semble bien inférieure à celle déterminée par Gilles Genard lors de sa thèse ($6,85 \times 10^{-3}$) et ce même en tenant compte du vieillissement du détecteur qui provoque une légère baisse de l'efficacité au cours du temps. Comme évoqué précédemment, le fabricant du détecteur a très récemment réalisé une mesure de son efficacité. Il ne s'agit cependant que d'une mesure relative, comparée à celle d'un scintillateur NaI(TI) de 3" \times 3". L'efficacité relative renseignée était alors de 124 %.

Au début de la thèse de Gilles Genard, ce fabricant a réalisé la même mesure d'efficacité du détecteur HPGe. Celle-ci s'élevait alors à 132,2 %. En tenant compte de ces données renseignées par le fabricant, l'utilisation d'une simple règle de trois nous permet alors d'estimer une valeur *actuelle* de l'efficacité déterminée par Gilles Genard. Ce raisonnement repose donc sur l'hypothèse que la mesure d'efficacité relative réalisée par le fabricant s'est déroulé dans des conditions exactement similaires dans les deux cas. L'efficacité ainsi calculée s'élève à 6,425 × 10⁻³. En utilisant cette valeur d'efficacité pour nos calculs, nous obtenons pour le facteur astrophysique les résultats montrés à la Figure 32.



Figure 32 : Facteur astrophysique de la réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$ déterminé dans le cadre de ce travail en utilisant une valeur actualisée de l'efficacité déterminée par Gilles Genard. À nouveau, ces données ne tiennent compte que de la transition entre le niveau à 8,06 MeV et l'état fondamental.

On observe alors que les résultats collent très bien avec les données de Gilles Genard et Paul-Louis Debarsy. Nos résultats montrent en effet le même décalage systématique dans la zone comprise entre 350 keV et 450 keV. Les barres d'erreur, bien qu'importantes, ne croisent pas celles de King *et al.* dans cette région. Au-delà de la résonance, l'accord entre nos données et celles de Gilles Genard semble parfait. Nos points sont là aussi nettement plus bas que ceux de King *et al.*

De ces résultats, on peut donc conclure qu'en utilisant une valeur d'efficacité similaire, les résultats obtenus avec le dispositif bas-bruit développé au LARN sont comparables, quelle que soit la

cinématique de réaction utilisée. On peut donc vraisemblablement écarter le changement de cinématique comme justification de la différence entre les résultats de Genard et Debarsy et ceux obtenus dans d'autres laboratoires. En particulier, l'hypothèse de l'apparition de réactions nucléaires en cinématique directe, avancée par Paul-Louis Debarsy dans sa thèse, peut manifestement être rejetée.

Il y a dès lors deux façons d'interpréter ces résultats. Soit King et Vogl ont surestimé les valeurs de section efficace lors de leurs mesures, soit une erreur systématique survient lors de celles réalisés avec le dispositif bas-bruit du LARN. Localiser une telle erreur est loin d'être évident. Comme nous l'avons évoqué, l'efficacité de détection peut jouer un rôle important. L'efficacité que nous avons déterminée cette année mène en effet à des valeurs de section efficace assez « intermédiaires » entre celles de King et de Genard. L'estimation d'une valeur *actuelle* de l'efficacité mesurée par Gilles Genard dans le cadre de sa thèse nous permet par-contre d'obtenir des résultats très similaires aux siens. La question est alors de savoir quelle valeur est correcte.

La nôtre a été obtenue en utilisant deux méthodes distinctes renseignant des valeurs similaires. L'une de ces deux mesures a par ailleurs été réalisée directement dans les conditions de mesure de section efficace puisque nous avons pour la première fois déterminé l'efficacité du détecteur à l'aide de la raie γ correspondant à la transition d'intérêt. En outre, cette mesure a été effectuée sur deux échantillons de concentration différentes, et les résultats obtenus étaient comparables. On peut tout de même souligner que cette méthode utilisant des raies de la réaction ¹³C(p, γ)¹⁴N est basée sur des valeurs de section efficace présentant une certaine disparité [9],[10],[58]. Pour ce qui est de l'efficacité déterminée par Gilles Genard, elle semble confirmée par les mesures de Paul-Louis Debarsy qui a lui aussi réalisé des simulations Geant4 tenant compte des améliorations qu'il avait apportées au dispositif bas-bruit (refroidissement au SylthermTM, ...).

Il ne faut pas oublier que durant ce projet, le détecteur HPGe a fait de multiples aller-retours chez le fabricant pour des problèmes de refroidissement. Au vu de ce refroidissement sujet à des aléas, on peut également considérer l'hypothèse d'une variation de l'efficacité du détecteur au cours de ce mémoire. Peut-être cette dernière n'était-elle pas la même lors des mesures d'efficacité et lors des mesures de section efficace. Cette hypothèse semble cependant peu probable étant donné qu'une des mesures d'efficacité a été réalisée le même jour que les mesures de section efficace. Quoiqu'il en soit, la détermination exacte de l'efficacité du détecteur HPGe semble être une perspective intéressante et importante à la suite de ce projet. Pour ce faire, connaître l'efficacité absolue du scintillateur Nal(TI) utilisé chez le fabricant pourrait être intéressant.

Parmi les différences entre les mesures du LARN et celles réalisées dans d'autres laboratoires, on peut aussi souligner le type de cibles utilisées. Rappelons en effet que King et les autres auteurs « historiques » ont utilisé des échantillons obtenus par dépôt plasma ou par des méthodes chimiques, tandis que nos références ont été réalisées par implantation ionique (de carbone ou d'hydrogène selon la cinématique considérée). Une erreur liée à la profondeur de la couche implantée ou à son épaisseur pourrait ainsi mener à un décalage horizontal de nos données. Cependant, celui-ci serait vraisemblablement compris dans les barres d'erreur horizontales qui, pour la plupart des points, ne croisent pas les données de King. De plus, ce décalage surviendrait sur l'entièreté du graphe alors que les différences entre nos données et celles de la littérature ne surviennent que pour une gamme d'énergie donnée. Il pourrait néanmoins être intéressant de réaliser dans notre laboratoire une

mesure de section efficace en utilisant une cible de ¹³C obtenue par une autre méthode que l'implantation ionique. Des feuilles de ¹³C de grande pureté obtenues par arc-PVD comme celles utilisées dans la référence [46] seraient par exemple idéales.

Enfin, un dernier point peut être soulevé. Comme évoqué précédemment, le facteur de branchement que nous utilisons n'est valable qu'à l'énergie de résonance. King *et al.* ont en effet montré que ce facteur de branchement variait entre 81 % et 63 % pour des énergies respectives de 513 keV et 112 keV [1],[9]. L'utilisation d'un facteur de branchement de 80,3 % pour toutes les valeurs d'énergie du faisceau incident peut donc provoquer une sous-estimation de la section efficace aux plus basses énergie (voir équation 24 où f_c correspond à l'inverse du rapport de branchement). Cet argument n'est cependant pas applicable à la situation illustrée aux Figures 29 et 30, où les données ne correspondent qu'à la transition entre l'état à 8,06 MeV et l'état fondamental. Le facteur f_c n'intervient donc pas dans le calcul de ces valeurs.

5 Conclusion et perspectives

Des références de ¹³C ont été réalisées par implantation d'ions ¹³C⁻ de 36 keV dans des matrices de silicium préalablement amorphisées. Différentes doses, respectivement 8×10^{17} , 10^{18} et $1,5 \times 10^{18}$ at/cm², ont été implantées de manière à déterminer la dose seuil à partir de laquelle apparaît une saturation de la dose retenue dans ces échantillons. Les profils de concentration en ¹³C ont été déterminés par RNRA-PIGE via la résonance à 1747,6 keV de la réaction ¹³C(p, γ)¹⁴N. À cause du phénomène de gonflement de la couche implantée, l'allure de ces profils n'est plus une gaussienne comme c'était le cas pour des doses implantées inférieures. Le maximum de concentration est supérieur à 80 % atomiques pour chacun des échantillons et on observe même un plateau de concentration de l'ordre de 90 % atomiques dans le cas de la cible la plus implantée. L'intégration de ces profils a permis de réaliser une première étude de la dose retenue en fonction de la dose implantée.

Les échantillons implantés ont ensuite été caractérisés par NRA via la détection des noyaux ${}^{4}\text{He}^{2+}$ émis suite à la réaction ${}^{13}\text{C}(d,\alpha_{0})^{11}\text{B}$. Ces mesures ont également permis de réaliser une étude de la dose retenue en fonction de la dose implantée. Contrairement à ce qui avait été prédit par le programme *Moments*, développé sous Excel et tenant compte du gonflement et de l'érosion de la surface de l'échantillon par le faisceau incident, la saturation de la dose retenue n'apparaît pas pour une dose implantée de 1,3 × 10^{18 13}C/cm². La conclusion tirée de ces résultats est que le programme SRIM surestime le coefficient de *sputtering* dans le cas de l'implantation de ¹³C de basse énergie dans du silicium. Une autre référence, basée sur des mesures empiriques, a évalué la valeur de ce coefficient à 0,24 [54]. Une nouvelle simulation réalisée à l'aide du programme *Moments* prédit alors l'apparition de la saturation à une dose implantée de 3 × 10¹⁸ at/cm². Au vu de la largeur de la couche de ¹³C dans le cas de l'échantillon le plus implanté, il a été choisi d'utiliser la référence implantée à 10^{18 13}C/cm² pour réaliser la mesure de section efficace.

L'allure de cette dernière a tout d'abord été évaluée à l'aide d'un scintillateur NaI(TI) d'efficacité inconnue. Les valeurs relatives obtenues montrent une allure similaire aux résultats déterminés par Gilles Genard. L'efficacité du détecteur HPGe a ensuite été déterminée par deux méthodes distinctes renseignant des valeurs du même ordre de grandeur. L'efficacité de détection finalement adoptée correspond à la moyenne de ces deux valeurs et s'élève à 5,62 × 10⁻³.

Des profils de concentration ont été réalisés sur l'échantillon implanté à 10¹⁸ at/cm² avant et après chaque session de mesure de section efficace. L'intégration de ces profils a permis de montrer que la perte de ¹³C au cours de la mesure était seulement de 3,8 %, pour une charge intégrée totale de 6,1 mC. La valeur de concentration adoptée pour le calcul de la section efficace correspond à la moyenne des valeurs déterminées avant et après la mesure, soit 9,77 × 10¹⁷ at/cm².

Ces différents paramètres ont finalement permis de mesurer la section efficace de la réaction ${}^{13}C(p,\gamma)^{14}N$ en cinématique directe avec le dispositif bas-bruit développé au LARN. Pour une valeur d'efficacité de 5,62 × 10⁻³, nos résultats sont concordants avec ceux de Gilles Genard et Paul-Louis Debarsy, mais les barres d'erreur importantes croisent presque systématiquement les points déterminés par King et Vogl. En utilisant les valeurs relatives d'efficacité déterminées par le fabricant du détecteur HPGe, il a été possible d'estimer une valeur *actuelle* de l'efficacité mesurée par Gilles Genard dans le cadre de sa thèse. Cette valeur s'élève ainsi à 6,425 × 10⁻³ et permet d'obtenir un

facteur astrophysique présentant le même décalage systématique que les mesures réalisées par Gilles Genard et Paul-Louis Debarsy, pour une gamme d'énergie allant de 350 keV à 450 keV dans le système centre de masse.

Ces résultats permettent ainsi de conclure que les valeurs de section efficace mesurées avec le dispositif du LARN sont comparables, quelle que soit la cinématique de réaction utilisée. Les différences entre les données du LARN et celles de la littérature proviennent donc plus vraisemblablement d'une erreur systématique apparaissant dans le mode opératoire des uns ou des autres.

Déterminer la section efficace de la réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$ de façon exacte et univoque nécessitera donc encore la réalisation de nouvelles mesures et l'obtention d'informations supplémentaires. Nous avons en effet montré que l'efficacité du détecteur était un paramètre crucial pour l'obtention de valeurs précises de la section efficace. Une détermination exacte de l'efficacité du détecteur HPGe semble donc être indispensable pour la réalisation de futures mesures de section efficace au LARN. Pour se rapprocher des conditions expérimentales utilisées dans la littérature, il serait également intéressant de réaliser une nouvelle mesure de section efficace de la réaction ${}^{13}C(p,\gamma){}^{14}N$ en utilisant une cible de ${}^{13}C$ réalisée par dépôt plasma. Enfin, malgré la concentration en ${}^{13}C$ très importante des références développées dans le cadre de ce mémoire, nos résultats montrent la nécessité de réaliser de longues acquisitions, de manière à réduire les barres d'erreur sur les valeurs de section efficace.

6 Annexes

6.1 Détermination des barres d'erreur

Si l'on considère une fonction $f(x_1, x_2, ..., x_n)$ qui dépend de n variables indépendantes (et donc provenant de mesures indépendantes les unes des autres), on peut définir l'erreur absolue sur cette fonction f en fonction des incertitudes relatives sur les différentes variables de la manière suivante [28] :

$$\sigma_f = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial f}{\partial x_i}\right)^2 \sigma_{x_i}^2}$$
(26)

où $\sigma_{x_i}^2$ correspond à l'erreur absolue sur la variable x_i . Dans le cas de la section efficace, définie par l'Equation (13), on peut définir l'erreur absolue sur la section efficace comme

$$\sigma_{\sigma} = \sqrt{\left(\frac{\partial\sigma}{\partial f_{c}}\right)^{2}\sigma_{f_{c}}^{2} + \left(\frac{\partial\sigma}{\partial N_{\gamma}}\right)^{2}\sigma_{N_{\gamma}}^{2} + \left(\frac{\partial\sigma}{\partial [^{13}C]}\right)^{2}\sigma_{[^{13}C]}^{2} + \left(\frac{\partial\sigma}{\partial\varepsilon}\right)^{2}\sigma_{\varepsilon}^{2} + \left(\frac{\partial\sigma}{\partial N_{0}}\right)^{2}\sigma_{N_{0}}^{2}}$$
(27)

En reprenant l'Equation (13), il est possible de réexprimer les dérivées partielles de l'expression (27) comme un rapport entre la section efficace σ et les différentes variables dont elle dépend. Ainsi, par exemple

$$\frac{\partial \sigma}{\partial f_c} = \frac{\partial}{\partial f_c} \left(\frac{f_c N_{\gamma}}{\epsilon \, [^{13}C] N_0} \right) = \frac{N_{\gamma}}{\epsilon \, [^{13}C] N_0} = \frac{\sigma}{f_c}$$
(28)

En développant les autres termes de la même façon, l'Equation (27) peut se réécrire comme

$$\sigma_{\sigma} = \sigma_{\sqrt{\left(\frac{\sigma_{f_c}}{f_c}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{N_{\gamma}}}{N_{\gamma}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{\varepsilon}}{\varepsilon}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{[13C]}}{[13C]}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{N_0}}{N_0}\right)^2}$$
(29)

À partir de cette expression, on peut alors calculer l'erreur relative $\frac{\sigma_{\sigma}}{\sigma}$ sur la section efficace.

Pour ce qui est du facteur astrophysique *S*, l'équation (14) nous permet d'écrire l'erreur absolue sur cette grandeur comme

$$\sigma_{S} = \sqrt{\left(\frac{\partial S}{\partial \sigma}\right)^{2} \sigma_{\sigma}^{2} + \left(\frac{\partial S}{\partial E}\right)^{2} \sigma_{E}^{2}}$$
(30)

Par des raisonnements similaires à ceux évoqués ci-dessus, on peut réexprimer les dérivées partielles de sorte à réécrire l'erreur absolue comme

$$\sigma_{S} = S \sqrt{\left(\frac{\sigma_{\sigma}}{\sigma}\right)^{2} + \left(1 - \frac{1}{2}\sqrt{\frac{E_{G}}{E}}\right)^{2} \left(\frac{\sigma_{E}}{E}\right)^{2}}$$
(31)

6.2 Données complètes pour la section efficace totale

E _{lab} (keV)	Е _{см} (keV)	Erreur E _{CM} (keV)	Section efficace (b)	Erreur absolue (b)	Erreur relative (%)	Facteur S (keV.b)	Erreur absolue (keV . b)	Erreur relative (%)
628,6	575,5	17,2	9,51E-5	1,58E-5	16,6	1,06E+2	1,97E+1	18,6
623,6	570,3	17,1	1,22E-4	1,61E-5	13,2	1,12E+2	2,18E+1	19,5
618,6	565,5	17,0	1,18E-4	1,91E-5	16,2	1,39E+2	2,52E+1	18,2
613,5	560,8	16,8	1,29E-4	2,06E-5	16,0	1,55E+2	2,80E+1	18,1
608,5	556,1	16,7	1,58E-4	2,48E-5	15,7	1,94E+2	3,47E+1	17,8
603,5	551,4	16,5	1,76E-4	2,67E-5	15,1	2,16E+2	3,86E+1	17,8
598,4	546,6	16,4	2,14E-4	3,28E-5	15,3	2,76E+2	4,86E+1	17,6
593,4	541,9	16,3	2,63E-4	3,97E-5	15,1	3,48E+2	6,06E+1	17,4
588,3	537,2	16,1	3,27E-4	4,88E-5	14,9	4,44E+2	7,67E+1	17,3
583,3	532,6	16,0	4,66E-4	6,83E-5	14,7	6,48E+2	1,11E+2	17,1
578,3	527,7	15,8	5,59E-4	8,15E-5	14,6	7,99E+2	1,36E+2	17,1
573,2	523,1	15,7	6,87E-4	9,96E-5	14,5	1,01E+3	1,71E+2	17,0
568,2	518,3	15,6	8,40E-4	1,21E-4	14,4	1,27E+3	2,15E+2	17,0
563,2	513,7	15,4	9,81E-4	1,41E-4	14,4	1,52E+3	2,58E+2	17,0
558,9	509,6	15,3	1,12E-3	1,27E-4	11,3	1,42E+3	2,58E+2	18,1
558,1	508,8	15,3	9,18E-4	1,32E-4	14,4	1,46E+3	2,49E+2	17,0
558,1	508,8	15,3	9,54E-4	1,37E-4	14,4	1,52E+3	2,58E+2	17,0
556,7	507,5	15,2	9,47E-4	1,35E-4	14,3	1,52E+3	2,57E+2	16,9
553,1	504,2	15,1	8,22E-4	1,19E-4	14,4	1,35E+3	2,31E+2	17,1

548,0	499,5	15,0	6,39E-4	9,27E-5	14,5	1,08E+3	1,85E+2	17,2
543,0	494,8	14,8	4,95E-4	7,24E-5	14,6	8,59E+2	1,49E+2	17,3
538,0	489,9	14,7	3,35E-4	4,98E-5	14,9	5,99E+2	1,05E+2	17,6
532,9	485,3	14,6	2,87E-4	4,31E-5	15,0	5,30E+2	9,36E+1	17,7
527,9	480,6	14,4	2,10E-4	3,22E-5	15,3	4,00E+2	7,18E+1	18,0
517,8	471,0	14,1	1,21E-4	1,91E-5	15,7	2,45E+2	4,52E+1	18,4
507,7	461,7	13,9	9,22E-5	1,53E-5	16,6	1,99E+2	3,82E+1	19,2
497,7	452,1	13,6	7,04E-5	1,22E-5	17,4	1,63E+2	3,24E+1	19,9
487,6	442,8	13,3	4,21E-5	8,12E-6	19,3	1,04E+2	2,26E+1	21,7
477,5	433,2	13,0	3,12E-5	6,45E-6	20,7	8,31E+1	1,91E+1	23,0
467,4	423,8	12,7	2,70E-5	4,41E-6	16,3	7,75E+1	1,49E+1	19,3
457,4	414,2	12,4	2,41E-5	3,87E-6	16,1	7,48E+1	1,43E+1	19,1
447,3	404,9	12,1	1,54E-5	2,63E-6	17,1	5,17E+1	1,04E+1	20,1
437,2	395,3	11,9	1,31E-5	2,18E-6	16,7	4,78E+1	9,48E+0	19,8
427,1	385,9	11,6	8,26E-6	1,45E-6	17,6	3,29E+1	6,80E+0	20,7
417,1	376,3	11,3	7,15E-6	1,13E-6	15,8	3,13E+1	6,02E+0	19,3
397,1	357,5	10,7	5,81E-6	1,05E-6	18,0	3,08E+1	6,57E+0	21,4

7 Bibliographie

- P.-L. Debarsy, « Développement d'un système de détection bas-bruit polyvalent et de références d'hydrogène pour l'étude de réactions nucléaires d'intérêt astrophysique ». Consulté le: 4 avril 2021. [En ligne]. Disponible sur: https://researchportal.unamur.be/fr/studentTheses/d%C3%A9veloppement-dun-syst%C3%A8me-de-d%C3%A9tection-bas-bruit-polyvalent-et-de
- [2] G. Genard, « Développement d'un dispositif expérimental bas bruit ». Consulté le: 4 avril 2021. [En ligne]. Disponible sur: https://researchportal.unamur.be/fr/studentTheses/d%C3%A9veloppement-dun-dispositifexp%C3%A9rimental-bas-bruit
- [3] H. A. Bethe, « Energy Production in Stars », *Phys. Rev.*, vol. 55, n° 5, p. 434-456, mars 1939, doi: 10.1103/PhysRev.55.434.
- [4] R. A. Alpher, H. Bethe, et G. Gamow, « The Origin of Chemical Elements », *Phys. Rev.*, vol. 73, n°
 7, p. 803-804, avr. 1948, doi: 10.1103/PhysRev.73.803.
- [5] E. M. Burbidge, G. R. Burbidge, W. A. Fowler, et F. Hoyle, « Synthesis of the Elements in Stars », *Rev. Mod. Phys.*, vol. 29, n° 4, p. 547-650, oct. 1957, doi: 10.1103/RevModPhys.29.547.
- [6] C. E. Rolfs, W. S. Rodney, et W. S. Rodney, *Cauldrons in the Cosmos: Nuclear Astrophysics*. University of Chicago Press, 1988.
- [7] A. Di Leva *et al.*, « Measurement of 1323 and 1487 keV resonances in 15N(α,γ)19F with the recoil separator ERNA », *Phys. Rev. C*, vol. 95, n° 4, p. 045803, avr. 2017, doi: 10.1103/PhysRevC.95.045803.
- [8] P. Descouvemont, « Nuclear Reactions of Astrophysical Interest », *Front. Astron. Space Sci.*, vol. 7, 2020, Consulté le: 20 juillet 2022. [En ligne]. Disponible sur: https://www.frontiersin.org/articles/10.3389/fspas.2020.00009
- J. D. King *et al.*, « Cross section and astrophysical S-factor for the 13C(p, γ)14N reaction », *Nucl. Phys. A*, vol. 567, n° 2, p. 354-376, janv. 1994, doi: 10.1016/0375-9474(94)90154-6.
- [10] J. L. Vogl, « Radiative capture of protons by 12C and 13C below 700 kev », phd, California Institute of Technology, 1963. doi: 10.7907/PTTG-5G83.
- [11] D. F. Hebbard et J. L. Vogl, « Elastic scattering and radiative capture of protons by C13 », Nucl. Phys., vol. 21, p. 652-675, nov. 1960, doi: 10.1016/0029-5582(60)90084-5.
- [12] R. E. Hester et W. A. S. Lamb, « Radiative Capture of Protons in 13C », *Phys. Rev.*, vol. 121, n° 2, p. 584-586, janv. 1961, doi: 10.1103/PhysRev.121.584.
- [13] E. J. Woodbury et W. A. Fowler, « The cross section for the radiative capture of protons by C13 at 129 kev », Phys. Rev., vol. 85, n° 1, Art. n° 1, janv. 1952.
- [14] Y. Wang et M. Nastasi, *Handbook of Modern Ion Beam Materials Analysis 2 Volume Set*, 2nd edition. Warrendale, Pa.: Materials Research Society, 2010.
- [15] G. Sahu, S. K. Rath, B. Joseph, G. S. Roy, et D. P. Mahapatra, « Saturation effects observed in high fluence heavy ion implantation at few tens of keV », *Vacuum*, vol. 83, n° 5, p. 836-840, janv. 2009, doi: 10.1016/j.vacuum.2008.08.005.

- [16] J. F. Ziegler, *Ion Implantation: Science and Technology*, New edition. Boston: Academic Press Inc, 1988.
- [17] F. Corni et M. Michelini, « A didactic proposal about Rutherford backscattering spectrometry with theoretic, experimental, simulation and application activities », *Eur. J. Phys.*, vol. 39, n° 1, p. 015501, déc. 2017, doi: 10.1088/1361-6404/aa9053.
- [18] M. Mayer, « Rutherford Backscattering Spectrometry (RBS) : Lecture given at the Workshop on Nuclear Data for Science and Technology: Materials Analysis Trieste », mai 2003.
- [19] C. Jeynes, N. P. Barradas, et E. Szilágyi, « Accurate Determination of Quantity of Material in Thin Films by Rutherford Backscattering Spectrometry », *Anal. Chem.*, vol. 84, n° 14, p. 6061-6069, juill. 2012, doi: 10.1021/ac300904c.
- [20] F. Adams et C. Barbante, « Chapter 8 Particle-Based Imaging Techniques », in *Comprehensive Analytical Chemistry*, vol. 69, F. Adams et C. Barbante, Éd. Elsevier, 2015, p. 315-337. doi: 10.1016/B978-0-444-63439-9.00008-6.
- [21] G. Deconninck, Introduction to Radioanalytical Physics. Elsevier, 1978.
- [22] G. Laricchiuta, « Innovation in ion beam analysis for nanoelectronic materials », KU Leuven, 2019.
- [23] R. L. Thompson, « 2.27 Ion Beam Analysis », in *Polymer Science: A Comprehensive Reference*, K. Matyjaszewski et M. Möller, Éd. Amsterdam: Elsevier, 2012, p. 661-681. doi: 10.1016/B978-0-444-53349-4.00051-0.
- [24] W. A. Lanford *et al.*, « Nuclear reaction analysis for H, Li, Be, B, C, N, O and F with an RBS check », *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 371, p. 211-215, mars 2016, doi: 10.1016/j.nimb.2015.10.052.
- [25] W. S. C. Williams, *Nuclear and Particle Physics*, Illustrated edition. Oxford England : New York: Clarendon Press, 1991.
- [26] S. P. Murarka, « Neutron Activation Analysis », in *Encyclopedia of Materials: Science and Technology*, K. H. J. Buschow, R. W. Cahn, M. C. Flemings, B. Ilschner, E. J. Kramer, S. Mahajan, et P. Veyssière, Éd. Oxford: Elsevier, 2001, p. 1-5. doi: 10.1016/B0-08-043152-6/01083-4.
- [27] T. Cabioc'h, E. Thune, M. Jaouen, et F. Bodart, « Resonant nuclear reaction analysis study of carbon phase formation during carbon ion-implantation into silver substrates », *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 207, n° 4, p. 409-414, août 2003, doi: 10.1016/S0168-583X(03)01118-2.
- [28] G. F. Knoll, Radiation Detection and Measurement. John Wiley & Sons, 2010.
- [29] F. Russell-Pavier, « Testing radiation using frozen fluid laden with energy sensors (TRUFFLES) », 2015. doi: 10.13140/RG.2.2.29080.03842.
- [30] P. J. Collings, « Simple measurement of the band gap in silicon and germanium », Am. J. Phys., vol. 48, nº 3, p. 197-199, mars 1980, doi: 10.1119/1.12172.
- [31] « High-Resolution Gamma-Ray Spectroscopy with HPGe Detectors ». https://www.mirion.com/learning-center/lab-experiments/high-resolution-gamma-rayspectroscopy-with-hpge-detectors-lab-experiments (consulté le 21 juillet 2022).
- [32] G. Genard, M. Yedji, G. G. Ross, et G. Terwagne, « Elaboration and characterization of hydrogen standard stable under heavy ion irradiation: Application to nuclear astrophysics », *Nucl. Instrum.*
Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At., vol. 264, n° 1, p. 156-164, nov. 2007, doi: 10.1016/j.nimb.2007.08.007.

- [33] P.-L. Debarsy et G. Terwagne, « Pure hydrogen references synthesized by low energy ion implantation into amorphous silicon », *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 442, p. 47-52, mars 2019, doi: 10.1016/j.nimb.2018.12.047.
- [34] J. K. N. Lindner, « Formation of SiC Thin Films by Ion Beam Synthesis », *Silicon Carbide*, p. 251-277, 2004, doi: 10.1007/978-3-642-18870-1_11.
- [35] J. L. Colaux et G. Terwagne, « Simultaneous depth profiling of the 12C and 13C elements in different samples using (d,p) reactions », Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At., vol. 240, nº 1, p. 429-433, oct. 2005, doi: 10.1016/j.nimb.2005.06.140.
- [36] E. Friedland, M. Hayes, S. Kalbitzer, et P. Oberschachtsiek, « Range parameters of 13C implants in semiconductor and metal targets », *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 85, n° 1, p. 272-275, mars 1994, doi: 10.1016/0168-583X(94)95826-2.
- [37] W. Theodossiu, H. Baumann, A. Markwitz, et K. Bethge, « Characterisation of 13C implantations in silicon by NRA [13C(p,γ)14N] and RBS », *Fresenius J. Anal. Chem.*, vol. 353, n° 3, p. 483-486, janv. 1995, doi: 10.1007/BF00322093.
- [38] null Galster et al., « Target and detection techniques for the 13N(p,g)14O reaction using radioactive ion beams: 13C(p,g)14N reaction as a test case », Phys. Rev. C Nucl. Phys., vol. 44, n° 6, p. 2776-2787, déc. 1991, doi: 10.1103/physrevc.44.2776.
- [39] M. Mayer, « SIMNRA, a simulation program for the analysis of NRA, RBS and ERDA », AIP Conf. Proc., vol. 475, nº 1, p. 541-544, juin 1999, doi: 10.1063/1.59188.
- [40] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, et J. P. Biersack, « SRIM The stopping and range of ions in matter (2010) », Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At., vol. 268, nº 11, p. 1818-1823, juin 2010, doi: 10.1016/j.nimb.2010.02.091.
- [41] R. P. Webb et I. H. Wilson, « An Extension to the Projected Range Algorythm (PRAL) to give Energy Deposition Profiles », *Proc 2nd Int Conf Simul. Semicond. Devices Process.*, p. 247-255, 1986.
- [42] A. L. Stepanov, V. A. Zhikharev, D. E. Hole, P. D. Townsend, et I. B. Khaibullin, « Depth distribution of Cu, Ag and Au ions implanted at low energy into insulators », *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 166-167, p. 26-30, mai 2000, doi: 10.1016/S0168-583X(99)00641-2.
- [43] A. L. Stepanov, V. A. Zhikharev, et I. B. Khaibullin, « Depth profiles of metal ions implanted in dielectrics at low energies », *Phys. Solid State*, vol. 43, n° 4, p. 766-771, avr. 2001, doi: 10.1134/1.1366008.
- [44] « SylthermTM Technical Data Sheet ». Consulté le: 16 mai 2021. [En ligne]. Disponible sur: https://www.dow.com/documents/en-us/productdatasheet/176/176-01468-01-syltherm-xltheat-transfer-fluid.pdf
- [45] J. B. Marion et G. Weber, « Compound Nucleus Effects in Deuteron Reactions: 13C(d, α)11B and 13C(d, t)12C », *Phys. Rev.*, vol. 102, n° 5, p. 1355-1364, juin 1956, doi: 10.1103/PhysRev.102.1355.
- [46] J. L. Colaux, T. Thomé, et G. Terwagne, « Cross section measurements of the reactions induced by deuteron particles on 13C », *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 254, n° 1, p. 25-29, janv. 2007, doi: 10.1016/j.nimb.2006.10.062.

- [47] M. Mayer, « SIMNRA, a simulation program for the analysis of NRA, RBS and ERDA », AIP Conf. Proc., vol. 475, nº 1, p. 541-544, juin 1999, doi: 10.1063/1.59188.
- [48] J. L. Colaux, « Caractérisation de nitrures de carbone synthétisés par implantation simultanée de carbone et d'azote dans du cuivre », Thèse de doctorat, Namur, 2009.
- [49] H. Bakhru, A. W. Haberl, et W. G. Skala, « Detection and profiling of carbon via the 13C(P,γ)14N resonant reaction », AIP Conf. Proc., vol. 1525, n° 1, p. 195-198, avr. 2013, doi: 10.1063/1.4802318.
- [50] F. Ajzenberg-Selove, « Energy levels of light nuclei A = 13–15 », Nucl. Phys. A, vol. 449, n° 1, p. 1-155, févr. 1986, doi: 10.1016/0375-9474(86)90119-3.
- [51] G. Deconninck et B. Van Oystaeyen, « High resolution depth profiling of F, Ne and Na in materials », Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., vol. 218, n° 1, p. 165-170, déc. 1983, doi: 10.1016/0167-5087(83)90974-2.
- [52] I. Mizushima, A. Murakoshi, K. Suguro, N. Aoki, et J. Yamauchi, « Ultra high dose boron ion implantation: super-saturation of boron and its application », *Mater. Chem. Phys.*, vol. 54, n° 1, p. 54-59, juill. 1998, doi: 10.1016/S0254-0584(98)00107-2.
- [53] P. K. Giri, « Studies on the surface swelling of ion-irradiated silicon: Role of defects », Mater. Sci. Eng. B, vol. 121, n° 3, p. 238-243, août 2005, doi: 10.1016/j.mseb.2005.04.003.
- [54] N. Matsunami *et al.*, « Energy dependence of the ion-induced sputtering yields of monatomic solids », *At. Data Nucl. Data Tables*, vol. 31, n° 1, p. 1-80, juill. 1984, doi: 10.1016/0092-640X(84)90016-0.
- [55] R. J. deBoer, C. R. Brune, M. Febrarro, J. Görres, I. J. Thompson, et M. Wiescher, « Sensitivity of the 13C(α,n)16O S factor to the uncertainty in the level parameters of the near-threshold state », *Phys. Rev. C*, vol. 101, n° 4, Art. n° LLNL-JRNL-801997, avr. 2020, doi: 10.1103/physrevc.101.045802.
- [56] A. Mukhamedzhanov *et al.*, « Astrophysical S factor for 13C(p, γ) 14N and asymptotic normalization coefficients », *Phys. Rev. C Nucl. Phys.*, vol. 66, p. 276021-276024, août 2002.
- [57] H. Beaumevieille, A. Bouchemha, Y. Boudouma, A. Boughrara, S. Ouichaoui, et U. Chan Tsan, « Interprétation physique du facteur astrophysique S(E) aux énergies stellaires à partir de la méthode WKB », *Comptes Rendus Académie Sci. - Ser. IIB - Mech.-Phys.-Astron.*, vol. 327, n° 2, p. 251-258, févr. 1999, doi: 10.1016/S1287-4620(99)80064-7.
- [58] G. Genard, P. Descouvemont, et G. Terwagne, «S-factor measurement of the 13C(p,g)14N reaction in reverse kinematics », J. Phys. Conf. Ser., vol. 202, p. 012015, janv. 2010, doi: 10.1088/1742-6596/202/1/012015.
- [59] C. Ananna *et al.*, « Underground Measurements of Nuclear Reaction Cross-Sections Relevant to AGB Stars », *Universe*, vol. 8, n° 1, Art. n° 1, janv. 2022, doi: 10.3390/universe8010004.
- [60] S. Chakraborty, R. Deboer, A. Mukherjee, et S. Roy, « Systematic R -matrix analysis of the C 13 (p, γ) N 14 capture reaction », *Phys. Rev. C*, vol. 91, avr. 2015, doi: 10.1103/PhysRevC.91.045801.
- [61] Y. Li *et al.*, « New determination of the astrophysical 13C(p, γ) 14N S(E) factors and reaction rates via the 13C(7Li, 6He) 14N reaction », *Eur. Phys. J. A*, vol. 48, févr. 2012, doi: 10.1140/epja/i2012-12013-x.

- [62] C. A. Bertulani et V. Guimarães, « Radiative capture reactions from potential models », AIP Conf. Proc., vol. 1304, nº 1, p. 183-191, nov. 2010, doi: 10.1063/1.3527199.
- [63] A. Moghadasi, H. Sadeghi, et R. Pourimani, « Calculation of astrophysical S-factor in reaction C 13 (p , γ) 14 N \$^{13}\mathrm{C}(p,\gamma)^{14}\mathrm{N}\$ for first resonance levels », Astrophys. Space Sci., vol. 363, janv. 2018, doi: 10.1007/s10509-017-3220-y.
- [64] N. W. Makau et T. E. Derry, « A new way of depositing thin targets of monolayer thickness for nuclear reaction analysis: A case of the 550keV 13C (p,γ)14N resonant nuclear reaction », *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. Accel. Spectrometers Detect. Assoc. Equip.*, vol. 555, n° 1, p. 31-35, déc. 2005, doi: 10.1016/j.nima.2005.09.034.
- [65] A. Perez-Andujar et L. Pibida, « Performance of CdTe, HPGe and Nal(Tl) detectors for radioactivity measurements », *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 60, n° 1, p. 41-47, janv. 2004, doi: 10.1016/j.apradiso.2003.10.006.
- [66] E. Browne, R. B. Firestone, V. S. Shirley, et C. M. Lederer, *Table of Isotopes*, 7e édition. New York: John Wiley & Sons Inc, 1978.
- [67] D. Bemmerer *et al.*, « Feasibility of low-energy radiative-capture experiments at the LUNA underground accelerator facility », *Eur. Phys. J. - Hadrons Nucl.*, vol. 24, n° 2, p. 313-319, mai 2005, doi: 10.1140/epja/i2004-10135-4.
- [68] G. Bonomi, P. Checchia, M. D'Errico, D. Pagano, et G. Saracino, « Applications of cosmic-ray muons », Prog. Part. Nucl. Phys., vol. 112, p. 103768, mai 2020, doi: 10.1016/j.ppnp.2020.103768.
- [69] F. Cavanna et P. Prati, « Direct measurement of nuclear cross-section of astrophysical interest: Results and perspectives », Int. J. Mod. Phys. A, vol. 33, n° 09, p. 1843010, mars 2018, doi: 10.1142/S0217751X18430108.
- [70] M.-M. Bé et al., Table of radionuclides (Vol. 4 A = 133 to 252), vol. 4. 2008. Consulté le: 29 juillet 2022. [En ligne]. Disponible sur: https://hal-cea.archives-ouvertes.fr/cea-02476295
- [71] Y. Yoshizawa, Y. Iwata, et Y. Iinuma, « Precision measurements of gamma-ray intensities. II.
 152Eu, 154Eu and 192Ir », *Nucl. Instrum. Methods*, vol. 174, n° 1, p. 133-139, août 1980, doi: 10.1016/0029-554X(80)90421-8.
- [72] G. L. Molnár, Zs. Révay, et T. Belgya, « Wide energy range efficiency calibration method for Ge detectors », Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. Accel. Spectrometers Detect. Assoc. Equip., vol. 489, n° 1, p. 140-159, août 2002, doi: 10.1016/S0168-9002(02)00902-6.
- [73] J. Kiener *et al.*, « New determinations of gamma-ray line intensities of the Ep=550 and 1747keV resonances of the 13C(p,γ)14N reaction », *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. Accel. Spectrometers Detect. Assoc. Equip.*, vol. 519, n° 3, p. 623-635, mars 2004, doi: 10.1016/j.nima.2003.10.086.
- [74] S. Agostinelli et al., « Geant4—a simulation toolkit », Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. Accel. Spectrometers Detect. Assoc. Equip., vol. 506, n° 3, p. 250-303, juill. 2003, doi: 10.1016/S0168-9002(03)01368-8.
- [75] Z. Liu, J. Chen, P. Zhu, Y. Li, et G. Zhang, « The 4.438MeV gamma to neutron ratio for the Am–Be neutron source », Appl. Radiat. Isot., vol. 65, p. 1318-1321, janv. 2008, doi: 10.1016/j.apradiso.2007.04.007.

- [76] I. Murata, I. Tsuda, R. Nakamura, S. Nakayama, M. Matsumoto, et H. Miyamaru, « Neutron and gamma-ray source-term characterization of AmBe sources in Osaka University », *Prog. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 4, p. 345-348, janv. 2014, doi: 10.15669/pnst.4.345.
- [77] M. V. Pham, L. A. Kesler, K. B. Woller, et Z. S. Hartwig, « Differential cross section measurements of the 6.13 MeV gamma ray from proton-induced reaction of fluorine », *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 499, p. 118-123, juill. 2021, doi: 10.1016/j.nimb.2021.03.011.