

## MESURE DE L'INTENSITÉ DE LA LUMIÈRE ÉMISE PAR LES SCINTILLATEURS LIQUIDES

par G. GERMAI  
*Docteur en Sciences Chimiques*

### RÉSUMÉ

Les résultats fournis par les différentes techniques de mesure décrites dans la littérature sont comparés. Les critères de comparaison sont les valeurs de la constante d'inhibition et sa précision. Cette constante est mesurée pour une solution scintillante et un inhibiteur donnés. Dans les conditions d'appareillage mises au point dans ce travail et lors de l'excitation de la solution par une source  $\beta$  ou  $\gamma$ , seul le calcul de la hauteur moyenne d'impulsion par une relation que nous avons établie constitue une technique de mesure des intensités lumineuses précise et reproductible.

### I. INTRODUCTION

Toute une série de techniques, permettant la mesure de l'intensité de la lumière émise par les scintillateurs liquides, ont été décrites jusqu'à présent. Le scintillateur est irradié par une source extérieure ( $\gamma$ ,  $\beta$ ) [1, 2, 3, 4, 5, 6, 7] ou au moyen d'une source d'électrons de conversion plongée ou dissoute dans la solution scintillante [8, 9, 10, 11]. La lumière émise est vue par le photomultiplicateur (P.M.) d'un spectromètre mono canal. Dans ces conditions, différents auteurs ont mis à profit les grandeurs suivantes, en tant que mesures de l'intensité de la lumière émise par fluorescence.

1) Le courant d'anode du P.M. [1, 2, 5, 7, 8, 9].

2) La moyenne  $\bar{V}$  des hauteurs d'impulsion :

a) mesurée à l'oscilloscope [1, 2]

b) calculée par la formule [3, 6]

$$\bar{V} = \frac{1}{I} \int_{V=0}^{V=\infty} C(V) dV \quad (1)$$

où  $I$  représente le taux de comptage intégral lorsque le potentiel appliqué au seuil inférieur du spectromètre vaut 0 volt,

$C$  représente le taux de comptage intégral lorsque ce potentiel a une valeur  $V$  comprise entre 0 et l' $\infty$ .

3) Le potentiel appliqué au seuil inférieur du spectromètre pour que le taux de comptage intégral ne soit plus que la centième partie de ce taux extrapolé au potentiel zéro du seuil inférieur [4].

Présenté par J. Govaerts, le 19 février 1970.

4) Le potentiel du seuil inférieur nécessaire pour annuler le taux de comptage intégral [4].

5) Le potentiel appliqué au seuil inférieur du spectromètre pour que le taux de comptage différentiel soit la moitié de celui que l'on observe au plateau du spectre différentiel d'un rayonnement  $\gamma$  (effet Compton de ce rayonnement) [4].

6) Le potentiel du seuil inférieur nécessaire pour rendre maximum le taux de comptage différentiel d'une source d'électrons de conversion plongée ou dissoute dans le scintillateur [10, 11].

Les grandeurs figurant dans l'énumération précédente sont proportionnelles au potentiel maximum moyen de l'anode du P.M., potentiel qui peut être exprimé, d'après Breitenberg [12], de la façon suivante :

$$\bar{I} = \frac{E}{\bar{W}} (\mu_0 \mu_\phi \mu_c) \delta^m \frac{e}{C} \quad (2)$$

où  $E$  est l'énergie perdue par la particule excitatrice dans le scintillateur,

$\bar{W}$  l'énergie moyenne nécessaire pour l'émission d'un photon,

$\mu_0$  la fraction des photons émis qui atteint la photocathode du P.M.,

$\mu_\phi$  le rendement de celle-ci en photo-électrons,

$\mu_c$  le rendement de collection sur la 1<sup>re</sup> dynode du P.M.,

$\delta$  le facteur de multiplication des dynodes,

$m$  le nombre de ces dynodes,

$e$  la charge de l'électron,

$C$  la capacité de l'anode.

Ces grandeurs dépendent donc de la nature de la source excitatrice, de la composition du scintillateur et des conditions d'appareillage. Mais le rapport de deux valeurs de l'une de ces grandeurs ne dépend que de la nature du scintillateur, puisque ce rapport est mesuré avec la même source et le même appareillage. Par conséquent seules les mesures d'intensités lumineuses relatives devraient fournir des résultats comparables pour des conditions différentes d'irradiation et d'appareillage. L'examen des données publiées par différents auteurs montre cependant que cette dernière proposition n'est pas toujours vérifiée.

Le but du travail est la mise au point d'une technique de mesure de l'intensité lumineuse relative fournissant les résultats les plus précis, ce qui implique une comparaison des données obtenues en utilisant des méthodes semblables à celles qui sont citées dans l'énumération précédente. Le critère de comparaison est la valeur de la constante d'inhibition  $K$  [4] et, accessoirement, la précision de sa détermination. Cette constante est définie par la relation suivante :

$$\frac{V_0}{V} = 1 + KQ \quad (3)$$

où  $V_0$  est l'intensité de la lumière émise par le scintillateur pur et  $V$  l'intensité de la lumière émise par la solution scintillante contenant un inhibiteur à la concentration  $Q$ .

## II. APPAREILLAGE UTILISÉ

La figure 1 montre le schéma de l'appareillage utilisé pour la mesure des intensités lumineuses. Le secteur est stabilisé et filtré avant son entrée dans la cage de Faraday pour l'alimentation des différentes unités. La température du local est maintenue constante et égale à 13° C. Ces précautions assurent la stabilité nécessaire pour faire des mesures reproductibles. Les bandes perforées qui traduisent les courbes différentielles des spectres sont destinées au traitement des résultats par ordinateur. Nous introduisons dans la tête de mesure la cellule en quartz contenant 4cc de scintillateur. La firme Nuclear Enterprises (NE) fournit des cellules semblables dont la face cylindrique est recouverte d'une peinture réfléchissante. Cette peinture a dû être enlevée car elle s'abîme et constitue une source d'irreproductibilité. Quand les expériences mettent en œuvre plusieurs cellules, il est indispensable d'en effectuer un tri, basé sur leurs caractéristiques optiques.

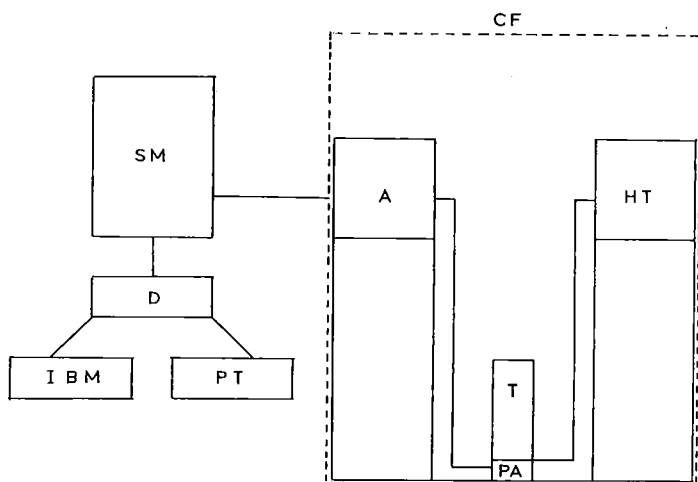


Figure 1

### Schéma de l'appareillage de mesure

T : tête de détection NE 5503

PA : préamplificateur NE 5282

A : amplificateur NE 5256

HT : haute tension NE 5302

SM : sélecteur d'impulsions à 400 canaux  
Intertechnique SA 40 B

D : châssis de commande, Intertechnique  
BK 21

IBM : machine à écrire IBM

PT : perforatrice Tally Punch 420

CF : cage de Faraday

Enfin la base de la cellule, une fois en contact avec la fenêtre du P.M., baigne dans l'huile de silicone qui constitue un joint optique assurant également la reproductibilité de l'expérience.

## III. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

### III.1. Les techniques de mesure envisagées.

A. — Nous avons employé la méthode n° 6 (énumération du paragraphe I), en irradiant une solution de PPO (5 g/l) et de POPOP (0,05 g/l) dans du toluène

pur pour analyse, redistillé sous argon. Cette solution est inhibée par des concentrations croissantes  $Q$  d'alcool éthylique. Par la suite nous appellerons ce scintillateur « la solution scintillante ». La source excitatrice est constituée par le rayonnement  $\alpha$  de  $0,05 \mu\text{C}$  d' $^{233}\text{U}$  déposé sur un ruban de platine. Ce ruban plié en forme de « W », est introduit au fond de la cellule de mesure afin d'assurer une géométrie de comptage reproductible (source en plongée). Un des spectres différentiels obtenus est représenté par la figure 2.

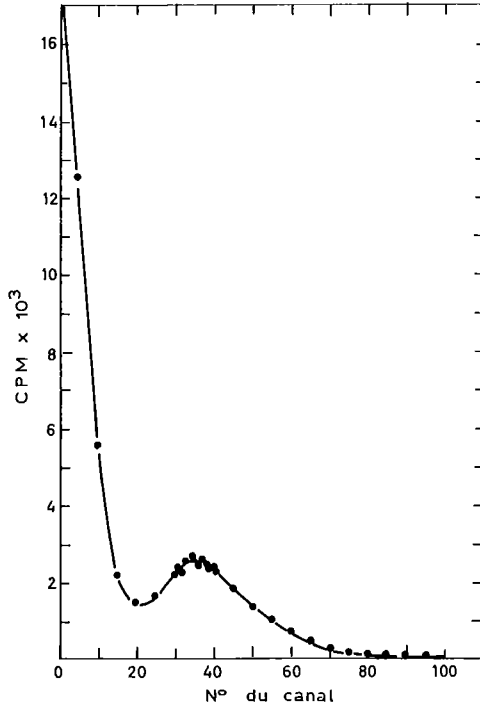


Figure 2  
Spectre du rayonnement  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  déposé sur ruban de platine.  
Source plongée dans la solution scintillante

Dans une seconde série d'expériences, nous avons utilisé une solution de PPO (5 g/l) et de POPOP (0,05 g/l) dans du dioxanne de même pureté que le toluène de la « solution scintillante ». Nous avons irradié la solution à base de dioxanne en y incorporant 200  $\lambda$  d'une solution nitrique (0,05 molaire) de  $0,25 \mu\text{C}$  d' $^{241}\text{Am}$  et de 2 % en poids d'oxyde tributyl-phosphine (source en solution). La figure 3 représente un des spectres différentiels obtenus dans cette série d'expériences. La figure 4 montre la variation de l'intensité lumineuse relative  $\frac{V_0}{V}$  en fonction de la concentration d'alcool éthylique dans cette seconde solution.

B. — En ce qui concerne l'emploi de la technique de mesure n° 5, nous avons irradié la « solution scintillante » au moyen du rayonnement  $\gamma$  de  $3 \mu\text{C}$   $^{137}\text{Cs}$ , déposé dans une nacelle cylindrique en laiton. La nacelle, hermétiquement fermée, est fixée au bouchon de la cellule contenant le scintillateur.

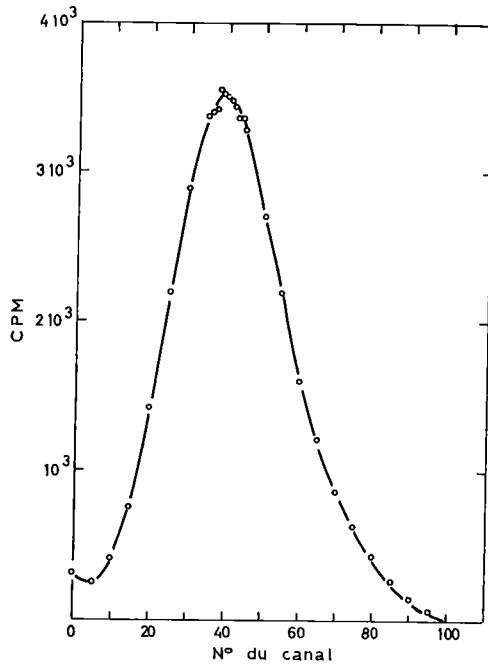


Figure 3  
Spectre du rayonnement  $\alpha$  de l' $^{241}\text{Am}$  dissous dans le dioxanne  
d'une solution scintillante

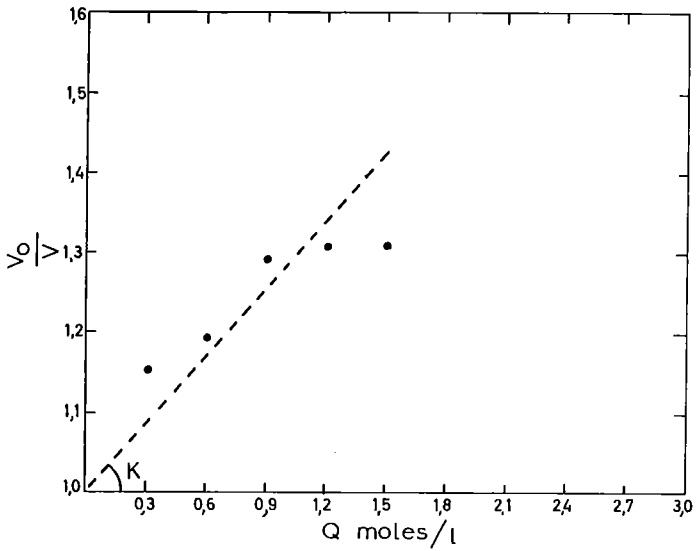


Figure 4  
Variation de la hauteur relative d'impulsion en fonction de la concentration  
en alcool éthylique. Source  $^{241}\text{Am}$ .

C. — La même source, extérieure au scintillateur, a été utilisée pour irradier « la solution scintillante » lors du test de la technique de mesure n° 3. Les courbes intégrales obtenues sont représentées par la figure 5. La courbe I correspond au scintillateur pur. Les courbes II, III, IV, V et VI sont relatives au scintillateur inhibé par l'alcool éthylique aux concentrations respectives de 0,3-0,6-0,9-1,2 et 1,5 mole/litre. Les points n° 1, 2, 3, 4, 5 et 6 indiquent l'endroit des spectres où l'activité n'est plus que la centième partie de l'activité extrapolée.

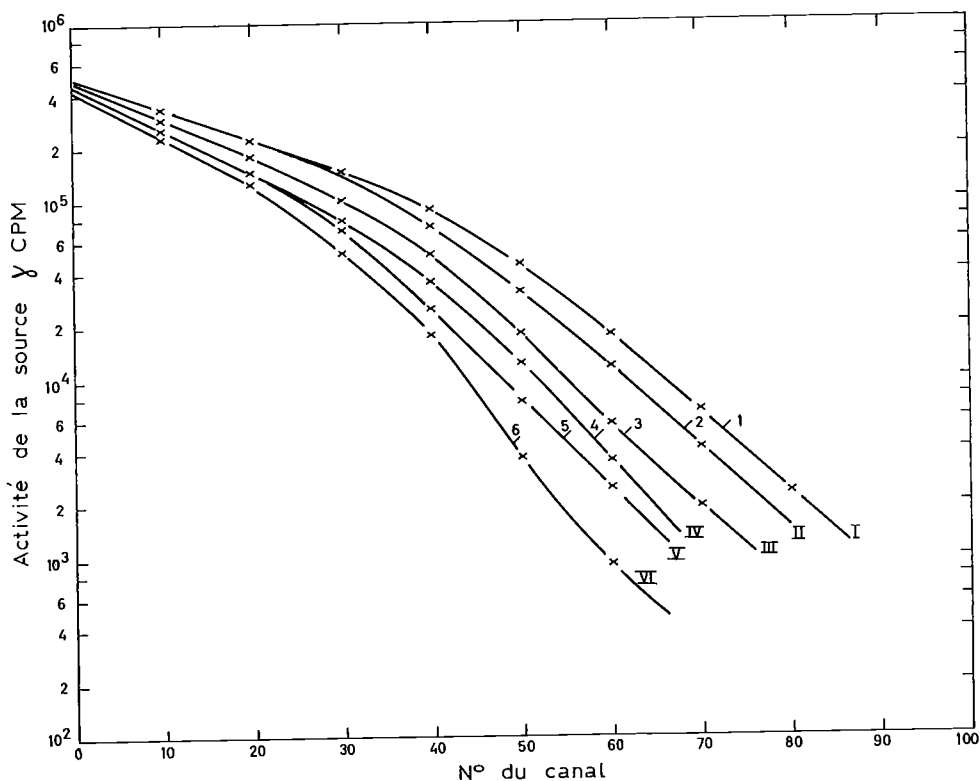


Figure 5

Courbes intégrales des spectres du scintillateur excité par une source extérieure de  $^{137}\text{Cs}$  et inhibé par des concentrations croissantes d'alcool éthylique.

D. — Nous avons testé la méthode de mesure n° 2 a, en excitant la « solution scintillante », d'abord au moyen de la source extérieure, émettrice  $\gamma$ , puis en utilisant comme solvant, du toluène d'activité spécifique en  $^{14}\text{C}$ ,  $0,01 \mu\text{c}/\text{cm}^3$ . La relation (1) étant valable pour des courbes intégrales, nous avons établi l'équation (4) donnant la hauteur moyenne d'impulsion  $\bar{V}$  dans le cas des courbes différentielles que nous obtenons à la sortie de l'analyseur multicanal.

$$\bar{V} = \frac{\Delta v}{\sum_{i=0}^{212} N_i} \sum_{i=0}^{212} \left( i + \frac{1}{2} \right) N_i \quad (4)$$

où  $\Delta v$  volts est la largeur d'un canal réglable au moyen du gain de conversion de l'analyseur,

$N_i$  le contenu du canal n°  $i$ .

La relation (4) appelle quelques commentaires.  $N_0$  représente le contenu du canal 0 dont les caractéristiques sont les suivantes : potentiel appliqué au seuil inférieur = 0 volt, potentiel appliqué au seuil supérieur =  $\Delta v$  volts. Or, l'étalonnage du sélecteur multicanal au moyen d'un générateur d'impulsions montre que le canal 0 du sélecteur contient un nombre d'impulsions équivalent à  $N_{13}$ , lorsque ses conditions de travail sont les suivantes : capacité 200 canaux, valeur de  $\Delta v$  0,02 volt. Les valeurs de  $N_0$  à  $N_{12}$  doivent donc être calculées comme celles de  $N_{13}$  à  $N_{22}$  car le contenu des premiers canaux du sélecteur est toujours fortement entaché d'erreur. Nous avons effectué ce calcul en extrapolant les valeurs de  $N_{23}$  à  $N_{32}$  jusqu'à  $N_0$  par application du principe des moindres carrés. Nous avons également calculé la constante d'inhibition  $K$ , définie par la relation (3), en appliquant le principe des moindres carrés.

$$K = \frac{F}{G} \quad (5)$$

$$\text{où } F = \sum_{j=1}^n \frac{\left(\frac{V_0}{V_j} - 1\right)^2}{\sigma_{Q_j}^2} \text{ et } G = \sum_{j=1}^n \frac{Q_j \left(\frac{V_0}{V_j} - 1\right)}{\sigma_{Q_j}^2}$$

La formule (5) est valable pour  $n$  concentrations  $Q_j$  d'alcool éthylique différentes auxquelles correspondent  $n$  hauteurs d'impulsion  $V_j$ ,  $V_0$  étant la hauteur d'impulsion du scintillateur pur.  $\sigma_{Q_j}$  est la déviation standard de  $Q_j$ . En calculant les déviations standards  $\sigma_{V_j}$  de  $V_j$  et  $\sigma_K$  de  $K$ , nous avons obtenu l'erreur commise sur  $K$ . Le grand nombre de données exprimées sur bandes perforées et la complexité du traitement de ces données nous ont conduit à programmer les calculs. Le programme est effectué par l'ordinateur IBM 7040 du Centre de Calcul de l'Université de Liège.

La figure 6 montre l'inhibition de la « solution scintillante » par l'alcool éthylique lors de l'excitation du scintillateur par le rayonnement  $\beta$  du  $^{14}\text{C}$ . Les hauteurs d'impulsions, la pente de la droite et son erreur ont été calculées au moyen des relations (4) et (5).

### III.2. Discussion des résultats.

La figure 2 montre à peine le pic des  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$ . Une mesure de la hauteur d'impulsion par la technique décrite au paragraphe III.1.A est donc impossible dans ces conditions. Lors de l'irradiation par le rayonnement  $\alpha$  de  $^{241}\text{Am}$  (figure 3), la résolution du pic est de 73,5 % pour le scintillateur pur et de 85 % pour le scintillateur inhibé par 1,5 mole/l d'alcool éthylique. On peut donc s'attendre à une mesure imprécise de la hauteur d'impulsion par la même méthode. C'est bien ce que montre la dispersion des points obtenus dans l'expérience de la figure 4. Des conditions de travail inadaptées peuvent d'ailleurs rendre cette technique de mesure inutilisable. En effet, Lerch et Cosandey montrent que la résolution d'un scintillateur liquide, pour un rayonnement mono-énergétique, dépend des caractéristiques de l'appareillage et de la composition de la solution scintillante.

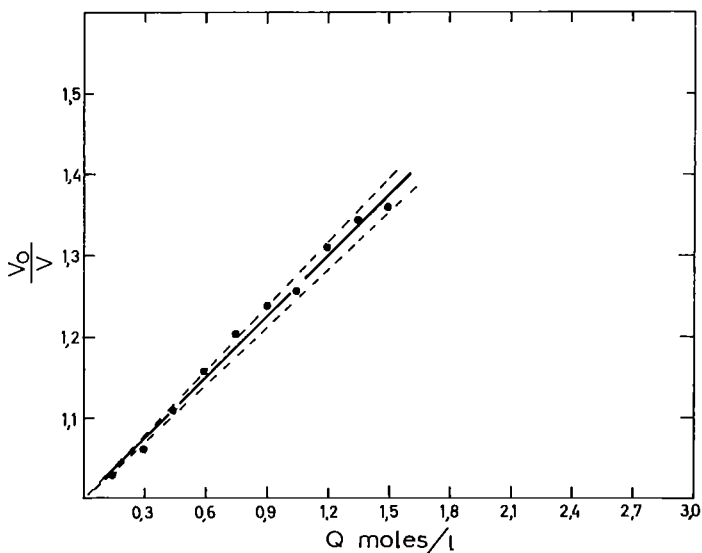


Figure 6

Inhibition par l'alcool éthylique du scintillateur marqué au  $^{14}\text{C}$

TABLEAU I

Résumé des résultats obtenus

| Nature de la source               | Grandeurs utilisées comme mesures d'intensité                         | Valeur de K obtenue en 1/mole | Reproductibilité de la mesure |
|-----------------------------------|---|-------------------------------|-------------------------------|
| toluène marqué au $^{14}\text{C}$ | hauteur moyenne d'impulsion calculée (III.1.D)                        | $(0,247 \pm 0,015)$           | excellente                    |
| $^{137}\text{Cs}$ extérieure      | hauteur moyenne d'impulsion calculée (III.1.D)                        | $(0,255 \pm 0,017)$           | excellente                    |
|                                   | hauteur d'impulsion repérée sur les courbes intégrales (III.1.C)      | $(0,29 \pm 0,02)$             | 75 % des cas                  |
|                                   | hauteur d'impulsion repérée sur les courbes différentielles (III.1.B) | $(0,35 \pm 0,02)$             | irreproductible               |



Le tableau I résume les résultats fournis par les techniques décrites aux paragraphes III.1.B, III.1.C et III.1.D. Dans chaque cas, nous avons obtenu des droites analogues à celles de la figure 6, ce qui confirme les données publiées précédemment [4, 10]. L'expérience montre cependant que la mesure des constantes d'inhibition K est peu reproductible, lorsque l'on emploie les méthodes III.1.B ou III.1.C, empiriques d'ailleurs. Mais les mesures sont identiques aux erreurs près, que la source excitatrice soit émettrice  $\beta$  ou  $\gamma$ , lorsque l'on emploie la technique III.1.D. L'expérience indique aussi que cette proposition est vraie dans une large gamme de conditions d'appareillage. De plus, la reproductibilité est excellente.

Ces constatations constituent un argument de poids en faveur de l'utilisation de cette méthode de mesure des intensités lumineuses, si l'on s'en réfère aux considérations mentionnées dans l'introduction.

Le tableau II compare nos valeurs de K, pour des inhibiteurs et des scintillateurs donnés, avec celles obtenues par Lerch et Cosandey [11]. Il est très probable que l'utilisation du xylène et du PBD en lieu et place du toluène et du PPO n'affecte pas beaucoup la constante d'inhibition. La théorie le confirme d'ailleurs. Les valeurs de K que nous avons obtenues en utilisant la technique de mesure III.1.D, différente de celle employée par les auteurs précités (voir Introduction), sont voisines des valeurs qu'ils ont publiées. Les erreurs de mesure sont du même ordre de grandeur. Le fait que nos valeurs soient systématiquement plus élevées que celles de Lerch et Cosandey s'explique très probablement par une différence dans les conditions de préparation des scintillateurs. Dans un prochain travail nous montrerons en effet que la valeur de K diminue avec la pureté de la solution scintillante.

TABLEAU II  
*Tableau comparatif des résultats*

| Inhibiteurs  | Résultats obtenus par Lerch et Cosandey |                       | Résultats obtenus par nous                 |                       |
|--|---|-----------------------|--|-----------------------|
|  | solution scintillante utilisée          | valeurs de K (1/mole) | solution scintillante utilisée             | valeurs de (K 1/mole) |
| alcool méthylique  | toluène                                 | 0,13 $\pm$ 0,01       | xylène PBD (5 g/l)                         | 0,184 $\pm$ 0,016     |
|  | PPO (5 g/l)<br>POPOP (0,05 g/l)         |                       | POPOP (0,05 g/l)                           |                       |
| alcool éthylique<br>benzoate de méthyle<br>acide benzoïque | idem                                    | 0,17 $\pm$ 0,02       | toluène<br>PPO (5 g/l)<br>POPOP (0,05 g/l) | 0,247 $\pm$ 0,015     |
|  | idem                                    | 9,3 $\pm$ 0,5         | idem                                       | 10,50 $\pm$ 0,45      |
|  | idem                                    | 6,3 $\pm$ 0,3         | idem                                       | 7,13 $\pm$ 0,38       |

## V. CONCLUSIONS

La mesure de l'intensité de la lumière émise dans les scintillateurs liquides est effectuée très souvent par le truchement de la détermination de la hauteur des impulsions situées en un endroit bien défini du spectre du rayonnement excitateur.

La détermination de la hauteur des impulsions localisées au sommet de la courbe différentielle du spectre d'un rayonnement  $\alpha$  donne des résultats peu valables dans nos conditions de travail.

La mesure de la hauteur des impulsions dont le nombre est la centième partie de celui qui est extrapolé, d'après les courbes intégrales du spectre d'un rayonnement  $\gamma$ , à la valeur 0 volt du potentiel appliqué au seuil inférieur du spectromètre, donne des résultats peu reproductibles. Il en va de même pour la détermination de la hauteur des impulsions situées à mi-hauteur du seuil du spectre différentiel du même rayonnement.

Le calcul de la hauteur moyenne d'impulsion, par la relation (4) que nous avons établie, est une technique très précise puisqu'elle fournit des hauteurs moyennes d'impulsion relatives indépendantes de la nature de la source excitatrice ainsi que des conditions d'appareillage. De plus, dans ces conditions, la valeur de la constante d'inhibition et sa précision, calculées pour un scintillateur et un inhibiteur donnés d'après l'équation (5) que nous proposons, sont voisines de celles que d'autres auteurs ont déterminées en employant une technique différente.

## REMERCIEMENTS

Messieurs les Professeurs DESREUX, DUYSKAERTS, DIEU et GOVAERTS ont accepté de m'accorder de longs et fructueux entretiens. Qu'ils me permettent de les remercier vivement pour l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail.

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] H. KALLMANN et M. FURST, *Phys. Rev.*, 79 (1950), 857.
- [2] H. KALLMANN et M. FURST, *Nucleonics*, 8, n° 3 (1951), 32.
- [3] R. C. SANGSTER et J. W. IRVINE, *J. Chem. Phys.*, 24 (1956), 670.
- [4] B. L. FUNT et A. HETHERINGTON, *Intern. J. Appl. Radiation and Isotopes*, 13 (1962), 215.
- [5] W. STOLZ, *Kernenergie*, 5, n° 9 (1962), 668.
- [6] W. H. MELHUISE, *J. Chem. Phys.*, 40, n° 5 (1964), 1369.
- [7] S. KOBAYASCHI, *Japanese Journal of Applied Physics*, 2, n° 5 (1963), 281.
- [8] F. N. HAYES, B. S. ROGERS et F. C. SANDERS, *Nucleonics*, 13, n° 1 (1955), 46.
- [9] F. N. HAYES, D. G. OTT, V. N. KERR et B. S. ROGERS, *Nucleonics*, 13, n° 12 (1955), 38.
- [10] P. LERCH et M. COSANDEY, *Biophysik*, 2 (1964), 67.
- [11] P. LERCH et M. COSANDEY, *Helv. Chim. Acta*, 47, n° 8 (1964), 2417.
- [12] E. BREITENBERG, *Progr. in Nuclear Phys.*, 4 (1955), 56.

*Laboratoire d'Application des Radioéléments  
Université de Liège*