

# Scintillations des particules dans Csl

Autor(en): **Hahn, E. / Rossel, J.**

Objektyp: **Article**

Zeitschrift: **Helvetica Physica Acta**

Band (Jahr): **26 (1953)**

Heft III-IV

PDF erstellt am: **12.07.2024**

Persistenter Link: <https://doi.org/10.5169/seals-112414>

## **Nutzungsbedingungen**

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern. Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

## **Haftungsausschluss**

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

## Scintillations des particules $\alpha$ dans CsI

par B. Hahn et J. Rossel (Neuchâtel).

(15 IV 1953.)

*Summary.* An investigation of the scintillations produced by  $\alpha$ -particles in mono-crystals of CsI (without activator) has been made. At 77° K the measured decay-time  $\tau$  of the scintillations is 0,5  $\mu$ sec. Near 135° K at increasing temperatures the observed exponential decay goes over into a more complex decay law. By comparison with ZnS(Ag) as well as with anthracene an absolute luminescence efficiency  $e_l$  of about 35% was found. A scintillation spectrometer with a CsI-crystal and an RCA Photomultiplier 5819 exhibits a width of 5% for the  $\alpha$ -line of Po<sup>210</sup>; more than 80% of this width arises from the multiplier. Still better resolution can be expected.

### 1. Introduction.

Récemment dans notre institut, BONANOMI et ROSSEL<sup>1)</sup>, au cours d'une étude sur la luminescence des iodures d'alcalins, ont trouvé pour les cristaux CsI et KI (sans activateur) à 77° K un rendement lumineux remarquablement élevé. Comme de plus ces cristaux possèdent un temps de déclin  $\tau$  des scintillations très faible pour des substances inorganiques ( $\tau < 1 \mu$ sec.), ils remplissent deux conditions essentielles pour leur utilisation comme phosphores dans un compteur à scintillations.

Pour cette raison, il a paru intéressant d'étudier d'abord les propriétés les plus importantes de CsI non-activé comme détecteur pour les particules  $\alpha$ , à savoir la durée de déclin de la luminescence, le rendement de luminescence et le pouvoir de résolution en énergie des particules\*).

Les caractéristiques de CsI pour la mesure des radiations  $\gamma$  et des rayons X est en cours d'investigation et feront l'objet d'une publication ultérieure.

### 2. Cristaux de CsI.

Le matériel de départ utilisé pour la production de monocristaux de CsI consistait en poudre de CsI des «British Drug Houses». Malheureusement aucune indication sur le degré de pureté du produit n'a pu être obtenue.

\*) KI n'est pas favorable pour la mesure de particules ou de quanta d'énergie inférieure à 2 MeV, à cause de l'activité de K<sup>40</sup>.

La substance est employée «pure», c'est-à-dire qu'aucun élément activateur comme par exemple Tl n'y est adjoint. La luminescence observée doit donc être attribuée à des imperfections du réseau cristallin propre ou éventuellement à des traces d'impuretés inconnues. Cependant d'après les observations de BONANOMI et ROSSEL<sup>1</sup>), entre autres que les temps de déclin des deux composantes luminescentes décelées,  $\gamma_1$  et  $\gamma_2$ , restent inchangés lors de l'addition de Tl (environ 1‰), il apparaît très probable que pour les cristaux de CsI activés ou non, les mêmes imperfections cristallines du réseau de CsI (type CsCl) sont responsables de la luminescence.

La composante  $\gamma_1$  (composante «chaude») existe à la température ordinaire et disparaît vers 200° K environ. Elle peut être intensifiée par un traitement thermique approprié. La composante  $\gamma_2$  (composante «froide») apparaît seulement pour des températures inférieures à 200° K.

Il nous a été possible jusqu'ici de produire des monocristaux parfaitement transparents et incolores de quelque 10 mm<sup>3</sup> à partir de la solution aqueuse saturée et aussi à partir de la substance fondue à 630° C.

La composante «froide»  $\gamma_2$  à grand rendement lumineux qui nous intéresse ici, est fortement atténuée si l'on chauffe la substance. C'est ainsi qu'un monocristal formé dans la solution aqueuse et porté pendant un quart d'heure à 400° C présente après ce traitement thermique une émission luminescente environ 3 fois plus faible que le matériel non traité. La composante «froide» ne supporte donc pas ce traitement thermique au contraire de la composante «chaude». Pour cette raison seuls les cristaux tirés de la solution ont pu être utilisés. Ils présentent les mêmes propriétés luminescentes que la poudre cristalline de CsI<sup>1</sup>).

Il y a lieu de mentionner qu'à l'encontre d'autres iodures, tels NaI et LiI, le CsI n'est pas hygroscopique. Les monocristaux de CsI se maintiennent à l'air du laboratoire parfaitement transparents, même pendant des mois.

Il est possible d'obtenir de très belles surfaces cristallines en frottant soigneusement le cristal sur une étoffe à fine trame légèrement humectée d'eau distillée.

Po s'incorpore en quantité suffisante aux cristaux de CsI si l'on ajoute à la solution aqueuse de CsI une goutte de solution d'acide nitrique normale (10 cm<sup>3</sup>) contenant 3 mC de Po<sup>210</sup> (HARWELL).

### 3. Temps de déclin de la luminescence.

Pour une décroissance exponentielle de la luminescence (processus monomoléculaire) on peut définir un temps de déclin  $\tau$  (vie moyenne) par la loi d'intensité lumineuse  $I = I_0 e^{-t/\tau}$ .

Lorsque l'émission des photons se fait suivant une loi différente (par exemple hyperbolique) il est possible, pour des conditions d'excitation de scintillations constantes, de définir une durée de déclin par le temps  $\tau'$  qui sépare le 10% et le 90% des photons émis. ( $\tau' = 2,2 \tau$  pour une décroissance exponentielle.)

Les grandeurs  $\tau$  ou  $\tau'$  de la composante  $\gamma_2$  de luminescence de CsI ont été mesurés en fonction de la température au moyen d'un photomultiplicier RCA type 5819 associé à un oscillographe cathodique Du Mont type 294 A. La charge produite à la sortie du multiplicier par les photons d'une scintillation- $\alpha$  (Po<sup>210</sup> incorporé au phosphore) crée sur une capacité de sortie  $C_s \sim 10$  pF une tension  $V(t)$ .

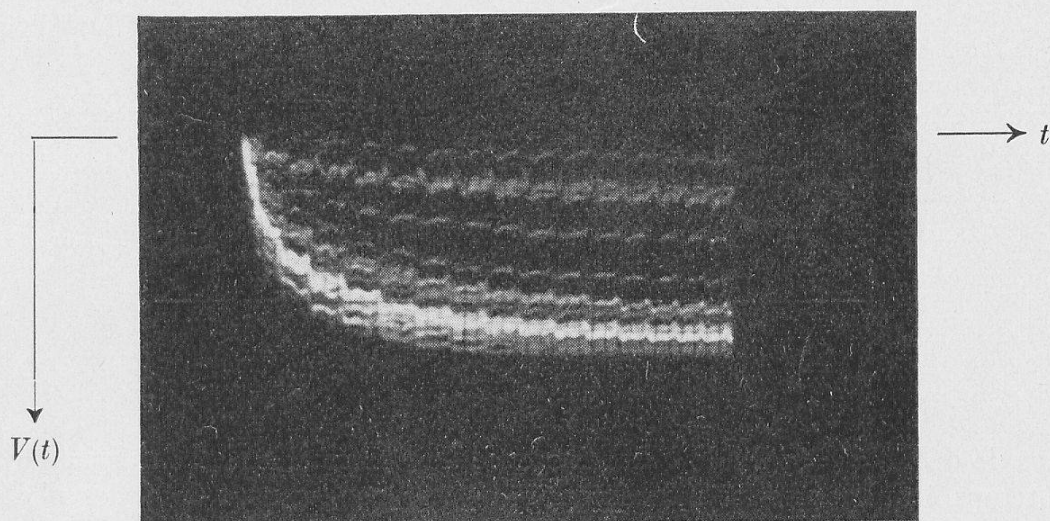


Fig. 1.

Forme d'impulsion de scintillations  $\alpha$  dans le CsI. La distance entre deux marques de temps est de  $10^{-7}$  sec;  $\tau' = 0,34 \mu\text{sec}$ .

La constante de temps  $RC_s$  est choisie de façon que  $C_s$  se décharge de moins de 1% pendant le temps de charge ( $RC_s \gg \tau$ ). L'impulsion de tension  $V(t)$  est alors proportionnelle à  $Q = \int_0^t i dt$  (pour une décroissance exponentielle  $V(t) \sim [1 - \exp(-t/\tau)]$ ) et est une mesure du nombre de photons émis. Ces impulsions attaquent à travers un étage cathodique (cathode follower) l'amplificateur à large bande (rise-time  $3 \cdot 10^{-8}$  sec) de l'oscillographe et sont photographiées sur l'écran. Des scintillations d'anthracène produisent avec ce dispositif sur l'écran de l'oscillographe des impulsions de rise-time  $\tau'$  inférieur

à  $5 \cdot 10^{-8}$  sec. Le plus court rise-time des impulsions de CsI est de  $10^{-7}$  sec. L'échelle des temps est fournie par le «sweep calibrator» incorporé à l'oscillographe. La figure 1 reproduit une forme d'impulsion de CsI. La distance entre deux marques de temps est de  $10^{-7}$  sec ( $\tau' = 0,34 \mu$  sec).

Dans le domaine de températures compris entre  $77$  et  $135^\circ$  K, les impulsions ont un comportement de la forme  $(1 - \exp(-t/\tau))$ ; les scintillations ont un déclin exponentiel et correspondent au mécanisme monomoléculaire discuté par BONANOMI et ROSSEL<sup>1</sup>). Pour les températures de  $135$  à  $200^\circ$  K des déviations de la forme indiquée apparaissent. La décroissance correspond mieux à une somme de deux exponentielles ou à une courbe hyperbolique. Cette observation semble confirmer dans le cas de CsI celle déjà faite<sup>1</sup>) pour

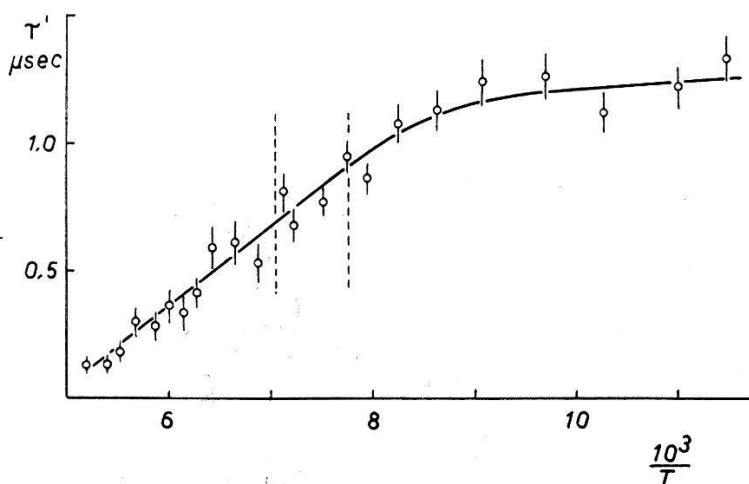


Fig. 2.

Temps de déclin  $\tau' = f(T)$  de la luminescence du CsI pour les particules  $\alpha$  du Po.  $\tau'$  = temps écoulé entre les moments où 10%, respectivement 90% des photons ont été émis (rise-time de l'impulsion de tension).

NaI à savoir qu'aux hautes températures ( $> 170^\circ$  K), lorsque  $\tau$  devient très faible de l'ordre de  $10^{-7}$  sec, le début du processus luminescent, qui est conditionné par la capture du couple électron excité-trou positif par le centre luminescent, se manifeste par une loi non-exponentielle. Aux températures plus basses ( $\tau$  plus long) la majeure partie du déclin est gouvernée par la déexcitation du centre luminescent et correspond donc à une loi exponentielle.

Dans la figure 2 sont reportées les valeurs mesurées de  $\tau'$  en fonction de  $1/T$ . Les intervalles d'erreur indiqués correspondent à la dispersion des valeurs pour une analyse répétée des courbes photographiées. Le domaine pointillé représente la transition du déclin simplement exponentiel au déclin de caractère plus complexe. A droite s'étend le domaine à comportement exponentiel.



Pour raison d'intensité (voir § 4) il est nécessaire avec un compteur à scintillations à CsI de travailler à des températures inférieures à  $100^{\circ}\text{K}$ ; dans ces conditions le temps de déclin  $\tau$  des scintillations est pratiquement constant et égal environ à  $0,5 \mu\text{sec}$ .

#### 4. Emission lumineuse relative.

La valeur maxima de la tension sur la capacité de sortie  $C_s$  du photomultiplicier est une mesure approximative du nombre total  $L$  de photons émis pendant la scintillation (pour un rendement lumineux de 100%,  $4800 \text{ \AA}$  et  $5,3 \text{ MeV}$ ,  $L = 2 \cdot 10^6$  photons). Cette amplitude de tension n'est pas chaque fois identique, même si toutes les scintillations sont d'intensité égale, par suite des modifications, de cas en cas, de la géométrie conditionnant la collection des photons et à cause des fluctuations statistiques du processus de

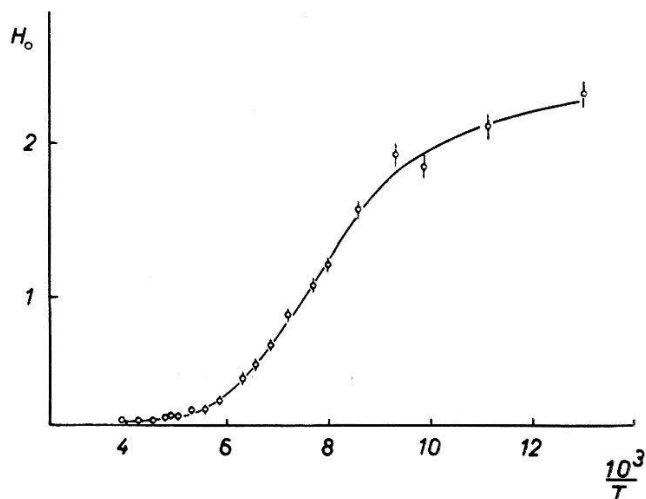


Fig. 3.

Hauteur  $H_0$  des impulsions de scintillations  $\alpha$  dans le CsI (Po ingéré) en fonction de la température.

multiplication du tube (§ 6). Une mesure satisfaisante pour  $L$  sera fournie par la position  $H_0$  du maximum du spectre d'impulsions qui correspond dans notre cas aux particules  $\alpha$  de  $5,3 \text{ MeV}$  du Po. Les positions des maxima ont été déterminées en fonction de la température du cristal au moyen d'un spectrographe d'impulsions à un canal.

Cet analyseur d'impulsions se compose d'un amplificateur à contre-réaction, d'un oscilloscope et d'une fente avec cellule photoélectrique servant à explorer l'écran. Les impulsions fournies par le multiplicateur et amplifiées sont appliquées directement sur les pla-

ques de déflexion horizontales — direction  $x$ . D'autre part, les mêmes impulsions «différentiées» par un couplage  $RC$  sont appliquées à l'amplificateur vertical — direction  $y$  — de l'oscillographe (Cossor type 1035). De cette façon chaque impulsion fait apparaître sur l'écran une boucle qui coupe l'axe  $x$  à angle droit en un point correspondant à l'amplitude maxima. La fente de 3 mm de hauteur et de 3 mm de largeur est déplacée horizontalement par une vis micrométrique jusqu'à l'abscisse choisie. De plus par un réglage convenable de l'intensité du spot on évite que les boucles dues aux grandes impulsions soient visibles dans le domaine des petites impulsions. La cellule photo-électrique (Photomultiplicateur RCA 931 A) compte toutes les impulsions qui apparaissent dans la fente (canal).

Par suite du halo du spot, la largeur effective du canal est légèrement supérieure à 3 mm, mais elle ne varie sur tout l'écran que de quelques pourcents au plus. Au total une fente de 3 mm définit 30 canaux contigus et sans recouvrement.

La figure 3 donne la variation de la hauteur d'impulsion  $H_0$  (rendement luminescent relatif) des particules  $\alpha$  de Po dans CsI (Po incorporé) avec la température. Le rendement de la composante «froide» croît avec la température jusqu'à 77° K (azote liquide) sans atteindre encore complètement la saturation.

### 5. Rendement luminescent absolu.

Par rendement luminescent absolu  $e_l$  on entend la fraction d'énergie de la particule incidente qui est effectivement transformée en lumière dans le cristal.

Pour nous faire une idée de la grandeur de ce rendement pour des scintillations  $\alpha$  dans CsI à 77° K, les hauteurs d'impulsions dans les poudres de CsI et ZnS (Ag)\*) excitées par les  $\alpha$  du Po et dans un cristal d'anthracène excité par la radiation  $\gamma$  de Cs<sup>137</sup> ont été comparées entre elles.

La courbe de sensibilité spectrale de la photo-cathode du tube 5819 recouvre à mi-hauteur un domaine compris entre 3500 et 5800 Å, la sensibilité maxima se trouvant à 4800 Å. La bande d'émission de CsI à 77° K s'étend de 4200 à 5700 Å\*\*), celle de ZnS(Ag) de 4000 à 5000 Å avec une pointe à 4550 Å<sup>2</sup>). L'anthracène présente par excitation  $\gamma$  une émission maxima vers 4400 Å<sup>3</sup>). Il en résulte que le domaine de sensibilité de la photocathode recouvre les do-

\*) ZnS(Ag) 256 X de Derby & Co. Ltd., London.

\*\*) Mesure non publiée de BONANOMI et ROSSEL.

maines d'émission des trois substances ce qui justifie une comparaison de leurs rendements lumineux expérimentaux.

D'après KALLMANN, le rendement lumineux pour des particules  $\alpha$  dans ZnS(Ag)<sup>4</sup> est de 28%; dans l'antracène<sup>5</sup>) par excitation  $\gamma$  il est de 10%. La comparaison directe que nous avons faite des spectres d'impulsions des scintillations de Po- $\alpha$  dans les poudres de CsI et de ZnS(Ag), en ayant pris soin de choisir les mêmes grosseurs de grains et la même géométrie, donne les résultats représentés figure 4. De plus nous indiquons la hauteur d'impulsion maxima

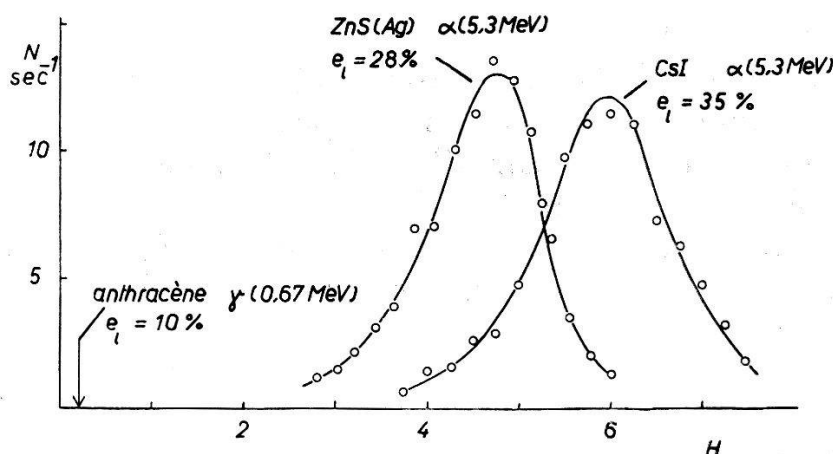


Fig. 4.

Comparaison des hauteurs d'impulsions des poudres de CsI (77° K) et de ZnS(Ag) avec excitation par les particules  $\alpha$  du Po.

obtenue pour les scintillations des  $\gamma$  de Cs<sup>137</sup> dans un cristal d'antracène. A partir de ces mesures on obtient pour rendement lumineux absolu  $e_l$  de CsI, par comparaison avec les données de KALLMANN soit pour ZnS(Ag) soit pour l'antracène, chaque fois la valeur de 35%.

## 6. Mesure d'énergie.

Si dans un spectromètre à scintillations des particules mono-énergétiques produisaient des scintillations toutes égales et si la lumière était collectée à 100%, le pouvoir séparateur serait défini essentiellement par le nombre  $n$  des photoélectrons libérés sur la photocathode. Les fluctuations statistiques du gain du multiplicateur produisent un élargissement supplémentaire atteignant 50 à 100% de la largeur de la distribution initiale.

La déviation standard relative  $\delta^2 = \overline{\Delta z^2} / \bar{z}^2$  d'une distribution d'amplitudes d'impulsions  $H(z)$ , à la sortie d'un multiplicateur est don-



née, dans l'hypothèse d'une distribution de POISSON des photoélectrons, par l'expression suivante :

$$\delta^2 = \frac{1}{n} (1 + \delta_g^2)$$

où  $\delta_g$  représente la déviation standard relative correspondant au processus de multiplication.  $\delta_g^2$  a été déterminé ici à partir de la distribution d'impulsions à un électron et trouvée égale à 1,1 pour le tube 5819 utilisé. Cette distribution s'obtient en éclairant la photocathode avec une source lumineuse faible produisant les photoélectrons un par un.

$\delta$  est une mesure de la largeur *minima* pour une raie produite par des particules monocinétiques dans le spectromètre à scintillations. Pour calculer  $\delta$  il est nécessaire d'exprimer les hauteurs d'impulsions par le nombre correspondant  $n$  des photoélectrons produits sur la photocathode. Dans ce but nous avons déterminé, au moyen de la distribution d'amplitudes à un électron la hauteur d'impulsion moyenne due à un seul électron.

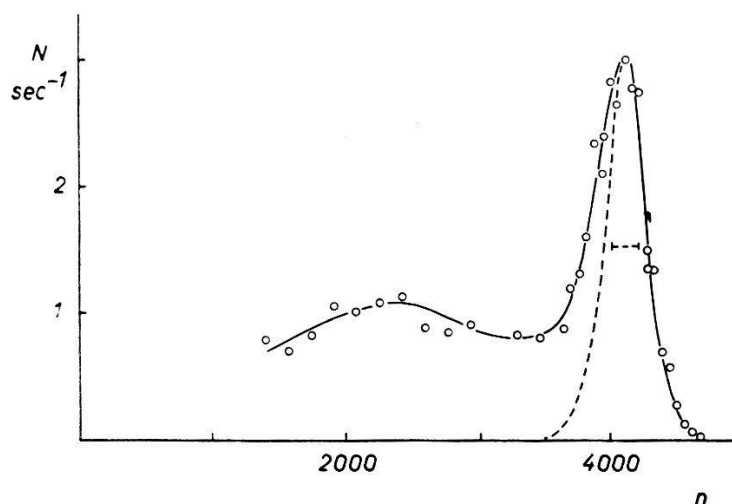


Fig. 5.

Spectre d'impulsions des scintillations  $\alpha$  dans le CsI avec Po ingéré.

Les figures 5 et 6 présentent les spectres d'impulsions produits par les particules  $\alpha$  du Po à l'intérieur, respectivement à la surface de monocristaux de CsI. Les abscisses, étalonnées en unité de hauteur moyenne d'impulsion à un électron, donnent le nombre  $n$  de photoélectrons par scintillation. La pente du flanc droit de la courbe de la figure 5 correspond à une largeur de raie de 8% à mi-hauteur\*). La largeur à mi-hauteur pour la fig. 6 est égale à

\*) Le premier maximum dans la figure 5 est vraisemblablement dû à l'influence de la substance radioactive incorporée sur les centres luminescents.

5%. La largeur à mi-hauteur de distribution minima, calculé dans l'hypothèse d'une distribution de GAUSS et à l'aide de la formule précédente, est indiquée en pointillés.

### 7. Discussion.

Les poudres de ZnS(Ag) et ZnS(Cu) sont considérées comme des substances luminescentes appropriées à la détection des particules  $\alpha$ . Leurs principaux désavantages, à savoir leur opacité et leur temps de déclin relativement élevé ( $10^{-5}$  sec), les rendent cependant impropres à un emploi dans un spectromètre à scintillations. Beaucoup plus adéquats sont d'une part NaI(Tl) où JOHANSSON<sup>6</sup>) a trouvé des largeurs de raies  $\alpha$  de 10% (Po incorporé) et d'autre part le cristal de CsI ici étudié, avec l'avantage sur NaI de surfaces cristallines propres et durables et d'un pouvoir de résolution en énergie plus élevé. Les scintillations  $\alpha$  de CsI possèdent un rendement lumineux égal ou supérieur à ZnS(Ag) et de plus leur temps de déclin est environ 20 fois plus faible. Par suite de leur homogénéité (en particulier dans la distribution des centres luminescents, ce qui est difficilement le cas avec les substances à activateur) et de leur transparence, de tels cristaux peuvent être utilisés pour des mesures d'énergie.

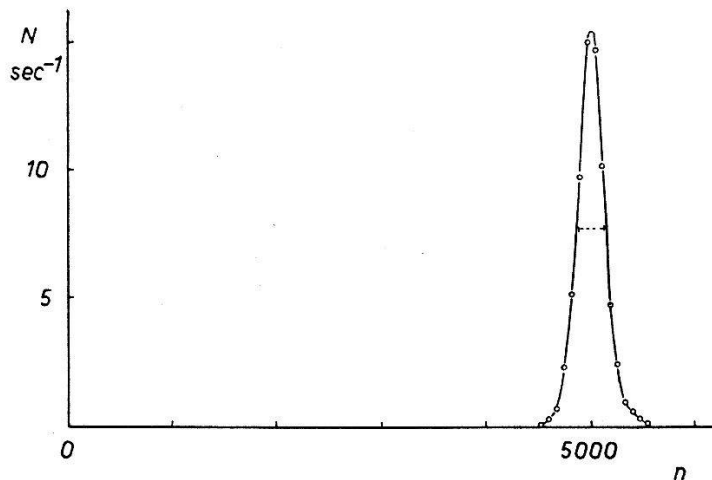


Fig. 6.

Spectre d'impulsions des scintillations  $\alpha$  dans le CsI (77° K) avec Po en surface. |---| Largeur à mi-hauteur calculée. Hauteur des impulsions exprimée par  $n$ ;  $n$  = nombre de photo-électrons libérés sur la photocathode du tube multiplicateur.

Le fait qu'il est nécessaire de travailler à la température de l'air ou de l'azote liquides complique quelque peu la technique de mesure. Le problème du contact optique du cristal avec la photocathode n'est pas encore définitivement résolu à cette température.

D'autre part, nous avons observé que les photomultipliers RCA Type 5819 actuels perdent presque complètement leur sensibilité

photoélectrique au-dessous de  $100^{\circ}$  K environ, constatation qui nous a été confirmée par RCA<sup>7</sup>).

Nous remercions sincèrement Monsieur J. BONANOMI pour les discussions utiles dont il nous a fait bénéficier et la Commission suisse de l'Energie atomique pour le financement de ce travail.

Institut de Physique de l'Université, Neuchâtel.

### Bibliographie.

- 1) J. BONANOMI et J. ROSSEL, *Helv. Phys. Acta* **25**, 725 (1952).
  - 2) MOTT et GURNEY, *Electronic Processes in Ionic Crystals*.
  - 3) G. A. MORTON, *The Scintillation Counter, Advances in Electronics, Vol. IV*.
  - 4) H. KALLMANN, *Phys. Rev.* **75**, 623 (1949).
  - 5) M. FURST, H. KALLMANN, B. KRAMER, *Phys. Rev.* **89**, 416 (1953).
  - 6) S.A.E. JOHANSSON, *Arkiv För Fysik* **2**, 171 (1950).
  - 7) Communication privée de G. A. MORTON.
-