

# Chapitre 10: DéTECTEURS basés sur la scintillation

# Contenu

- Introduction
- Scintillateurs organiques
- Scintillateurs inorganiques
- Photomultiplicateur
- Spectrométrie  $\gamma$  avec un NaI(Tl)

# Introduction

- Quand un rayonnement ionisant interagit avec la matière → excitation ou ionisation d'un grand nombre de molécules
- Quand ces molécules retournent à leur état fondamental → création possible d'un centre de luminescence (point d'émission de lumière lors d'une recombinaison  $e^-h^+$ ) → émission possible de photons dans le domaine du visible ou proche de celui-ci (UV) → radioluminescence, luminescence ou scintillation
- Le nombre de photons émis  $N_{h\nu} \propto E_{abs}$  dans le matériau
- Un de détecteur les plus répandus pour la détection des particule est basé sur ce principe → détecteur à scintillation ou photoscintillateur
- La lumière émise est convertie en impulsion électrique par un photomultiplicateur (PM) ou une photodiode

# Luminescence

3 types de luminescence:

1. Fluorescence: la durée de vie du centre de luminescence est très courte → l'émission de lumière a lieu « immédiatement » après l'absorption ( $t < 10^{-8}$  s, c.à.d. le temps de transition atomique)
2. Phosphorescence: l'émission de lumière est retardée ↔ état excité métastable ( $t$  entre absorption et émission: qqes  $\mu s$  → qqes jours, mois)
3. Fluorescence retardée: un centre de phosphorescence est transformé en centre de fluorescence suite à un stimulus extérieur → fluorescence « normale » après un temps plus élevé

## Propriétés d'un « bon » scintillateur

- La conversion de l'énergie cinétique du rayonnement ionisant en photons détectables doit avoir une efficacité élevée
- Le nombre de photons émis doit être  $\propto$  à l'énergie déposée par le rayonnement ionisant dans le milieu
- Le matériaux doit être transparent à la longueur d'onde de sa propre lumière de scintillation
- Le temps de vie du centre de luminescence doit être nul ou au moins extrêmement faible
- L'impulsion de lumière doit être aussi courte que possible
- L'indice de réfraction du matériau doit être proche de celui du verre ( $n \approx 1.5$ ) pour éviter une réflexion totale à l'interface entre le scintillateur et le photomultiplicateur dont l'enveloppe est en verre
- Le matériau doit être chimiquement et mécaniquement stable, facile à produire et peu cher

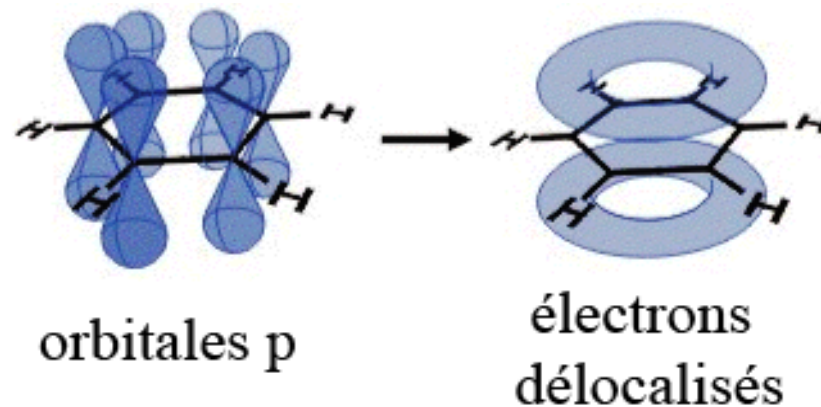
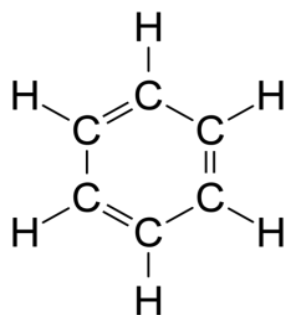
# Types de scintillateurs

- Aucun matériau ne cumule toutes ces propriétés → pour une application donnée → compromis entre les propriétés de luminescence et celles requises par l'application
- De plus les dimensions du scintillateur dépend du type de rayonnement (dimensions plus grandes pour des  $\gamma$ )
- Deux grandes « familles » de scintillateurs →
  1. Les scintillateurs organiques (cristal, liquide, plastique, gaz) composés principalement de H, C et d'O → fluorescence d'origine moléculaire
  2. Les scintillateurs inorganiques (cristal, verre, gaz) → fluorescence d'origine cristalline
- Un troisième type existe (plus rarement utilisé) → les gaz rares → fluorescence d'origine atomique

# Scintillateur organique: Exemple du benzène (1)

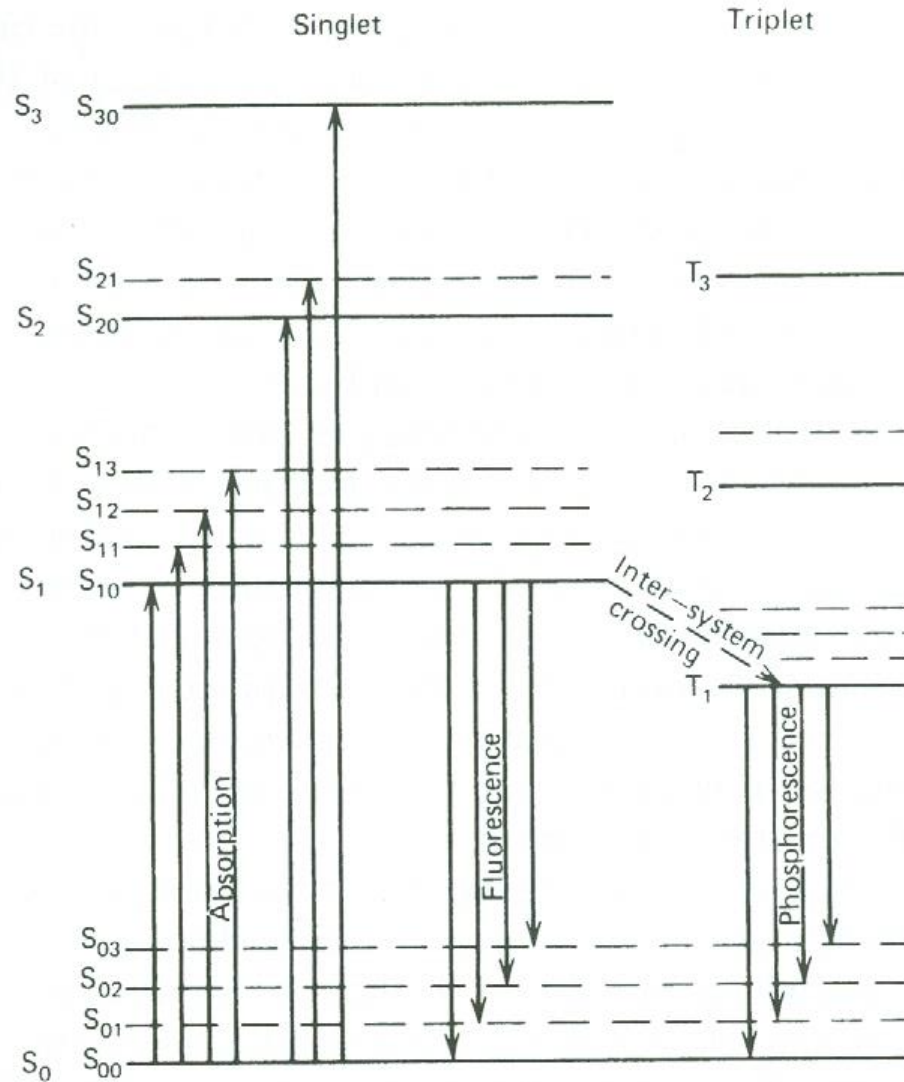
- La plupart des scintillateurs organiques sont constitués de molécules pourvues d' $e^-$  délocalisés  $\rightarrow$  exemple du benzène ( $C_6H_6$ ) qui est une molécule de forme hexagonale
- Les  $e^- \sigma$  sont sur des orbitales localisées et assurent la liaison entre les atomes de C et de H
- Les 6  $e^- \pi$  sont délocalisés sur des orbitales situées de part et d'autre du plan de la molécule  $\rightarrow$  ils peuvent avoir un spin = 0 (singulet: S) ou un spin = 1 (triplet: T)  $\rightarrow$  on notera leur état électronique par un premier indice et leur état de vibration par un second indice
- La différence d'énergie entre les états électroniques  $S_0$  et  $S_1$  est  $\approx 3-4$  eV
- La différence d'énergie entre les états vibrationnels vaut  $\approx 0.15$  eV
- À température ambiante  $\rightarrow$  on ignore les états rotationnels car leur séparation en énergie est très faible.
- À température ambiante  $\rightarrow$  tous les  $e^-$  sont dans leur état fondamental  $S_{00}$  (les différences d'énergie sont beaucoup plus grandes que 0.025 eV)

# Scintillateur organique: Exemple du benzène (2)





# Niveaux énergétique du benzène



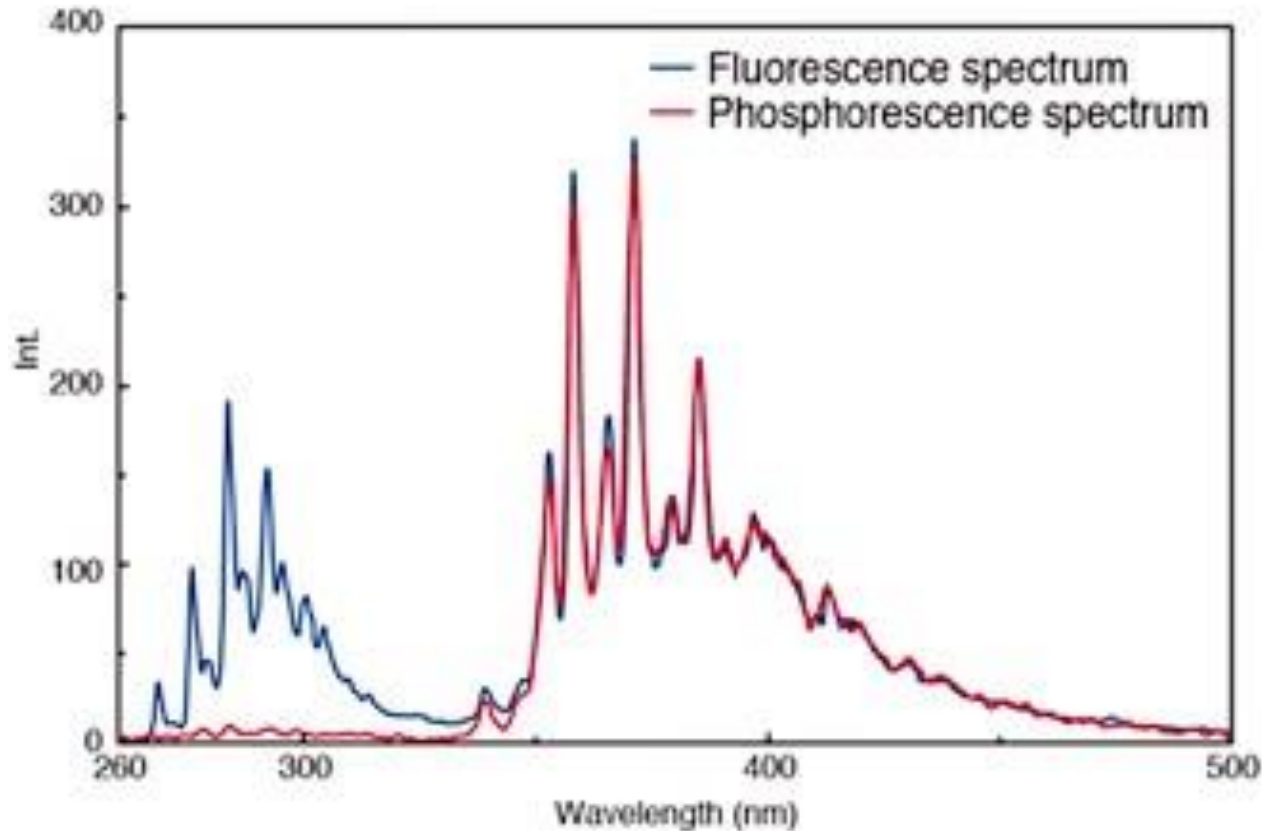
# Mécanismes de scintillation: Fluorescence

1. Une particule ionisante traverse le scintillateur et produit des ionisations et des excitations → les excitations des  $e^-$  dans les états singulets sont à l'origine de la fluorescence tandis que les ionisations ne donnent pas lieu à une émission lumineuse → peuvent être responsable d'effets non linéaires
2. Après absorption d'énergie → molécule dans un état électronique excité
3. Très rapidement ( $\approx$  ps) les états électroniques les plus élevés se désexcitent sans émission de photon (« radiationless internal conversion ») → molécule dans l'état  $S_1$
4. Les transitions entre états vibrationnels d'une même bande sont non radiatives → dissipation d'énergie sous forme de chaleur → la molécule atteint l'équilibre thermique → état  $S_{10}$  (après un temps  $\approx$  ps)
5. Ensuite désexcitation (transition dipolaire électrique) vers un état  $S_{0i}$  avec émission de photon (en  $t \approx$  ns) → fluorescence
6. Finalement transition non radiative →  $S_{00}$

# Mécanismes de scintillation: Phosphorescence

- Pour les états triplets  $\rightarrow$  même processus  $\rightarrow$  des molécules se trouvent finalement dans l'état triplet  $T_1$  (soit directement lors de l'absorption de l'énergie soit indirectement à partir de l'état  $S_1$  (« inter-system crossing »))
- Les transitions de  $T_1$  à  $S_0$  sont fortement interdites par les règles de sélection des transitions multipolaires (différence de spin) mais possibles
- La durée de vie de l'état  $T_1$  est donc longue ( $\approx 1$  ms dans ce cas  $\rightarrow$  elle peut être plus longue encore)  $\rightarrow$  émission différée de photons  $\rightarrow$  phosphorescence
- Les niveaux d'énergie  $T <$  aux niveaux  $S \rightarrow$  longueur d'onde de phosphorescence  $>$  longueur d'onde de fluorescence

# Spectres de fluorescence et de phosphorescence



Spectre de luminescence du benzène (excitation à 255 nm à 77 K)  
→ bleu: émission normale ↔ rouge: spectre de phosphorescence mesuré avec un délai de 5 ms

# Mécanismes de scintillation: Fluorescence retardée

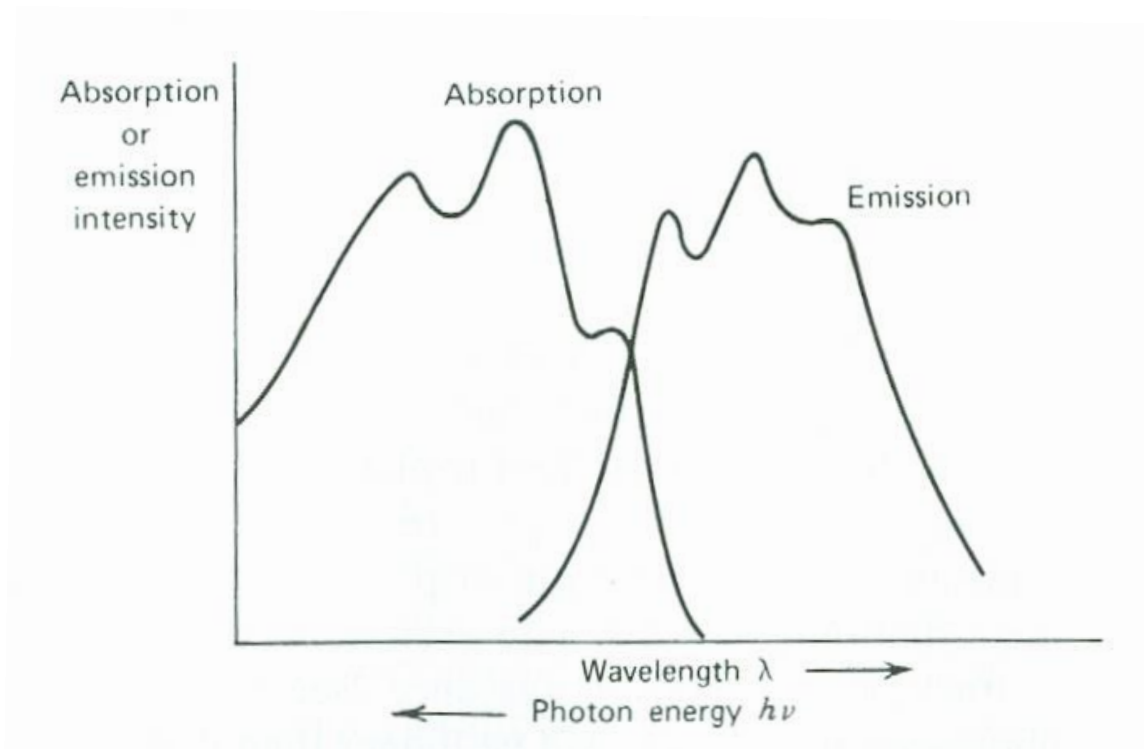
- Dans l'état métastable  $T_{10}$  → les molécules peuvent être excitées vers l'état  $S_{10}$  par un stimulus extérieur contrôlé → fluorescence retardée
- Stimulation thermique → application: dosimètres thermoluminescents (TLD)
- Stimulation optique (UV, visible, IR) → application: dosimètres à luminescence stimulée optiquement (OSL)

# Propriétés des scintillateurs organiques

- Spectres d'absorption et d'émission
- Réponse lumineuse
- Réponse temporelle
- Types de scintillateurs
- Applications des scintillateurs organiques

# Spectres d'absorption et d'émission

- L'énergie de la transition  $S_{10} \rightarrow S_{0i}$  est plus faible que l'énergie de la transition  $S_{00} \rightarrow S_{1i}$  → pas (ou peu) de superposition des spectres d'émission et d'absorption (décalage de Stokes)
- Un scintillateur organique est donc quasi transparent à sa propre lumière de luminescence



# Réponse lumineuse d'un scintillateur organique (1)

- Seule une petite fraction de l'énergie cinétique perdue par le rayonnement incident dans le scintillateur est convertie en énergie de fluorescence (càd en photons) → le reste est dissipé de manière non-radiative → principalement en chaleur (vibrations du réseau)
- On appelle la réponse lumineuse du scintillateur,  $L$ , cette énergie émise par fluorescence →

$$L = E_{h\nu} = \langle N_{h\nu} \rangle \langle h\nu \rangle$$

avec  $\langle N_{h\nu} \rangle$  le nombre moyen de photons émis et  $\langle h\nu \rangle$  leur  $E$  moyenne

- On définit l'efficacité intrinsèque du scintillateur comme la fraction de l'énergie perdue par la particule ionisante ( $E_{abs}$ ) qui est convertie en énergie lumineuse →

$$S = \frac{L}{E_{abs}}$$



## Réponse lumineuse d'un scintillateur organique (2)

- Généralement  $\rightarrow S$  est faible ( $\approx 1-2\%$ )
- On a donc l'énergie moyenne  $W$  perdue par la particule pour chaque photon émis  $\rightarrow$

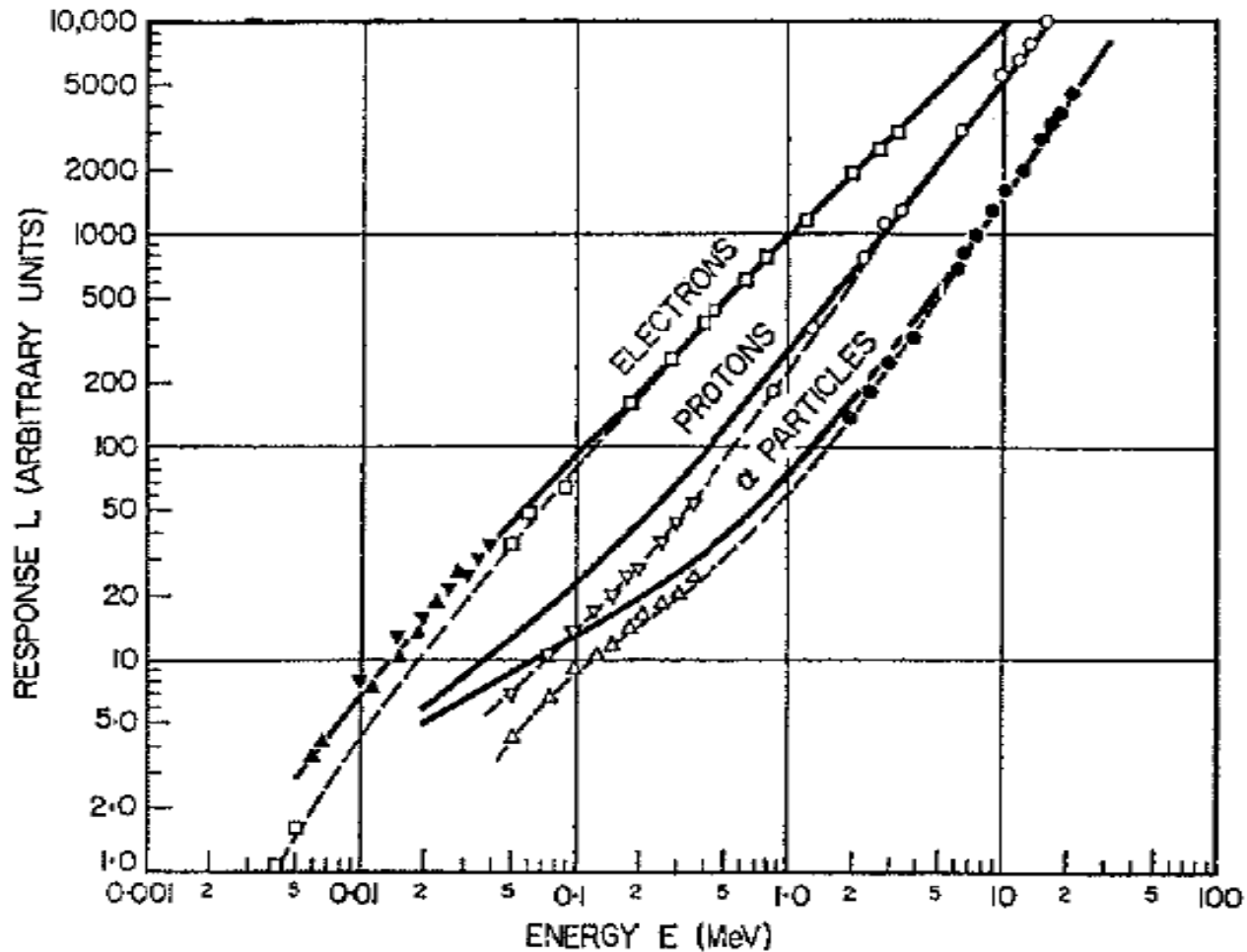
$$W = \frac{E_{abs}}{\langle N_{h\nu} \rangle} = \frac{\langle h\nu \rangle}{S}$$

- Avec  $\langle h\nu \rangle \approx 2-3 \text{ eV} \rightarrow W \approx 100 \text{ eV}$
- $S$  et  $W$  dépendent fortement du type de rayonnement incident et parfois de son énergie

## Réponse lumineuse d'un scintillateur organique (3)

- On a donc  $\rightarrow L = SE_{abs}$
- Pour les particules à faible densité d'ionisation (électrons avec  $E$  « pas trop faible » ( $E > 125$  keV) qui peuvent être des  $e^-$  directs ou des  $e^-$  produits par des  $\gamma$ )  $\rightarrow$  la distance entre 2 collisions successives est grande comparée à la distance entre 2 molécules voisines  $\rightarrow$  l'interaction entre deux sites luminescents est donc faible et la réponse est linéaire  $\rightarrow S$  est indépendant de  $E_{abs}$
- Les particules lourdes (proton,  $\alpha$ ,...) ont une densité d'ionisation et d'excitation plus élevée  $\rightarrow$  les sites sont plus proches et peuvent interagir  $\rightarrow \searrow$  de l'émission lumineuse  $\rightarrow S$  est dépendant de  $E_{abs}$   $\rightarrow$  non-linéarité (de plus  $\rightarrow$  si densité d'ionisation  $\nearrow$  encore  $\rightarrow$  limite de la densité de centre de luminescence atteinte  $\rightarrow \searrow$  supplémentaire de la réponse)

# Réponse lumineuse d'un scintillateur organique (4)



Réponse  $L$  pour de l'antracène ( $C_{14}H_{10}$ )

# Réponse lumineuse différentielle d'un scintillateur (1)

- On définit la réponse lumineuse différentielle du scintillateur  $dL/dx$  comme l'énergie fluorescente  $dL$  émise par unité de distance parcourue par la particule ionisante
- On peut donc écrire  $\rightarrow$

$$\frac{dL}{dx} = S \frac{dE_{abs}}{dx}$$

avec  $dE_{abs}/dx$  le pouvoir d'arrêt

- Pour un pouvoir d'arrêt faible  $\rightarrow$  la densité d'ionisation est faible  $\rightarrow$  S est constant

## Réponse lumineuse différentielle d'un scintillateur (2)

- De manière générale  $\rightarrow$  la réponse lumineuse différentielle suit la loi de Birks
- Supposons que la densité d'ionisation et d'excitation est proportionnelle au pouvoir d'arrêt  $\rightarrow = B dE_{abs}/dx$
- On introduit le paramètre de quenching (ou d' « ionization quenching »)  $k$  qui est le facteur de proportionnalité entre la fraction des centres de luminescence qui « disparaissent » et la densité d'ionisation
- En l'absence de quenching on trouve  $\rightarrow$

$$\frac{dL}{dx} = S_n \frac{dE_{abs}}{dx}$$

avec  $S_n$  l'efficacité normale du scintillateur définie comme indépendante de l'énergie

## Réponse lumineuse différentielle d'un scintillateur (3)

- En considérant la probabilité de quenching → on obtient la formule de Birks →

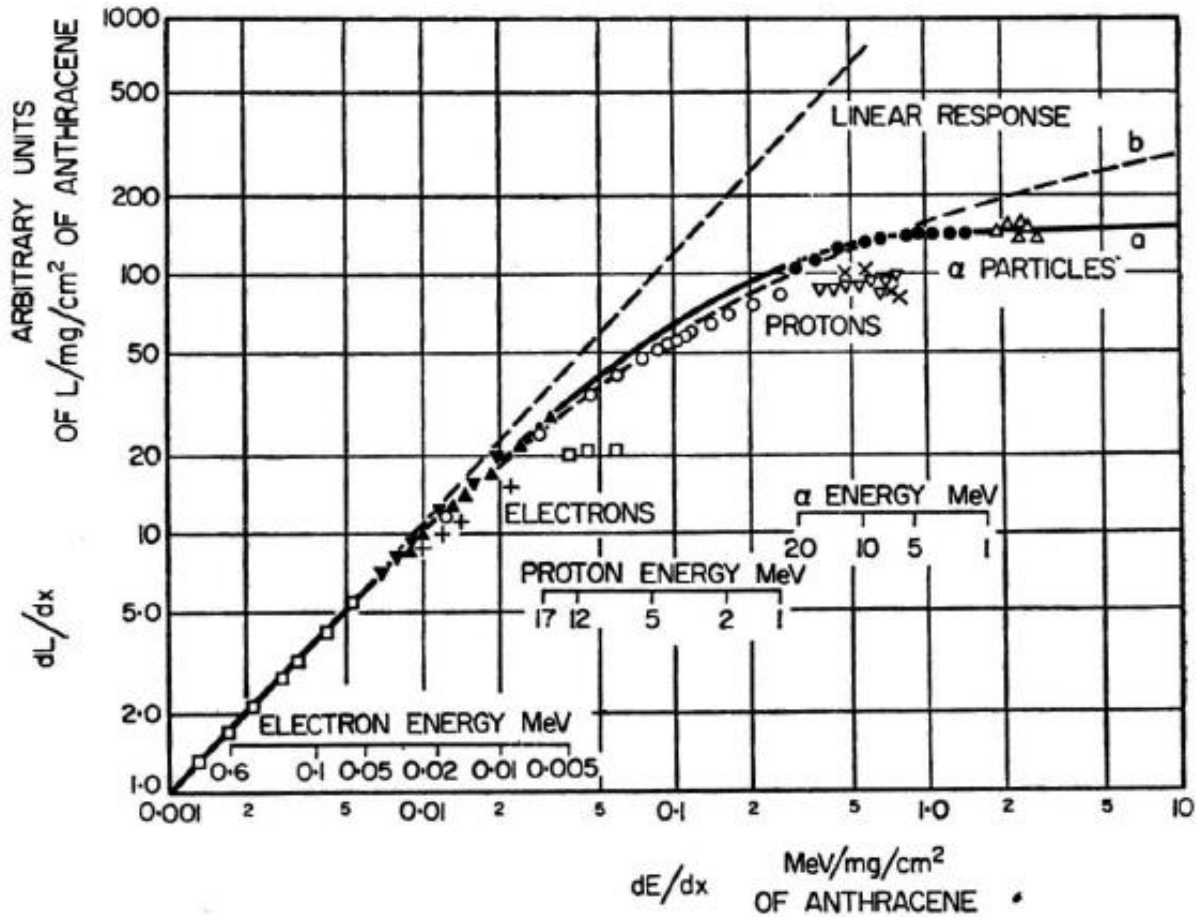
$$\frac{dL}{dx} = \frac{S_n(dE_{abs}/dx)}{1 + kB(dE_{abs}/dx)}$$

- Pour  $dE_{abs}/dx$  petit → on retrouve l'expression pour laquelle le quenching est négligé
- Pour  $dE_{abs}/dx$  grand →

$$\frac{dL}{dx} = \frac{S_n}{kB}$$

- Le paramètre  $kB$  est considéré comme un paramètre ajustable qui permet de faire correspondre la théorie à l'expérience

# Réponse lumineuse différentielle d'un scintillateur (4)



Réponse lumineuse différentielle de l'anthracène

# Réponse temporelle d'un scintillateur organique (1)

- La variation de l'intensité lumineuse en fonction du temps dépend du temps de formation  $\tau_1$  des centres de luminescence et de la durée de vie  $\tau$  de ces centres (expression de Hyman) →

$$I = I_0 \left( e^{-t/\tau} - e^{-t/\tau_1} \right)$$

- Pour les scintillateurs plastiques rapides  $\tau_1 < \tau$  → exemple NE111 (« Nuclear Enterprise Technology ») →  $\tau_1 = 0.2$  ns et  $\tau = 1.7$  ns
- Grand avantage des scintillateurs organiques → réponse extrêmement rapide
- On ignore souvent le temps de formation du centre de luminescence → par contre à T ambiante → on ne peut négliger la fluorescence retardée due à la stimulation thermique



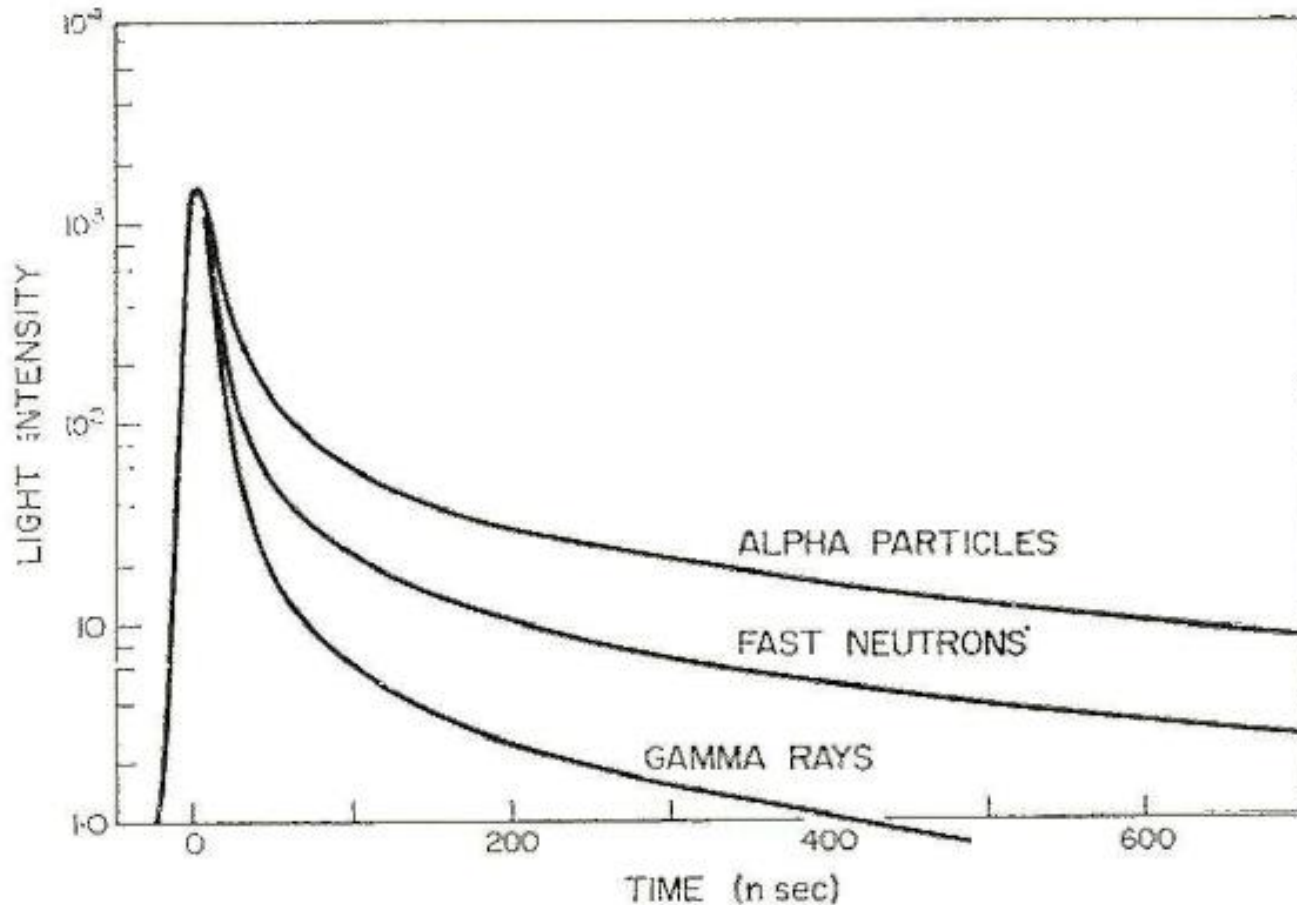
## Réponse temporelle d'un scintillateur organique (2)

- En posant  $\tau_r$ , la durée de vie de centres retardés  $\rightarrow$

$$I = Ae^{-t/\tau} + Be^{-t/\tau_r}$$

- Les 2 termes de cette expression sont appelés les composantes rapide (ou prompte) et lente de la scintillation  $\rightarrow \tau_r > \tau$
- La composante lente implique une plus ou moins longue queue pour la décroissance (exemple  $\rightarrow$  stilbène ( $C_{14}H_{12}$ ) excité par des rayons X:  $\tau = 6.2$  ns et  $\tau_r = 370$  ns)
- $\tau_r$  dépend du type de particule incidente  $\leftrightarrow$  de l'ionization quenching  $\leftrightarrow$  de la densité d'ionisation
- Le processus d'ionization quenching réduit le nombre de centres de luminescence prompte  $\rightarrow \nearrow$  relative de l'importance de la luminescence retardée

## Réponse temporelle d'un scintillateur organique (3)



Réponses temporelles normalisées du stilbène → discrimination possible en fonction de la forme de l'impulsion

# Types de scintillateurs organiques (1)

- 1. Cristal pur** : principalement 2 matériaux → anthracène (la plus grande efficacité de scintillation de tous les scintillateurs organiques) et stilbène (discrimination en fonction de la forme de l'impulsion); les 2 sont fragiles; une grande taille est difficile à obtenir
- 2. Solution organique liquide** : scintillateur organique (ex: PBD) dissous dans un solvant organique (ex: polystyrène) → peuvent avoir un volume très important; les formes sont variées; ils sont résistants aux rayonnements intenses (les solides ont une structure qui peut être endommagée); ils peuvent être mélangés à une solution radioactive (scintillation liquide) → le rayonnement traverse directement le scintillateur → grande efficacité de comptage; présence possible d'oxygène dissous → diminution de l'efficacité du scintillateur; économiques

## Types de scintillateurs organiques (2)

- 3. Scintillateurs plastiques** : scintillateur organique dissous dans un solvant puis polymérisé → équivalent à une solution solide (exemple → styrène ( $C_8H_8$ ) → polystyrène); facilité de fabrication; formes et volumes variés (très grand ou très mince → films minces); économiques → très souvent utilisés
- 4. Scintillateurs organiques « chargés »** : à cause de leur Z faible → virtuellement pas d'effet photoélectrique pour les  $\gamma$  → pas adapté à la spectrométrie des  $\gamma$  → addition de plomb ou d'étain → énorme décroissance de l'efficacité du scintillateur; économiques; rares

# Applications des scintillateurs organiques

1. Ils sont faciles à fabriquer avec des formes et des tailles très variées et peu chers
2. Ils sont rapides → la durée de vie des centres de luminescence est  $\approx$  ns → utilisés pour la mesure de très faibles durées de vie nucléaires
3. Leur réponse aux électrons est approximativement linéaire → sont utilisables pour la spectrométrie  $\beta$
4. Sous forme liquide → sont utilisés pour la mesure de faibles activités (émetteurs  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,...) → rendement de détection proche de l'unité avec la technique de la scintillation liquide
5. La forte proportion d'hydrogène en fait un bon détecteur de neutrons rapides (voir chapitre sur la détection des neutrons)
6. Résolution faible
7. Z petit → pas (ou peu) adaptés à la spectrométrie  $\gamma$

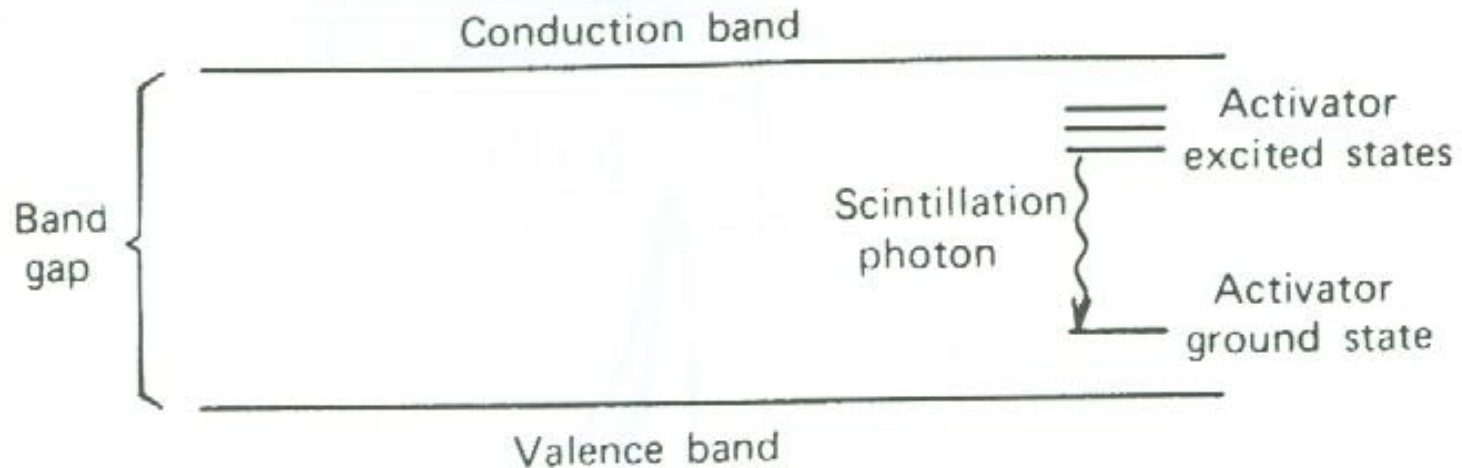
# Scintillateurs inorganiques

- Description des scintillateurs inorganiques
- Propriétés des scintillateurs inorganiques
- NaI(Tl)
- Autres scintillateurs inorganiques

# Description des scintillateurs inorganiques (1)

- Le mécanisme de scintillation dépend de la structure en bande du cristal
- Dans un cristal pur → absorption de l'énergie d'un rayonnement incident → création d'un grand nombre de paires  $e^-h^+$  → les  $e^-$  sont amenés dans la bande de conduction → transition vers la bande de valence accompagnée de l'émission d'un photon → processus inefficace et généralement énergie du photon trop élevée → pas dans le domaine du visible
- Solution → ajout d'impuretés (activateurs)

## Description des scintillateurs inorganiques (2)



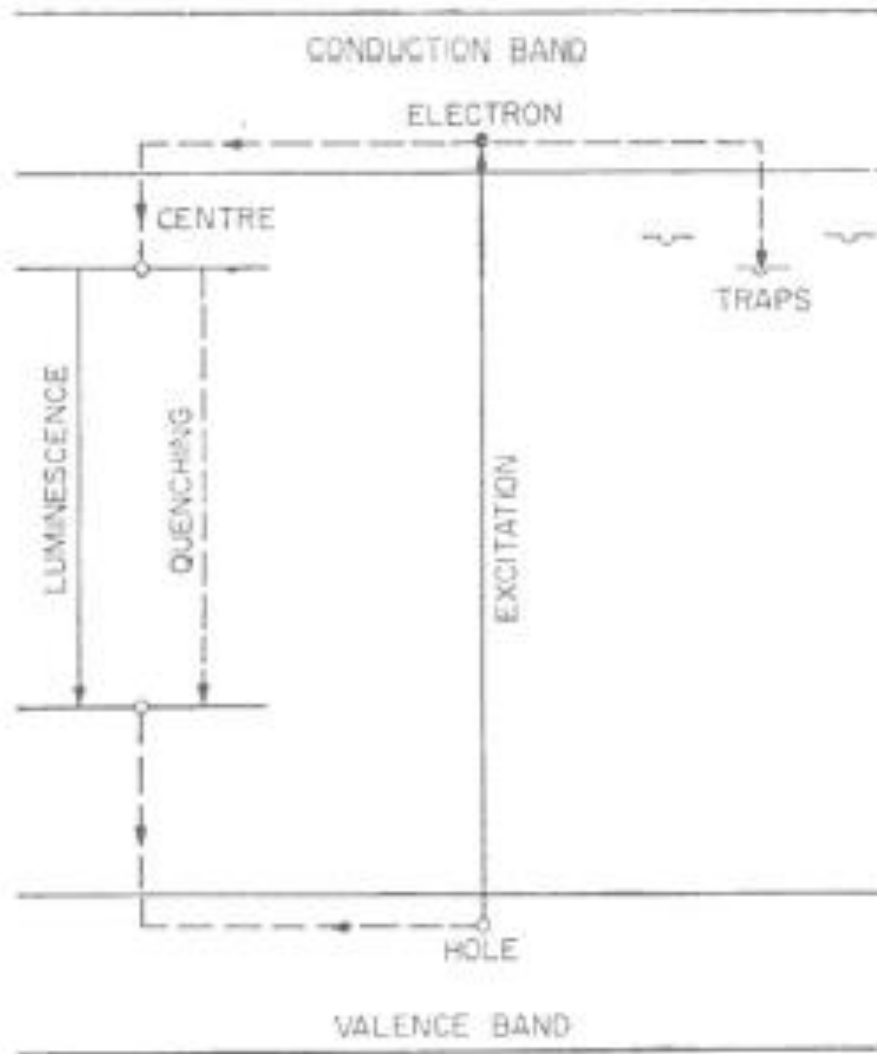
- Addition d'impuretés → création de sites spécifiques dans le réseau → structure en bande d'énergie modifiée → états d'énergie à l'intérieur de la bande interdite → les  $e^-$  se désexcitent via ces sites appelés centres de luminescence ou centres de recombinaison
- Les photons émis possèdent une énergie plus faible → visible
- L'efficacité du détecteur est ↗



# Mécanismes de scintillation (1)

- Après l'excitation → le  $h^+$  migre vers un site d'activation et se fait piéger → création d'un centre de recombinaison
- Après l'excitation → l' $e^-$  migre et ≠ processus sont possibles →
  1. L' $e^-$  migre vers un centre de luminescence → l' $e^-$  capturé subit une transition avec émission d'un photon
  2. L' $e^-$  migre vers un site d'impureté pour lequel une transition vers l'état fondamental est interdite → piège → si ajout d'énergie (thermique ou optique) → transition vers la bande de conduction et capture par un centre de luminescence → photon après un temps plus élevé (fluorescence retardée)
  3. L' $e^-$  est capturé par un centre de quenching = centre qui se désexcite sans émission de photon → mécanisme de perte pour la conversion d'énergie en lumière de scintillation
  4. Migration conjointe du  $e^-$  et du  $h^+$  → formation d'un état lié (une paire  $e^-h^+$ ) → l'exciton → migration de l'exciton à travers le cristal jusqu'à un centre d'impureté → émission d'un photon

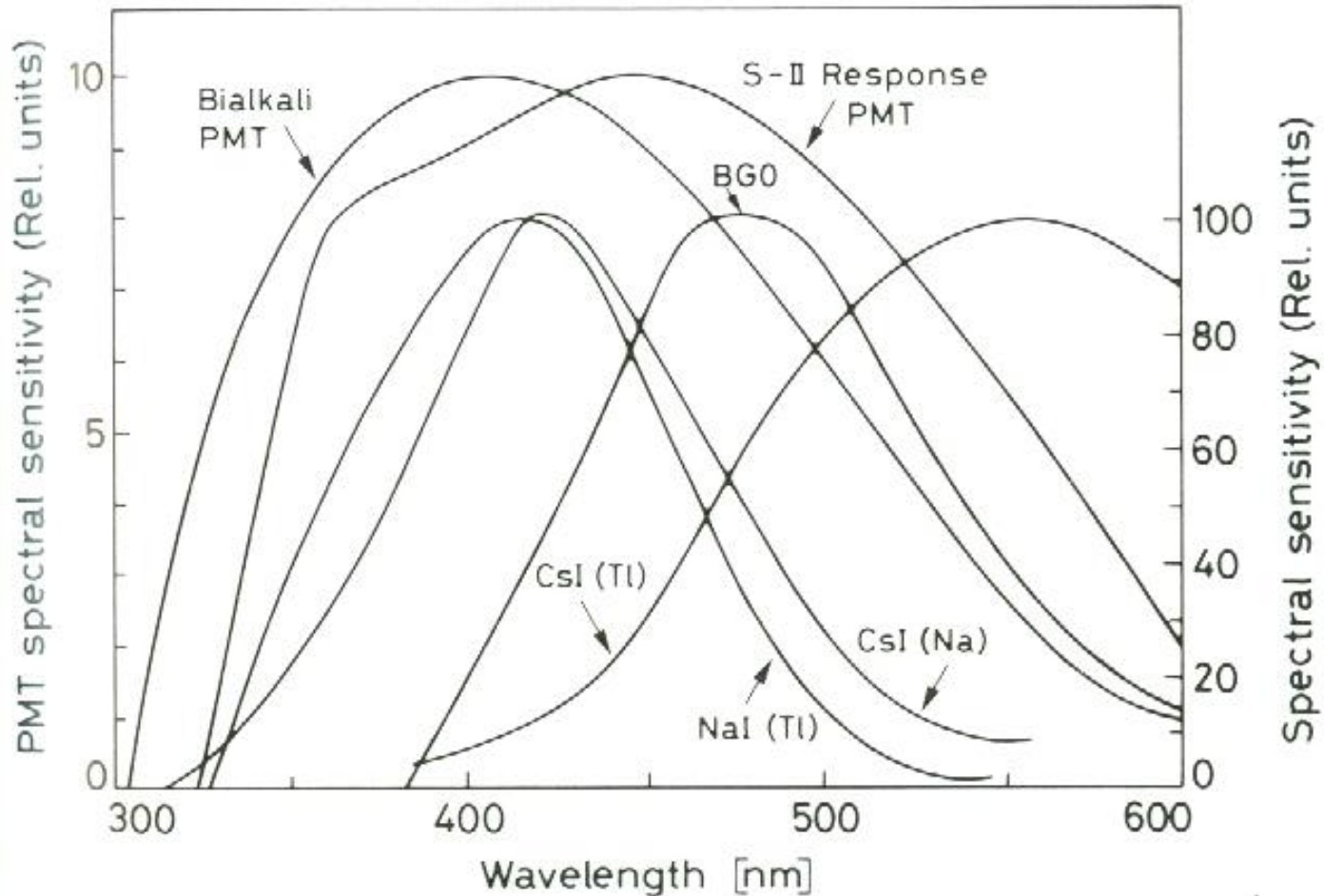
## Mécanismes de scintillation (2)



# Propriétés des scintillateurs inorganiques (1)

- Le temps de vie typique des centres de recombinaison  $\approx 50 - 500$  ns  $\rightarrow$  2 à 3 ordres de grandeur plus lent que les scintillateurs organiques (à qqs exceptions près)  $\rightarrow$  évolution temporelle décrite par 1 ou 2 exponentielles
- Conséquence de la luminescence via les activateurs  $\rightarrow$  énergie libérée durant la luminescence  $<$  énergie nécessaire pour la création d'une paire  $e^-h^+$   $\rightarrow$  pas (ou peu) de superposition des spectres d'émission et d'absorption  $\rightarrow$  scintillateur inorganique transparent à sa propre lumière de luminescence (en l'absence d'impuretés  $\rightarrow$  énergie d'excitation = énergie émise  $\rightarrow$  superposition des 2 spectres  $\rightarrow$  auto-absorption  $\rightarrow$  à éviter)

# Spectres d'émission

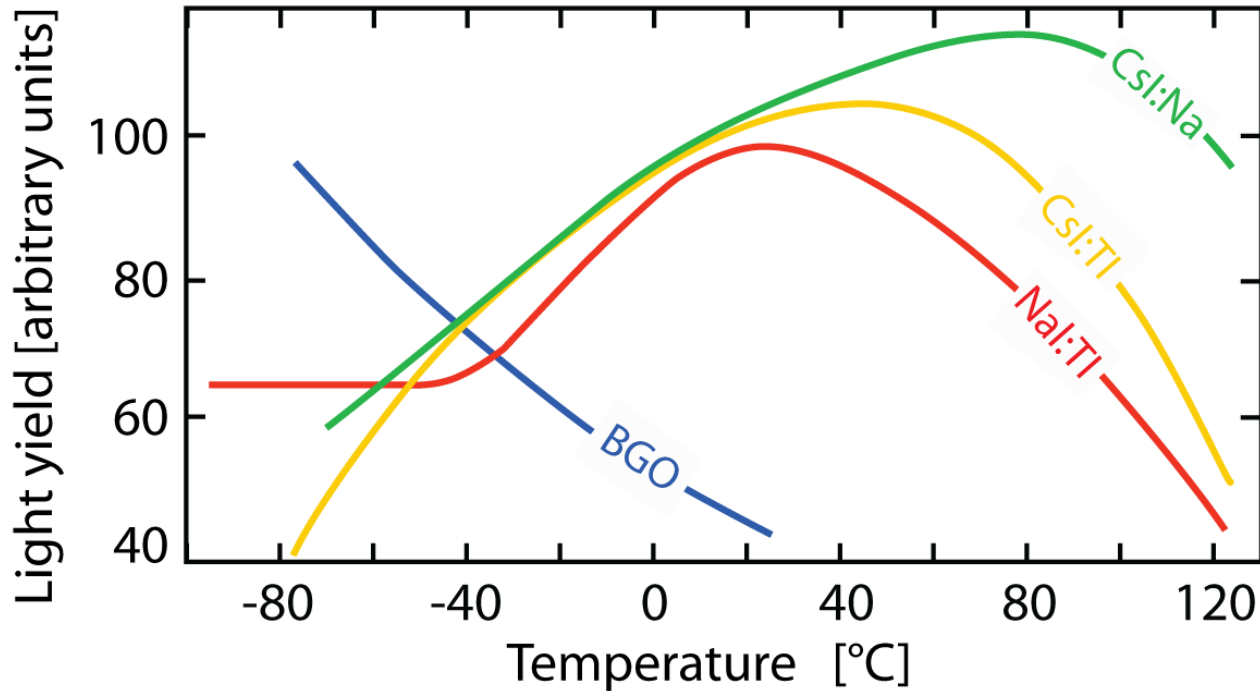


Pour utiliser pleinement la lumière de scintillation → le spectre d'émission doit être proche du maximum de sensibilité du dispositif détecteur de lumière (ex de PMT sur la figure)

## Propriétés des scintillateurs inorganiques (2)

- Densité et  $Z$  élevés  $\rightarrow$  pouvoir d'arrêt élevé
- $Z$  élevé  $\rightarrow$  particulièrement adaptés à la spectrométrie  $\gamma$
- Généralement  $\rightarrow$  efficacité de luminescence élevée
- Désavantage (en général)  $\rightarrow$  hautement hygroscopiques (absorption de l'humidité de l'air)  $\rightarrow$  protection nécessaire
- Les particules à forte densité d'ionisation (proton,  $\alpha$ ,...) présentent une probabilité de quenching plus élevée (comme pour les scintillateurs organiques)  $\rightarrow$  présence de non-linéarités
- Facteur de Fano  $\simeq 1$
- Fortes variations de l'efficacité de luminescence en fonction de la température

## Dépendance en température



- À faible  $T \rightarrow$  les  $e^-$  et/ou les  $h^+$  sont piégés dans des pièges peu profonds
- Quand  $T \nearrow \rightarrow$  les porteurs de charge sont libérés et peuvent atteindre les centres de luminescence
- Quand  $T \nearrow$  encore  $\rightarrow$  quenching thermique  $\rightarrow \nearrow$  des interactions entre molécules et entre sites

# Spectrométrie d'e<sup>-</sup> à l'aide d'un scintillateur

- La fonction de réponse d'un scintillateur (organique ou inorganique) à un faisceau d'e<sup>-</sup> monoénergétique présente un pic d'absorption total (si la taille du détecteur est plus grande que le range des e<sup>-</sup>) + queue aux basses énergies due e<sup>-</sup> aux rétrodiffusés (e<sup>-</sup> qui ressortent du détecteur par la surface d'entrée après avoir perdu une fraction de leur énergie)
- L'effet de rétrodiffusion dépend fortement du Z du matériau → Z ↗ → probabilité de rétrodiffusion ↗
- De plus → Z ↗ → Bremsstrahlung ↗ → énergie qui s'échappe du détecteur
- Pour la spectrométrie des e<sup>-</sup> → on favorise les matériaux à petit Z → scintillateurs organiques (à l'opposé de la spectrométrie  $\gamma$  pour laquelle on favorise les matériaux à grand Z)

# Exemples de fractions de rétrodiffusion

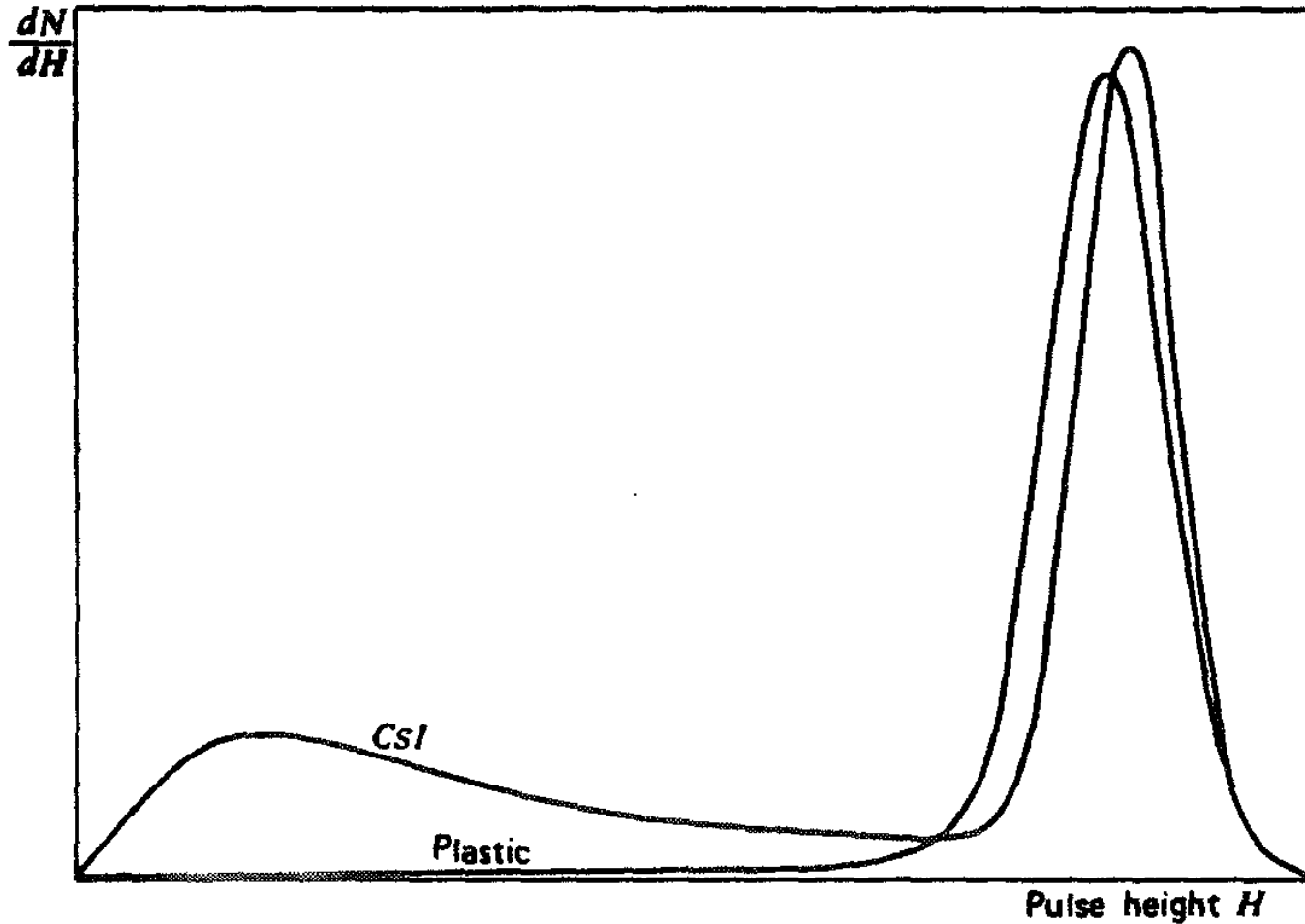
Scintillator	Electron Energy (MeV)				
	0.25	0.50	0.75	1.0	1.25
Plastic	$0.08 \pm 0.02$	$0.053 \pm 0.010$	$0.040 \pm 0.007$	$0.032 \pm 0.003$	$0.030 \pm 0.005$
Anthracene	$0.09 \pm 0.02$	$0.051 \pm 0.010$	$0.038 \pm 0.004$	$0.029 \pm 0.003$	$0.026 \pm 0.004$
NaI(Tl)	$0.450 \pm 0.045$	$0.410 \pm 0.010$	$0.391 \pm 0.014$	$0.375 \pm 0.008$	$0.364 \pm 0.007$
CsI(Tl)	$0.49 \pm 0.06$	$0.455 \pm 0.023$	$0.430 \pm 0.013$	$0.419 \pm 0.018$	$0.404 \pm 0.016$

Fraction d'e<sup>-</sup> rétrodiffusés pour un faisceau d'incidence normale sur le scintillateur



# Spectres d'e<sup>-</sup> à l'aide d'un scintillateur

e<sup>-</sup> d'1 MeV



# Types de scintillateurs inorganiques

On classe grossièrement les scintillateurs inorganiques en trois groupes →

1. Les scintillateurs dopés par des impuretés → halogénures alcalins activés par des métaux lourds (thallium, plomb, indium); les sulfures de zinc activés au cuivre, au manganèse, à l'argent;...
2. Les scintillateurs non dopés mais auto-activés → il y a un constituant en excès comparé au rapport stœchiométrique → les ions en excès se placent en position interstitielle → tungstates de calcium, de strontium, de cadmium, de plomb
3. Les scintillateurs purs → le diamant, les halogénures alcalins purs

# Exemples de scintillateurs inorganiques

Matériau	$\lambda_{\max}$ /nm	$\tau_f$ /ns	$\rho$ /g · cm <sup>-3</sup>	photons par MeV
NaI(Tl) (20 °C)	415	230	3.67	38000
pure NaI (-19 °C)	303	60	3.67	76000
Bi <sub>4</sub> Ge <sub>3</sub> O <sub>12</sub> (20 °C)	480	300	7.13	8200
Bi <sub>4</sub> Ge <sub>3</sub> O <sub>12</sub> (-10 °C)	480	2000	7.13	24000
CsI(Na)	420	630	4.51	39000
CsI(Tl)	540	800	4.51	60000
CsI (pur)	315	16	4.51	2300
CsF	390	2	4.64	2500
BaF <sub>2</sub> (slow)	310	630	4.9	10000
BaF <sub>2</sub> (fast)	220	0.8	4.9	1800
Gd <sub>2</sub> SiO <sub>5</sub> (Ce)	440	60	6.71	10000
CdWO <sub>4</sub>	530	15000	7.9	7000
CaWO <sub>4</sub>	430	6000	6.1	6000
CeF <sub>3</sub>	340	27	6.16	4400
PbWO <sub>4</sub>	460	2,10, 38	8.2	500
Lu <sub>2</sub> SiO <sub>5</sub> (Ce)	420	40	7.4	30000
YAlO <sub>3</sub> (Ce)	390	31	5.35	19700
Y <sub>2</sub> SiO <sub>5</sub> (Ce)	420	70	2.70	45000

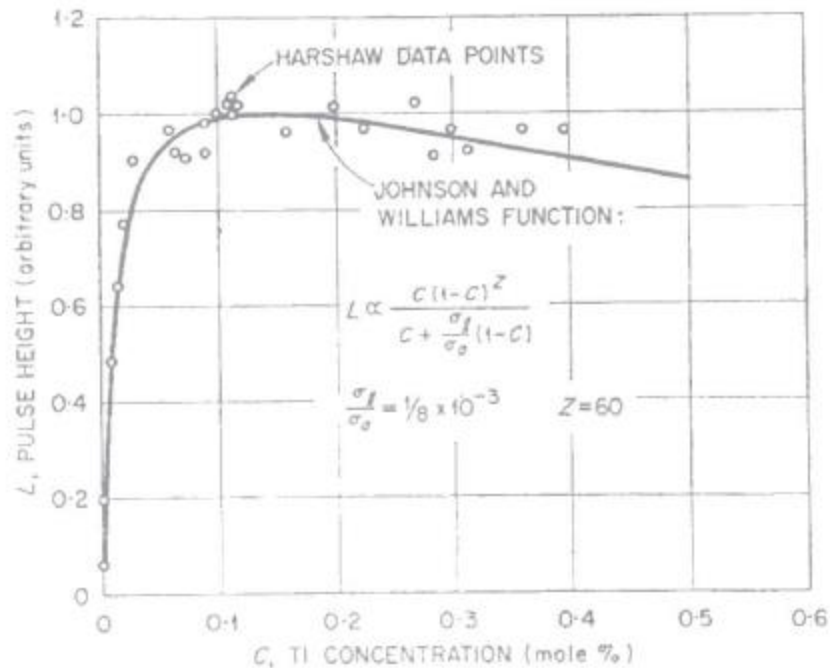
# NaI(Tl) (1)

- Cristal ionique d'iodure de sodium dopé avec du thallium
- L'utilisation d'un cristal NaI pour la détection des  $\gamma$  a été proposée par Hofstadter en 1948
- Rendement de luminescence élevé, disponible dans de très nombreuses dimensions et formes géométriques
- Scintillateur le plus utilisé
- Fortement hygroscopique

## NaI(Tl) (2)

- Largeur de la bande interdite pour du NaI pur  $E_g = 6 \text{ eV}$
- Pour du NaI(Tl)  $\rightarrow$  spectre d'émission centré en  $\approx 3 \text{ eV}$
- Concentration de Tl  $\approx 0.1\%$
- Indice de réfraction = 1.85  $\rightarrow$  un peu trop élevé
- Pour un  $\gamma$  d'1 MeV  $\rightarrow$  38000 photons créés  $\rightarrow$  26 eV par photon  $\rightarrow E$  d'1 photon  $\approx 3 \text{ eV} \rightarrow E$  émise sous forme de photons  $\approx 3 \times 38000 \text{ eV} = 114000 \text{ eV} \rightarrow$  efficacité intrinsèque du scintillateur  $S \approx 11\%$
- Facteur de Fano  $F = 1$
- $W = 26 \text{ eV} \rightarrow$  élevé (à comparer au 2.96 eV du Ge)  $\rightarrow$  sa résolution élevée est un des défauts principaux du NaI(Tl)

# Rendement du NaI(Tl) en fonction de la concentration de Tl

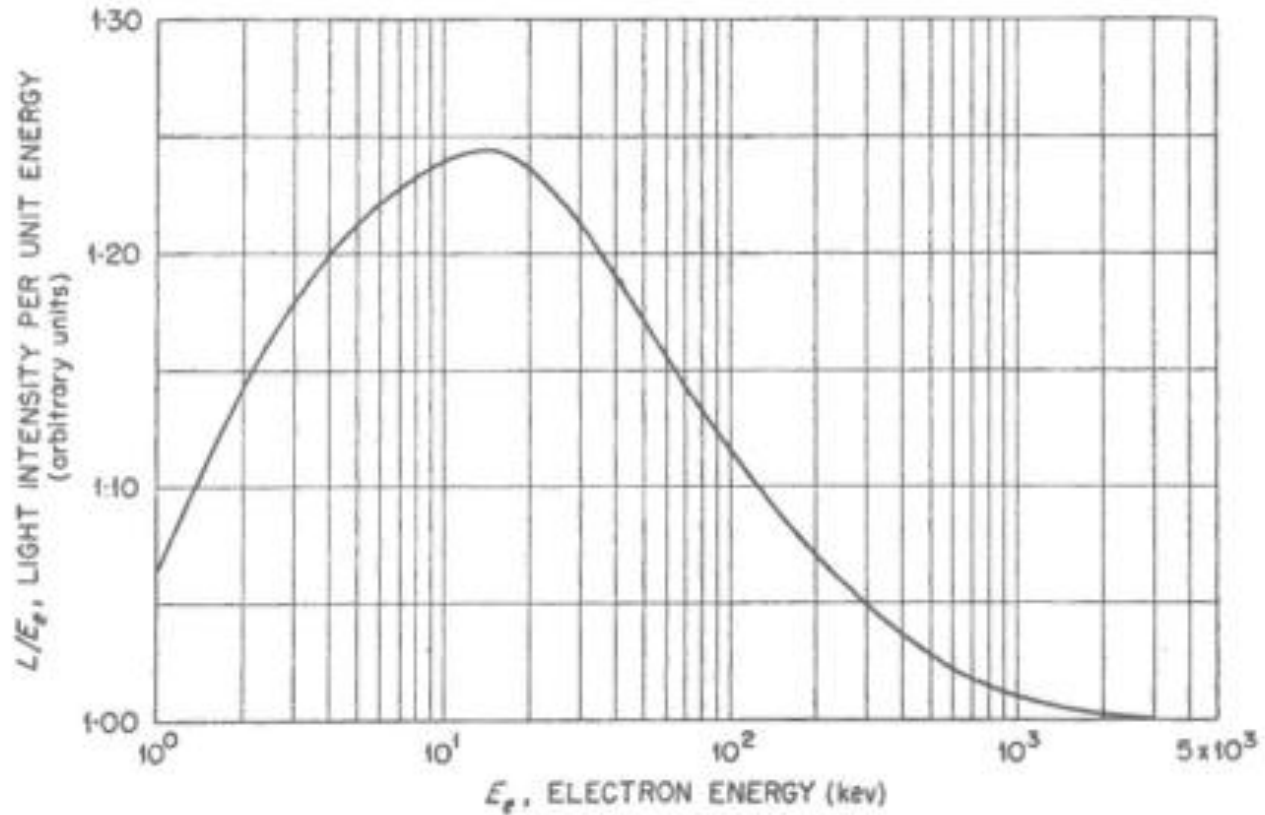


Quand la concentration de Tl  $\nearrow$  trop  $\rightarrow$  interaction entre les sites de recombinaison  $\rightarrow$  quenching  $\rightarrow$  efficacité  $\searrow$

## Efficacité intrinsèque du NaI(Tl) (1)

- L'efficacité intrinsèque du NaI(Tl)  $S = L/E$  devrait être constante en fonction de l'énergie du rayonnement incident pour que le processus soit linéaire
- Que ce soit pour des  $e^-$  ou des  $\gamma \rightarrow$  ce n'est pas le cas  $\rightarrow$  l'écart peut atteindre 15%
- Pas d'explication convaincante pour ce phénomène dans son ensemble

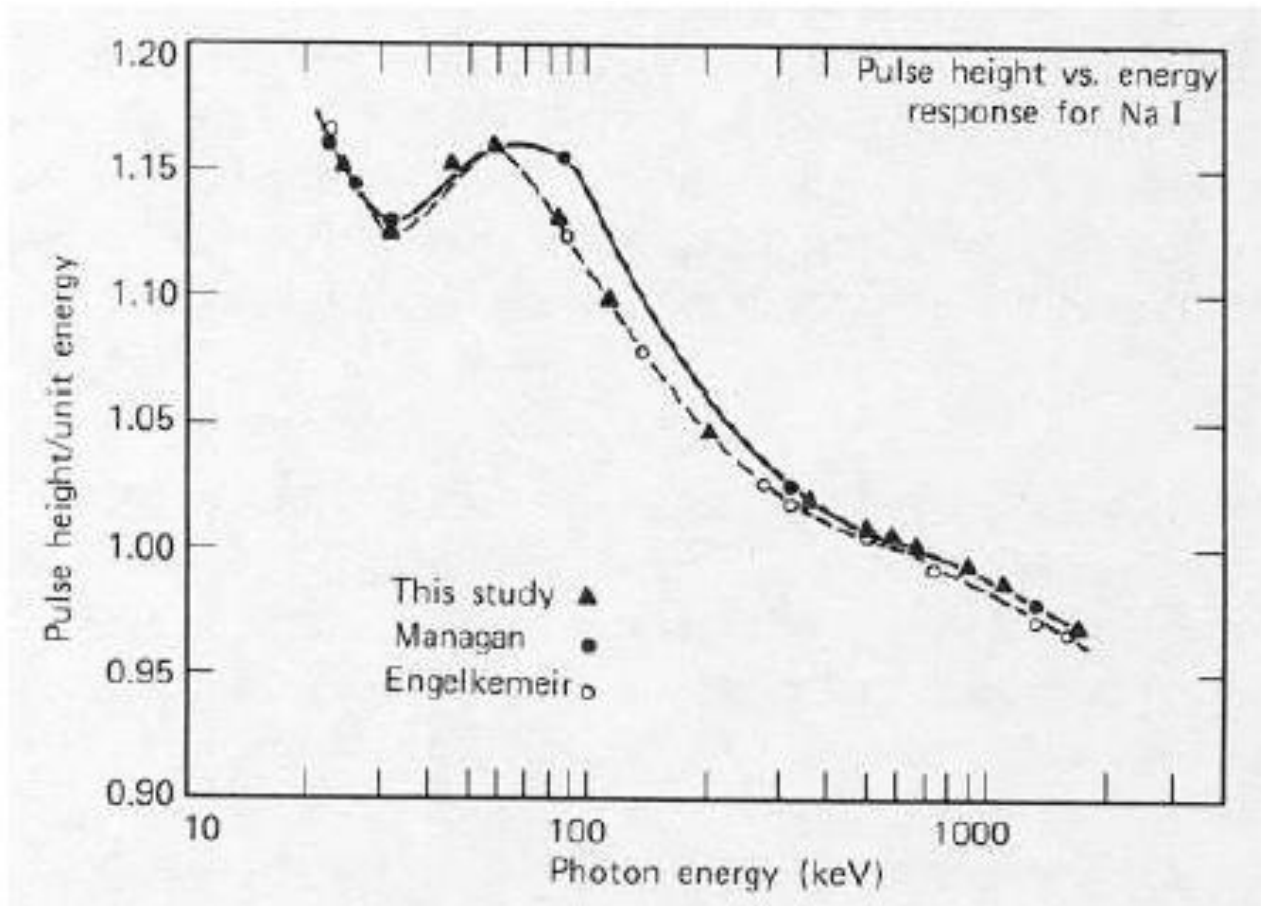
## Efficacité intrinsèque du NaI(Tl) (2)



Pour des  $e^-$  incidents



## Efficacité intrinsèque du NaI(Tl) (3)



Pour des  $\gamma$  incidents

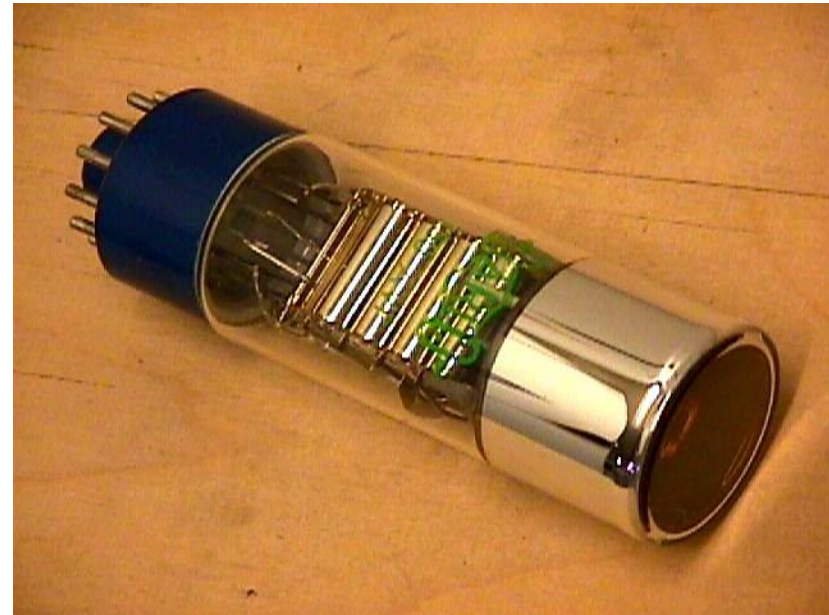
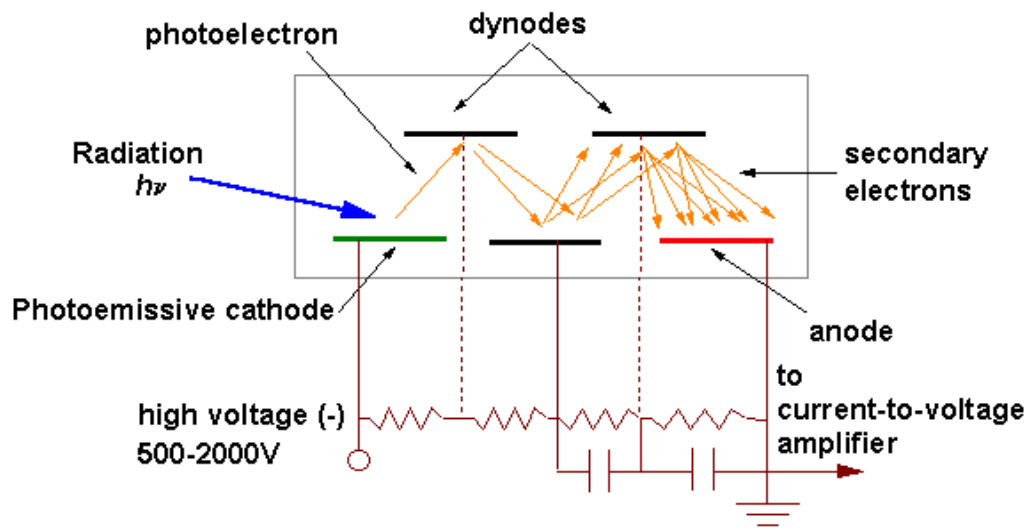
# Autres scintillateurs inorganiques (1)

- Iodure de césium dopé au thallium - CsI(Tl):
  - Probabilité d'absorption d'un  $\gamma$  plus grande que le NaI(Tl) → important par exemple en instrumentation spatiale pour laquelle poids et taille sont capitaux
  - La composante lente de la décroissance fortement dépendante de la particule incidente → discrimination en fonction de la forme de l'impulsion
  - Moins fragile que le NaI(Tl)
  - Raisonnablement malléable
  - Maximum du spectre d'émission décalé vers les grandes longueurs d'onde → moins adapté au couplage avec un photomultiplicateur
- Germanate de bismuth -  $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  (ou BGO):
  - Plus dense (7.13 gcm<sup>-3</sup>) que le NaI et Z élevé du Bi (Z = 83) → particulièrement adapté à la spectrométrie  $\gamma$
  - Détecteur robuste
  - Facile à usiner
  - Efficacité de luminescence faible → 10-20% de celle du NaI(Tl)

## Autres scintillateurs inorganiques (2)

- Tungstate de cadmium -  $\text{CdWO}_4$ :
  - Efficacité de luminescence faible  $\rightarrow$  40% de celle du  $\text{NaI(Tl)}$
  - Décroissance temporelle double et extrêmement lente  $\rightarrow$  1.1 et 14.5  $\mu\text{s}$   $\rightarrow$  utilisation limitée aux taux de comptage faibles mais bonne discrimination en fonction de la forme de l'impulsion
  - Bonne résolution
  - Indice de réfraction élevé (2.3)  $\rightarrow$  couplage à un photomultiplicateur difficile
- Fluorure de baryum -  $\text{BaF}_2$ :
  - Durée de vie des centres de luminescences extrêmement courte (0.6 ns)  $\rightarrow$  utiliser quand une réponse rapide est exigée
  - Longueur d'onde d'émission courte  $\rightarrow$  couplage avec un senseur sensible aux UV nécessaire
  - Efficacité de luminescence faible  $\rightarrow$  20% de celle du  $\text{NaI(Tl)}$
- Iodure de lithium dopé à l'euporium -  $\text{LiI(Eu)}$ :
  - Détection des neutrons (voir chapitre sur les neutrons)

# Photomultiplicateur (PM)



# Principes d'un photomultiplicateur

- But d'un PM → conversion de l'énergie d'un rayonnement visible ou proche du visible en une énergie électrique → utilisation des phénomènes de photoémission et ensuite d'amplification grâce au processus d'émission secondaire
- PM = enceinte en verre dans laquelle règne le vide
- Les photons incidents pénètrent dans le PM et frappent une photocathode semi-transparente ou opaque → interaction du photon avec les atomes de la photocathode → possible éjection d'un  $e^-$  hors de celle-ci
- Les photoélectrons issus de la photocathode sont accélérés par un champ électrique et frappent la 1<sup>ère</sup> dynode → dû au processus d'émission secondaire → des  $e^-$  secondaires sont éjectés hors de la 1<sup>ère</sup> dynode et puis accélérés vers la 2<sup>ème</sup> dynode → nouveaux  $e^-$  secondaires qui sont accélérés ... → processus qui se répète jusqu'à ce que les  $e^-$  quittent la dernière dynode et soient collectés par l'anode → signal

# Photocathode (1)

- Si la photocathode est opaque → les  $e^-$  sont émis du côté du photon incident
- Si elle est très mince (semi-transparente) → les  $e^-$  peuvent sortir par la surface opposée à la surface d'entrée des photons incidents
- Cette configuration mince est adoptée le plus souvent → elle facilite à la fois le couplage optique avec la source lumineuse extérieure et le couplage électronique de la photocathode avec la première dynode

## Photocathode (2)

1. Un photon doit traverser la fenêtre d'entre (épaisseur  $e$ ) du PM → probabilité  $T(\lambda, e)$
2. Un photon de longueur d'onde  $\lambda$  incident sur un milieu peut être réfléchi, absorbé ou transmis → avec  $\rho$ ,  $\alpha$  et  $\tau$  les probabilités associées à ces trois processus →

$$\rho(\lambda) + \alpha(\lambda) + \tau(\lambda) = 1$$

→ le photon doit pénétrer dans la photocathode → le matériau qui la constitue doit avoir un faible coefficient de réflexion

3. Le photon qui est rentré dans la photocathode doit y être absorbé → transfert de son énergie à un électron → avec  $\mu(\lambda)$  la probabilité d'absorption par unité de longueur → la probabilité  $p_{abs}$  que le photon soit absorbé à une profondeur  $x$  dans l'intervalle  $dx$  est →

$$p_{abs}(x)dx = e^{-\mu(\lambda)x} \mu(\lambda)dx$$

## Photocathode (3)

Si on considère une incidence normale sur un matériau d'épaisseur  $d \rightarrow$  l'intégrale de  $p_{abs}$  de 0 à  $d$  donne  $\rightarrow$

$$\alpha(\lambda, d) = [1 - \rho(\lambda)] \left(1 - e^{-\mu(\lambda)d}\right)$$

4. L'électron se déplace dans le matériau  $\rightarrow$  subit des chocs  $\rightarrow$  perd de l'énergie  $\rightarrow$  il arrive éventuellement à la surface qui sépare le matériau du vide  $\rightarrow$  le matériau doit avoir une grande profondeur d'échappement (profondeur d'origine de l' $e^-$  telle qu'il peut atteindre la surface avec suffisamment d'énergie)
5. L' $e^-$  doit s'échapper de la photocathode  $\rightarrow$  son énergie doit être  $>$  que le travail d'extraction  $\Phi$  de la photocathode



## Photocathode (4)

- On définit le rendement quantique photoélectrique  $\eta_{ph}(\lambda) \rightarrow$

$$\eta_{ph}(\lambda) = \frac{\text{nombre d'e}^- \text{ émis par la photocathode}}{\text{nombre de photons absorbés par la photocathode}}$$

- On définit aussi le rendement (ou efficacité) quantique spectral(e)  $\eta(\lambda) \rightarrow$

$$\eta(\lambda) = \frac{\text{nombre d'e}^- \text{ émis par la photocathode}}{\text{nombre de photons pénétrant dans le PM}}$$

- On a donc  $\rightarrow \eta(\lambda) = T(\lambda, e)\alpha(\lambda, d)\eta_{ph}(\lambda)$
- On définit aussi le rendement quantique effectif  $\eta_{eff}$  d'un photomultiplicateur qui reçoit une lumière dont le spectre est  $I(\lambda) \rightarrow$

$$\eta_{eff} = \int_0^{\infty} I(\lambda)\eta(\lambda)d\lambda$$

# Choix du matériau pour la photocathode

- Les métaux possèdent une grande probabilité de réflexion, une petite profondeur d'échappement (à cause du grand nombre d' $e^-$  libres dans un métal) et un travail d'extraction élevé  $\rightarrow$  faible efficacité quantique ( $\eta(\lambda) < 0.1\%$ )
- Les semiconducteurs ont une faible probabilité de réflexion, une grande profondeur d'échappement (peu d' $e^-$  libres) et un petit travail d'extraction ( $\eta(\lambda) \approx 10-30\%$ )

# Exemples de matériau pour la photocathode

Cathode type	Composition	$\lambda$ at peak response [nm]	Quantum efficiency at peak
S1 (C)	Ag – O – Cs	800	0.36
S4	SbCs	400	16
S11 (A)	SbCs	440	17
Super A	SbCs	440	22
S13 (U)	SbCs	440	17
S20 (T)	SbNa – KCs	420	20
S20R	SbNa – KCs	550	8
TU	SbNa – KCs	420	20
Bialkali	SbRb – Cs	420	26
Bialkali D	Sb – K – Cs	400	26
Bialkali DU	Sb – K – Cs	400	26
SB	Cs – Te	235	10

# Bruit de la photocathode

- La photocathode émet spontanément des électrons par effet thermoïonique → à T ambiante → cette émission est à l'origine de la plus grande partie du bruit de fond d'un PM
- Le nombre moyen d'électrons émis par unité de temps et de surface est donné par (loi de Richardson) →

$$\eta_e = AT^2 \exp(-e\Phi/kT)$$

avec  $A$  une constante et  $k$  la constante de Boltzmann

- Comme  $\Phi$  pour un sc est < que pour un métal →  $\eta_e$  est plus grand pour un sc ( $\approx 10^2$ - $10^4$  s<sup>-1</sup> cm<sup>-2</sup>) que pour un métal ( $\approx 10^{-2}$  s<sup>-1</sup> cm<sup>-2</sup>)
- Si  $T \searrow \eta_e \searrow$  mais d'autres sources de bruit existent (ionisation des gaz résiduel dans le PM, radioactivité du verre, rayons cosmiques,...)

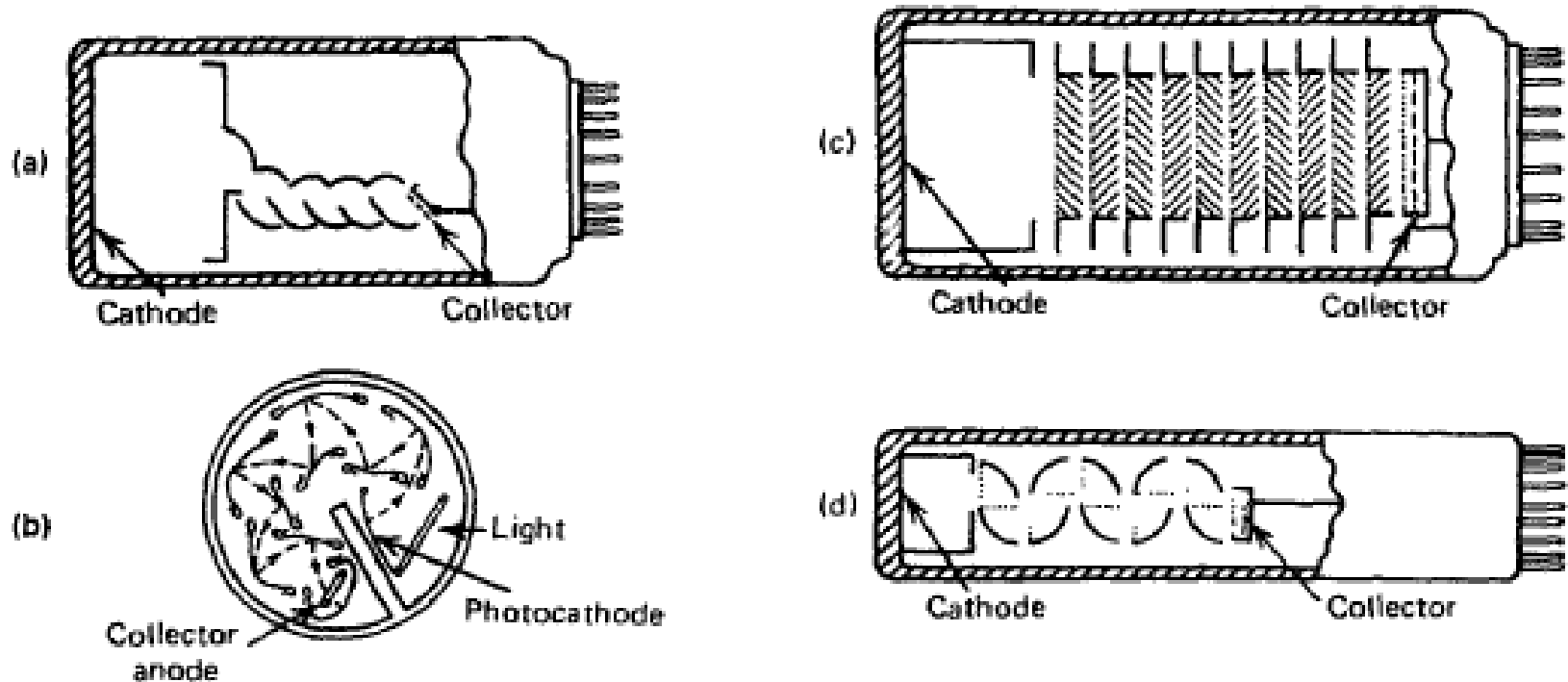
# Dynodes

- Dans une dynode, l'énergie de l'électron est transférée aux électrons de la dynode → un certain nombre d'électrons peut s'échapper (à nouveau des sc sont utilisés) → gain de chaque dynode: rendement d'émission secondaire  $\delta$  (il faut  $\delta > 1$  pour avoir multiplication)
- Un champ électrique constant est maintenu entre les dynodes → accélération et guidage des électrons → le matériau pour l'émission secondaire doit être déposé sur un matériau conducteur
- Le gain d'un PM:  $M = \delta^n$  avec  $n \approx 10$  pour obtenir  $M = 10^7$

## Gain d'un PM

- Si chaque électron qui frappe une dynode éjecte  $\approx 4$  électrons  
→ le gain d'un PM à 12 étages (ou dynodes) vaut  $M = 4^{12} \approx 1.7 \times 10^7$
- Un seul photoélectron produit 17 millions d'électrons
- Tous ces électrons arrivent (quasi) simultanément sur l'anode →  
 $t < 5 \text{ ns}$
- L'impulsion de courant à l'anode vaut  $\approx 0.5 \text{ mA}$

## Différents types de PM (1)



- a) Structure linéaire focalisée
- b) Structure circulaire
- c) Structure en store vénitien
- d) Structure en quadrant avec grille

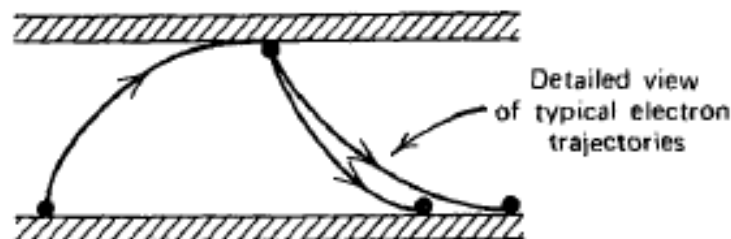
## Différents types de PM (2)

- Les structures (a) et (b) utilisent une focalisation des électrons entre dynodes → l'étalement des temps de transit entre dynodes est donc plus faible qu'avec les autres structures → PM rapides
- Les structures (c) et (d) ont une meilleure efficacité de collection de la photocathode par la première dynode que les structures (a) et (b)
- La structure en store vénitien (c) est la plus ancienne mais présente une réponse temporelle lente à cause du champ faible → plus utilisée actuellement
- La structure (d) est aussi ancienne et lente mais est encore utilisée pour les PM à large diamètre



## Différents types de PM (3)

- Multiplicateur d'électrons à canal linéaire → chaîne continue de dynodes
- Le potentiel électrique varie linéairement le long du tube → un électron qui y pénètre produit des électrons secondaires qui sont accélérés avant de produire chacun de nouveaux électrons
- On trouve finalement un grand nombre d'électrons sortant à l'autre extrémité



# Résolution d'un détecteur à scintillation (1)

- Détecteur à scintillation = scintillateur + PM
- En posant  $C$  la probabilité qu'un photoélectron atteigne la 1<sup>ère</sup> dynode,  $N_0$  le nombre d'électrons collectés à l'anode et  $N_{ph}$  le nombre de photons émis dans le scintillateur →

$$N_0 = MC\eta N_{ph}$$

- $N_0$  est donc  $\propto$  à l'énergie  $E_{abs}$  absorbée dans le détecteur (via  $N_{ph}$ )
- Toutes ces grandeurs sont des variables aléatoires → calcul de la variance
- En posant  $v[X]$  la variance relative de la variable aléatoire  $X$  →

$$v[X] = \frac{\sigma^2(X)}{\langle X \rangle^2}$$

## Résolution d'un détecteur à scintillation (2)

- On a donc pour  $v[N_0] \rightarrow$

$$\begin{aligned}
 v[N_0] &= v[N_{ph}] + \frac{1}{\langle N_{ph} \rangle} v[\eta] + \frac{1}{\langle N_{ph} \rangle \langle \eta \rangle} v[C] + \frac{1}{\langle N_{ph} \rangle \langle \eta \rangle \langle C \rangle} v[M] \\
 &= \left( v[N_{ph}] - \frac{1}{\langle N_{ph} \rangle} \right) + \frac{1}{\langle N_{ph} \rangle} \left( v[\eta] - \frac{1 - \langle \eta \rangle}{\langle \eta \rangle} \right) \\
 &\quad + \frac{1}{\langle N_{ph} \rangle \langle \eta \rangle} \left( v[C] - \frac{1 - \langle C \rangle}{\langle C \rangle} \right) + \frac{1}{\langle N_{ph} \rangle \langle \eta \rangle \langle C \rangle} (1 + v[M])
 \end{aligned}$$

- Si  $N_{ph}$  est une variable de Poisson et  $C$  et  $\eta$  des binomiales  $\rightarrow$

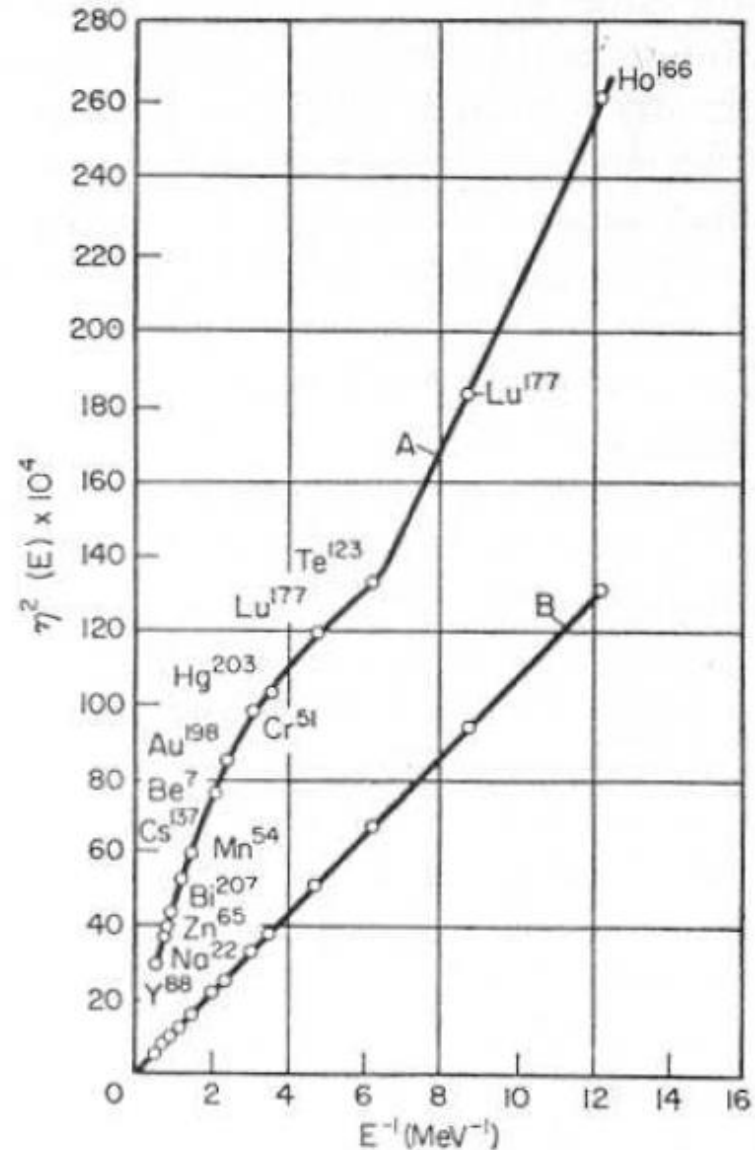
$$v[N_0] = \frac{1}{\langle N_{ph} \rangle \langle \eta \rangle \langle C \rangle} (1 + v[M]) \propto \frac{1}{E_{abs}}$$

## Résolution d'un détecteur à scintillation (3)

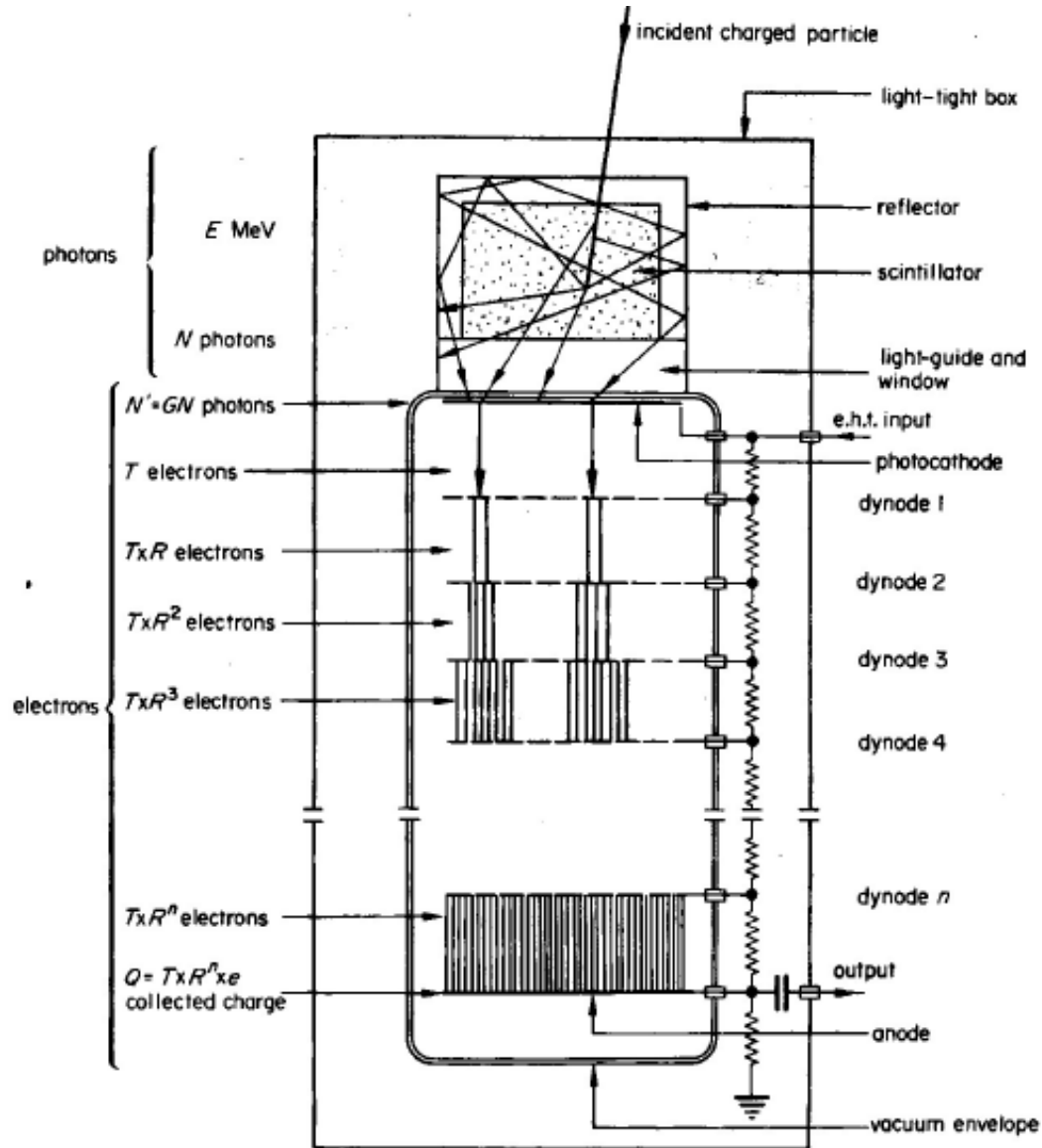
- En 1<sup>ère</sup> approximation → la variance relative sur  $N_0 \propto 1/E_{abs}$
- Cependant → de nombreux effets non-linéaires existent:
  - Le nombre de photons qui s'échappent du scintillateur dépend de leur position d'émission →  $N_{ph}$  s'écarte d'une variable de Poisson
  - Inhomogénéités de la photocathode →  $\eta$  s'écarte d'une binomiale
  - Rendement de collection des photoélectrons par la 1<sup>ère</sup> dynode dépendant de la position d'émission →  $C$  s'écarte d'une binomiale

## Résolution d'un détecteur à scintillation (4)

- Résolution d'un détecteur NaI(Tl) associé à un PM
- Courbe B  $\rightarrow$  résolution en considérant uniquement le PM  $\rightarrow \propto 1/E_{abs}$
- Courbe A  $\rightarrow$  résolution totale  $\rightarrow$  écart par rapport à la loi en  $1/E_{abs}$



# Spectrométrie $\gamma$ avec un NaI(Tl) (1)



## Spectrométrie $\gamma$ avec un NaI(Tl) (2)

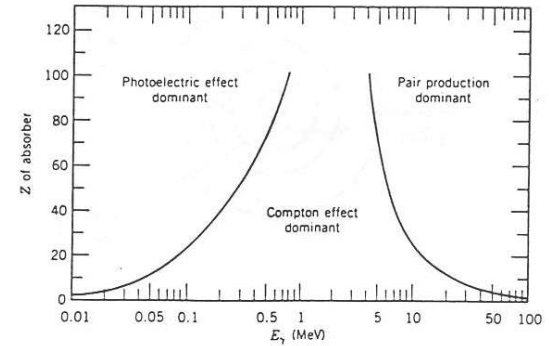
**Attention: la taille du détecteur est un paramètre crucial!!**

→ la taille doit être comparée au libre parcours moyen des  $\gamma$  secondaires dus aux interactions du  $\gamma$  incident ( $\gamma$  diffusés par effet Compton et  $\gamma$  d'annihilations produits à la fin du parcours d'un  $e^+$  créé lors d'une production de paire) → le libre parcours moyen de ces  $\gamma$  secondaires  $\approx 3-5$  cm in NaI → « petit » signifie  $\approx 1$  cm et « grand » signifie  $\approx 30$  cm

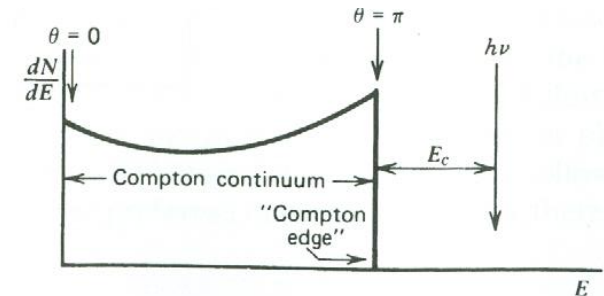
Dans la suite, on considère une taille « intermédiaire » pour le détecteur → classiquement: NaI(Tl) 3"  $\times$  3" (1 pouce = 2.54 cm)  
→ diamètre = longueur = 7.62 cm

# $\gamma$ d'1 MeV (1)

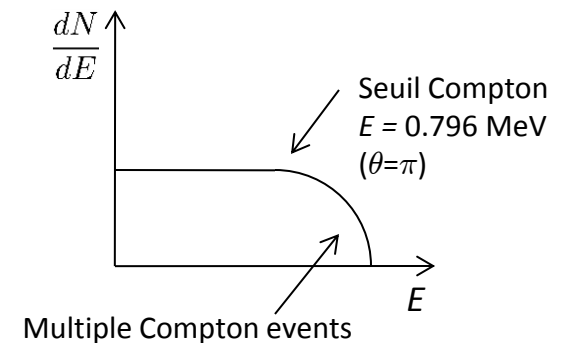
- Processus dominant : diffusion Compton



- On suppose que tous les  $\gamma$  subissent exactement 1 diffusion Compton avant de s'échapper



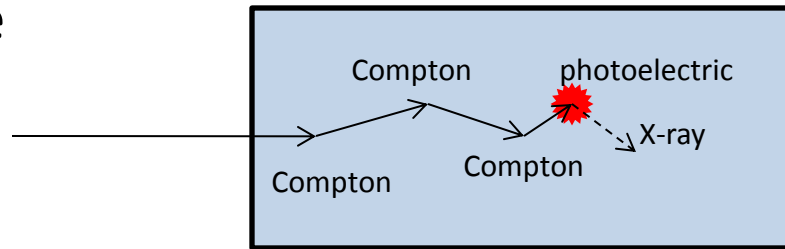
- On suppose que tous les  $\gamma$  subissent  $n$  diffusions Compton avant de s'échapper (la durée de leur histoire est petite par rapport au temps de réponse du détecteur)



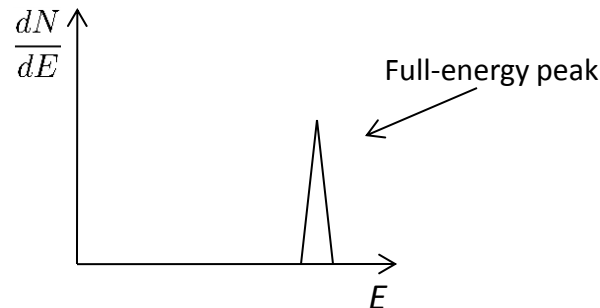


## $\gamma$ d'1 MeV (2)

- Après  $n$  diffusions Compton  $\rightarrow E \searrow (E_n) \rightarrow$  l'effet photoélectrique devient dominant  $\rightarrow$  supposons qu'il se produit toujours  $\rightarrow E_n - B_K$  est absorbé

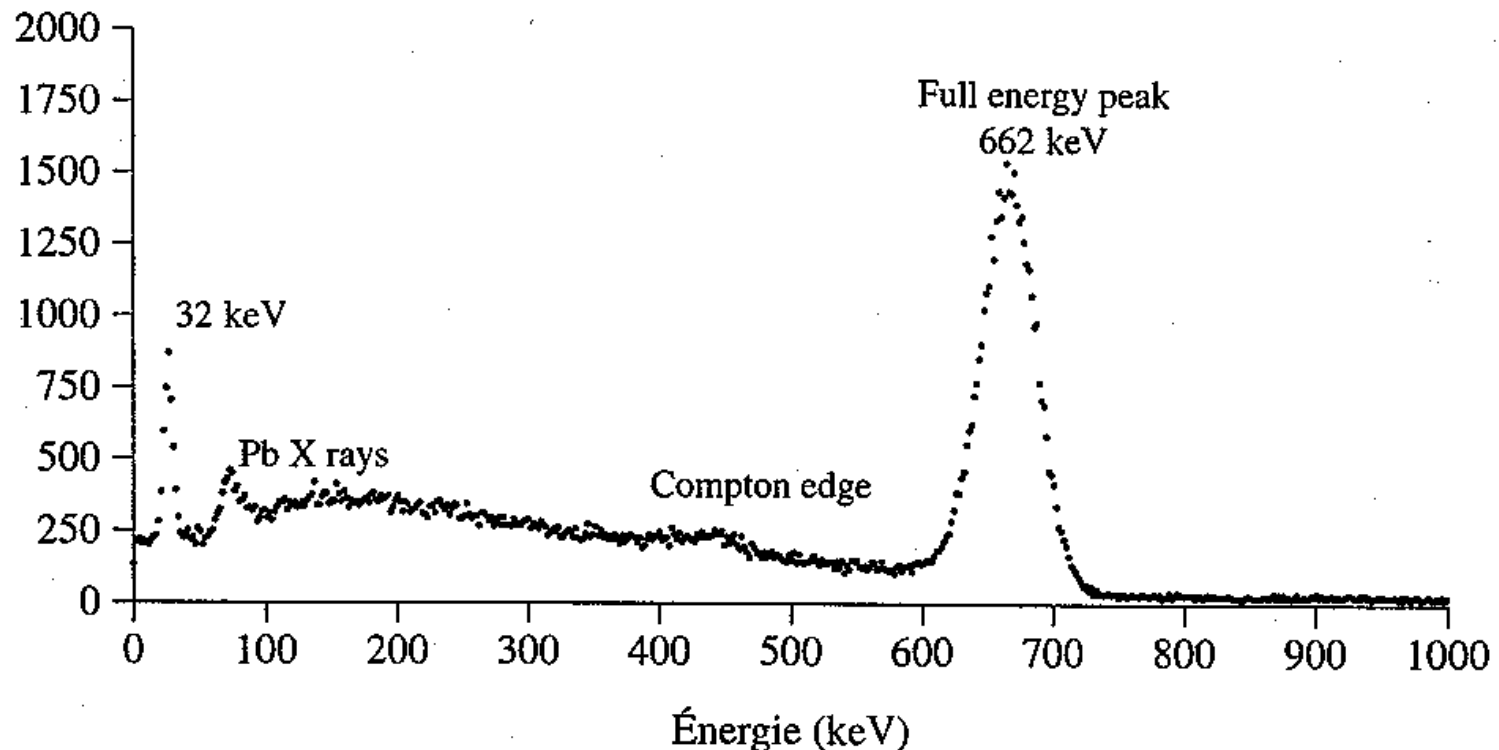


- Comme l'effet photoélectrique se produit profondément dans le détecteur  $\rightarrow$  les RX ou les  $e^-$  Auger ne peuvent pas s'échapper  $\rightarrow$  l'énergie  $B_K$  est déposée (à nouveau  $\rightarrow$  durée de l'histoire petite par rapport au temps de réponse du détecteur)



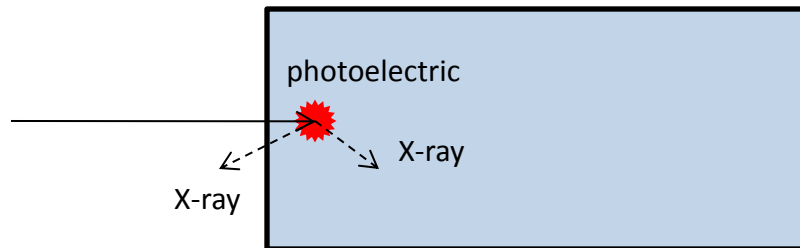
## $\gamma$ d'1 MeV (3)

- En Pratique  $\rightarrow$  le  $\gamma$  diffusé peut s'échapper après quelques diffusions Compton ou être absorbé
- Exemple du  $^{137}\text{Cs}$  ( $\gamma$  de 662 keV  $\rightarrow$  comportement similaire à 1 MeV)

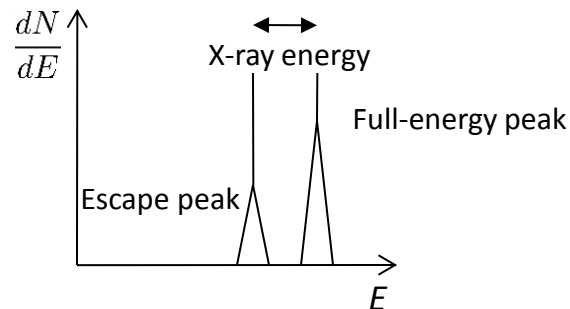


# $\gamma$ de 100 keV

- Processus dominant  $\rightarrow$  absorption photoélectrique

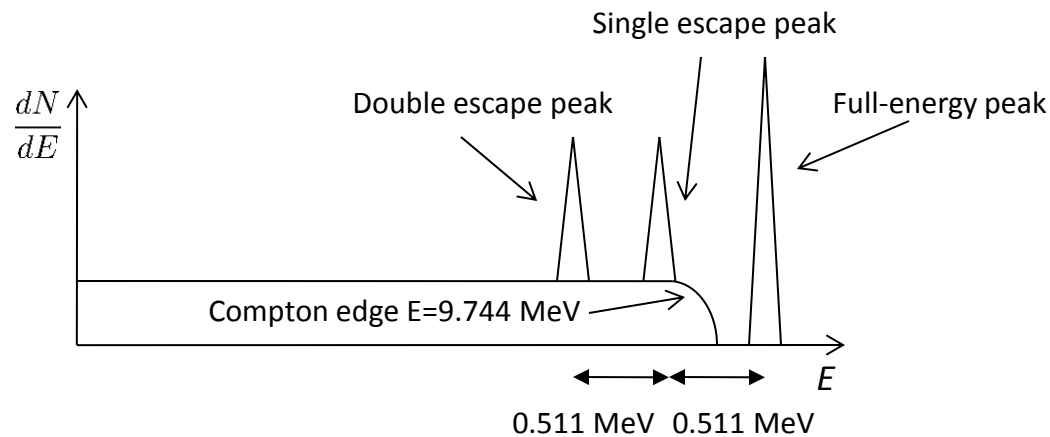


- Le RX ( $E = B_K - B_L$ ) peut s'échapper (l'absorption se produit près de la surface d'entrée)  $\rightarrow$



# $\gamma$ de 10 MeV

- Processus dominants  $\rightarrow$  diffusion Compton ou création de paire  $\rightarrow$  si création de paire  $\rightarrow$  l'énergie déposée =  $E_0 - 2m_e c^2$  (avec  $m_e c^2 = 0.511$  MeV)  $\rightarrow$  les 2  $\gamma$  de 0.511 MeV peuvent s'échapper ou 1  $\gamma$  peut s'échapper ou les 2  $\gamma$  peuvent être détectés (Compton ou photoélectrique)  $\rightarrow$



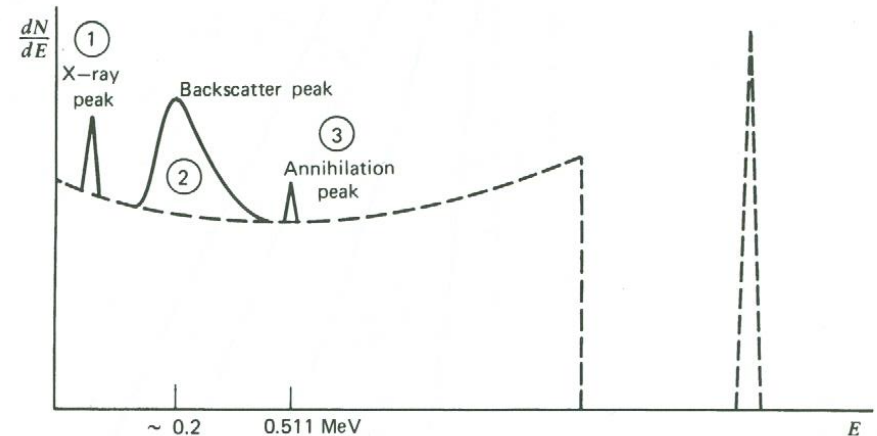
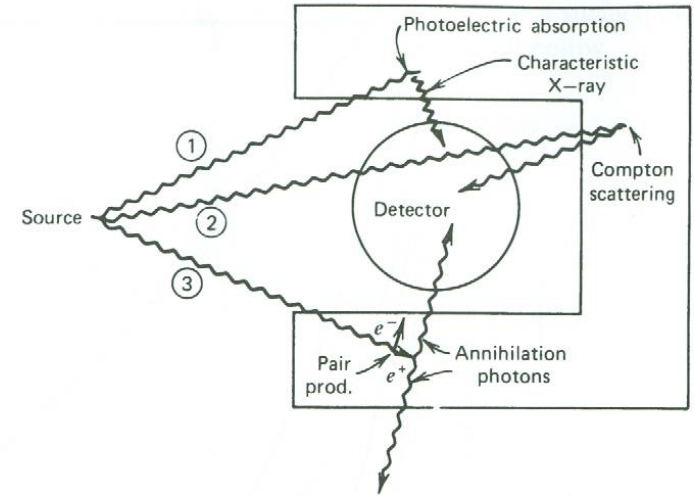
# Complications de la réponse (1)

- Rayonnements secondaires créés à proximité de la source →
  1. Rayonnement d'annihilation: si la source émet des  $e^+$  → un pic additionnel à 0.511 MeV sera mesuré à cause de l'annihilation qui se produit dans le matériau entourant la source
  2. Bremsstrahlung: les émetteurs  $\gamma$  sont généralement aussi émetteurs  $\beta$  → pour éviter que ces  $\beta$  ne déposent de l'énergie dans le détecteur → ils sont stoppés par un matériau qui entoure la source ou sont absorbés par un matériau placé devant le détecteur → possible production de Bremsstrahlung (phénomène complexe à étudier précisément) → pour éviter ce Bremsstrahlung → l'absorbant des  $\beta$  doit avoir un petit Z

# Complications de la réponse (2)

- Effets des matériaux alentours (blindage,...)

1. Pic RX provenant du blindage
2. Rayonnements  $\gamma$  rétrodiffusés dans le blindage  $\rightarrow$  0.20-0.25 MeV
3. Pic d'annihilation dû aux  $e^+$  s'annihilant dans le blindage



# Comparaison germanium $\leftrightarrow$ scintillateur pour la spectrométrie $\gamma$

- Ge: Bien meilleure résolution mais  $\rightarrow$
- Cher
- Détecteur de petite et de Z faible  $\rightarrow$  le rapport pic d'absorption totale sur bruit est largement plus faible
- Plus lent
- Complications dues au refroidissement (absentes sur les détecteurs modernes)

# Exemple de comparaison: $^{110m}\text{Ag}$

