

PREMIER MINISTRE  
COMMISSARIAT A  
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

**DÉTERMINATION DE LA FORME  
DES IMPULSIONS LUMINEUSES  
TRÈS BRÈVES.  
APPLICATION AUX PHÉNOMÈNES  
DE SCINTILLATION**

par

Yves KOEHLIN

Rapport C.E.A. n° 2194

1962

CENTRE D'ÉTUDES  
NUCLÉAIRES DE SACLAY

KOECHLIN Yves

C.E.A. n° 2194

**DETERMINATION DE LA FORME DES IMPULSIONS LUMINEUSES TRES BREVES. APPLICATION  
AUX PHENOMENES DE SCINTILLATION (1962).**

**Sommaire :**

A l'occasion d'études sur les photomultiplicateurs et les scintillateurs nous avons mis au point une nouvelle méthode de mesure permettant de déterminer avec précision la forme des impulsions lumineuses dont la durée peut être inférieure à celle d'une impulsion anodique de photomultiplicateur. Cette méthode, qui peut s'appliquer à des impulsions non récurrentes, permet d'étudier les scintillations provoquées par des particules ou des photons, à la seule condition que l'on puisse opérer sur un grand nombre d'impulsions ayant la même forme. Nous avons déterminé ainsi la forme des scintillations des divers liquides fluorescents excités par des particules  $\alpha$  et des photons  $\gamma$ . Les résultats obtenus sont en accord avec la théorie des transferts d'énergie dans les scintillateurs organiques, élaborée par H. KALLMANN et M. FURST. Ils conduisent à une détermination précise des paramètres intervenant dans cette théorie.

80 pages

1963

KOECHLIN Yves

C.E.A. n° 2194

**DETERMINATION OF THE FORM OF VERY SHORT LUMINOUS PULSES. APPLICATION TO  
SCINTILLATION PHENOMENA (1962).**

**Summary :**

During studies on photomultipliers and scintillators we have developed a new method of measurement making it possible to determine with precision the form of luminous pulses whose duration may be less than that of an anodic photomultiplier pulse. This method, which can be applied to non-recurrent pulses, makes possible the study of scintillations caused by particles or photons in the case where it is possible to operate on a large number of pulses having the same form. We have thus determined the form of the scintillations of various fluorescent liquids excited by  $\alpha$  particles and  $\gamma$  photons. The results obtained are in agreement with the energy transfer theory for organic liquids elaborated by H. KALLMANN and M. FURST. The results are used to determine exactly the parameters occurring in the theory.

80 pages

1963

# THÈSES

PRÉSENTÉES

## A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

PAR

**Yves KOECHLIN**

---

### PREMIÈRE THÈSE

Détermination de la forme des impulsions lumineuses très brèves  
Application aux phénomènes de scintillation

### DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

---

Soutenues le 21 décembre 1961 devant la Commission d'Examen

MM. PERRIN

Président

GRIVET

TEILLAC

LABEYRIE

}

Examineurs

Invité

En premier lieu, je prie M. le Professeur Francis PERRIN, HAUT-COMMISSAIRE à l'énergie Atomique, qui me fait l'honneur de présider le jury, de trouver ici l'expression de mon très respectueux dévouement.

M. le Professeur Pierre GRIVET a bien voulu patronner mon travail, je le prie de recevoir l'expression de ma respectueuse gratitude.

Je remercie M. le Professeur Jean TEILLAC des conseils qu'il m'a généreusement prodigués.

Que M. Maurice SURDIN trouve ici l'expression de ma reconnaissance pour l'intérêt qu'il a toujours témoigné pour ce travail.

Ce m'est un devoir agréable de remercier M. Jacques LABEYRIE qui m'a permis grâce à ses conseils éclairés de réaliser ce travail.

Je remercie également M. André BLANC qui m'a apporté l'appui de ses nombreuses connaissances.

M. le Professeur BERNARD a suivi de très près l'évolution de mon travail, qu'il trouve ici mes remerciements et ma reconnaissance.

Que M. Milton FURST dont l'aide m'a été très précieuse par les nombreux entretiens que nous avons eus, accepte mes remerciements amicaux.

Les scintillateurs ont été préparés par M. MOUGIN, l'appareillage et une partie des mesures décrites dans les chapitres III et IV ont été réalisés en collaboration avec MM. B. AGRINIER et A. RAVIART. Je les remercie vivement pour le concours très précieux qu'ils m'ont apporté constamment.

## AVANT-PROPOS

On sait que le phénomène de luminescence doit son origine à l'émission de rayonnements optiques par certains corps lorsqu'ils sont soumis à un flux de rayonnement électromagnétique ou particulière.

On a coutume de classer les différentes formes de luminescences suivant la nature de l'agent excitateur. C'est ainsi que la photo-luminescence, par exemple, consiste en l'absorption de rayonnements optiques par la substance luminescente suivie d'une émission correspondant à sa fréquence caractéristique de désactivation.

Jusqu'à ces derniers temps, la plus grande partie de nos connaissances sur la luminescence provenait d'expériences où l'agent excitateur était constitué par des rayonnements ultra-violets .

Depuis une dizaine d'années cependant, la mise au point de détecteurs de rayonnements nucléaires basés sur le phénomène de luminescence a permis d'apporter un grand nombre de résultats expérimentaux et d'idées nouvelles.

C'est ainsi que la radio-luminescence provoquée par le passage dans certaines matières de particules ionisantes porteuses d'énergie souvent considérable, fait actuellement l'objet d'études de plus en plus approfondies.

Parmi les méthodes d'investigation envisagées dans ce domaine, la mesure de la durée de désactivation de la matière luminescente à la suite de l'absorption d'une particule ionisante individuelle apporte des précisions importantes sur le déroulement du processus de radio-luminescence.

Nous en avons entrepris l'étude au moyen de matériels récents dont nous avons suivi la mise au point (en particulier les photomultiplicateurs rapides), en appliquant une nouvelle méthode d'échantillonnage que nous présentons ici.

## I. - INTRODUCTION

A l'occasion d'études sur les photomultiplicateurs et les scintillateurs, nous avons mis au point une nouvelle méthode de mesure pour déterminer la forme d'impulsions de lumière très brèves.

Lorsqu'un flux lumineux est soumis à des variations au cours du temps, le moyen le plus simple pour déterminer ces dernières est d'utiliser une cellule photoélectrique à vide. La couche sensible d'une telle cellule présente un processus de transformation des photons en électrons dont l'inertie est pratiquement nulle et dont la proportionnalité s'étend à un large domaine d'intensité. Le flux de photons est transformé en flux d'électrons ; le courant correspondant est analysé par les méthodes usuelles de l'électronique (oscilloscope cathodique par exemple).

S'il s'agit cependant de flux lumineux très faibles et variant très rapidement au cours du temps, comme c'est le cas de celui provenant de scintillations, le courant photoélectrique correspondant ne pourra être analysé qu'après amplification par un amplificateur de gain et bande passante convenables. Le flux lumineux des scintillations reçu par la couche photosensible correspond au maximum à quelques milliers de photons, émis en quelques microsecondes (et souvent en quelques nanosecondes<sup>(1)</sup> : cas des scintillations des corps fluorescents organiques). Le rendement quantique moyen des couches photoélectriques à vide (probabilité qu'un photon incident provoque l'émission d'un photoélectron), est de l'ordre d'un dixième : le nombre total de photoélectrons émis dans ce cas est donc seulement de quelques centaines. Rendre décelable au moyen d'un amplificateur à lampes un aussi petit nombre total d'électrons est pratiquement impossible par suite du bruit de la résistance d'entrée ; la mesure du courant correspondant ne peut être envisagée.

C'est pourquoi le compteur à scintillations, n'a pu se développer qu'à partir du photomultiplicateur, association de la couche photoélectrique à vide et d'un dispositif multiplicateur utilisant le processus d'émission secondaire. Le gain de ce multiplicateur peut atteindre des valeurs aussi élevées que  $10^9$  rendant décelable l'émission d'un seul électron de la photocathode. Si la couche de cette dernière ne présente pas d'inertie appréciable, le multiplicateur, par la nature statistique des trajectoires électroniques interdynode, apporte des fluctuations au temps de transit des électrons qu'il multiplie. Ce phénomène se manifeste même dans les photomultiplicateurs à grand gain les plus rapides à ce jour ; l'impulsion anodique, relative à l'émission d'un seul photoélectron, présente une forme quasi gaussienne dont la largeur entre inflexions est de l'ordre de deux nanosecondes.

Le photomultiplicateur peut être assimilé -quand son courant anodique n'est pas trop élevé- à un système linéaire dont la réponse à l'impulsion unité est représentée par l'impulsion anodique relative à un photoélectron (réponse impulsionnelle). Il est le dispositif le plus puissant et le plus simple pour apprécier les caractéristiques temporelles des phénomènes lumineux de très faible intensité, dont la durée reste supérieure à quelques dizaines de nanosecondes. Cependant la durée de certains phénomènes lumineux, en particulier les scintillations des corps organiques fluorescents excités par des particules ionisantes, se limite à quelques nanosecondes et le front de montée de ces impulsions lumineuses est resté jusqu'à présent inaccessible à l'expérience ; il est estimé à quelques dixièmes de nanosecondes seulement.

La connaissance de la forme complète des scintillations doit nous permettre de confronter à l'expérience les hypothèses établies sur le mécanisme de la scintillation, mécanisme faisant état de transferts non radiatifs entre les molécules excitées du scintillateur. Elle doit aussi nous éclairer sur le phénomène de saturation provoqué par les particules à forte densité d'ionisation (particules alpha). Enfin la connaissance du front de montée des scintillations est nécessaire à l'étude

-----  
(1) La nanoseconde vaut  $10^{-9}$  secondes.

de l'adaptation du photomultiplicateur aux scintillateurs et permet en particulier de préciser la limite supérieure de la *bande passante* à exiger des multiplicateurs futurs.

Plusieurs procédés de mesure ont été employés pour étudier la forme des scintillations ultra-brèves.

Une première méthode consiste à utiliser un photomultiplicateur rapide mais de faible gain, le R.C.A. IP28, dont les impulsions anodiques sont analysées à l'aide d'un oscilloscope de très grande bande passante. POST et SHIREN (1950) et SINGER (1956) ont à la fois augmenté le gain et réduit la largeur de la réponse impulsionnelle de ce photomultiplicateur en lui appliquant, par impulsions, des tensions beaucoup plus élevées que celles qu'il pourrait supporter en régime continu.

SWANK et BUCK (1958) ont employé le photomultiplicateur dans des conditions de fonctionnement normal, mais ont excité les scintillateurs par des paquets d'électrons arrivant simultanément sur ces derniers, palliant ainsi par la forte intensité d'excitation le faible gain de ce photomultiplicateur.

Une deuxième méthode, mise au point par BURTON (1959), consiste à utiliser un obturateur rapide associé à un générateur d'impulsions de rayons X. Ces derniers excitent périodiquement le scintillateur suivant des créneaux carrés de durée et d'intensité constante. L'obturateur électronique est ouvert avec un retard donné sur la fin de l'excitation, laissant impressionner un photomultiplicateur par la partie restante de la scintillation. La mesure de la quantité de lumière reçue par ce dernier en fonction du retard à l'ouverture de l'obturateur permet d'obtenir la courbe de décroissance de la scintillation.

Une troisième méthode due à GAVIOLA (1927) et reprise en particulier par KNAU (1957) utilise le principe dit du "retard de phase". Un scintillateur reçoit une excitation optique ou électronique dont le flux est modulé sinusoïdalement. La lumière de fluorescence émise présente une modulation de même pulsation mais dont le retard de phase et l'amplitude sont fonction du temps de vie moyen des molécules excitées du scintillateur.

Aucune de ces trois méthodes ne permet jusqu'à présent de déterminer la forme complète des scintillations des corps fluorescents organiques liquides, leur front de montée restant inaccessible à l'expérience, soit parce que la précision de l'appareillage n'est pas suffisante comme dans les deux premières méthodes, soit parce que le principe de mesure ne permet pas de connaître simultanément plusieurs temps de vie moyens. De plus, les deux dernières méthodes nécessitent une excitation d'intensité modulée limitant les agents excitateurs aux rayons ultra-violets, X et bêta.

En conclusion, tous ces procédés de mesure restent incomplets ; d'une part, ils ne permettent pas l'étude des scintillations engendrées par les particules  $\alpha$  ou les photons  $\gamma$  et d'autre part, ils sont incapables de nous fournir directement la forme complète d'une scintillation brève.

Nous avons élaboré une nouvelle méthode permettant de combler ces lacunes. Basée sur le principe de l'échantillonnage, elle permet de reconstituer la forme complète d'impulsions lumineuses, (dont la durée peut être inférieure à la nanoseconde), provoquées par des particules quelconques ou des photons, à la seule condition que l'on puisse opérer sur un grand nombre d'impulsions.

Nous montrons dans le chapitre II comment une caractéristique particulière au photomultiplicateur 56 AVP nous a permis d'élaborer cette méthode que nous analysons en détail.

Dans le chapitre III, nous décrivons le dispositif que nous avons mis au point, nous exposons les mesures que nous avons effectuées avec ce dispositif sur les impulsions lumineuses très brèves créées au sein d'un gaz sous pression ; la limite de précision du dispositif est donnée après analyse des diverses causes d'erreur.

Dans le chapitre IV, nous donnons un aperçu des théories actuelles du mécanisme de la scintillation dans les scintillateurs liquides et nous montrons comment notre méthode permet de préciser les paramètres intervenant dans ces théories, nous décrivons également les mesures effectuées avec notre dispositif sur des scintillateurs liquides constitués par des solutions connues de produits fluorescents.

En conclusion, la méthode que nous présentons permet d'utiliser de nombreuses sortes de radiations excitatrices et le dispositif décrit met en oeuvre cette méthode dans un domaine de mesure non encore atteint jusqu'à présent. Nous avons ainsi pu mettre en évidence et -pour la première fois à notre connaissance- mesurer les temps de montée de scintillateurs organiques.

## II. - DESCRIPTION ET CHAMP D'APPLICATION DE NOTRE MÉTHODE D'ÉCHANTILLONNAGE

### 2-1 - LE PHOTOMULTIPLICATEUR (P.M.)

Dans la première partie de ce chapitre nous décrivons rapidement le photomultiplicateur standard ainsi que le photomultiplicateur rapide 56 AVP. Nécessaire aux études de Physique nucléaire, ce dernier est beaucoup plus élaboré que le précédent. Nous précisons ses caractéristiques essentielles et les limites qui en résultent pour la détermination de la forme des impulsions lumineuses par mesure de son courant anodique.

Dans la deuxième partie nous montrons comment ces limites peuvent être reculées en utilisant le fait que le photomultiplicateur 56 AVP détermine avec précision l'instant d'arrivée d'un photon sur sa photocathode.

Cette remarque établit la possibilité de reconstituer la forme des impulsions lumineuses par échantillonnage sur des photons individuels émis par chaque impulsion successive. Nous en exposons le principe et décrivons sa mise en œuvre au moyen du photomultiplicateur 56 AVP.

#### 2-1.1 - Photomultiplicateurs de types courants

Les caractéristiques essentielles des photomultiplicateurs classiques, courants dans les laboratoires de physique nucléaire (par exemple : le 5819 RCA, le EMI 6097, le DUMONT 6292 et le 53 AVP DARIO) sont les suivants :

Une enveloppe de verre de 50 mm de diamètre environ, porte à son extrémité une photocathode plane semi-transparente de  $15 \text{ cm}^2$  formée par un dépôt mince du composé intermétallique  $\text{Cs}_3\text{Sb}$ . La sensibilité spectrale de cette couche (GORLICH, 1957) s'étend de l'ultra-violet jusque vers  $6.000 \text{ \AA}$  (figure 1) et sa valeur moyenne, lorsqu'elle est éclairée par une source à  $2.000^\circ \text{ K}$ , atteint à l'heure actuelle 60 à 80 A/Lumen. Dans la région spectrale du maximum de sensibilité, un photon sur dix en moyenne provoque l'émission d'un photoélectron hors de la couche.

Dix ou onze électrodes multiplicatrices font suite à la photocathode. Elles sont recouvertes du même alliage  $\text{Cs}_3\text{Sb}$  comme dans les deux premiers modèles cités ou constituées d'argent-magnésium comme dans les deux derniers. Un gain électronique d'environ  $2.10^6$  est obtenu pour une différence de potentiel totale d'environ 1200 V pour les dynodes à antimoine-césium, et d'environ 2000 V pour les dynodes en argent-magnésium. Leur gain devient généralement instable dès qu'il dépasse  $3.10^6$ . (Par exception celui de l'EMI peut atteindre environ  $10^7$ .)

Le courant d'obscurité de ces photomultiplicateurs, dû à l'émission thermique d'électrons par la photocathode et les premiers étages, a été considérablement réduit au cours des dernières années. Il est actuellement de  $10^{-8}$  ampère environ, à la température ambiante, pour le gain  $2.10^6$ .

Ainsi, la cathode de  $15 \text{ cm}^2$  émet spontanément  $5.10^{-15} \text{ A}$ , soit 30.000 électrons par seconde, émis au hasard.

Lorsque cette émission est gênante, comme c'est le cas dans la détection de particules produisant très peu de photons dans le scintillateur, il est nécessaire d'observer ce dernier par deux photomultiplicateurs, et de compter seulement les impulsions anodiques simultanées. Par exemple, si une discrimination appropriée laisse passer 500 impulsions de bruit par seconde pour chaque multiplicateur, un dispositif à coïncidence de temps de résolution de 20 ns ramènera le bruit de fond à 0,01 impulsion par seconde.

La durée du transit des électrons à travers le tube, proportionnelle à  $V^{-1/2}$ , est, pour une tension de l'ordre de 100 V par étage, de 30 ns environ pour les différents types de tubes. Par



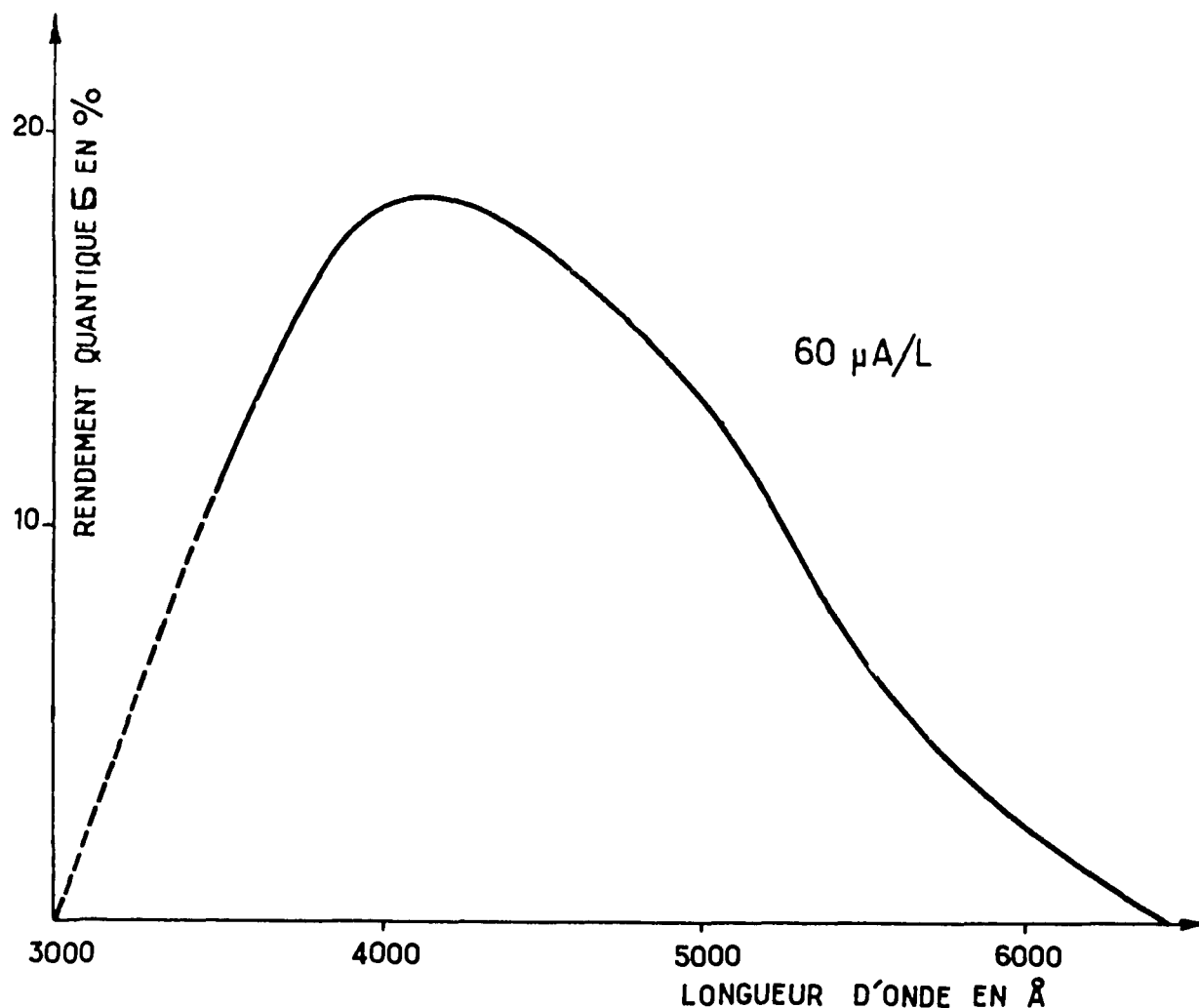


Figure 1 - Sensibilité spectrale d'une couche à l'antimoniure de Césium.

contre, les fluctuations du temps de transit, qui déterminent le temps de résolution de l'instrument et sont responsables de la largeur minimale de l'impulsion de courant à l'anode, varient considérablement avec la structure géométrique des dynodes. Les photomultiplicateurs R.C.A. et DARIO, ont des dynodes de petites dimensions entre lesquelles les trajectoires des électrons sont parcourus en des durées très voisines : les fluctuations de temps de transit sont faibles : 3 ns environ. Les photomultiplicateurs E.M.I., ont des dynodes en persiennes, entre lesquelles les électrons peuvent suivre des chemins variés de longueurs différentes : les fluctuations de temps de transit sont plus grandes : 20 ns environ. Les DUMONT, aux dynodes en forme de godet, ont des fluctuations intermédiaires entre celles des deux précédents.

Indiquons enfin que les courants anodiques sont proportionnels aux flux lumineux reçus à la cathode tant que ces courants ne dépassent pas une dizaine de mA (l'écart atteint alors 10 % environ).

Ces photomultiplicateurs classiques malgré leurs performances très supérieures à celles des photomultiplicateurs d'il y a quelques années, ont encore des défauts qui les rendent inaptes à la mesure des durées des scintillations rapides.

## 2-1.2 - Le photomultiplicateur rapide 56 AVP DARIO

### 2-1.2.1 - Nécessité du photomultiplicateur rapide en physique nucléaire

C'est au début de 1957 que s'est fait sentir, au Centre d'Etudes Nucléaires, le besoin d'un photomultiplicateur à réponse vraiment rapide car ceux que nous venons de décrire ne permettent pas d'exploiter à fond la brièveté de l'impulsion de lumière fournie par les scintillateurs. Il est apparu que l'on devait tendre à obtenir des futurs photomultiplicateurs :

a) un grand courant anodique qui, sur une faible impédance (50 à 100  $\Omega$ ), permette d'obtenir une impulsion de durée et d'amplitude convenables pour déclencher directement le circuit à coïncidence, dont l'usage est courant dans les mesures de temps.

b) des fluctuations de temps de transit aussi petites que possible, lorsque la photocathode est uniformément éclairée.

c) un gain élevé, en raison des faibles quantités de lumière tombant sur la photocathode.

d) un rendement quantique de cette dernière aussi élevé que possible afin de réduire les fluctuations statistiques de la hauteur des impulsions.

#### 2-1.2.2. - Performances du photomultiplicateur rapide

Nous avons été chargés de promouvoir l'étude et de suivre la réalisation d'un photomultiplicateur, dit "physique", comportant les caractéristiques suivantes :

- sensibilité de photocathode aussi élevée que possible ;
- gain du multiplicateur de plusieurs fois  $10^8$  ;
- courant anodique pouvant atteindre 0,3 ampère en impulsion, le fonctionnement restant linéaire.
- espace cathode-lère dynode (ou optique d'entrée) étudié pour assurer le meilleur iso-chronisme des parcours des photoélectrons, conduisant à des retards dits "centre-bord" inférieurs à 0,5 ns et à une largeur de l'impulsion anodique aussi faible que possible (de l'ordre de la nanoseconde).

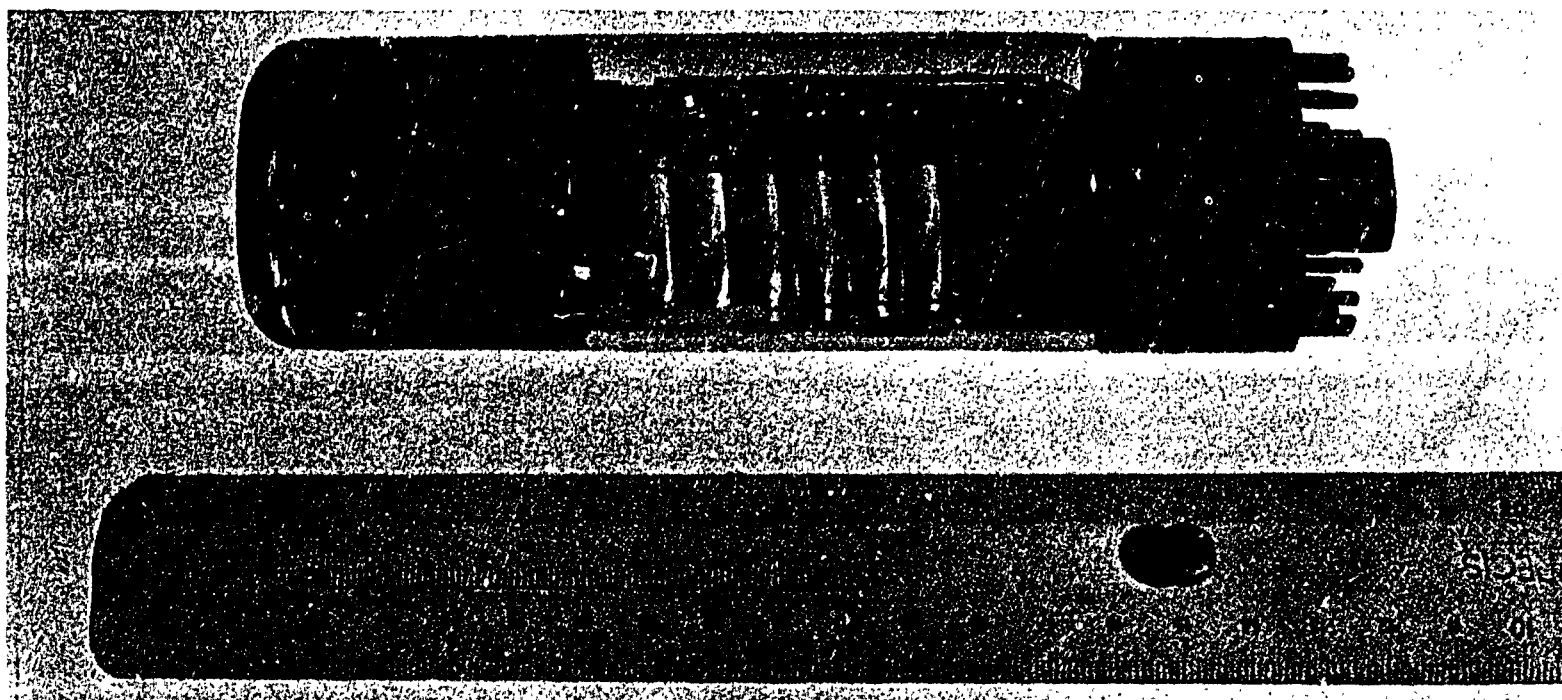


Figure 2 - Photomultiplicateur DARIO, type 56 AVP.

Ces caractéristiques ont été effectivement obtenues par le type 56 AVP DARIO (figure 2) maintenant produit en série. Dès Septembre 1958, les mérites des prototypes étudiés et réalisés par PIETRI (1958), étaient confirmés à la fois par nos mesures directes (KOECHLIN 1958) et par les résultats obtenus dans le domaine de la Physique (MEUNIER, 1958).

La précision en temps de la réponse du 56 AVP tient à ses faibles fluctuations de temps de transit obtenues grâce à une disposition judicieuse de l'optique d'entrée et des éléments du multiplicateur.

La photocathode de 56 AVP est bombée afin de diminuer le plus possible les différences de trajets entre un point de la photocathode et la première dynode. La figure 3 représente la carte des équipotentielles dans l'optique d'entrée ainsi qu'un certain nombre de trajectoires de photoélectrons supposés issus sans vitesse initiale.

Une électrode de focalisation rend sensiblement uniforme le champ électrique sur la photocathode et par là même les temps de parcours des débuts de trajectoire, où la vitesse est la plus faible. Le potentiel de cette électrode est légèrement positif par rapport à la photocathode. Son réglage commande en premier lieu la surface utile de la photocathode. On verra qu'il est nécessaire

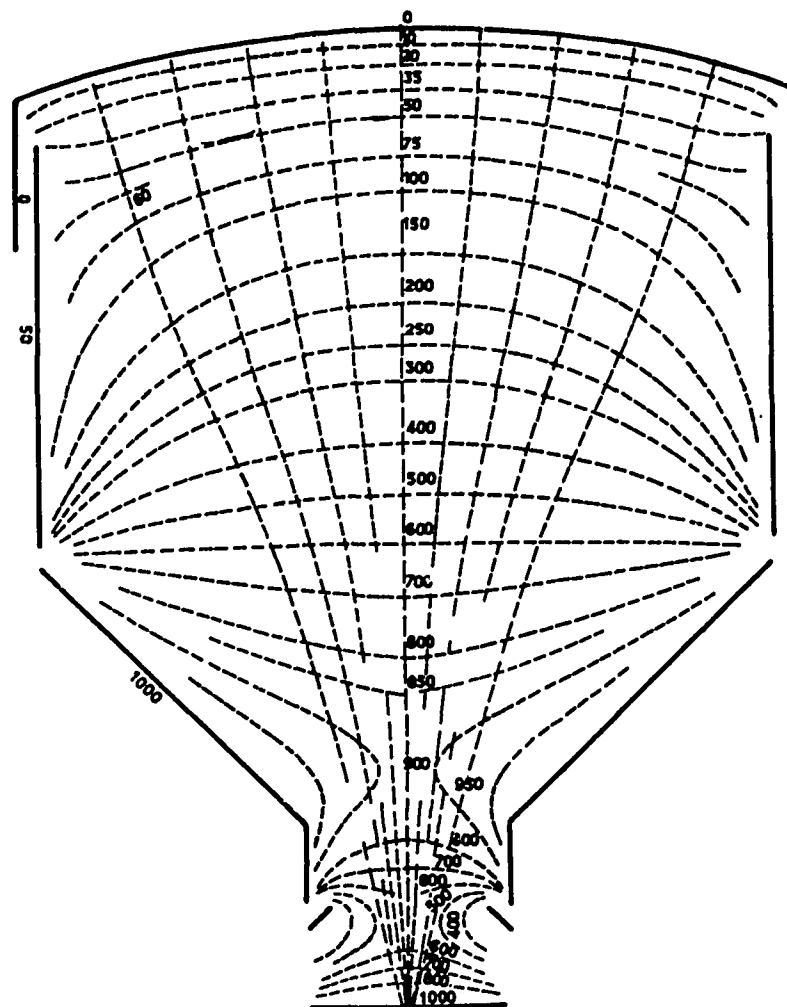


Figure 3 - Trajectoires des électrons dans l'optique d'entrée du 56 AVP. (d'après G. Piétri-1958).

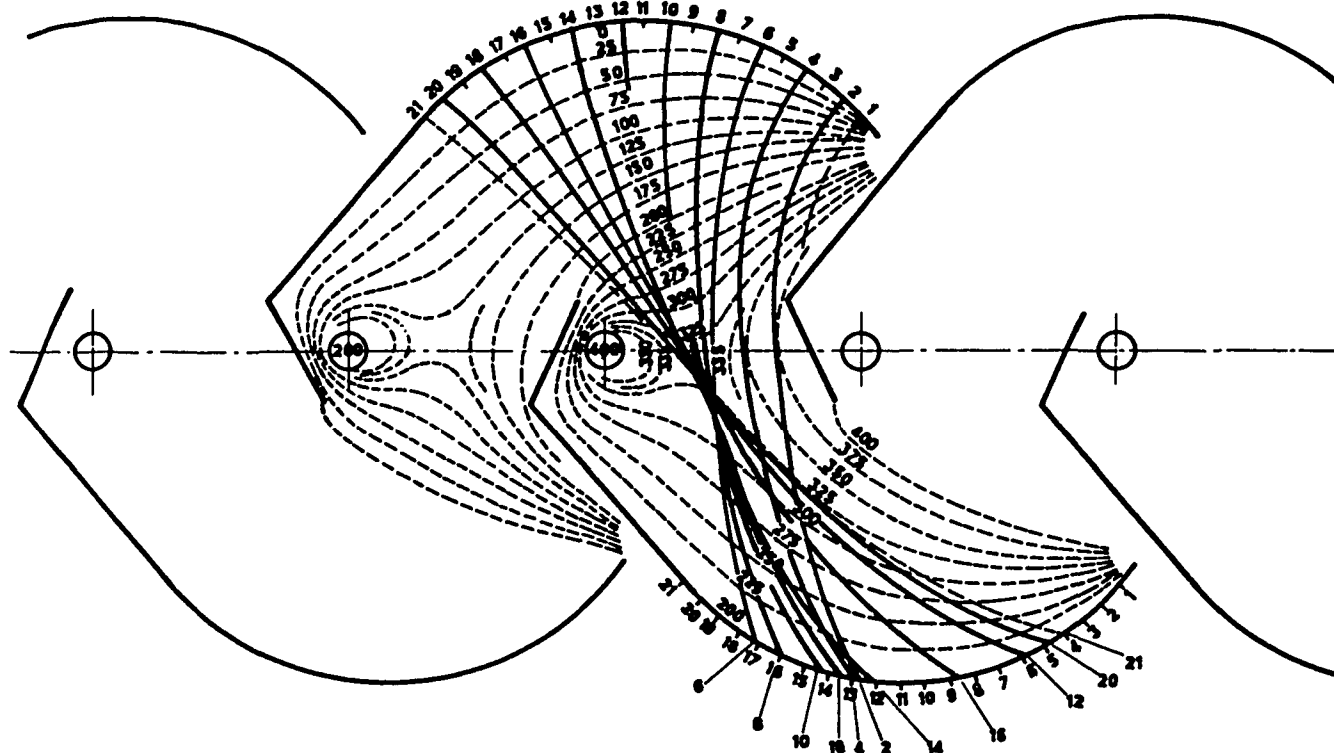


Figure 4 - Trajectoires des électrons dans le multiplicateur du 56 AVP. (d'après G. Piétri-1958).

de l'ajuster afin de réduire les fluctuations de temps de transit dans l'intervalle photocathode-1ère dynode.

Une électrode accélératrice (en forme d'entonnoir) accélère les électrons et les focalise sur la première dynode.

Enfin, à la sortie de l'accélétratrice le faisceau est renvoyé sur la première dynode par le déflecteur dont le potentiel est voisin de celui de l'accélétratrice. Dans les mêmes conditions que plus haut ce potentiel doit être ajusté au mieux.

Les fluctuations du temps de transit dans le multiplicateur ont été réduites par l'adoption d'un profil spécial pour les dynodes et par l'emploi entre chaque étage de poteaux focalisateurs que l'on voit en projection sur la figure 4.

La linéarité du tube, pour des courants de pointe élevés est améliorée en augmentant les différences de potentiel appliquées aux derniers étages (voir figures 5 et 6). En répartition B des potentiels on observe un fonctionnement linéaire pour un courant de pointe maximum de 300 mA.

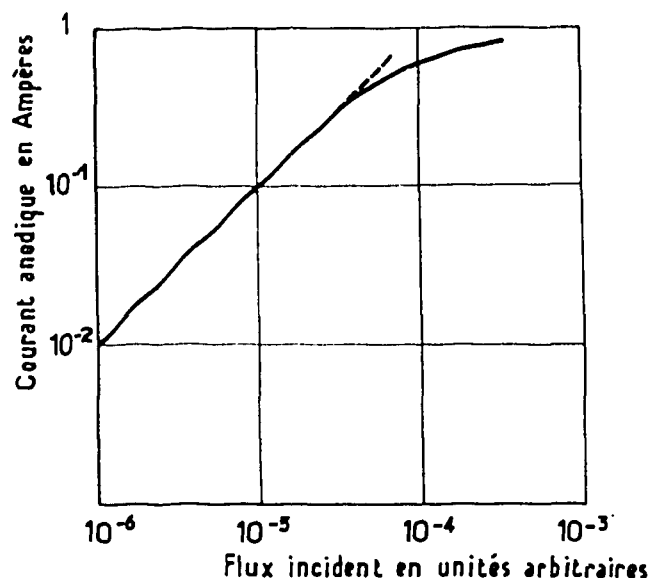


Figure 5 - Variation du courant anodique d'un 56 AVP en fonction du flux incident.

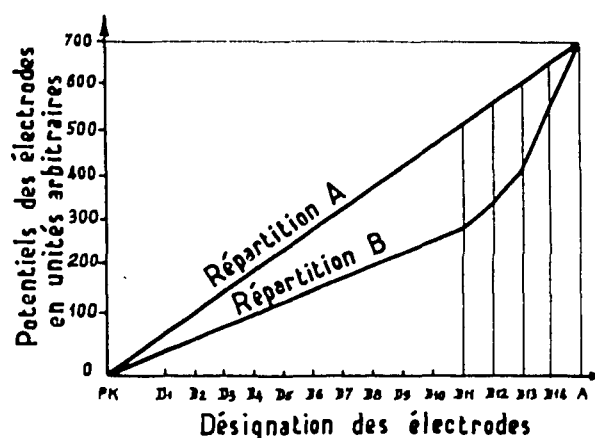


Figure 6 - Répartition type du potentiel d'alimentation d'un photomultiplicateur 56 AVP.

### 2-1.2.3 - Mesure de la rapidité de réponse du 56 AVP DARIO

Nous avons mesuré les défauts d'isochronisme des trajectoires électroniques dans l'optique d'entrée (intervalle cathode-1ère dynode) et dans les espaces interdynodes.

a) Défauts d'isochronisme dans l'optique d'entrée ; même dans une optique d'entrée particulièrement bien étudiée comme c'est le cas dans le 56 AVP, les photoélectrons périphériques présentent à leur arrivée sur la dynode un retard sur ceux émis au même instant au centre de la photocathode. Ces retards sont dits "écarts centre-bord". L'optique d'entrée est le siège d'un autre défaut d'isochronisme : en un point donné de la photocathode, les électrons émis avec des vitesses initiales de grandeurs et directions variées ont des trajectoires différentes qui sont parcourues en des temps inégaux.

L'estimation de ces fluctuations de temps de transit, relatives à un point donné de la photocathode, n'est possible qu'en précédant en ce point, à des mesures sur des photoélectrons isolés.

b) Défauts d'isochronisme dans le multiplicateur. Dans le multiplicateur le photoélectron donne lieu à une cascade d'électrons secondaires, dont l'arrivée constitue l'impulsion anodique. Ce processus de multiplication s'accompagne d'un étalement dans le temps : le paquet d'électrons s'élargit peu à peu, donnant à l'impulsion anodique une forme en cloche se rapprochant d'une courbe de Gauss. L'analyse de cette courbe fournit la valeur des fluctuations du temps de transit de l'ensemble des étages du multiplicateur. Pour éliminer l'influence de l'optique d'entrée, il est nécessaire que l'impulsion anodique analysée corresponde à l'entrée d'un seul photoélectron dans le multiplicateur.

Deux moyens permettent de s'assurer que l'impulsion anodique correspond effectivement à un électron unique. Le premier consiste à opérer sur les impulsions anodiques correspondant aux électrons émis par effet thermoionique ; le second à utiliser un générateur d'impulsions lumineuses

d'intensité suffisamment faible pour que chacune d'elles ne puisse arracher qu'un photoélectron au maximum.

c) Défauts d'isochronisme de l'ensemble du photomultiplicateur. L'analyse de l'impulsion anodique correspondant à une impulsion lumineuse ultra-courte, éclairant toute la surface de la photocathode, fournit une évaluation de la rapidité de réponse globale du photomultiplicateur. Une telle impulsion lumineuse (de durée très inférieure à  $10^{-9}$ s) peut être fournie par la lumière Cerenkov produite par le passage d'une particule relativiste du rayonnement cosmique dans un bloc de plexiglass : l'intensité lumineuse est suffisante pour arracher plus d'une centaine de photoélectrons à l'ensemble de la photocathode.

La mesure des défauts d'isochronisme de l'optique d'entrée nécessite l'emploi d'un générateur d'impulsions lumineuses extrêmement brèves dont on peut repérer l'instant d'émission avec précision. Nous avons d'abord utilisé un générateur, construit dans notre laboratoire, constitué par une bille d'acier oscillant dans l'air entre deux billes fixes formant les extrémités de lignes coaxiales.

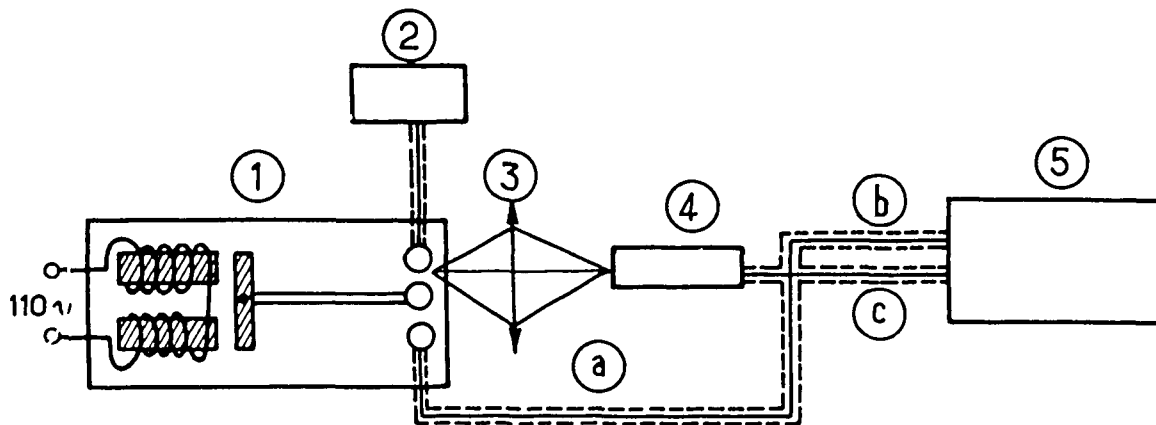


Figure 7 - Dispositif de mesure de l'écart d'isochronisme dans l'optique du 56 AVP au moyen du générateur à bille oscillante.

- 1 - Générateur à bille oscillante
- 2 - Alimentation H.T. du générateur
- 3 - Optique
- 4 - Photomultiplicateur
- 5 - Oscilloscope E.G.G.

Câbles coaxiaux a) Signal électrique du générateur à bille - 6 mètres de câble 100  $\Omega$   
b) Signal lumineux et signal électrique - 10 mètres de câble 100  $\Omega$   
c) Déclenchement de l'oscilloscope - 2 mètres de câble 50  $\Omega$

La figure 7 donne le schéma de ce générateur. Une des lignes est reliée à une source de tension de quelques milliers de volts, l'autre est fermée sur son impédance caractéristique. La bille oscille à la fréquence 50 Hz. Fixée à un isolant, elle se charge et se décharge alternativement pendant chaque période. Deux étincelles éclatent au voisinage immédiat des deux billes, l'une à la charge, l'autre à la décharge. Ces étincelles et les impulsions électriques de charge et de décharge d'une durée totale inférieure à la nanoseconde ont leur développement dans le temps parfaitement liés et un instant, repéré dans l'impulsion électrique, peut servir d'origine des temps pour le phénomène lumineux. Un dispositif optique forme une image de l'étincelle de décharge sur la photocathode du photomultiplicateur.

Pour la mesure des écarts centre-bord, nous avons utilisé par la suite un générateur dont nous avons demandé l'étude et la réalisation à la Faculté des Sciences d'Alger (CACHON, 1960). Ce générateur d'impulsions lumineuses comporte un tube oscilloscope type "Flying Spot". La grille de commande du tube est attaquée cinquante fois par seconde par une impulsion d'une durée de l'ordre d'une nanoseconde. Un paquet d'électrons de même durée frappe l'écran du tube dont la couche fluorescente porte l'appellation commerciale P 16. Une luminescence de durée de quelques di-

zaines de nanosecondes est provoquée en un point de l'écran dont l'image est projetée sur la photocathode du photomultiplicateur. L'intensité lumineuse peut être modifiée dans un très large domaine ; l'instant d'illumination est repéré grâce à l'impulsion attaquant la grille de commande.

d) Dispositif d'analyse. L'analyse de la forme de l'impulsion anodique est effectuée à l'oscilloscope cathodique à ondes progressives Edgerton dont une des plaques est connectée à l'anode du photomultiplicateur. Le balayage du faisceau cathodique est déclenché par l'impulsion électrique du générateur de lumière utilisé. La figure 8 indique le montage de cette expérience décrite en détail au Colloque d'Electronique Nucléaire (KOECHLIN, 1958).

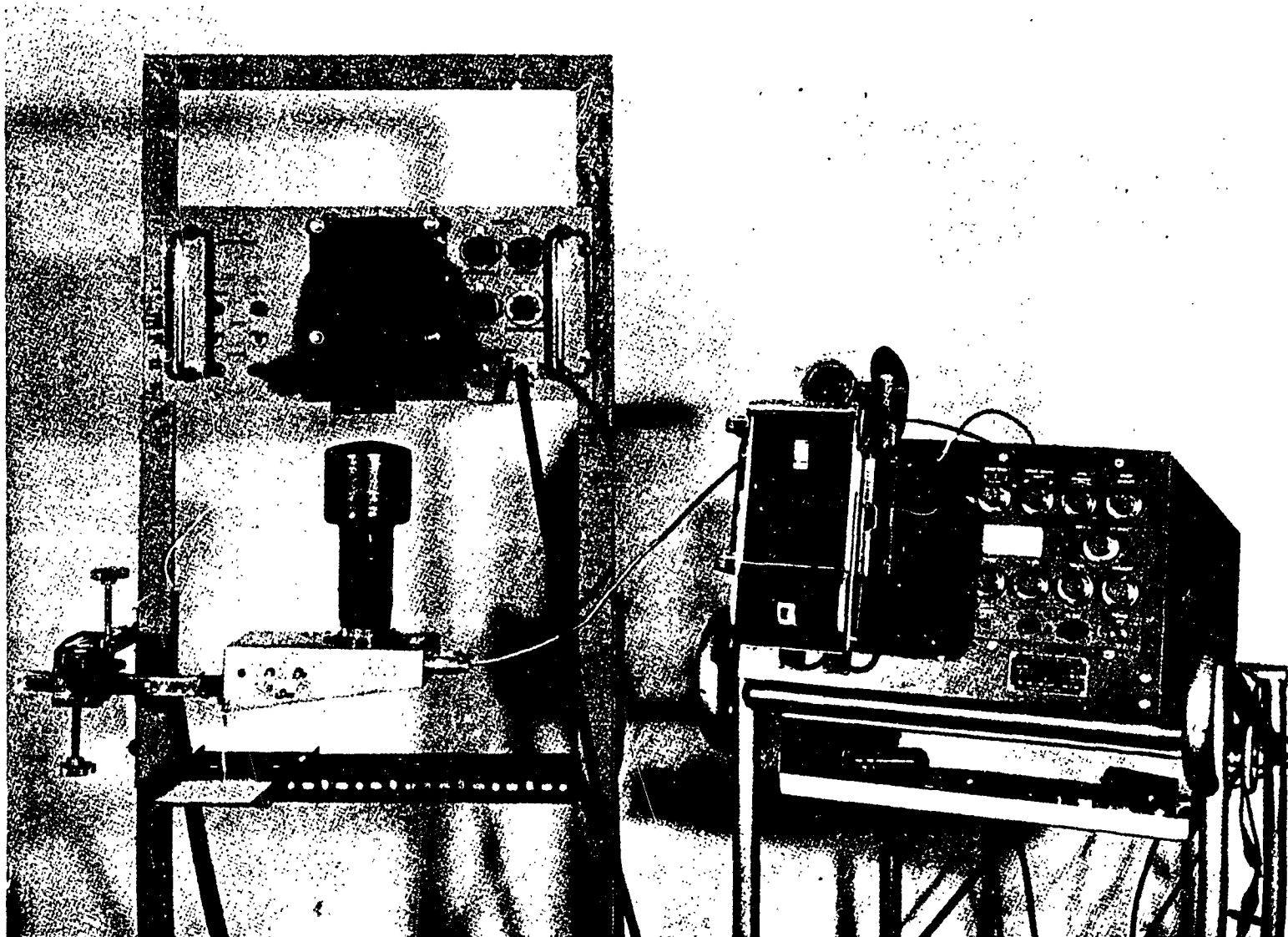


Figure 8 - Appareillage de mesure des écarts centre-bord.

On distingue en haut à gauche le générateur d'impulsions lumineuses, type Flying-Spot, en dessous duquel est placé le photomultiplicateur (ici un 58 AVP DARIO). L'oscilloscope Edgerton placé à droite est muni d'un appareil photographique à développement instantané.

e) Résultats : des divers enregistrements et mesures auxquels nous avons procédé, il ressort que l'écart "centre-bord" est inférieur à 0,1 ns si l'on n'utilise que la partie centrale de la photocathode sur un diamètre de cinq millimètres.

D'autre part, l'impulsion anodique du 56 AVP relative à un seul photoélectron présente une forme en cloche dont la largeur entre inflexions est de 2 nanosecondes.

On voit sur la figure 9 la reproduction d'une photographie obtenue avec le dispositif de la figure 8. Les impulsions (a) correspondent à des photoélectrons émis isolément car le nombre de photons arrivant sur le photomultiplicateur par impulsion lumineuse est très faible. Les impulsions (b) dont on ne voit que le front de montée correspondent à plusieurs photoélectrons émis pendant la durée de l'impulsion lumineuse qui est de 30 ns environ.

La figure 10 montre des impulsions anodiques d'un 56 AVP recevant des impulsions de lumière obtenues par effet Cerenkov créées dans un bloc de plexiglass par le passage de mésons  $\mu$

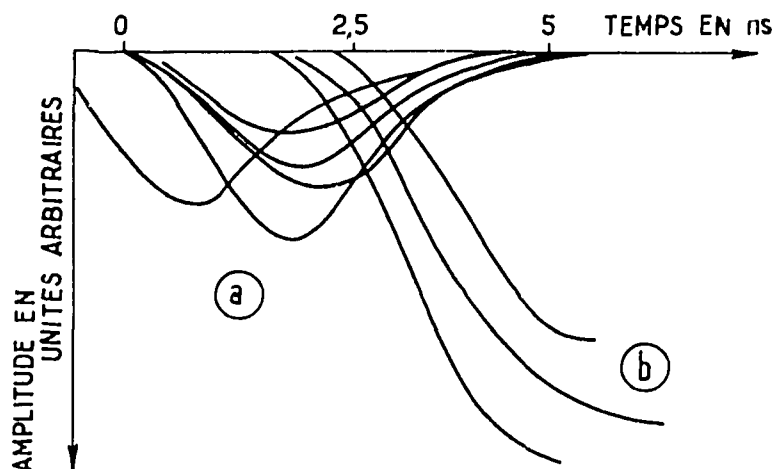


Figure 9 - Impulsions anodiques du 56 AVP  
a) Correspondant à des photoélectrons isolés  
b) Correspondant à plus d'un photoélectron

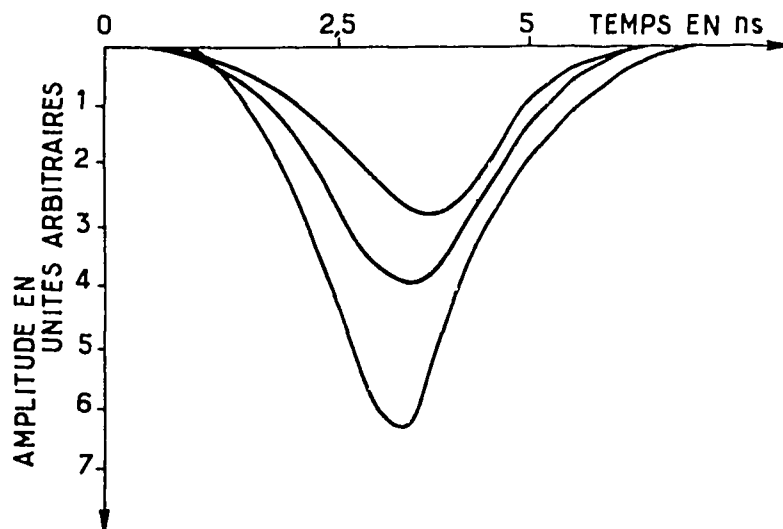


Figure 10 - Impulsions anodiques du 56 AVP correspondant à des impulsions "Cerenkov".

du rayonnement cosmique. Elles correspondent à l'émission simultanée de quelques centaines de photoélectrons.

Les fluctuations de temps de transit dans l'optique d'entrée doivent contribuer à élargir les impulsions de la figure 10, alors qu'elles n'interviennent pas dans celles de la figure 9 (a) où un seul électron a traversé l'optique d'entrée. Or la largeur des impulsions anodiques dues à l'effet Cerenkov (figure 10) est pratiquement la même que celle des impulsions dues à un seul photoélectron (figure 9a). Nous confirmons ainsi expérimentalement que les fluctuations de temps de transit dans l'optique d'entrée du 56 AVP ne contribuent pratiquement pas à la largeur de l'impulsion anodique.

#### 2-1.2.4 - Limites apportées par le 56 AVP dans la détermination directe de la forme d'une impulsion lumineuse

On voit que le 56 AVP DARIO (photomultiplicateur à grand gain, le plus rapide que nous ayons actuellement à notre disposition), permet d'apprécier la forme d'impulsions lumineuses de quelques nanosecondes de durée, dont il peut recevoir quelques milliers de photons. En effet, sa réponse à un photoélectron isolé est une impulsion de largeur entre inflexions  $2 \lambda$  de 2 nanosecondes environ. Cette largeur de la réponse impulsionnelle limite le pouvoir de résolution en temps du 56 AVP, qui ne peut ainsi restituer la forme d'une impulsion lumineuse de durée inférieure à la nanoseconde. L'impulsion anodique du 56 AVP est le produit de convolution de la fonction décrivant au cours du temps l'intensité de l'impulsion lumineuse par la fonction réponse impulsionnelle du P.M..

On peut déduire de la forme de l'impulsion anodique celle de l'impulsion lumineuse si on connaît cette réponse impulsionnelle. Si la forme analytique de la loi décrivant l'impulsion lumineuse est inconnue, il est nécessaire d'utiliser des machines à calculer. Si la loi est de forme connue, il suffit de déterminer les valeurs des paramètres et on peut, dans certains cas, y parvenir par des procédés graphiques simples (en particulier si la loi est exponentielle). De toute manière, l'estimation d'une variation d'intensité se produisant pendant une durée inférieure à la largeur de la réponse impulsionnelle est pratiquement impossible.

## 2-2 - LA METHODE D'ECHANTILLONNAGE

### 2-2.1 - Possibilité d'une investigation plus poussée grâce à une caractéristique particulière du photomultiplicateur

D'après les résultats précédents la largeur  $\lambda$  de l'impulsion anodique du 56 AVP est pratiquement la même pour un seul photoélectron ou plusieurs photoélectrons émis simultanément. Ceci confirme expérimentalement que les fluctuations de temps de transit dans l'optique d'entrée sont bien inférieures à la nanoseconde comme le calcul le laissait prévoir (PIETRI, 1958). En fait, la

largeur de l'impulsion anodique est due essentiellement aux fluctuations de temps de transit dans les espaces inter-dynodes où on peut admettre que les fluctuations, de quelques dixièmes de nanosecondes, sont indépendantes et s'ajoutent quadratiquement : la largeur de l'impulsion anodique arrive ainsi à dépasser la nanoseconde.

Par contre nous allons voir que le temps, que nous nommons "délai", écoulé entre le départ d'un photoélectron et l'époque moyenne d'arrivée sur l'anode des électrons correspondants, époque du barycentre de l'impulsion, présente des fluctuations dont l'écart est bien inférieur à la nanoseconde. Le temps de transit, entre deux dynodes, du barycentre d'un paquet d'électrons fluctue d'autant moins que le nombre d'électrons qui le constitue est plus grand. Egal à quelques unités dans les premiers étages, ce nombre croît très rapidement dans les étages suivants et les fluctuations du délai sont dues essentiellement à celles des premiers étages. Ces fluctuations de quelques dixièmes de nanosecondes s'ajoutent quadratiquement à celles de l'optique d'entrée.

L'écart type du délai du photomultiplicateur est ainsi beaucoup plus court que la largeur de l'impulsion anodique. Le 56 AVP permet donc la détermination de l'instant d'émission d'un photoélectron avec une erreur statistique qu'on peut estimer à quelques dixièmes de nanosecondes.

Cette remarque nous a suggéré l'idée de reconstituer la forme d'une impulsion lumineuse par une méthode d'échantillonnage effectué sur l'époque d'émission de ses photons : on détermine celle-ci dans l'impulsion lumineuse par référence au centre de gravité de cette dernière (KOECHLIN, 1961).

Cette méthode mise en oeuvre avec le photomultiplicateur 56 AVP, nous a permis d'élargir jusqu'à la région de la subnanoseconde le domaine d'investigation de la forme des impulsions lumineuses.

## 2-2.2 - Estimation des fluctuations de temps de transit dans le multiplicateur et des fluctuations de délai dans l'ensemble du photomultiplicateur (P.M.)

On a vu que la largeur  $\lambda$  de l'impulsion anodique relative à un seul photoélectron est dû au multiplicateur et est de l'ordre de la nanoseconde. Les fluctuations du temps de transit d'un photoélectron dans l'intervalle cathode-lère dynode, pour un point d'émission donné de la cathode, sont beaucoup plus courtes et estimées inférieures à 0,25 ns par le constructeur du 56 AVP (PIETRI, 1958).

Nous allons voir que l'écart quadratique moyen  $\epsilon$  des fluctuations du délai total du P.M. n'est pas très supérieur à cette valeur. Les calculs effectués par GATTI et SVELTO (1959) pour estimer le temps de résolution dans les compteurs à scintillation permettent, à partir de nos résultats expérimentaux, de préciser les valeurs de  $\lambda$  et de  $\epsilon$ .

Avec les notations de GATTI où  $\epsilon_{dd}^2$  est la variance du temps de transit d'un électron dans un étage multiplicateur, la variance du temps de transit total, caractérisant la largeur de l'impulsion anodique correspondant à un électron frappant la première dynode est, pour  $m$  dynodes,  $\lambda^2 = m \epsilon_{dd}^2$ . Nous trouvons ainsi, pour  $\lambda = 1$  ns et  $m = 14$ ,  $\epsilon_{dd} = 0,27$  ns.

GATTI montre aussi que la variance de l'époque d'arrivée du barycentre d'un paquet d'électrons transitant entre deux dynodes est donnée par l'expression :

$$\frac{\epsilon_{dd}^2}{p \cdot g} \left( 1 + \frac{2}{g} \right)$$

$p$  est le nombre d'électrons arrivant sur la dynode précédente, de facteur de multiplication moyen  $g$ . La variance relative sur le gain  $g$ ,  $\epsilon_g^2/g^2$ , est égale à 1 le gain étant "poissonnien".

La variance  $\epsilon_m^2$  du délai total dans le multiplicateur pour un seul photoélectron est alors la somme des variances inter-dynodes, soit :

$$\epsilon_m^2 = \sum_{i=1}^m \epsilon_{dd}^2 \frac{1}{p_i g_i} \left( 1 + \frac{2}{g_i} \right) \quad \text{où } p_1 = 1$$

Pour  $m$  grand et des gains moyens  $g$  identiques sur toutes les dynodes, cette expression se ramène à :

$$\epsilon_m^2 = [ \epsilon_{dd}^2 / (g - 1) ] \times [ 1 + 2/g ]$$



Dans notre cas, la première dynode présente un gain nettement supérieur à celui des autres car la différence de potentiel dans l'optique d'entrée est de l'ordre de 500 V alors qu'il est plus faible dans les autres étages.

Nous avons estimé ce gain à 6,8 alors que celui des 6 dynodes suivantes n'est plus que de 3,6 en moyenne car il correspond à une différence de potentiel de 140 V (PIETRI, 1961). Il est donc nécessaire de revenir à la première expression qui s'écrit suivant une suite rapidement convergente :

$$\varepsilon_m^2 = \varepsilon_{dd}^2 \left[ \frac{1}{g_1} \left( 1 + \frac{2}{g_1} \right) + \frac{1}{g_1 g_2} \left( 1 + \frac{2}{g_2} \right) + \dots \right]$$

Cette suite nous fournit une estimation de la variance  $\varepsilon_m^2$  du délai total dans le multiplicateur du 56 AVP de notre montage. En prenant  $g_1 = 6,8$  et  $g_2 = g_3 = \dots = g_6 = 3,6$  on trouve

$$\varepsilon_m^2 = (0,12 \text{ ns})^2 \text{ pour } \varepsilon_{dd}^2 = (0,27 \text{ ns})^2$$

La variance du délai dans le multiplicateur  $(0,12 \text{ ns})^2$  ajoutée à celle de l'optique d'entrée  $(0,25 \text{ ns})^2$  donne la variance  $\varepsilon^2$  du délai total du 56 AVP soit  $(0,28 \text{ ns})^2$ . L'instant d'arrivée du barycentre de l'impulsion anodique nous fait connaître celui de départ du photoélectron avec une erreur statistique inférieure à 0,3 ns.

Elle nous fait aussi connaître avec la même précision l'instant d'arrivée du photon correspondant sur la photocathode car le temps de transit du photoélectron dans la couche est négligeable. En effet ce temps  $t$  de sortie du photoélectron est nécessairement du même ordre que le temps de réponse d'un émetteur secondaire. Ce dernier temps a été estimé, par voie théorique, de l'ordre de  $10^{-14}$  à  $10^{-15}$  s.

Expérimentalement il a seulement pu être établi qu'il était certainement inférieur à 0,07 ns. (G. HACHENBERG - W. BRAUER (1959)).

## 2-2.3 - Détermination de la forme des impulsions lumineuses par échantillonnage sur l'instant d'émission de leurs photons

### 2-2.3.1 - Principe

Au lieu de déterminer la forme de l'impulsion lumineuse par la mesure directe des variations de son flux, on peut la déterminer par des méthodes de comptages statistiques.

En effet, la variation du flux lumineux n'est autre que la répartition dans le temps du nombre de photons émis durant l'impulsion. Cette distribution est liée à la densité de probabilité qu'un photon prélevé au hasard soit situé à un écart  $t$  par rapport à une époque origine définie dans l'impulsion. La détermination de la courbe de fréquence des écarts fait connaître la forme de l'impulsion lumineuse.

On sait que pour l'étude des durées de vie des états d'excitation nucléaire on fait appel à la méthode dite des coïncidences retardées. On détecte séparément les deux photons  $\gamma$  émis au cours d'une même transition en cascade. La mesure du temps séparant les instants de détection de chacun des photons  $\gamma$  fournit après analyse statistique de l'histogramme la durée de vie de l'état excité intermédiaire.

LUNDBY (1950) a appliqué cette méthode à la mesure des durées de vie des états excités moléculaires et a déterminé en particulier les constantes de temps de décroissance de quelques scintillateurs organiques. Cette méthode pose des problèmes difficiles quant à la restitution de la forme des impulsions.

HERON (1956) a étudié les scintillations gazeuses en effectuant la statistique des retards de l'émission des photons par rapport à l'arrivée de la particule ayant provoqué la scintillation. La nécessité de connaître cette époque origine l'a obligé à n'utiliser que des particules accélérées artificiellement, essentiellement des électrons.

La limite inférieure du domaine de temps étudié par LUNDBY et HERON était de quelques nanosecondes.

La méthode que nous avons élaborée consiste à déterminer la forme d'une impulsion lumineuse à partir d'un échantillon obtenu à partir de photons individuels prélevés au hasard dans l'impul-

sion par un premier 56 AVP qui, très diaphragmé, ne fournit qu'un photoélectron par impulsion lumineuse. L'instant de l'émission des photons est alors déterminé par référence à une origine de temps prise dans l'impulsion par un second photomultiplicateur qui reçoit la majeure partie des photons. Cette origine de temps est invariablement liée à l'époque moyenne d'émission des photons de l'impulsion lumineuse (barycentre de l'impulsion).

Du fait d'une époque origine bien définie notre méthode, contrairement à celle de LUNDBY, permet de déterminer n'importe quelle forme d'impulsions lumineuses. Cette époque origine étant définie par l'émission de l'impulsion lumineuse il n'est pas nécessaire de se référer à l'instant d'arrivée des particules comme l'a fait HERON. Nous pouvons alors utiliser toutes causes d'excitation impulsionnelle et en particulier les particules ou photons issus de sources quelconques. Enfin et surtout, les caractéristiques du photomultiplicateur 56 AVP nous permettent de gagner, grâce à cette méthode, presque un ordre de grandeur vers les domaines de temps court et d'étudier ainsi des phénomènes lumineux se déroulant en quelques dixièmes de nanosecondes.

La même méthode fut appliquée indépendamment par BOLLINGER et THOMAS (1961) à l'étude des scintillations excitées par différentes particules nucléaires. Cependant ils n'ont pas profité des possibilités qu'elle offre de dépasser la résolution habituelle des photomultiplicateurs rapides. La résolution de leur dispositif était en effet de 4,6 ns. Leur étude a porté sur la décroissance longue des scintillations. L'échantillonnage est alors rendu nécessaire par le très faible nombre de photons émis durant cette partie de la scintillation.

### 2-2.3.2 - Constitution de l'élément de l'échantillon

Considérons un grand nombre d'impulsions lumineuses dans lesquelles la répartition des photons dans le temps autour de leur barycentre est identique. On peut prélever au hasard dans chacune d'elles un "élément" constitué par un photon et le "caractériser" par son écart d'émission par rapport au barycentre de l'impulsion lumineuse dont on l'a prélevé.

Il est nécessaire de ne prélever qu'un seul photon par impulsion lumineuse car il ne nous est pas possible, avec le photomultiplicateur actuel, de classer plusieurs photons indépendamment si leur écart est inférieur à la largeur  $2\lambda$  de l'impulsion anodique du photomultiplicateur.

La nature aléatoire du rendement quantique de l'effet photoélectrique nous permet de prélever au hasard un seul photon dans une impulsion lumineuse. Nous allons voir qu'il est seulement nécessaire que la probabilité de provoquer l'émission d'un photoélectron par impulsion lumineuse soit très faible, ce qui est toujours réalisable en diminuant le flux reçu par le photomultiplicateur au moyen d'un diaphragme. Si les impulsions lumineuses sont d'amplitude différente, il est nécessaire que cette condition soit réalisée par les plus grandes d'entre elles.

Le nombre moyen de photoélectrons émis par la photocathode pour une impulsion lumineuse est  $\bar{x} = \sigma n_0$  où  $\sigma$  est le rendement quantique moyen de la photocathode et  $n_0$  le nombre de photons reçus par cette dernière.

La probabilité que la photocathode n'émette aucun photoélectron est  $P(0) = e^{-\bar{x}}$ ; celle d'en émettre un seul est  $P(1) = \bar{x} e^{-\bar{x}}$  et, celle d'en émettre au moins deux, est :

$$P(>1) = 1 - e^{-\bar{x}} (\bar{x} + 1)$$

Le rapport de  $P(>1)$  à  $P(1)$  s'exprime par  $\frac{e^{-\bar{x}} - (\bar{x} + 1)}{\bar{x}}$  qui tend pour  $\bar{x}$  petit devant 1 vers la série  $\frac{\bar{x}}{2!} + \frac{(\bar{x})^2}{3!} + \dots + \frac{(\bar{x})^n}{(n+1)!} + \dots$

Il ressort de cette expression que ce rapport tend vers zéro avec  $\bar{x}$ . Le tableau I donne quelques valeurs de  $P(1)$  et  $P(>1)$ , pour  $\bar{x}$  prenant les valeurs 0,5 - 0,1 - 0,05 et 0,01.

On peut voir que si  $\bar{x} = 0,05$ ,  $P(>1)/P(1) = 0,025$ . Dans cet exemple, sur 10.000 impulsions lumineuses le photomultiplicateur fournit en moyenne de l'ordre de 500 impulsions ; 475, en moyenne, correspondent à 1 seul photoélectron et 13 environ correspondent à plus d'un photoélectron.

Tableau 1  
Probabilités d'émission d'un seul photoélectron

$\bar{x}$	P(0)	P(1)	P(> 1)	P(> 1)/P (1)
0,50	0,60	0,30	0,10	0,30
0,10	0,90	0,09	0,01	0,10
0,05	0,9512	0,0475	0,0013	0,025
0,01	0,9900	0,0099	0,0001	0,010

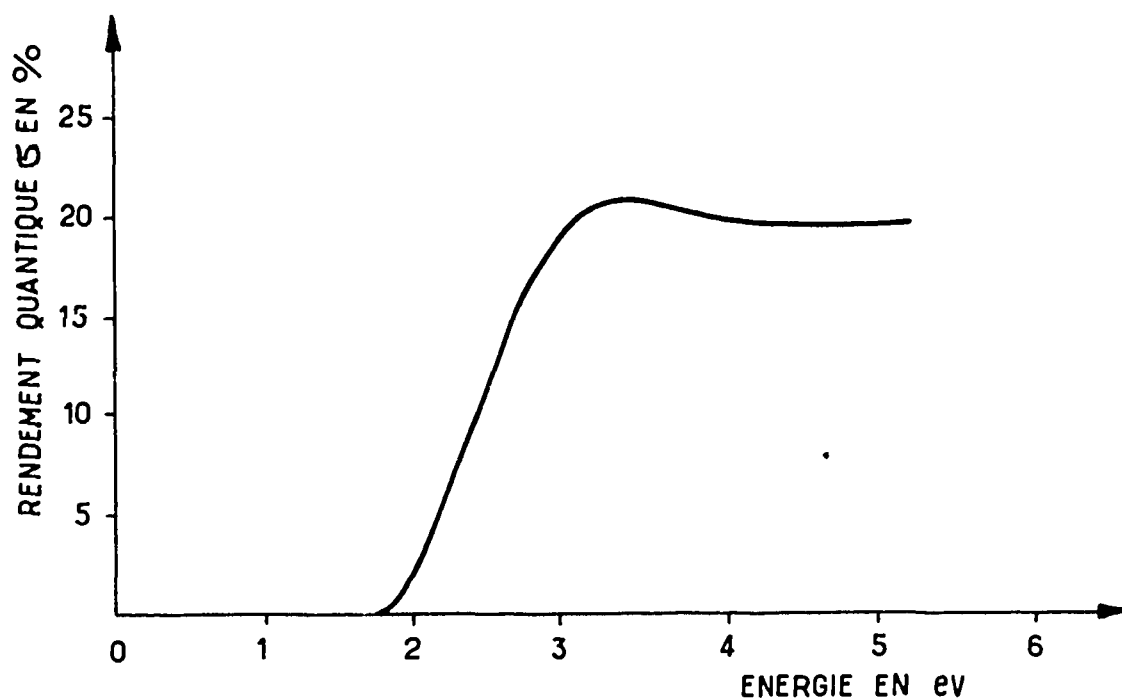


Figure 11 - Sensibilité  $\sigma$  des couches  $Cs_3Sb$  en fonction de l'énergie des photons.

$\sigma$  varie en fonction de l'énergie des photons incidents suivant la courbe de la figure 11 due à BURTON (1947). Mais si la composition spectrale de la lumière émise est constante pendant toute la durée d'une scintillation, il est évident que les variations de  $\sigma$  n'interviennent pas. Si cette condition n'est pas satisfaite, il est nécessaire d'interposer une combinaison de filtres ne laissant passer qu'une bande spectrale à l'intérieur de laquelle  $\sigma$  reste suffisamment constant.

#### 2-2.3.3 - Mesure de la durée comprise entre l'époque d'émission d'un photon et le barycentre des époques d'émission de l'ensemble des photons

L'instant d'émission du photon pris au hasard dans l'impulsion lumineuse est déterminé à partir des informations temporelles fournies par le premier photomultiplicateur avec une erreur statistique  $\varepsilon$  inférieure à 0,3 ns.

Quant à l'époque du barycentre nous allons montrer que l'impulsion anodique du second photomultiplicateur, recevant la majeure partie des photons de l'impulsion lumineuse, permet, sous certaines conditions, de définir ce temps de référence avec une précision très suffisante.

En effet, si  $\varphi(t)$  est la fonction décrivant la répartition dans le temps des photoélectrons émis par le second photomultiplicateur à partir de l'impulsion lumineuse, l'impulsion anodique est représentée par le produit de convolution de  $\varphi(t)$  et de la réponse impulsionnelle,  $f(t, \lambda, h)$  du P.M. à 1 photoélectron ( $h$  représente son délai). L'abscisse du barycentre de ce produit est la somme des abscisses des barycentres de  $\varphi(t)$  et  $f(t, \lambda, h)$  ; elle est affectée par les variations statistiques de l'abscisse du barycentre de  $\varphi(t)$  et du délai  $h$  du P.M.

le temps  $\delta$  est le rayon de gyration autour du barycentre de  $\Gamma(t)$ . GATTI (1959) a montré que les abscisses des barycentres de  $\varphi(t)$  correspondants sont distribuées autour du barycentre de l'impulsion lumineuse avec la variance  $\delta^2/n$ , si  $n$  est le nombre moyen de photoélectrons par impulsion lumineuse. La variance du délai dans le photomultiplicateur correspondant à  $n$  photoélectrons est aussi  $\varepsilon^2$  divisé par  $n$ .

La variance de la distribution des barycentres des impulsions anodiques est la somme de ces deux variances, soit :  $(\delta^2 + \varepsilon^2)/n$ .

Si  $\delta$  est de 3 ns par exemple, et le nombre  $n$  de photoélectrons de 400 environ par impulsion lumineuse, l'écart quadratique moyen de la répartition des barycentres des impulsions anodiques du P.M. est de 0,15 ns.

La mesure de l'écart d'émission d'un photon par rapport au barycentre de l'impulsion lumineuse présente, pour cette raison, une erreur statistique représentée par la somme des variances de chaque mesure soit  $(\delta^2 + \varepsilon^2)/n + \varepsilon^2$  et que l'on peut estimer, d'après les valeurs calculées précédemment, à 0,4 ns.

A chaque prélèvement d'un photon d'une impulsion lumineuse correspond donc la mesure de son retard sur le barycentre de l'impulsion lumineuse avec une erreur dépendant d'une part, de celle apportée par le P.M. fournissant le photoélectron correspondant et, d'autre part, de celle apportée par le P.M. qui permet de déterminer le barycentre de l'impulsion lumineuse à partir des  $n$  photoélectrons que sa photocathode a émis. Nous avons vu que cette erreur, tout procédé électronique mis à part, est la somme quadratique des erreurs apportées par les deux photomultiplicateurs.

Celle du premier photomultiplicateur dépend des variations de son délai et peut être estimé inférieur à 0,3 ns pour le 56 AVP. Celle du second photomultiplicateur dépend à la fois des variations de son délai, du nombre de photoélectrons émis par impulsion lumineuse et enfin de la durée de cette impulsion. Pour qu'elle soit du même ordre que la précédente avec un 56 AVP, il est nécessaire que l'impulsion lumineuse fasse émettre à la photocathode un nombre de photoélectrons  $n$  supérieur à  $11 \delta^2$  soit de l'ordre de 250 pour  $\delta = 5$  ns.

Nous avons choisi de définir l'abscisse du barycentre de l'impulsion du photomultiplicateur par l'instant  $t_0$  de passage à la valeur zéro de l'impulsion résultant de la différence de l'impulsion anodique avec son homologue décalée d'un certain retard  $\vartheta$ . Ce procédé permet de s'affranchir des variations d'amplitude de l'impulsion anodique. On voit sur la figure 12 l'impulsion anodique  $A.Y(t)$  et son homologue  $A.Y(t - \vartheta)$  en pointillé, décalée du temps  $\vartheta$ . Si on les retranche l'une de l'autre on obtient l'impulsion résultante  $A[Y(t) - Y(t - \vartheta)]$  qui s'annule à une époque  $t_0$  définie par  $Y(t_0) = Y(t_0 - \vartheta)$ ,  $A$  n'étant pas nul. L'époque  $t_0$  ne dépend pas de  $A$  et reste liée invariablement à l'abscisse du barycentre de  $A.Y(t)$  qui, lui non plus, ne dépend pas de  $A$ .

La détermination de l'instant du passage au zéro est effectuée au moyen d'une impulsion électrique de forme invariable dont le départ correspond à  $t_0$  à un délai fixe près.

Ce passage au zéro est d'autant mieux défini que la pente de l'impulsion résultante est plus grande au voisinage du zéro. Le retard  $\vartheta$  doit donc faire croiser  $Y(t)$  et  $Y(t - \vartheta)$  dans leurs régions de pente maximum, c'est-à-dire aux points d'inflexion. Le retard  $\vartheta$  est ajusté expérimentalement.

Nous montrons, d'autre part, que les erreurs apportées par l'appareillage électronique sont négligeables devant les erreurs statistiques dont nous venons de calculer les ordres de grandeur.

#### 2-2.3.4 - Reconstitution de la forme des impulsions lumineuses

##### 1/ Signification de l'échantillon

Après avoir prélevé  $N$  photons individuels dans  $N$  impulsions distinctes et mesuré les écarts respectifs, nous sommes en possession d'un échantillon de taille  $N$ . L'histogramme est alors tracé et fournit la répartition des époques d'émission des photons de l'échantillon.

Si nous avons pu constituer cet échantillon à partir d'une seule impulsion lumineuse l'histogramme reconstituerait la forme de cette impulsion particulière.

En réalité chaque photon de l'échantillon appartient à une impulsion lumineuse différente. Nous allons donc envisager plusieurs éventualités.

- ①  $AY(t)$
- ②  $-AY(t-\theta)$
- ③  $A[Y(t)-Y(t-\theta)]$

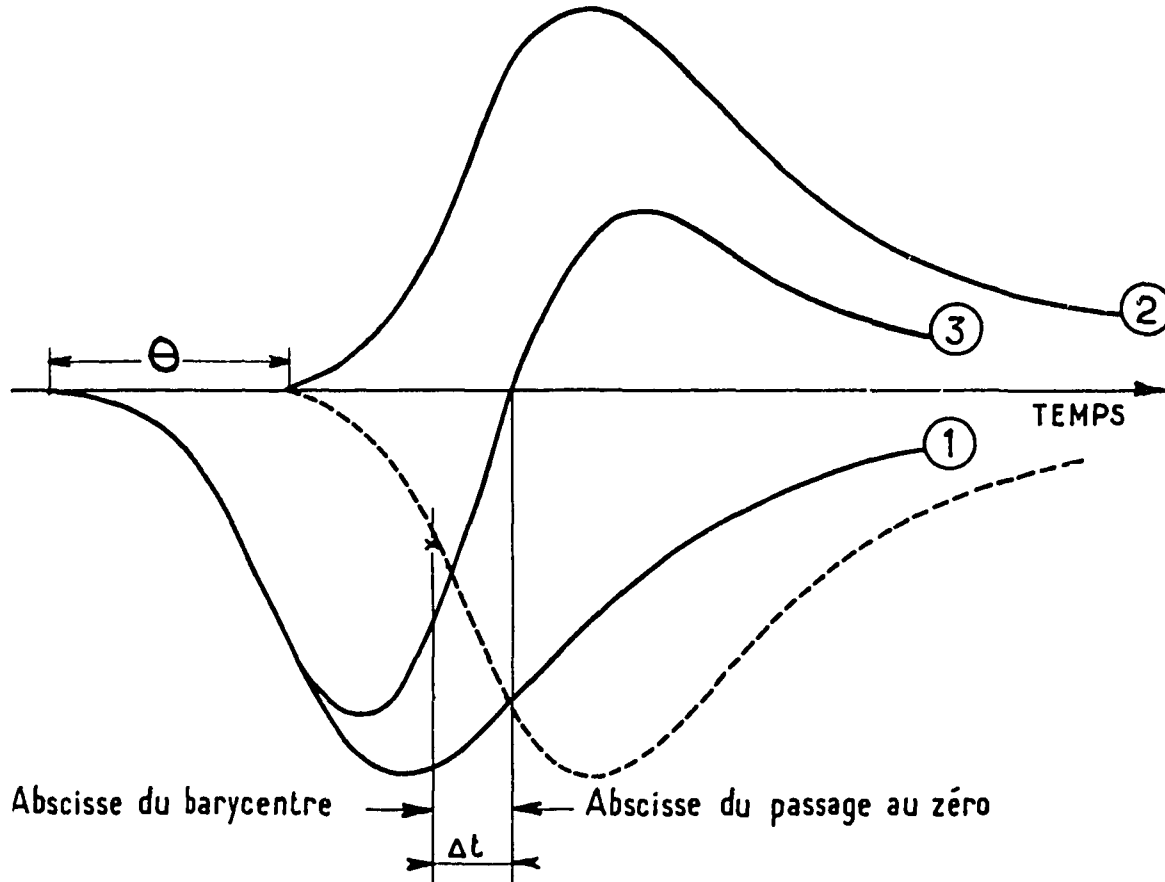


Figure 12-Détermination du passage au zéro.

a) Si les impulsions lumineuses sont toutes exactement identiques, l'échantillon se rapproche d'autant plus de ces dernières que son effectif est grand.

b) Si les impulsions lumineuses varient en amplitude mais conservent la même "forme", la répartition des instants d'émission de leurs photons reste identique. L'échantillon, constitué par  $N$  "tirages" d'un seul photon par impulsion tend vers la même répartition pour  $N$  grand. On est ramené au cas précédent.

c) Les impulsions suivent des lois différentes et se présentent en plusieurs groupes, dans une proportion fixe. La méthode d'échantillonnage décrite est alors incapable de fournir chaque loi. Elle ne peut donner que la moyenne pondérée des différentes répartitions.

d) La forme des impulsions varie statistiquement autour d'une forme moyenne : nous obtenons alors une estimation de la forme moyenne des impulsions lumineuses.

## 2/ Tracé de la courbe de répartition des photons

En réalité la courbe tracée à partir de l'histogramme est altérée par les erreurs de mesures inhérentes à notre dispositif. Nous allons montrer qu'elle est le produit de convolution de la fonction de la distribution des écarts des photons de l'échantillon avec la fonction réponse de notre dispositif.

Chaque impulsion lumineuse peut être considérée comme une répartition des instants d'émission de ses photons autour d'une époque origine, celle du barycentre de l'impulsion moyenne. On peut lui associer une probabilité par unité de temps  $F(t_1)$  pour qu'un photoélectron du premier photomultiplicateur soit arraché à l'époque  $t_1$  et une variance  $\delta^2$  où  $\delta$  est l'écart quadratique moyen de l'époque d'émission des photons dans l'impulsion lumineuse moyenne.

Le second photomultiplicateur élabore un signal définissant l'époque  $t_0$  du barycentre du groupe de  $n$  photoélectrons arrachés à sa photocathode. Cette époque  $t_0$  est une quantité aléatoire de densité de probabilité  $F_0(t)$  à laquelle on peut associer une variance  $\delta^2/n$ .

Le dispositif mesure la durée  $T = (t_1 + d_1) - (t_0 + d_2)$  où  $d_1$  et  $d_2$  sont les délais respectifs des photomultiplicateurs, quantités aléatoires de densité de probabilité  $D_1(t)$  et  $D_2(t)$  auxquelles on peut associer les variances  $\varepsilon^2$  et  $\varepsilon^2/n$ . Les variables aléatoires  $t_1$  et  $t_0$ ,  $d_1$  et  $d_2$  sont indépendantes. En toute rigueur  $t_0$  et  $t_1$  pourraient ne pas être indépendantes si chacun de ces signaux étaient élaborés au moyen de fractions notables des photons de l'impulsion lumineuse. Ici l'élaboration de  $t_1$  n'utilise qu'un seul photon, il y a indépendance.

La durée observée  $T$  est une quantité aléatoire dont la densité de probabilité  $Y(t)$  est donnée par le produit de convolution  $Y = F_0 * F_1 * D_1 * D_2$  dont la variance est la somme des variances  $\delta^2$ ,  $\delta^2/n$ ,  $\varepsilon^2$  et  $\varepsilon^2/n$ .  $F_1$  représente la fonction de distribution des photons dans l'échantillon.

Le produit de convolution  $F_0 * D_1 * D_2$  représente la distribution des erreurs statistiques sur l'élaboration de l'époque zéro et de l'époque  $t_1$ . Nous avons vu (2233) que c'est surtout  $\varepsilon$  qui intervient et, pour cette raison, nous représenterons la fonction réponse du dispositif par  $f(t, \varepsilon, h)$  où  $h$  est le délai du premier photomultiplicateur.

Pour remonter de l'histogramme à la courbe de répartition des photons dans l'échantillon il est généralement nécessaire de connaître la fonction réponse de notre dispositif.

Il est un cas simple cependant, celui où la répartition des photons obéit à une loi exponentielle, pour lequel on peut montrer que  $Y = f(t, \varepsilon, h) - \tau \frac{dY}{dt}$ . Cette expression tend alors vers l'exponentielle pure  $Y = -\tau \frac{dY}{dt}$  pour  $t$  et  $\tau$  suffisamment grands devant  $\varepsilon$ .

La précision de la valeur de  $\tau$  ne dépend plus que de celle de l'histogramme. Nous pouvons la rendre aussi bonne que l'on veut en augmentant la taille de l'échantillon.

Si la loi de la répartition dans l'échantillon est représentée par le produit de convolution de deux exponentielles dont les constantes de temps  $\tau_1$  et  $\tau_2$  sont suffisamment différentes et toutes deux supérieures à  $\varepsilon$ , l'estimation de la constante de temps la plus grande  $\tau_1$  se fait directement sur la courbe. Pour des temps suffisamment grands, cette dernière tend vers une exponentielle pure dont la constante de temps est  $\tau_1$ .

Nous avons tracé figure 13 le produit de convolution de deux exponentielles (de constante de temps respectives de 0,6 ns et 1,7 ns) et de  $f(t, \varepsilon, h)$ . On voit que la courbe tend vers l'exponentielle  $e^{-t/1,7}$  pour  $t$  supérieur à 3 ns. La montée de la courbe est élargie à cause du facteur  $f(t, \varepsilon, h)$ . On peut écrire :

$$Y = f(t) - \tau_1 \frac{dY}{dt}$$

La figure 14 donne la construction graphique de  $f(t)$  produit de convolution de  $f(t, \varepsilon, h)$  et de la deuxième exponentielle de constante de temps  $\tau_2$ .

La courbe  $Y(t) = f(t) * \exp(-t/1,7)$  est tracée en coordonnées cartésiennes. On peut l'écrire  $Y(t) = f(t) - \tau_1 \frac{dY}{dt}$ . La construction de  $f(t)$  se déduit de cette relation en l'écrivant sous la forme  $f(t) = Y(t) + \tau_1 \frac{dY}{dt}$ .

A l'abscisse  $t_i$  correspond  $Y(t_i)$  et sa tangente de pente  $\left(\frac{dY}{dt}\right)_{t_i}$ . L'ordonnée de la tangente correspondant à  $t_i + \tau_1$  est  $f(t_i)$ .

La courbe ainsi obtenue représente la fonction  $f(t) = f(t, \varepsilon, h) * \exp(-t/0,6)$  qui tend vers l'exponentielle pure de constante de temps 0,6 ns pour  $t$  supérieur à quelques  $\varepsilon$ .  $\varepsilon$  est ici de 0,3 ns.

### 2-3 - LES POSSIBILITES DE NOTRE METHODE

Nous avons vu que la détermination de l'époque de l'émission d'un photon pouvait être effectuée à l'aide d'un premier P.M. avec une erreur statistique d'écart type inférieur à 0,3 ns et celle du barycentre d'une impulsion lumineuse à l'aide d'un second photomultiplicateur avec une erreur statistique d'écart type inférieur à 0,1 ns dans certaines conditions. Il est intéressant de profiter de ces caractéristiques en appliquant une méthode d'échantillonnage à la détermination de la forme des impulsions lumineuses dont la durée est trop courte pour être appréciée par la mesure directe du courant du photomultiplicateur.

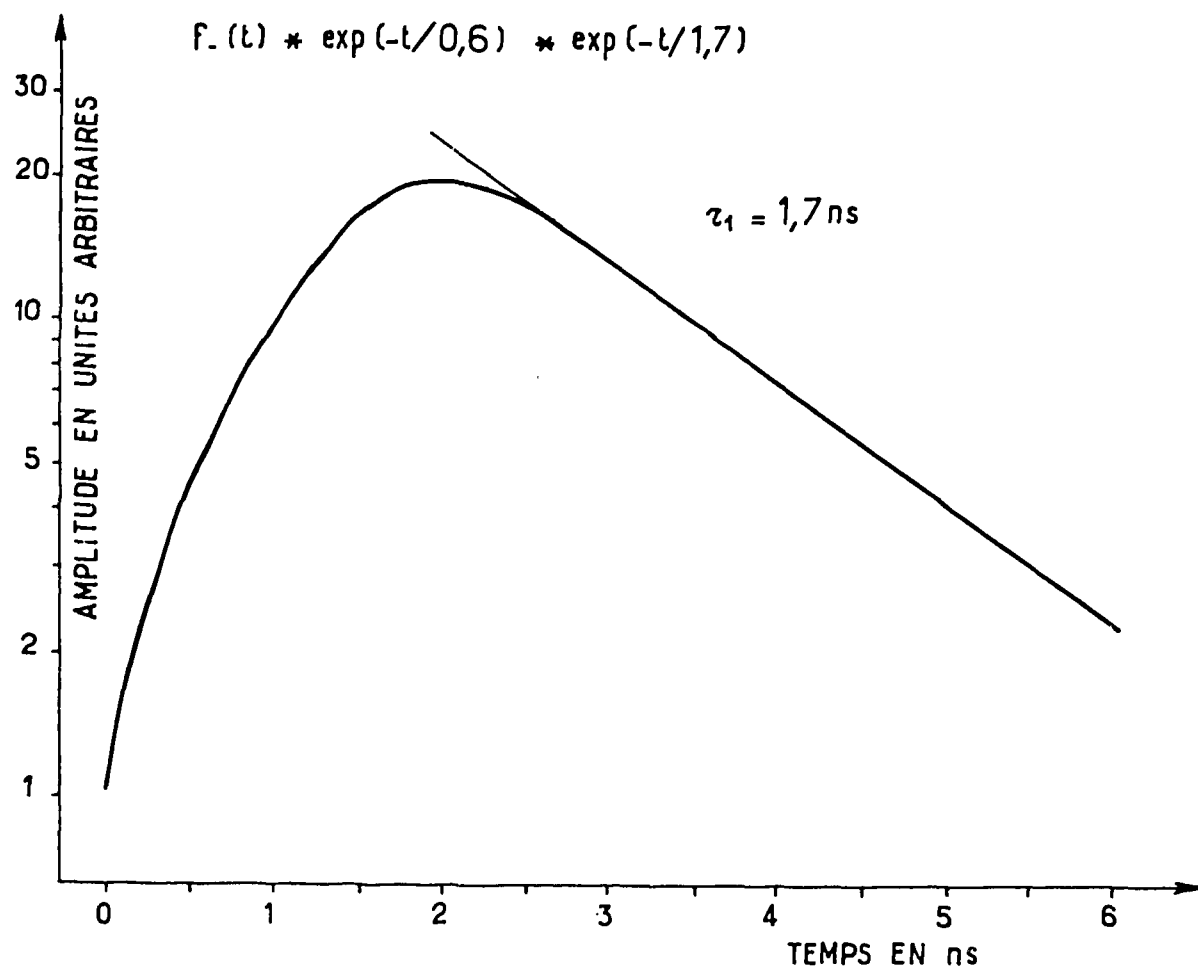


Figure 13 - Trace d'un produit de convolution comportant deux fonctions exponentielles et la fonction de réponse  $f(t, \epsilon, h)$ .

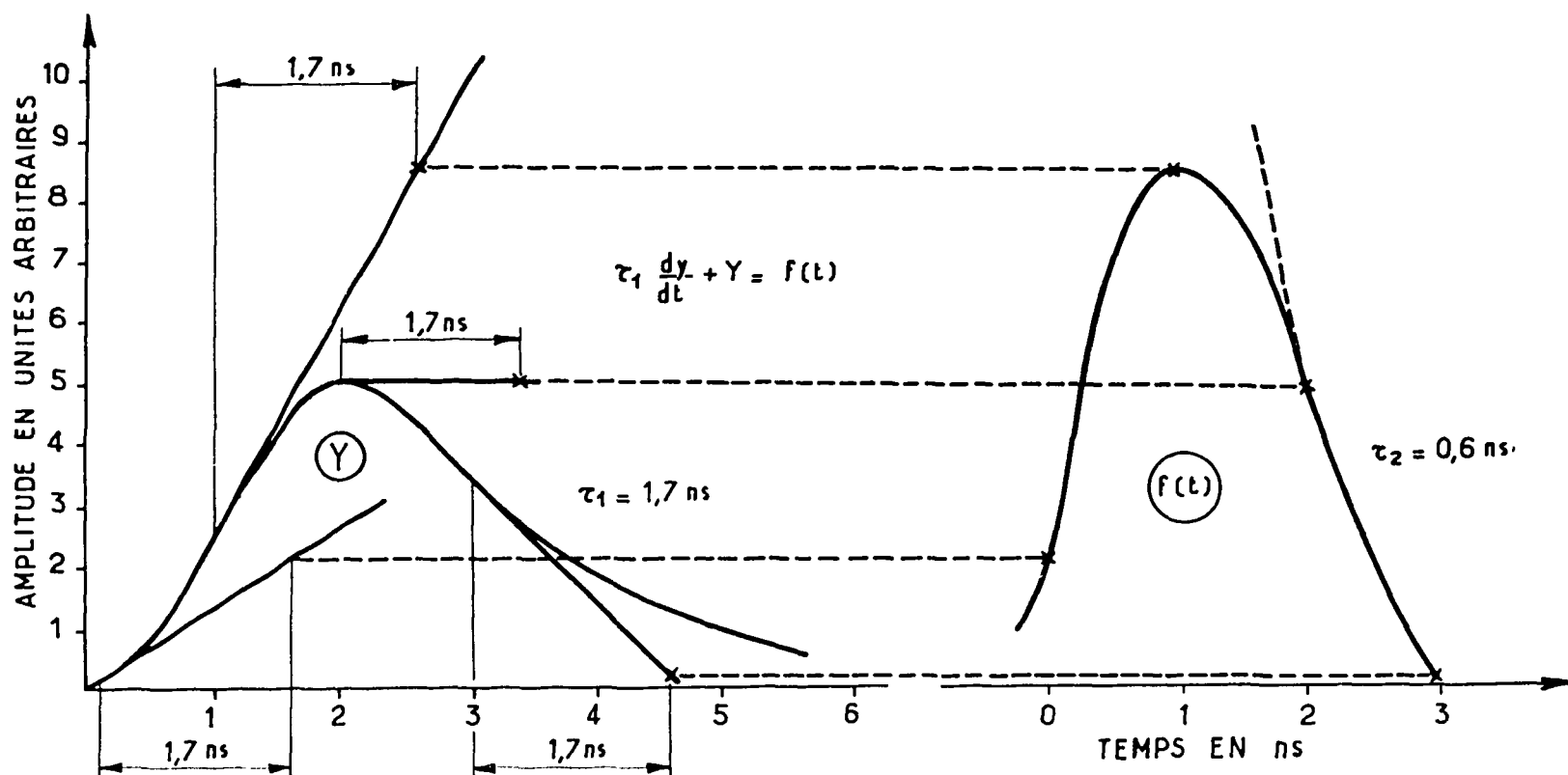


Figure 14 - Procédé graphique d'obtention des fonctions en facteur dans le produit de convolution de la figure 13.

Nous avons vu que la constitution d'un échantillon exige un grand nombre d'impulsions lumineuses. Ces dernières peuvent varier en amplitude mais doivent garder la même forme. Si cette forme varie statistiquement autour d'une valeur moyenne c'est cette dernière que l'échantillon reproduit.

Enfin la répétition des impulsions n'a pas à être périodique. Ceci est un avantage très précieux dans le cas des scintillations qui sont créées par des particules nucléaires, l'instant d'arrivée de celles-ci n'étant pas connu avec précision.

La mesure effectuée sur un photon de l'échantillon comporte une erreur statistique à laquelle on peut associer en première approximation une densité de probabilité  $f(t, \varepsilon, h)$  où  $\varepsilon$  représente l'écart quadratique moyen de la fluctuation de délai  $h$  du P.M.. L'histogramme de l'épreuve sur l'échantillon tend, pour une taille suffisamment grande, vers une courbe qui est représentée par le produit de convolution de  $f(t, \varepsilon, h)$  avec la fonction de la répartition des photons dans l'échantillon. On voit que la durée minimale des impulsions que l'on pourra reconstituer est de l'ordre de  $\varepsilon$  soit 0,3 ns.



### III. - MISE EN ŒUVRE DE LA MÉTHODE AVEC UN GÉNÉRATEUR D'IMPULSIONS LUMINEUSES TRÈS BRÈVES

Dans le chapitre III, nous décrivons le dispositif que nous avons mis au point, nous exposons les mesures que nous avons effectuées avec ce dispositif sur les impulsions lumineuses très brèves créées au sein d'un gaz sous pression. La limite de précision du dispositif est donnée après en avoir discuté les diverses possibilités d'erreur.

#### 3-1 - DISPOSITIF ELECTRONO-OPTIQUE

##### 3-1.1 - Description du dispositif

Le dispositif expérimental comporte deux photomultiplicateurs 56 AVP contenus dans une enceinte étanche à la lumière. La source d'impulsions lumineuses à étudier est disposée de manière que l'un des photomultiplicateurs, que nous désignerons par le symbole PMT, reçoive une fraction importante de la lumière émise tandis que l'autre, que nous désignerons par le symbole PM $\phi$ , est muni d'un diaphragme de façon à ne recevoir que quelques photons par impulsion lumineuse. L'ensemble est monté sur un banc d'optique.

On peut voir sur la figure 15 la disposition des deux photomultiplicateurs plongeant dans l'enceinte étanche à la lumière. Une porte, sur le devant, permet l'accès au dispositif pour les réglages optiques. On distingue de gauche à droite, alignés sur un axe horizontal :

- l'extrémité du PMT destiné à fournir l'époque origine ;
- le tube de verre (en forme de T renversé) contenant le scintillateur liquide et collé à la photocathode du PMT ;
- l'objectif (muni de son diaphragme) destiné à projeter l'image du scintillateur sur la photocathode du PM $\phi$  ;
- l'extrémité du PM $\phi$  dont la photocathode fournit un seul électron par scintillation.

Pour l'étude exposée au chapitre III, nous avons remplacé le scintillateur placé contre le PMT, par un générateur d'impulsions lumineuses brèves.

Nous avons à notre disposition un objectif traité, d'ouverture F.1 : 1,4, de distance focale 50 mm. L'angle solide correspondant à la pleine ouverture du diaphragme est de  $5.10^{-2}$  ster : il est dans les conditions de notre montage très suffisant. Il est nécessaire, pour une bonne mise en oeuvre de notre méthode, que les temps mis par les photons pour effectuer les trajets optiques entre la source et chacun des photomultiplicateurs ne présentent pas des écarts supérieurs à ceux mesurables par notre dispositif. L'écart de temps entre le trajet central et un trajet marginal est de l'ordre de 0,02 ns.

Il est à remarquer que la profondeur de la source lumineuse intervient sur les écarts de temps. Cette profondeur est toutefois négligeable (0,1 mm) dans le cas de générateurs d'impulsions lumineuses que nous avons utilisés. Dans l'étude des scintillateurs liquides que nous envisageons au chapitre IV, elle intervient pour déterminer les dimensions géométriques du scintillateur à étudier.

Des caches noirs cylindriques sont disposés de part et d'autre de l'objectif de manière à éviter tout rayon lumineux parasite, et chaque photocathode est munie d'un écran opaque, percé d'un orifice de 5 mm de diamètre en son centre. Ainsi, tout photon émis par la source ne peut impressionner la photocathode du P.M. qu'en une plage centrale de 5 mm de diamètre, à l'intérieur de laquelle les écarts centre-bord sont inférieurs à 0,1 ns.

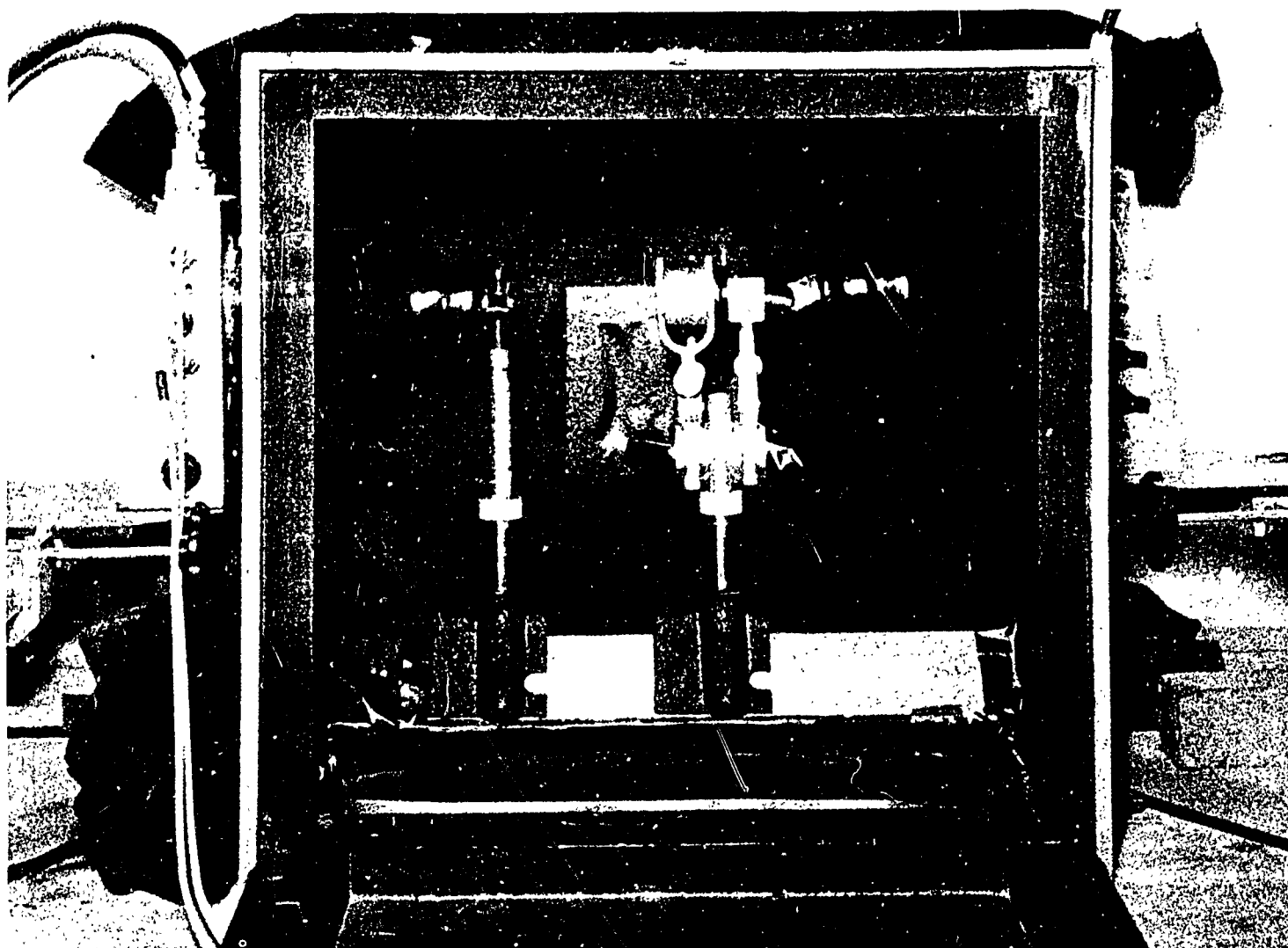


Figure 15 a - Montage optique du dispositif de mesure.

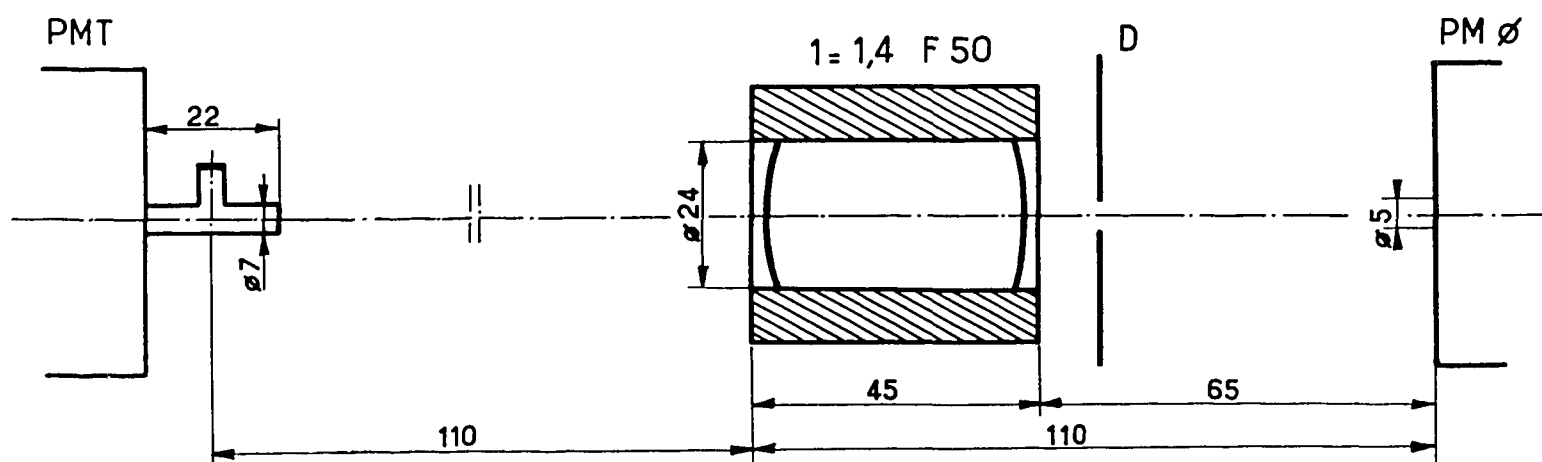


Figure 15 b - Montage optique du dispositif.

Le réglage optique de l'ensemble est effectué une fois pour toutes, avant la mise sous tension des photomultiplicateurs.

### 3-1.2 - Constitution du générateur d'impulsions lumineuses brèves

L'étude du fonctionnement des photomultiplicateurs adaptés aux problèmes de la scintillation nous a conduit à utiliser des générateurs d'impulsions lumineuses aussi brèves que possible.

Parmi plusieurs procédés envisagés (flying-spot, miroirs tournants, thyratrons), nous avons choisi la décharge électrique provoquée dans un gaz par rapprochement de deux électrodes portées à un potentiel donné (KOECHLIN, 1958).

Ce dispositif présente une grande simplicité de mise en oeuvre ; ses impulsions lumineuses peuvent être délivrées à volonté à une fréquence déterminée. Elles sont extrêmement brèves (de l'ordre de la nanoseconde) et accompagnée d'impulsions électriques rigoureusement simultanées .

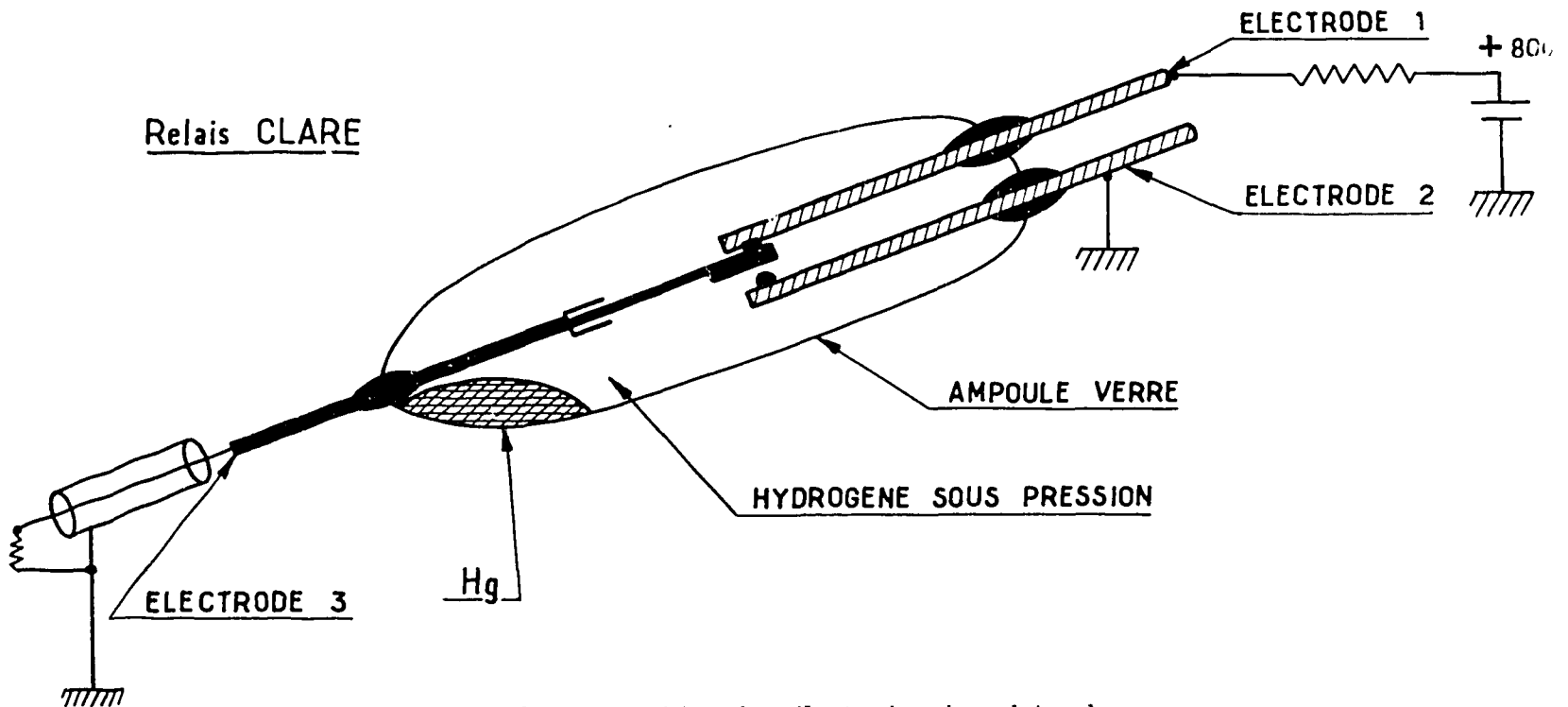


Figure 16 - Disposition des électrodes du relais clare.

Pour cette étude nous avons utilisé un relais industriel (relais CLARE HGP 2004). Ce relais, représenté sur la figure 16, est utilisé comme générateur d'impulsions électriques à temps de montée inférieur à 0,3 ns, dans les générateurs type IEV 3. Q.A. KERNS (1959) a indiqué son utilisation comme générateur d'impulsions de lumière de durée de l'ordre de la nanoseconde. Ce relais comporte deux électrodes fixes et une électrode mobile permettant la fermeture du circuit. L'ensemble est disposé dans un tube de verre contenant de l'hydrogène sous pression (env. 15 atm) et une goutte de mercure destinée à mouiller les contacts. Une des électrodes fixes est portée par l'intermédiaire d'une résistance  $R$  de grande valeur (plusieurs mégohms) à un potentiel élevé (entre 800 et 1500 volts) fourni par une haute tension stabilisée.

L'électrode mobile est reliée à une ligne coaxiale dont l'autre extrémité est fermée sur son impédance caractéristique (100 ohms dans notre montage).

L'électrode mobile, légèrement aimantée, est soumise à l'action d'un électro-aimant alimenté par le secteur à travers un auto-transformateur variable. Lorsque l'électrode mobile est au repos, le champ électrique créé par la mise sous tension de l'électrode fixe est inférieur au champ disruptif. Au cours de son rapprochement de l'électrode fixe, le champ augmente (les potentiels restent inchangés) et atteint la valeur disruptive.

Une décharge est provoquée et permet à la quantité d'électricité, accumulée dans la capacité constituée par l'électrode fixe, de s'écouler dans la ligne coaxiale. Les molécules du gaz qui sont portées à leur niveau optique se dés excitent produisant une émission très brève de lumière, leur temps de vie étant abrégé par les processus de transfert non radiatifs de leur énergie à des molécules extinctrices existant dans le gaz. Expérimentalement Q.A. KERNS trouve qu'à un potentiel de 1.500 volts sur l'électrode fixe correspond une décharge (provoquée) durant 0,8 ns et une impulsion lumineuse de quelques milliers de photons durant 1,2 ns environ (figure 17).

### 3-1.3 - Conditions de fonctionnement du P.M.

#### 3-1.3.1 - Enoncé des conditions

Avant de mettre en oeuvre notre méthode, il est nécessaire de s'assurer que l'échantillon ne comporte bien qu'un seul photon par impulsion lumineuse. Il est donc nécessaire de s'assurer que l'impulsion anodique du P.M., correspondant à l'impulsion lumineuse, n'est engendrée qu'à partir d'un seul photoélectron.

Cette condition nécessite tout d'abord d'observer individuellement les impulsions anodiques relatives à un seul photoélectron, c'est-à-dire :

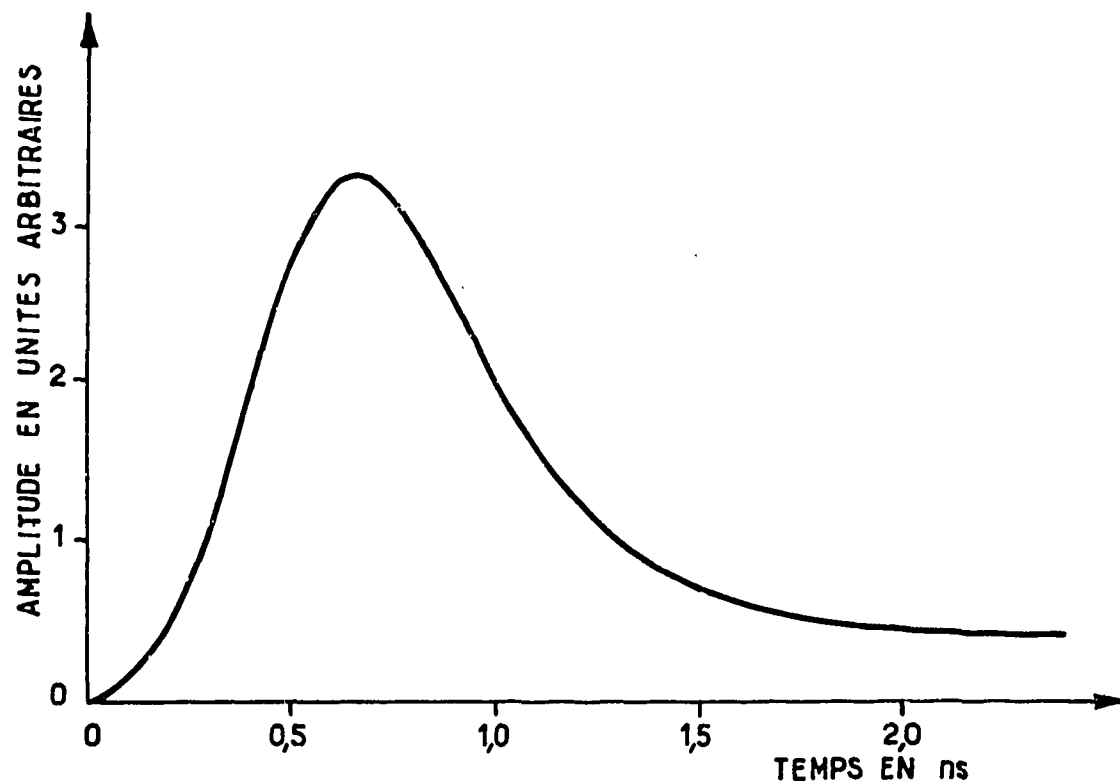


Figure 17 - Impulsion lumineuse du relais clare. (Q-A - Kerns, (1959)).

a) disposer d'une amplification électronique suffisamment élevée (multiplicateur du P.M. et amplificateur à lampes) ;

b) utiliser un dispositif d'enregistrement des impulsions capable de les séparer dans le temps.

La deuxième condition est aisément réalisable dans nos mesures où les taux de répétition sont toujours inférieurs à  $10^5 \text{ sec}^{-1}$ .

Quant à la première, elle dépend en premier lieu du gain du photomultiplicateur. Etant de nature statistique, il varie autour d'une valeur moyenne et les impulsions présentent un éventail d'amplitudes très considérable.

MORTON (1949) a montré que la distribution des amplitudes anodiques relatives à un photoélectron suit, en première approximation, une loi de POISSON caractérisée par un écart quadratique moyen sur lequel le gain moyen  $\mu$  de la première dynode a un effet prépondérant.

La figure 18 présente un exemple d'une telle distribution calculée pour un 56 AVP dont le gain moyen  $G$  est de  $2 \cdot 10^8$ . La distribution des amplitudes des impulsions anodiques est en première approximation celle des gains de la première dynode. La courbe représente à un facteur près, la probabilité de multiplication par 1, 2, 3, etc par cette dynode dont le gain moyen est de 6,8.

Un électron multiplié par 10 par la première dynode fournit à l'anode une impulsion anodique  $A$  de 2 volts environ sur une impédance  $R$  de  $100 \Omega$ .

En effet on peut écrire  $A \simeq e G R / t$  avec  $e$  charge élémentaire en coulomb,  $G$  gain moyen du P.M.,  $R$  impédance d'anode et  $t$  largeur de l'impulsion anodique (2 ns).

On peut voir que les impulsions dont les amplitudes sont supérieures à 0,5 volts constituent plus de 90 % du total de la répartition. Il est donc toujours possible de rendre décelable 90 % des impulsions relatives à un seul photoélectron par un amplificateur à lampes de type rapide, par exemple : l'amplificateur linéaire de 6 MC de bande passante (ABV 10) ou bien les amplificateurs incorporés dans les oscillographes cathodiques, type "TEKTRONICS".

Ces premières conditions étant remplies, il est nécessaire de supprimer de nos mesures toute impulsion parasite du P.M., en particulier son bruit de fond.

On ne permet donc l'enregistrement des impulsions anodiques du P.M. que pendant le temps d'émission des impulsions lumineuses. Ce temps étant, dans nos mesures, court (quelques  $10^{-8} \text{ s}$ ),

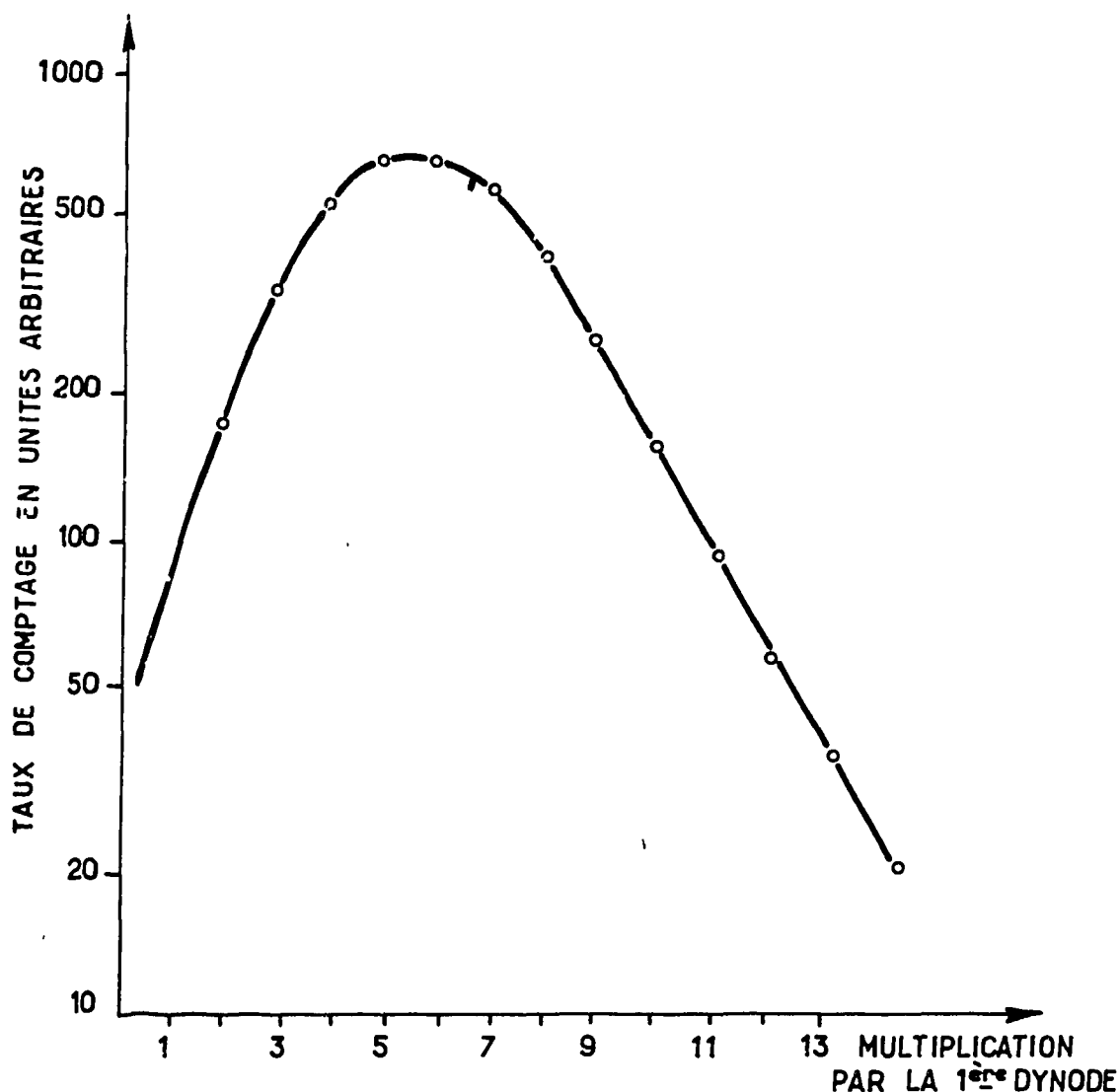


Figure 18 - Distribution calculée des amplitudes anodiques du 56 AVP.  
 Gain moyen total  $\approx 2.10^8$   
 Gain moyen 1ère Dyn = 6,8

devant l'intervalle moyen entre deux émissions de photoélectrons de bruit de fond ( $10^{-5}$  environ), ces dernières se trouvent éliminées et les impulsions anodiques enregistrées correspondent toujours à des photoélectrons arrachés par des photons de l'impulsion lumineuse.

Enfin, il faut s'assurer que l'impulsion anodique, ainsi enregistrée, ne correspond pas à plus d'un photoélectron.

D'après le calcul que nous avons établi précédemment (2232), cette condition conduit à diaphragmer la photocathode pour qu'elle ne fournisse pas plus d'un photoélectron, en moyenne, pour une vingtaine d'impulsions lumineuses. La condition est réalisée dans le cas du fonctionnement de notre P.M. si le nombre d'impulsions enregistrées n'excède pas 5 % du nombre d'impulsions lumineuses fournies (puisque 90 % des photoélectrons dus à la lumière peuvent être enregistrés).

### 3-1.3.2 - Vérification expérimentale de ces conditions

Pour nous assurer que les conditions énoncées précédemment sont remplies, nous avons tracé les spectres d'amplitude des impulsions anodiques du P.M. dans plusieurs conditions d'expériences, en particulier dans l'obscurité (figure 19).

L'anode du 56 AVP est connectée par une ligne coaxiale de  $100 \Omega$  d'impédance à l'entrée d'un amplificateur linéaire (ABV 10). De 6 MHz de bande passante, il est muni d'un atténuateur compensé variable par bonds. Cet amplificateur est connecté à un tiroir porte linéaire (E.L.A.) dont la sortie est reliée à un analyseur d'amplitude (E.L.A.) comportant 25 canaux. La porte linéaire a ici pour fonction de limiter le nombre d'impulsions entrant par seconde dans l'analyseur qui ne peut pas recevoir plus de 1000 impulsions par seconde. Un générateur d'impulsions rectangulaires de  $10 \mu s$ ,  $3 \mu s$  ou  $1 \mu s$  de durée, d'amplitude et de polarité convenable, déclenche la porte 50 fois par seconde, diminuant le taux d'impulsions entrant dans l'analyseur par un facteur 2.000.

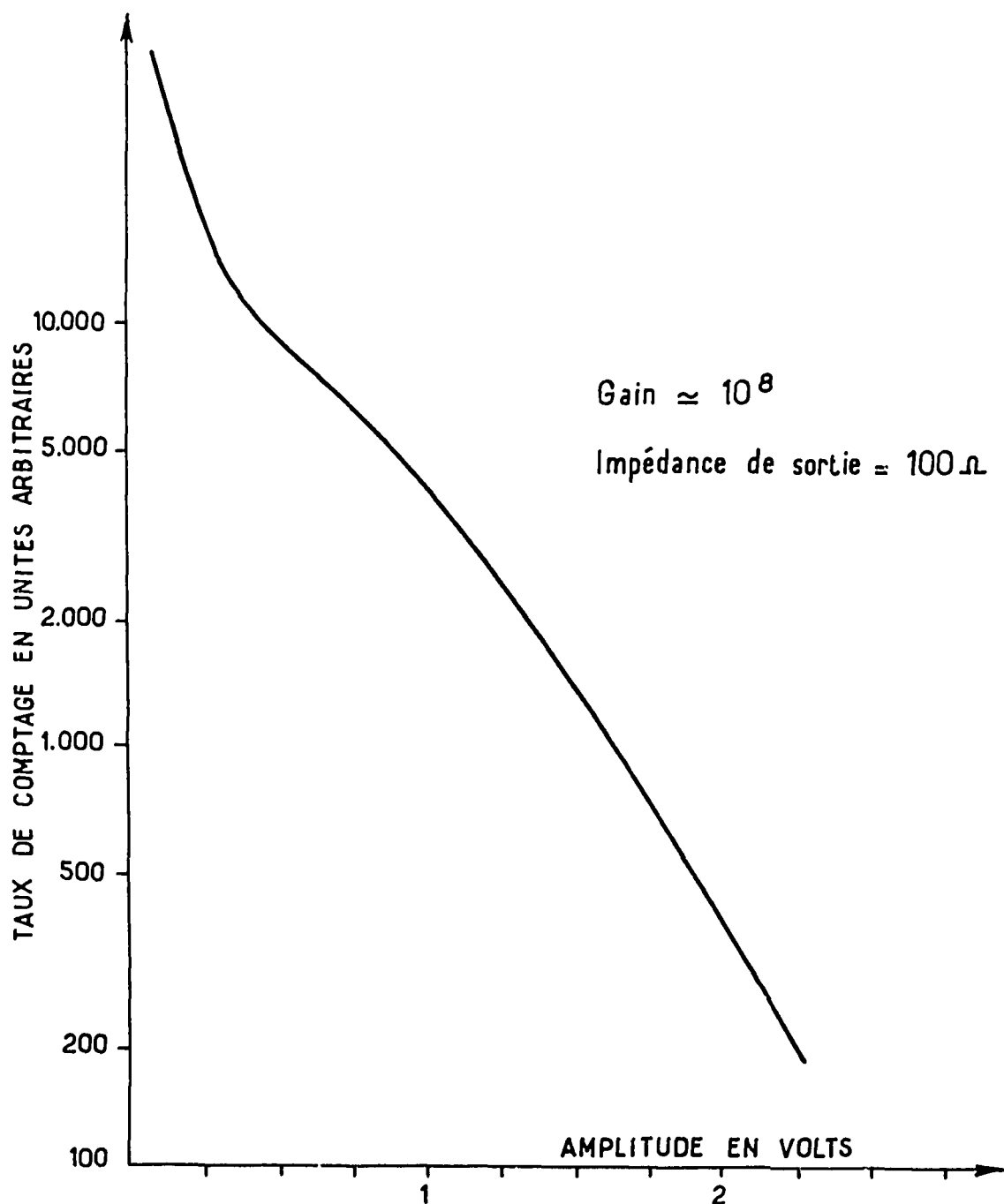


Figure 19 - Distribution des amplitudes anodiques du 56 AVP en l'obscurité.

Afin de couvrir une gamme d'amplitude suffisante, nous avons agi sur l'atténuateur de l'amplificateur. Nous l'avons étalonné par rapport à l'amplitude crête des impulsions anodiques du P.M., mesurées grâce à un oscilloscope cathodique TEKTRONICS 545 (figure 20). La largeur et le seuil des canaux restant constants au cours de nos mesures, il est nécessaire, à chaque atténuation, de faire correspondre à chacun d'eux un seuil et une largeur, dont l'un est multiplié et l'autre divisé par le rapport des atténuations (Tableau II).

Tableau II

Atténuation	les 15 canaux de 5 à 20 couvrent de :	multiplier le seuil et diviser la largeur du canal par :
0	12 mV à 45 mV	1
8	30 120	2,5
16	70 300	6,5
24	190 720	16
32	710 2700	55

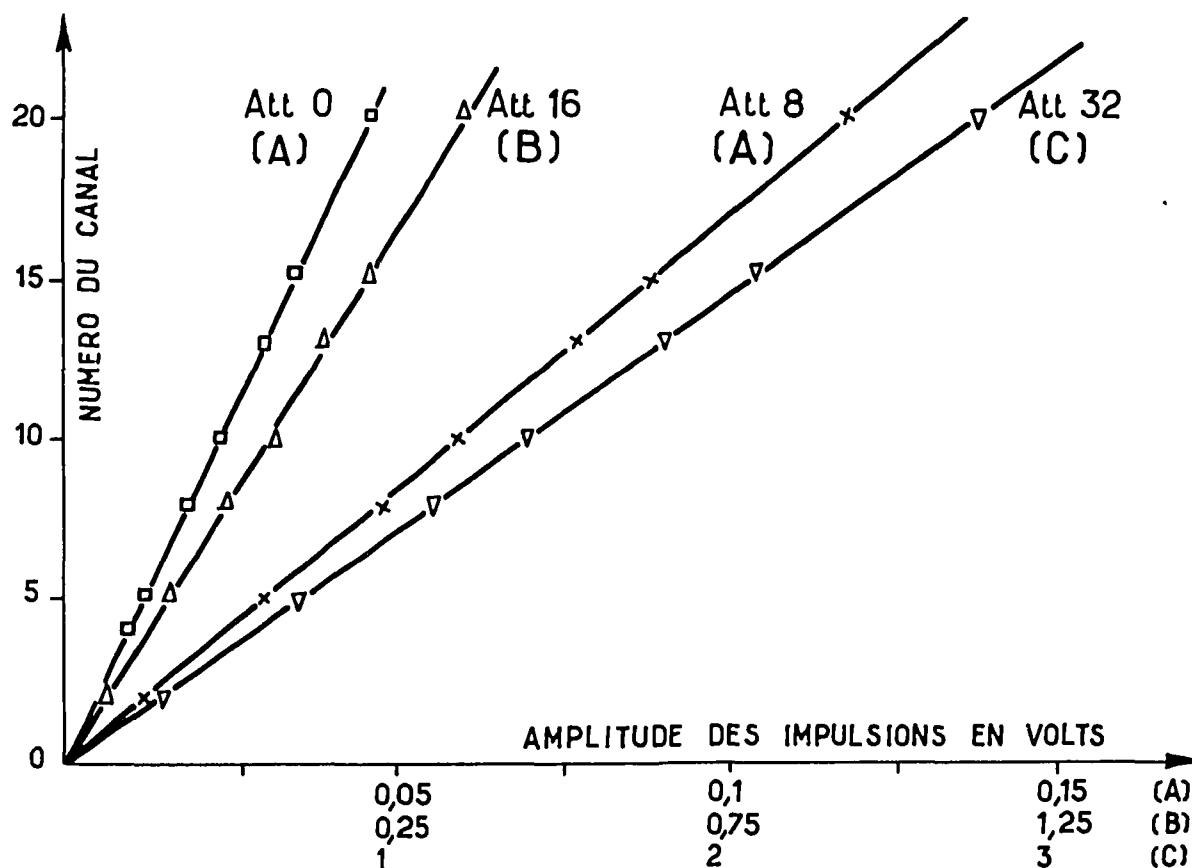


Figure 20 - Etalonnage du circuit de mesure des amplitudes anodiques du 56 AVP.

Nous avons tout d'abord enregistré le spectre des impulsions dites de bruit de fond du P.M.. Ce sont les impulsions fournies lorsque le P.M. fonctionne dans l'obscurité. Ces impulsions correspondent à l'amplification, par le multiplicateur, d'électrons émis isolément par la photocathode. Il s'y ajoute les électrons émis spontanément par les autres parties du P.M., en particulier, par les électrodes disposées dans l'optique d'entrée et recouvertes de  $Cs_3Sb$  au cours de la formation du tube. Les dynodes du 56 AVP en Ag Mg présentent aussi une émission thermique quoique plus faible que le  $Cs_3Sb$ . L'ensemble de cette deuxième cause correspond à un nombre assez considérable d'impulsions mais dont l'amplitude est plus faible que la précédente. Enfin, l'émission de pointe et la remontée des ions résidant dans l'enceinte du P.M. provoquent l'apparition d'impulsions anodiques de très grande amplitude mais dont le nombre est négligeable (environ le 1/10.000ème des deux autres).

La figure 19 montre le spectre d'amplitude des impulsions anodiques du 56 AVP, placé dans l'obscurité. On voit que la courbe croît brusquement dans la région des impulsions de petite amplitude.

Nous avons tracé les spectres d'amplitude dans ces mêmes conditions lorsque le P.M. est éclairé par une lampe à filament dont le flux, très faible, est filtré dans la région, soit bleue, soit rouge du spectre, par des filtres en verre de Wood (figure 21).

On voit qu'en ce qui concerne les amplitudes supérieures à 0,5 V, ces deux courbes suivent le tracé du bruit de fond. Dans le domaine d'amplitudes inférieures à 0,5 V, la courbe relative à l'éclairement "rouge" suit encore le tracé du bruit de fond.

Nous avons vu que dans le bruit de fond se superpose l'émission des dynodes et des électrodes latérales de l'optique d'entrée. La lumière "rouge" est peu absorbée par la cathode semi-transparente (figure 22) alors que le "bleu" l'est à 90 %. Une proportion importante de la lumière "rouge" vient donc éclairer la 1ère dynode et l'électrode focalisatrice. Ces photoélectrons, émis dans un espace où le champ est faible sont mal multipliés et donnent lieu à de faibles impulsions anodiques.

Toujours dans le domaine d'amplitudes inférieures à 0,5 V, la courbe relative à l'éclairement "bleu" présente un maximum et décroît rapidement comme le laisse prévoir la théorie de l'amplification de photoélectrons isolés par le multiplicateur (figure 18). En conclusion, on peut admettre que notre tracé relatif à la lumière bleue correspond bien à l'émission d'électrons iso-

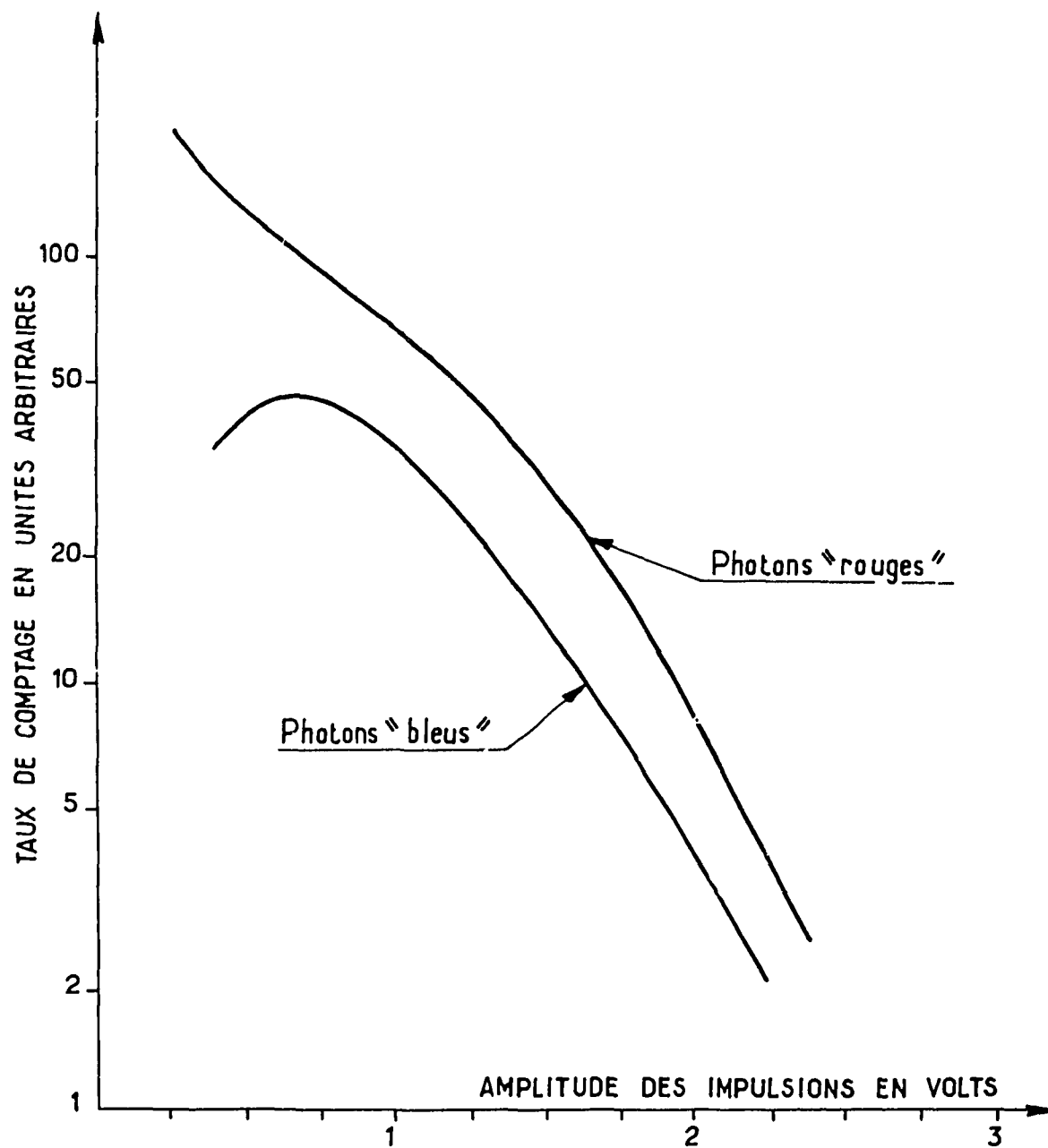


Figure 21 - Distributions mesurées des impulsions anodiques du 56 AVP relative à des photoélectrons isolés.

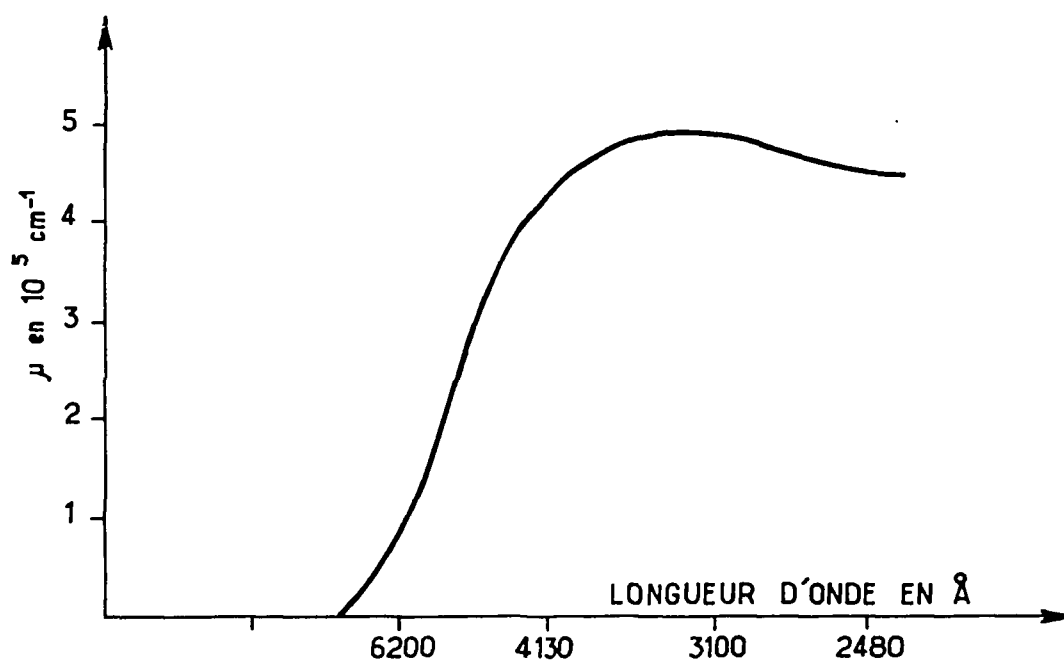


Figure 22 - Courbe de l'absorption  $\mu$  du  $\text{Cs}_3\text{Sb}$ .



lés par la cathode seule. Nous avons repris ces mesures en utilisant comme source de lumière les étincelles du relais CLARE et nous avons vérifié expérimentalement que les conditions pour obtenir un seul photoélectron par impulsion lumineuse étaient bien remplies.

Dans ce cas le générateur d'impulsions de déclenchement de la porte linéaire est synchronisé sur le relais CLARE. Le nombre d'impulsions anodiques du P.M. enregistrées et dues au relais CLARE, n'est qu'une fraction faible du nombre de ses étincelles. Cette fraction peut être modifiée grâce à l'ouverture du diaphragme, disposé entre le relais et la photocathode du P.M.

On voit sur la figure 23 que la distribution des amplitudes reste identique à celle du bruit de fond tant que cette fraction reste faible, par exemple 2 % et 9 % ; la courbe relative à 9 % se situe sur des ordonnées environ 5 fois supérieures ce qui correspond bien à l'augmentation de 2 à 9 %. Cependant la courbe, relative à une fraction de 30 % des impulsions anodiques par rapport au nombre des étincelles du relais, montre une déformation due à une plus forte proportion d'impulsions de grande amplitude. Nous vérifions bien ainsi dans notre montage, que si le nombre d'impulsions anodiques, relatives à des impulsions lumineuses, est bien inférieur à celui de ces dernières, chacune des impulsions anodiques est due, dans une grande proportion, à un photoélectron isolé.

Dans tous les cas où le P.M. est éclairé, nous avons soustrait le bruit de fond de nos comptages globaux.

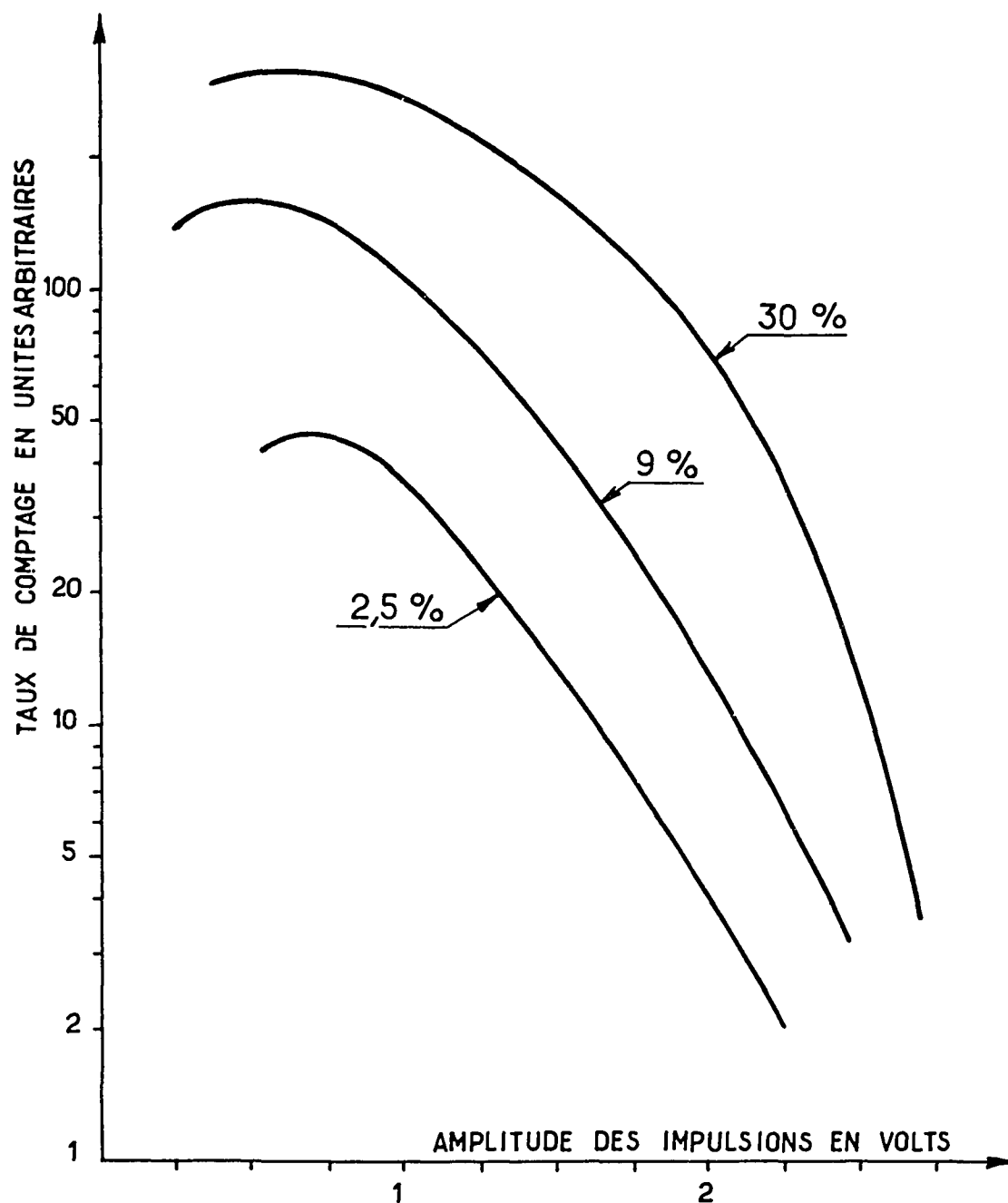


Figure 23 - Distribution des amplitudes anodiques (Photoélectrons isolés, éclairs du relais Clare).

### 3-2 - RECONSTITUTION DE L'IMPULSION LUMINEUSE DU RELAIS CLARE PAR ENREGISTREMENT PHOTOGRAPHIQUE DES IMPULSIONS DU 56 AVP

Nous avons tout d'abord utilisé une méthode de mesure simple, permettant de classer le retard des photons de l'impulsion lumineuse par rapport à la cause qui l'a produite. Elle consiste à photographier les impulsions d'un 56 AVP s'inscrivant sur l'écran d'un oscilloscope 517 TEKTRONICS.

Le 56 AVP est exposé aux impulsions lumineuses du relais CLARE, précédemment décrit, mais un diaphragme ne laisse passer que quelques photons par impulsion lumineuse.

L'oscilloscope est déclenché par l'impulsion électrique du relais. L'anode, fermée sur une impédance de  $100 \Omega$ , est connectée directement à la sonde cathodyne de l'oscilloscope de sensibilité  $0,2 \text{ volts/cm}$ . Le gain du 56 AVP est porté à une valeur suffisante pour rendre décelable sur l'écran de l'oscilloscope les impulsions anodiques dues à l'émission spontanée de la photocathode (bruit de fond) et dont le taux de comptage se situe en moyenne à  $10^5$  par seconde.

Le balayage est porté à la vitesse maximum correspondant à  $10 \text{ ns}$  par cm sur l'écran. Il est déclenché par l'impulsion électrique du relais dont l'amplitude et la stabilité sont suffisantes pour que le départ du spot corresponde, à  $0,2 \text{ nanoseconde}$  près, à celui de la décharge dans le relais.

Cette valeur est déduite de la largeur de la trace oscillographique correspondant à la superposition d'un grand nombre d'impulsions anodiques du 56 AVP, lorsqu'il reçoit une quantité importante de lumière du relais CLARE. Cette largeur de la trace correspond à une incertitude sur le déclenchement d'environ  $0,2 \text{ ns}$ .

Le 56 AVP est d'abord mis dans l'obscurité ; le nombre d'impulsions de bruit de fond s'inscrivant sur  $1 \text{ cm}$  de l'écran est de l'ordre de 1 pour 1 000 balayages.

Le diaphragme est légèrement ouvert de façon à observer les impulsions du P.M. relatives aux étincelles dans le rapport de 1 pour 50 balayages environ, soit 1 par seconde en moyenne.

La figure 24 donne un exemple des impulsions anodiques du 56 AVP relatives à 1 photoélectron telles qu'on les observe sur l'écran d'un oscilloscope. Une très grande proportion de ces impulsions sont groupées dans un intervalle de temps inférieur à  $10 \text{ ns}$ , même si on ferme le diaphragme pour n'avoir plus qu'une impulsion pour quelques centaines de balayages. Les impulsions,

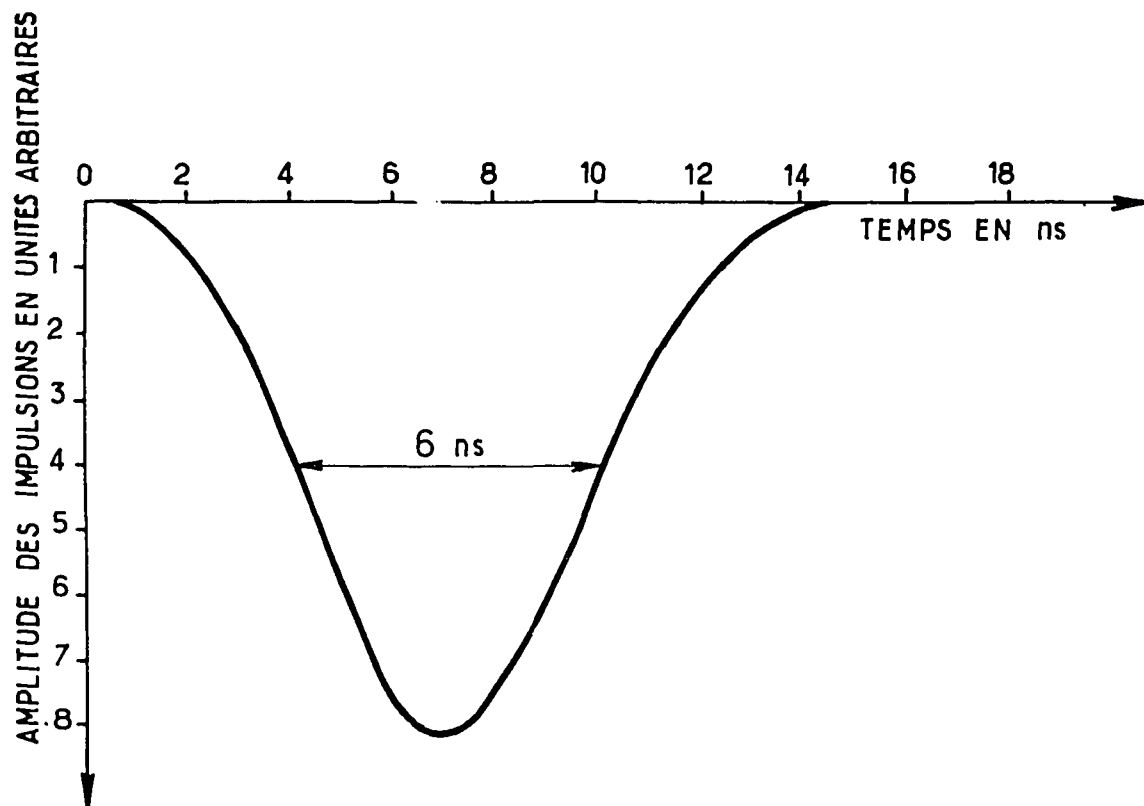


Figure 24 - Enregistrement oscillographique des impulsions anodiques du 56 AVP (Relais Clare).

comme on doit s'y attendre, ne se superposent pas parfaitement ; elles correspondent chacune à un photoélectron isolé arraché à la photocathode par un photon d'une impulsion lumineuse du relais CLARE.

Chaque impulsion est photographiée grâce à une chambre contenant de la pellicule négative "Polaroid" 46 L (1 000 ASA). 125 photographies nous ont permis de retracer la forme de l'impulsion lumineuse en classant chaque impulsion oscillographique par l'abscisse de son barycentre.

La figure 25 montre la courbe de la répartition des écarts des photons de l'étincelle moyenne du relais CLARE. Chacune des 125 photographies oscillographiques montre une impulsion anodique placée à une certaine distance du départ du spot. On mesure les époques des barycentres en nanosecondes. On classe ces époques dans des canaux juxtaposés de 0,3 ns de large. Leur répartition représente un échantillon de la forme de l'éclair du relais CLARE. Les erreurs statistiques sur les ordonnées sont naturellement assez importantes, le nombre total de clichés étant relativement faible. Le front de montée est de l'ordre de 0,5 ns et la largeur, à mi-hauteur, de 1,5 ns.

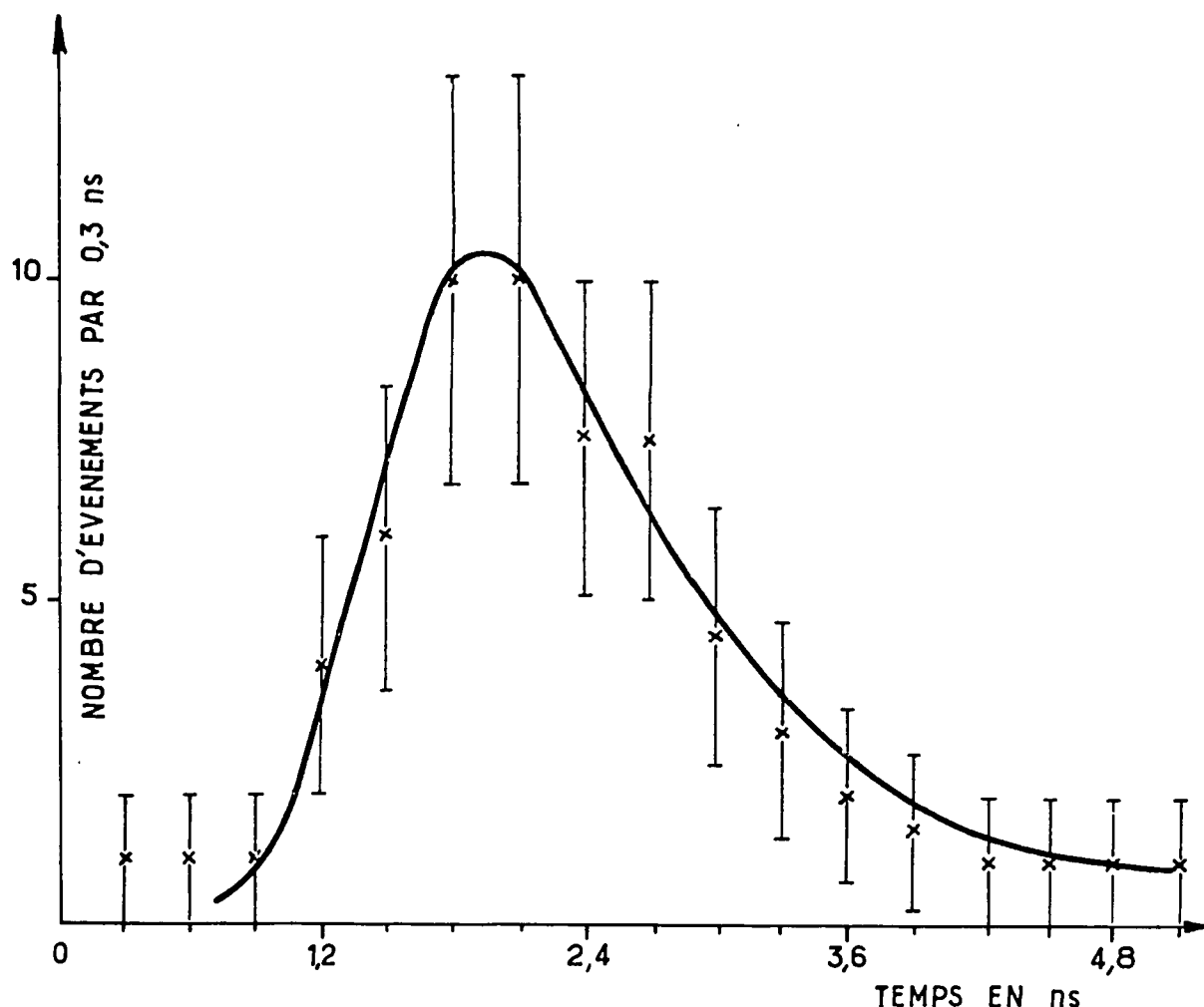


Figure 25 - Tracé de l'histogramme des écarts des photons émis par l'étincelle du relais Clare.

N'utilisant qu'un appareillage courant, cette mesure est simple. Quoique grossière, elle montre le bien-fondé de notre méthode. Avec un 56 AVP, dont les impulsions les plus courtes présentent un front de montée de 2 ns environ, on peut apprécier la forme d'une impulsion lumineuse dont le front de montée peut être de 0,5 ns. Cette valeur représente une estimation par excès de la largeur de la fonction réponse apportée par notre méthode d'échantillonnage.

### 3-3 - ENREGISTREMENTS AU MOYEN DE CIRCUITS ELECTRONIQUES

Dans la mesure précédente, l'oscillographe cathodique est synchronisé à l'impulsion lumineuse par l'impulsion électrique du relais, impulsion dont la stabilité et l'amplitude sont tout à fait satisfaisantes mais impliquant des conditions expérimentales très particulières. Pour rendre notre dispositif plus universel et en particulier, pour définir une époque repère à partir de l'impulsion lumineuse elle-même, grâce à un second photomultiplicateur, il est nécessaire de disposer de circuits électroniques de mise en forme. D'autre part, le montage précédent présente un grave défaut

dû au temps, relativement long, nécessaire à l'analyse des clichés. Une bonne précision sur l'ordonnée de l'histogramme nous obligerait en effet à dépouiller plus d'un millier de clichés. C'est pourquoi nous avons mis au point un dispositif électronique qui permet de tracer d'une façon semi-automatique l'histogramme des écarts des impulsions des P.M.

### 3-3.1 - Principe des circuits

Le dispositif est inspiré d'une étude sur un convertisseur "temps-amplitude" publié par J. CHRISTIANSEN (1959). Ce convertisseur fait correspondre à un intervalle de temps entre deux événements une impulsion électrique dont l'amplitude lui est proportionnelle.

L'élément essentiel est le tube électronique à plaques déflectrices fabriqué par la Société PHILIPS, sous la dénomination : "Tube à déviation de faisceau E80T". Il comporte 8 électrodes ; en particulier, deux plaques de déviation, une grille de commande de l'intensité du faisceau électronique, un diaphragme et une plaque collectrice.

Au passage rapide du faisceau électronique devant le diaphragme, correspond une impulsion sur la plaque dont l'amplitude dépend, en particulier, du potentiel de la grille de commande. Si ce dernier varie uniformément à partir d'une certaine époque, l'instant de passage du faisceau au travers du diaphragme peut être défini par l'amplitude de l'impulsion plaque correspondante. C'est ainsi que le front de montée d'une impulsion rigoureusement fixe en amplitude et en forme, appliquée à la grille de l'E80T, permet de définir une base de temps. Son départ doit alors être rigoureusement lié à l'impulsion définissant l'époque origine : impulsion électrique du relais CLARE dans le montage précédent, où impulsion du photomultiplicateur "PMT" qui reçoit la majeure partie de l'impulsion lumineuse.

Le passage du faisceau électronique par l'orifice du diaphragme se produit pour une certaine différence de potentiel entre les plaques déflectrices. Elle est obtenue par l'application à l'une de ces plaques d'une impulsion rigoureusement calibrée et dont le départ est lié à l'impulsion du photomultiplicateur dont la photocathode n'émet qu'un seul photoélectron par impulsion lumineuse - photomultiplicateur que nous avons désigné par le symbole "PM $\phi$ ".

Il reste donc à élaborer deux circuits distincts qui, à partir de ces photomultiplicateurs, fourniront les impulsions calibrées appliquées respectivement à la grille et à la plaque déflectrice de l'E80T. Afin d'éviter que les impulsions du bruit de fond du PM $\phi$  ne viennent encombrer la dernière partie du circuit, il a été nécessaire de prévoir un dispositif de porte, commandé par le PMT, ne laissant passer les impulsions du PM $\phi$  que si elles sont en coïncidence temporelles avec les impulsions lumineuses.

#### 3-3.1.1 - Détail des circuits

La figure 26 montre le schéma fonctionnel des circuits. Les symboles sont les suivants :

PM $\phi$  : photomultiplicateur prélevant le photon individuel

PMT : photomultiplicateur fournissant l'époque origine

M.F. : circuit de mise en forme

B.R. : boîte à retards variables

CRC : amplificateur distribué CRC Amp 96

Circuit D : circuit de l'impulsion de déflexion de l'E80T

Circuit G : circuit de l'impulsion grille de l'E80T

Analyse : circuits d'amplification et d'analyse par sélecteur d'amplitude

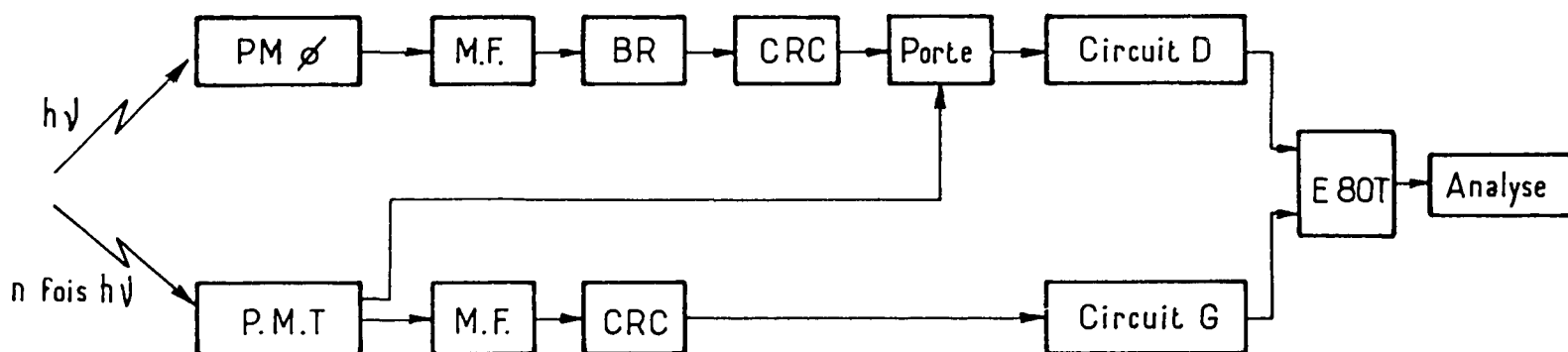


Figure 26 - Bloc diagramme des circuits.

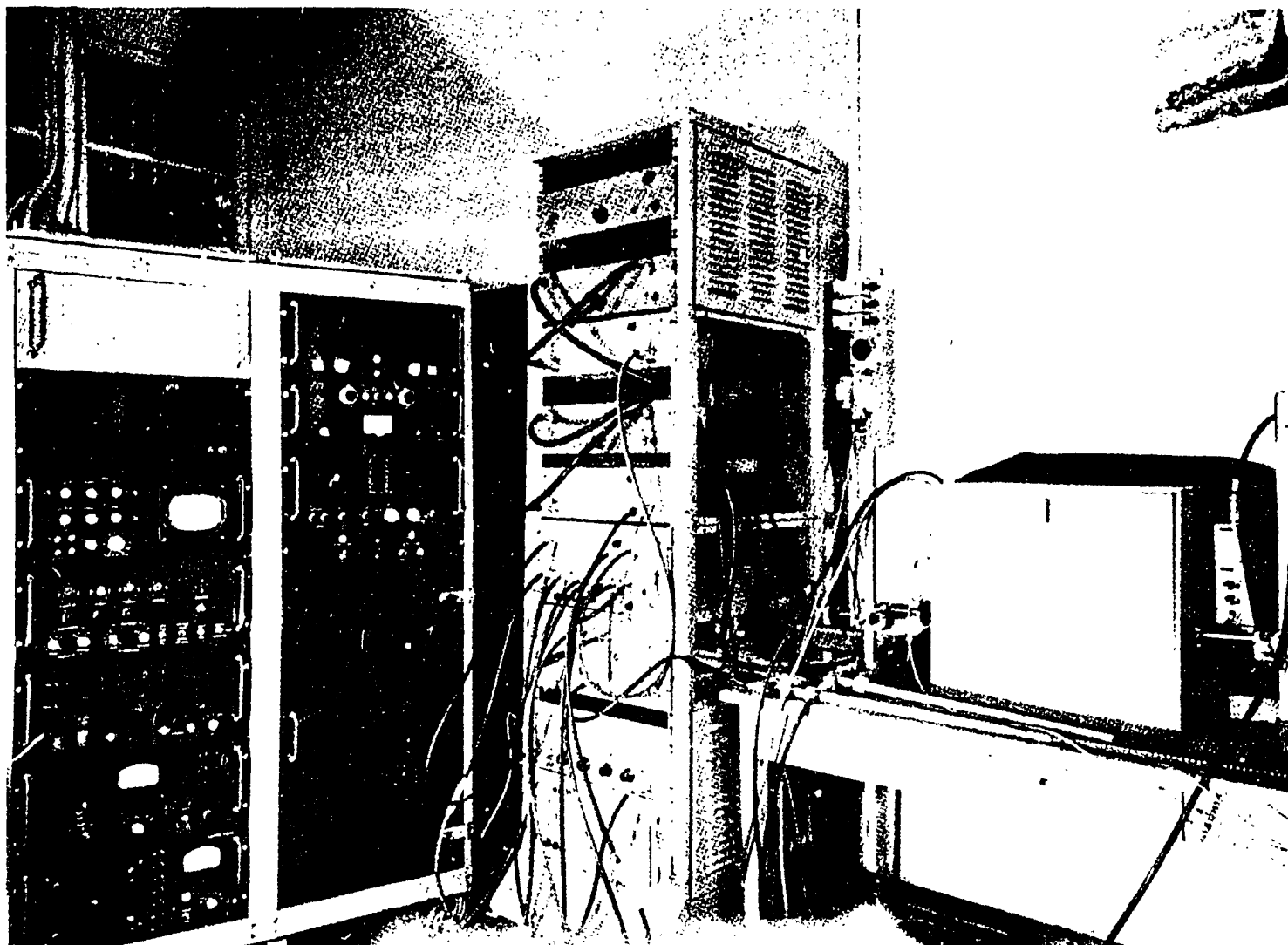


Figure 26 b - Ensemble de mesure.

Les deux voies comportent une mise en forme par une ligne coaxiale court-circuitée de longueur adaptable. Elle permet d'obtenir une impulsion dont le passage au zéro est lié, comme on l'a vu, au barycentre des impulsions anodiques du photomultiplicateur. Un bloc d'amplification suit cette mise en forme puis le circuit permettant d'élaborer les impulsions de commande de l'E80T. De plus, la dynode du PMT commande, par l'intermédiaire d'un circuit "porte", le passage de l'impulsion du PM $\phi$ . Une boîte à retards variables est disposée à la sortie du PM $\phi$  aux fins d'éta-  
lonnage.

### 3-3.1.2 - Alimentation des photomultiplicateurs

Afin de pouvoir régler indépendamment l'optique d'entrée et le gain des P.M. deux hautes tensions séparées (ALS 349) alimentent chaque photomultiplicateur. L'une d'elles commande les potentiels de l'optique d'entrée par un jeu de résistances et de potentiomètres, l'autre commande les potentiels des dynodes.

Les hautes tensions stabilisées que nous employons présentent une variation inférieure à 5/10 000ème, ce qui entraîne une variation du gain moyen  $g$  des P.M. de 7 % environ ( $dg/g = 14 dV/V$ ). Le délai étant de 40 à 50 ns environ ses variations sont de l'ordre de 0,01 ns ( $dD/D = \frac{1}{2} dV/V$ ).

La figure 27 montre la disposition de la chaîne des résistances. Celles-ci sont placées par valeurs croissantes, à partir de la 3ème dynode, afin de limiter les charges d'espace intervenant dans les dernières dynodes. Un potentiomètre permet d'ajuster le potentiel de l'anode afin d'éviter, au maximum, les déformations dues aux charges d'espace. Ces déformations apportent des erreurs supplémentaires dans la définition du temps par notre appareil, comme nous le verrons plus loin (3-3.3.1. c).

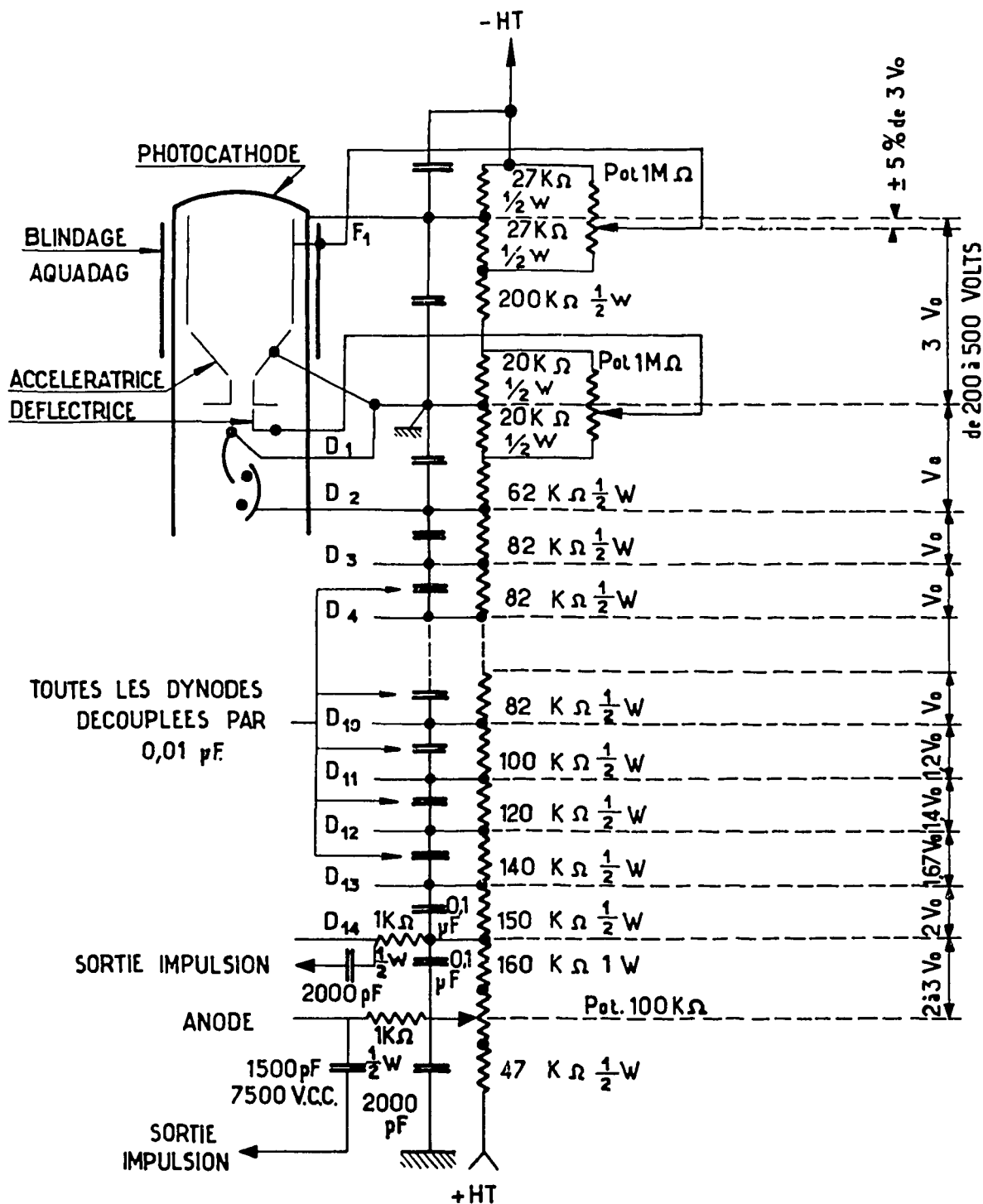


Figure 27 - Schéma de câblage du PM 204.

La figure 28 donne la répartition optimale des potentiels pour le photomultiplicateur PM $\phi$ . Le gain peut être estimé à quelques  $10^6$  pour le PMT et à  $2 \cdot 10^8$  pour le PM $\phi$ .

La valeur moyenne de l'amplitude des impulsions anodiques du PM $\phi$  relatives à un photoélectron est de 1 volt, environ, sur une impédance de  $100 \Omega$ , valeur que confirme le calcul, en prenant :  $A \simeq e G R / t$  où  $e$  est la charge élémentaire en coulomb,  $G$  le gain moyen ( $2 \cdot 10^8$ ) ;  $R$  la résistance d'anode ( $100 \Omega$ ) et  $t$  la largeur à mi-hauteur de l'impulsion anodique (2 ns).

### 3-3.1.3 - Circuit d'adaptation de l'anode

Le mode d'alimentation par deux hautes tensions séparées nous oblige à porter l'anode du P.M. à la haute tension positive. Une capacité de couplage, insérée entre l'anode et la sortie, permet d'effectuer les connections aux circuits à basse tension.

La dernière dynode est montée de la même façon. Pour utiliser ces électrodes sous des impédances pouvant varier au cours de nos essais entre 50 et  $100 \Omega$ , nous les avons raccordées par  $1000 \Omega$  à leur point d'alimentation.

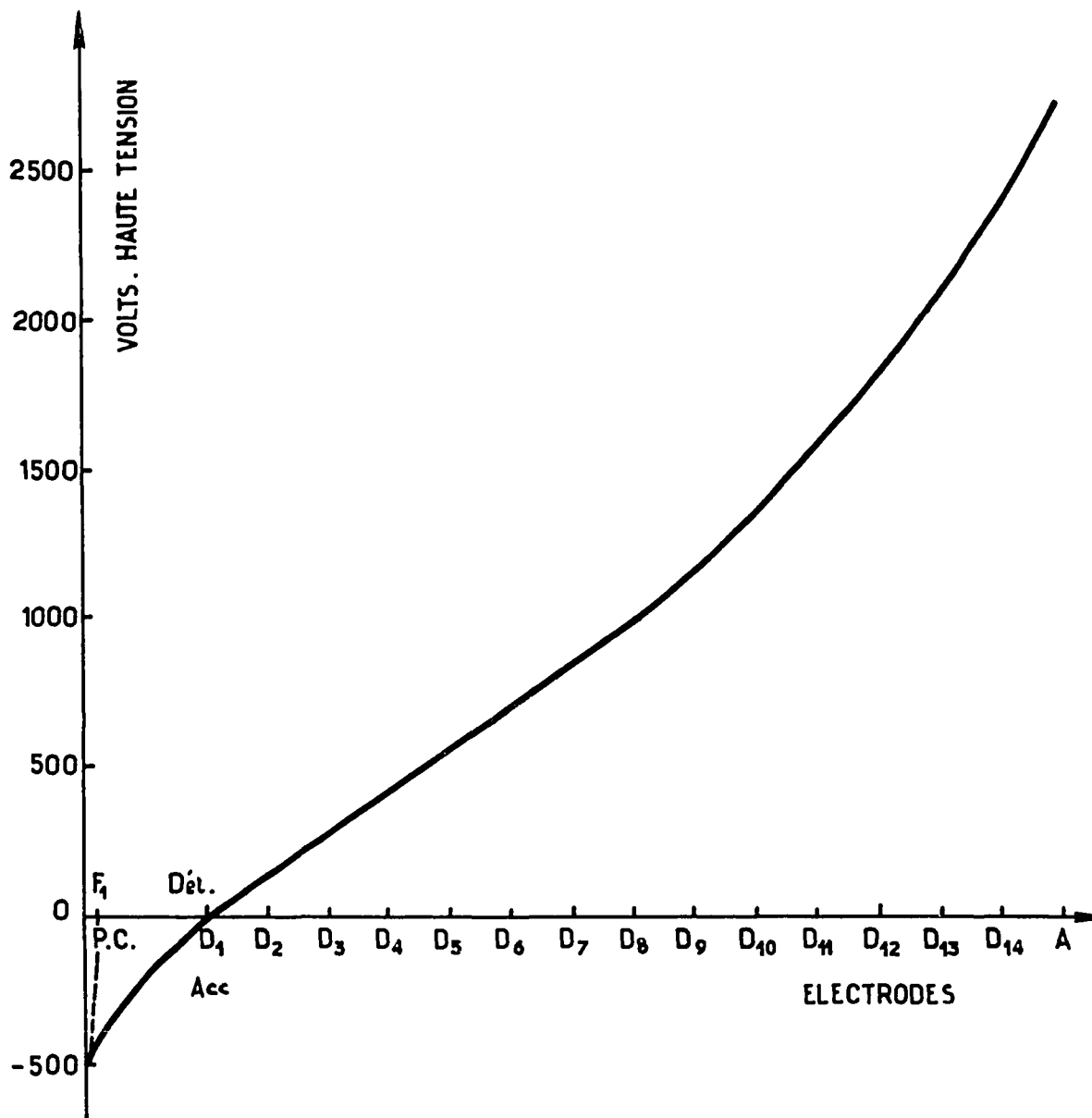


Figure 28 - Répartition des potentiels des dynodes de P.M.Φ.

#### 3-3.1.4 - Mise en forme par ligne court-circuitée

Les lignes coaxiales court-circuitées que nous utilisons sont constituées par des tubes métalliques à âme centrale dont l'impédance caractéristique est de  $100 \Omega$  (figure 29). Un piston faisant office de court-circuit peut se déplacer à l'intérieur du tube, modifiant la longueur de la ligne. Le raccordement de celle-ci au circuit d'anode est effectué grâce à une boîte d'adaptation dont la figure 30 donne le schéma. L'adaptation a été calculée de façon à raccorder le circuit, sans rupture d'impédance, à un amplificateur (C.R.C. Amp 96) dont l'entrée présente une impédance de  $200 \Omega$ . Les valeurs calculées sont respectivement de  $14,3 \Omega$  et de  $142,8 \Omega$  mais nous les avons ajustées expérimentalement.

Il est à remarquer que cette adaptation provoque une atténuation de l'impulsion de retour qui se retranche de l'impulsion primitive. Le passage au zéro se produit alors à un instant légèrement postérieur à celui de l'aller et retour dans la ligne de mise en forme (figure 30). Cependant, ce retard supplémentaire est toujours constant, l'atténuation dans la ligne étant fixée une fois pour toutes par la valeur de la résistance d'adaptation placée en série dans la ligne.

La partie positive de l'impulsion mise en forme commande le circuit d'élaboration du signal attaquant l'E80T. Il est nécessaire que la pente de son front de montée soit la plus grande possible de façon que les variations d'amplitude de cette impulsion -qui peuvent être importantes- n'affectent que d'une façon négligeable l'époque de départ de l'impulsion attaquant l'E 80 T.

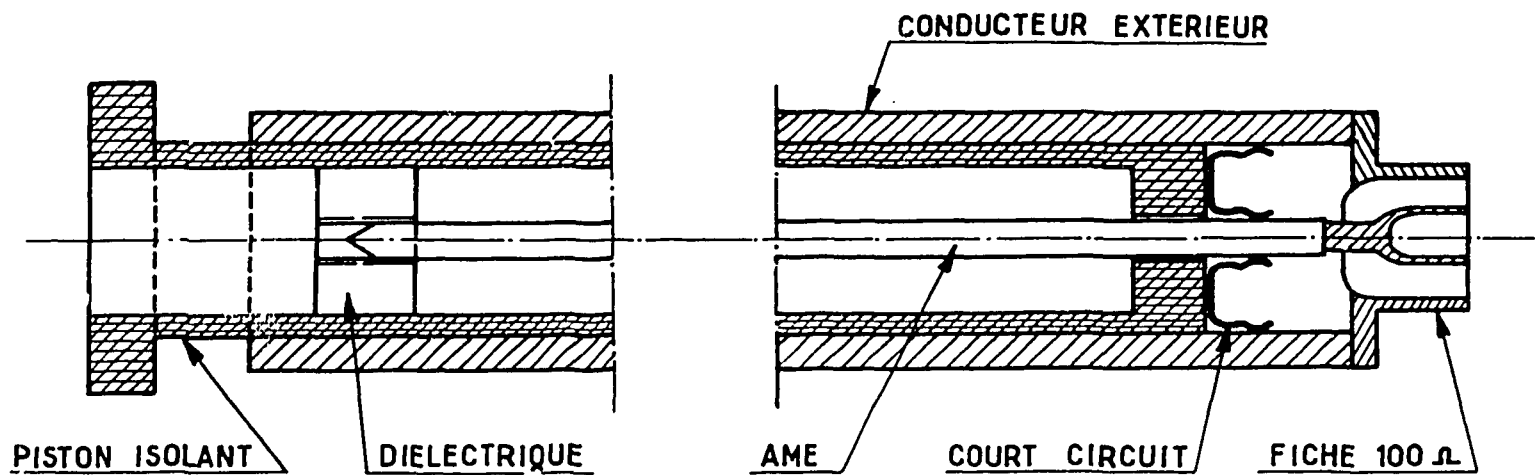


Figure 29 - Ligne coaxiale à piston.

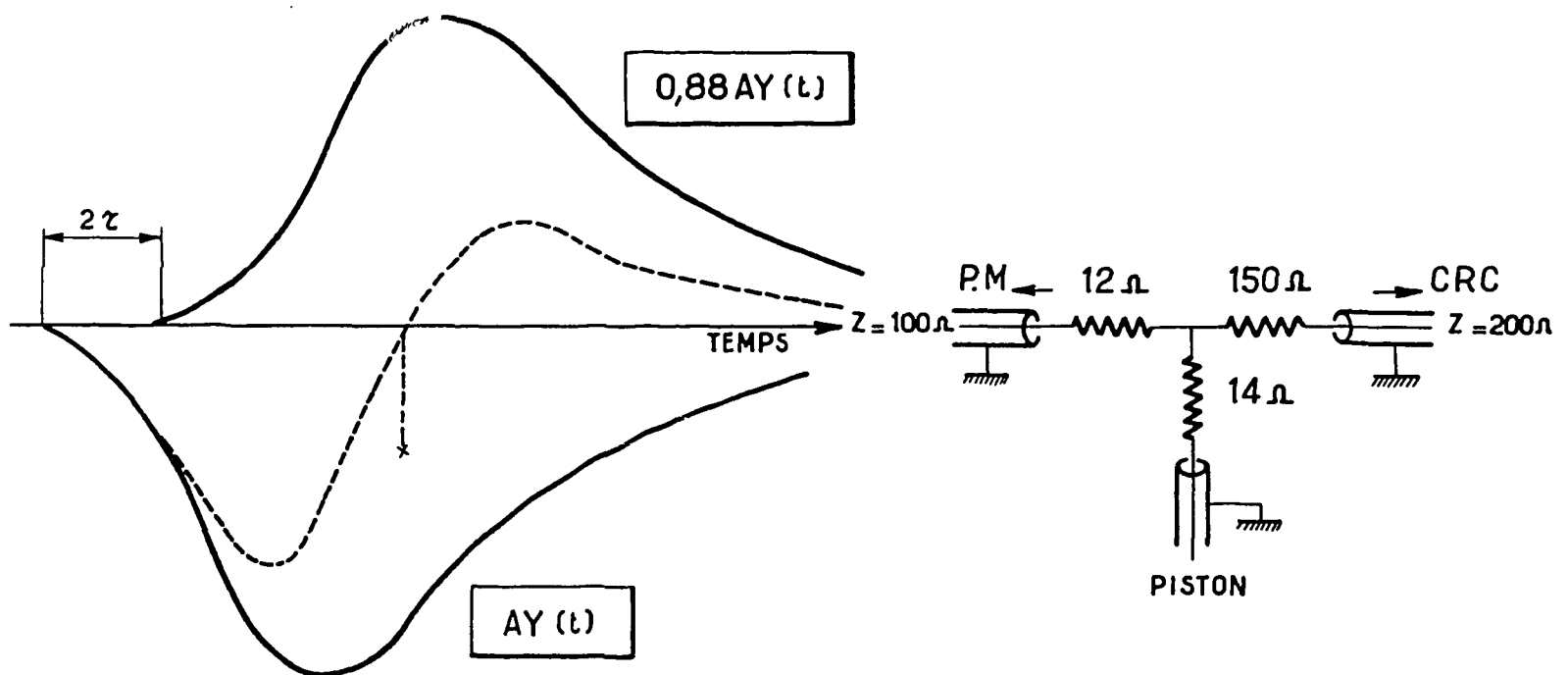


Figure 30 - Adaptation du P.M., du piston et de l'amplificateur C.R.C.

La longueur de la ligne de mise en forme est ajustée expérimentalement pour que le passage au zéro se produise au croisement des points d'inflexion de l'impulsion anodique et de son retour changé de signe. Cette longueur, de 22 cm, correspond à un temps d'aller et retour de 2 ns environ.

### 3-3.1.5 - Amplification

Il s'est avéré nécessaire d'amplifier les signaux sortant du circuit de mise en forme afin d'attaquer dans de bonnes conditions les circuits d'élaboration des signaux de déflexion et de grille de l'E 80 T. Deux amplificateurs distribués (CRC Amp96) d'une impédance caractéristique de 200 Ω, montés en série, fournissent un gain (variable) dont la valeur maximum atteint 30 environ lorsque la sortie du second amplificateur est adaptée sur une impédance de 100 Ω (suivant l'indication de la notice d'emploi).

Ces amplificateurs présentent une réponse impulsionnelle dont la demi-largeur entre inflexions est de l'ordre de 1,5 ns. Le signal à leur sortie est légèrement élargi mais, par suite de l'amplification, la pente de la deuxième boucle du signal passe de 0,5 volts/ns à 4 volts/ns. L'amplitude moyenne de cette partie, rendue négative par les amplificateurs, est de l'ordre de 15 V.



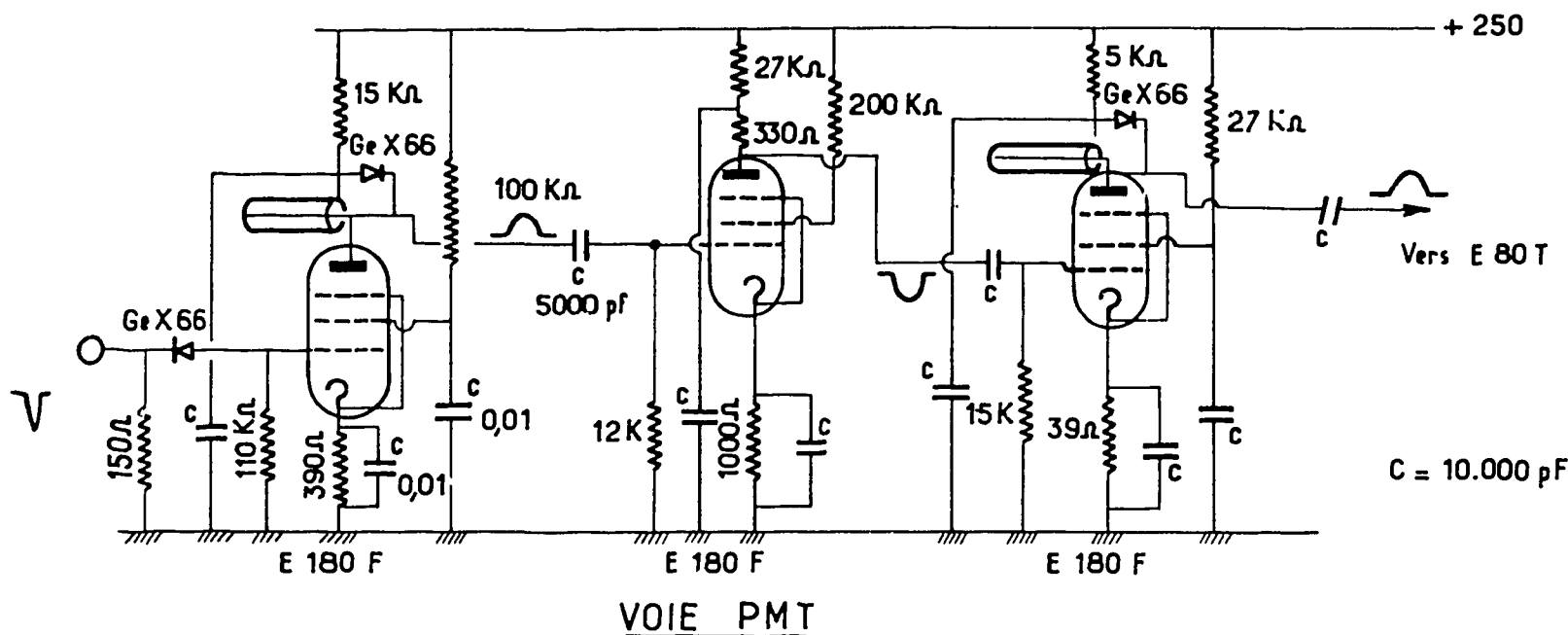


Figure 31 - Schéma de principe du circuit P.M.T. Elaboration de l'impulsion grille E80T.

La figure 31 donne le schéma de principe de ce circuit dans lequel nous utilisons exclusivement des penthodes à grande pente E180F. Son entrée comporte une diode de blocage de la première partie (positive) du signal. La partie négative, de 4 à 10 volts, porte la grille du premier tube E180F à son potentiel de coupure. Le circuit plaque, comportant une mise en forme par ligne coaxiale de 1 000Ω d'impédance caractéristique, délivre une impulsion positive de 2 volts maximum et de largeur de 20 ns. Amplifiée environ sept fois par le second tube, elle attaque le troisième tube dont la plaque comporte, comme le premier, une mise en forme par ligne court-circuitée. Le signal de sortie est de 12 volts et de 40 ns de large. Ce dernier signal sert à commander la grille de l'E80T et reste inchangé si l'amplitude des impulsions à l'entrée du circuit reste comprise entre 4 et 40 volts.

Nous allons estimer l'influence de l'amplitude des impulsions anodiques sur la position en temps de l'impulsion grille de l'E80T. On peut admettre que cette dernière prend naissance à l'instant où la grille du troisième tube atteint le potentiel de coupure (2 volts).

Ce potentiel de 2 volts rapporté à l'entrée des amplificateurs distribués correspond à 5 mV environ ; le gain total du circuit étant évalué à 400. L'identification du passage au zéro se fait au moment où la partie positive de l'impulsion anodique mise en forme atteint la valeur :  $s = 5 \text{ mV}$ . Le retard  $t$  apporté au passage au zéro dépend alors légèrement de l'amplitude des impulsions. On a représenté sur la figure 32 les parties positives d'amplitudes  $A_1$  et  $A_2$  de deux impulsions anodiques "mises en forme". Elles ont été assimilées à des triangles dont les hauteurs sont  $A_1$  et  $A_2$ . La variation  $\Delta t$  du retard s'exprime alors par  $\Delta t = s \cdot l \left[ \frac{1}{A_1} - \frac{1}{A_2} \right]$  où  $s$  représente le potentiel de 5 mV et  $l$  la projection de la montée de l'impulsion sur l'axe des abscisses. Pour  $s = 5 \text{ mV}$ ,  $A_1 = 0,25 \text{ V}$ ,  $A_2 = 2,5 \text{ V}$  et  $l = 1 \text{ ns}$ ,  $\Delta t$  est de l'ordre de 0,04 ns.

### 3-3.1.7 - Circuit de commande des plaques de déflexion de l'E 80 T

La figure 33 montre le schéma de principe du circuit. Différent du précédent en ce qu'il comporte le dispositif de porte, il est constitué de sept tubes E180F. L'impulsion de déflexion négative, d'amplitude de 56 volts, de 30 ns de montée et de 70 ns de largeur à mi-hauteur est, elle aussi, invariable si l'amplitude des impulsions à l'entrée est supérieure à 4 volts.

Cette impulsion définit le passage au zéro avec le même ordre de précision que l'impulsion grille de l'E80T.

### 3-3.1.8 - Circuit "porte"

Ce circuit, figure 34, est commandé par les impulsions de la dynode de PMT à partir de deux tubes E 180 F en série dont le signal du second est mis en forme pour obtenir une impulsion car-

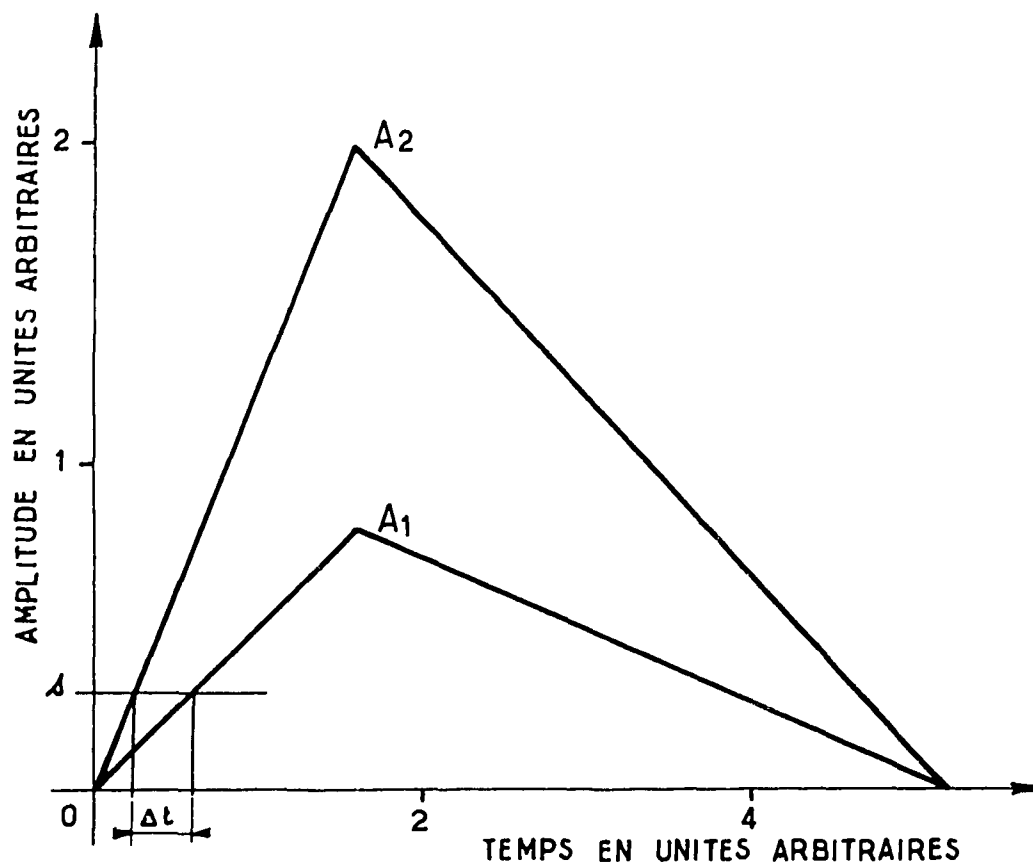


Figure 32 - Retards à la détermination du passage au zéro.

rée (10 ns). Il comporte deux E180F à plaques communes sur lesquelles apparaît la somme des impulsions appliquées sur les deux grilles (celles du PM $\phi$  et l'impulsion carrée commandée par le PMT) toutes deux toujours inférieures à 1,2 volts. Une diode polarisée à cette valeur ne laisse passer, dans la suite du circuit, que les impulsions de PM $\phi$  s'étant superposées aux impulsions porte, donc en coïncidence avec elles.

### 3-3.1.9 - Fonctionnement du tube E 80 T

Au repos, le faisceau cathodique du tube E 80 T est défléchi de façon à être obturé par le diaphragme et son débit est rendu minimum par la polarisation de la grille. La figure 35 fournit le schéma de principe du montage de ce tube ainsi que du circuit de sortie permettant l'adaptation à un amplificateur de 2 MHz (APT 2) dont le rôle est de permettre l'analyse des impulsions plaque de l'E 80 T par un sélecteur d'amplitude classique.

La figure 36 montre la disposition dans le temps des impulsions de grille et de déflexion de l'E80T. L'impulsion grille est positive, monte en 15 ns et sa largeur à la base est de 40 ns. L'impulsion de plaque est négative et fait passer le faisceau électronique dans l'orifice du diaphragme (pour une tension de 35 volts environ) à sa montée et à sa descente.

Les délais des circuits électroniques sont ajustés pour que le premier passage dans l'orifice du diaphragme corresponde à un potentiel de grille déterminé par la partie médiane du front de montée de l'impulsion grille. Le retour de l'impulsion de déflexion est suffisamment lent pour que le second passage du faisceau dans l'orifice du diaphragme ne se produise qu'après que le potentiel grille ait atteint sa valeur de repos.

### 3-3.2 - Performances du dispositif d'enregistrement électronique

Nous avons tout d'abord étudié le fonctionnement de notre dispositif électronique à l'aide de deux impulsions électriques obtenues à partir d'un générateur à relais CLARE IEV 3.

La figure 37 représente schématiquement l'enregistrement de la répartition des amplitudes des impulsions plaque de l'E80T lorsque le dispositif reçoit ces impulsions. Un premier essai fournit le pic de gauche lorsque les impulsions sont déphasées d'une nanoseconde. En déphasant les impulsions de 2 nanosecondes on obtient le pic de droite. La largeur des pics peut être alors étalonnée. Elle est de 0,025 ns.



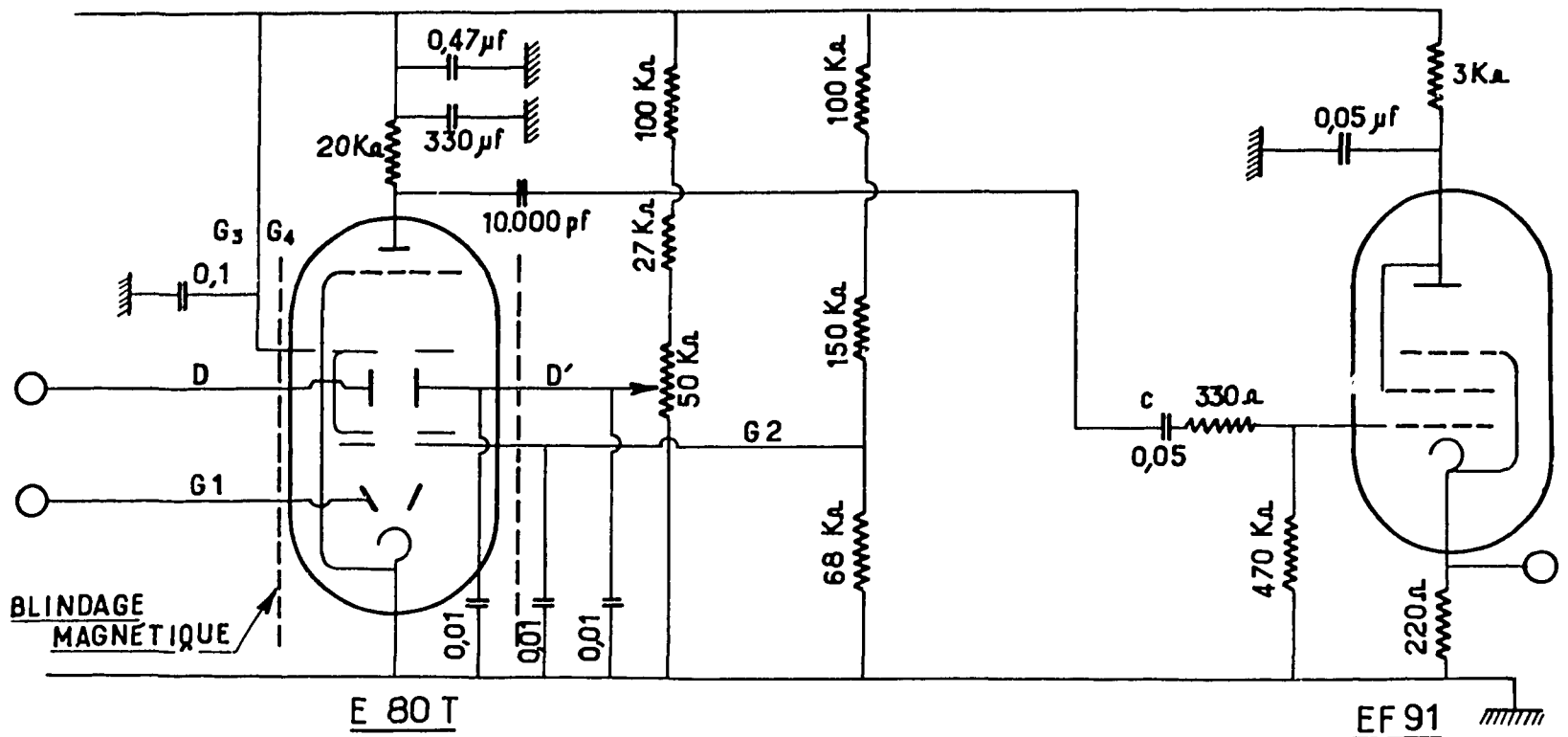


Figure 35 - Schéma de principe du circuit E 80 T.

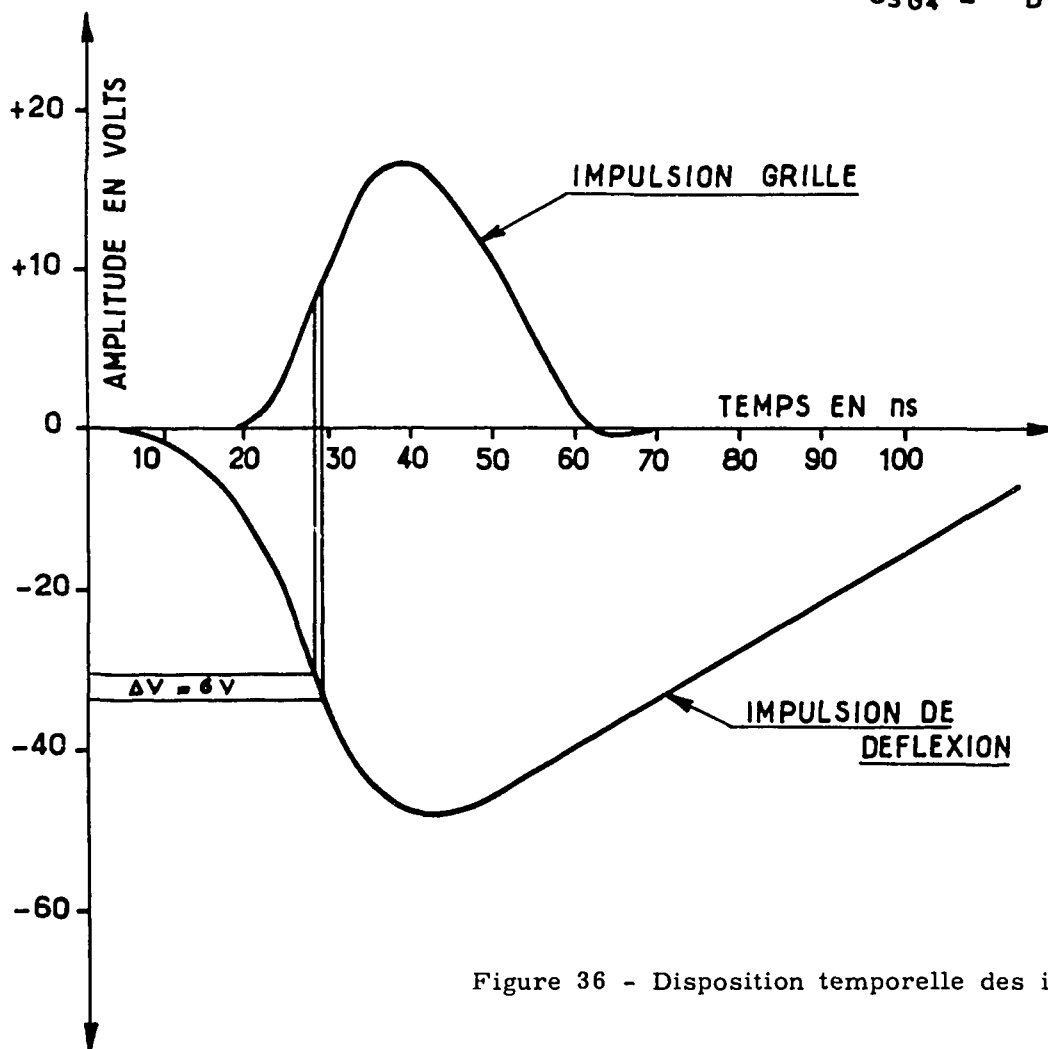
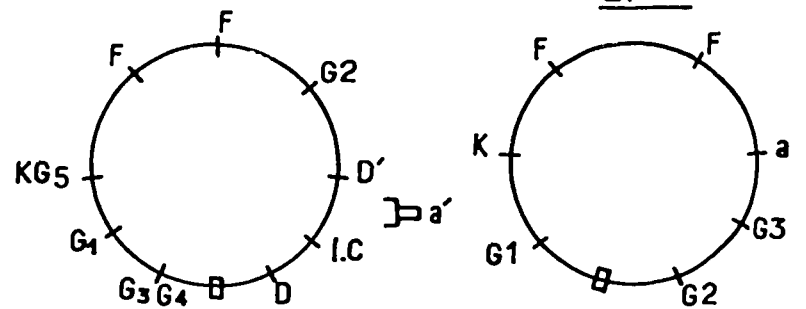


Figure 36 - Disposition temporelle des impulsions grilles et plaque E 80 T.

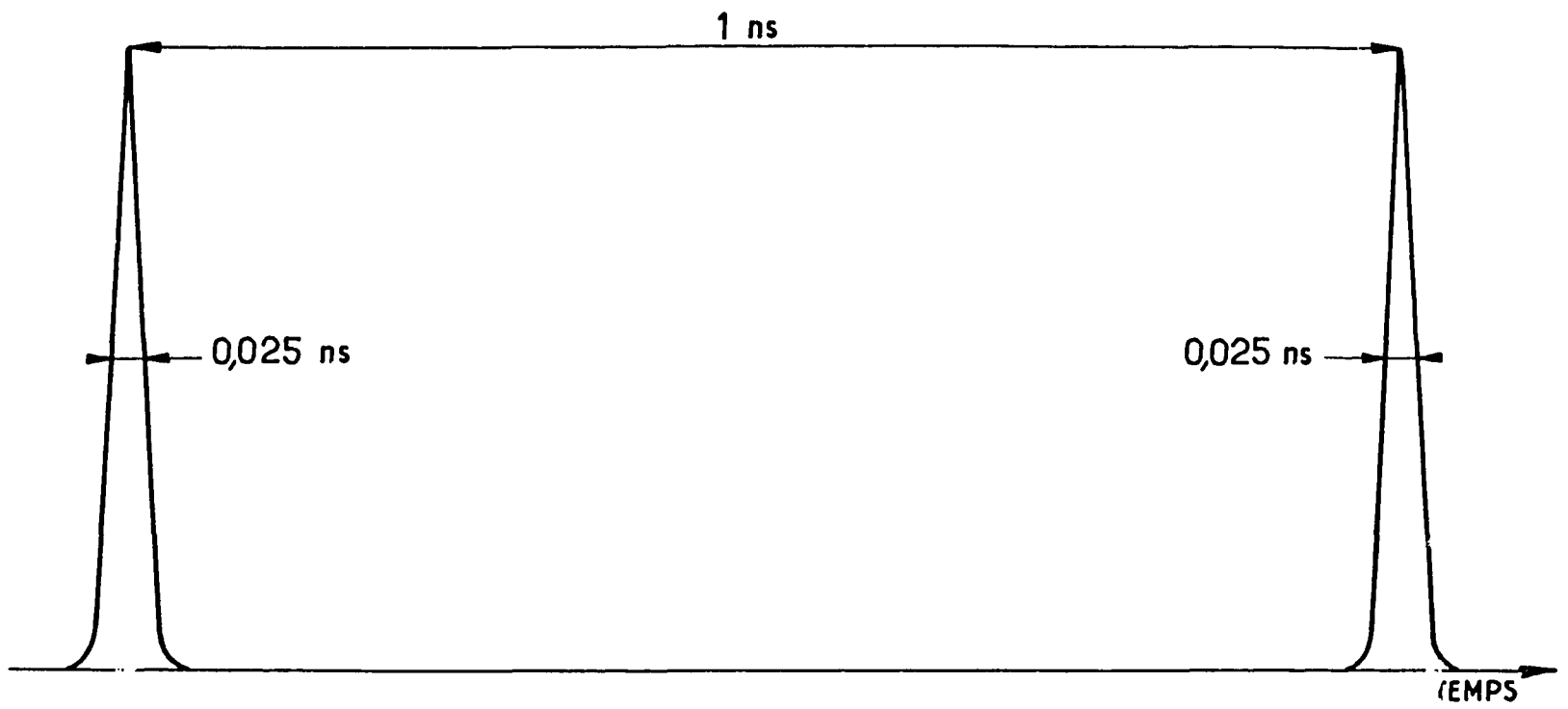


Figure 37 - Etalonnage des circuits. Précision obtenue avec un générateur d'impulsions synchrones.

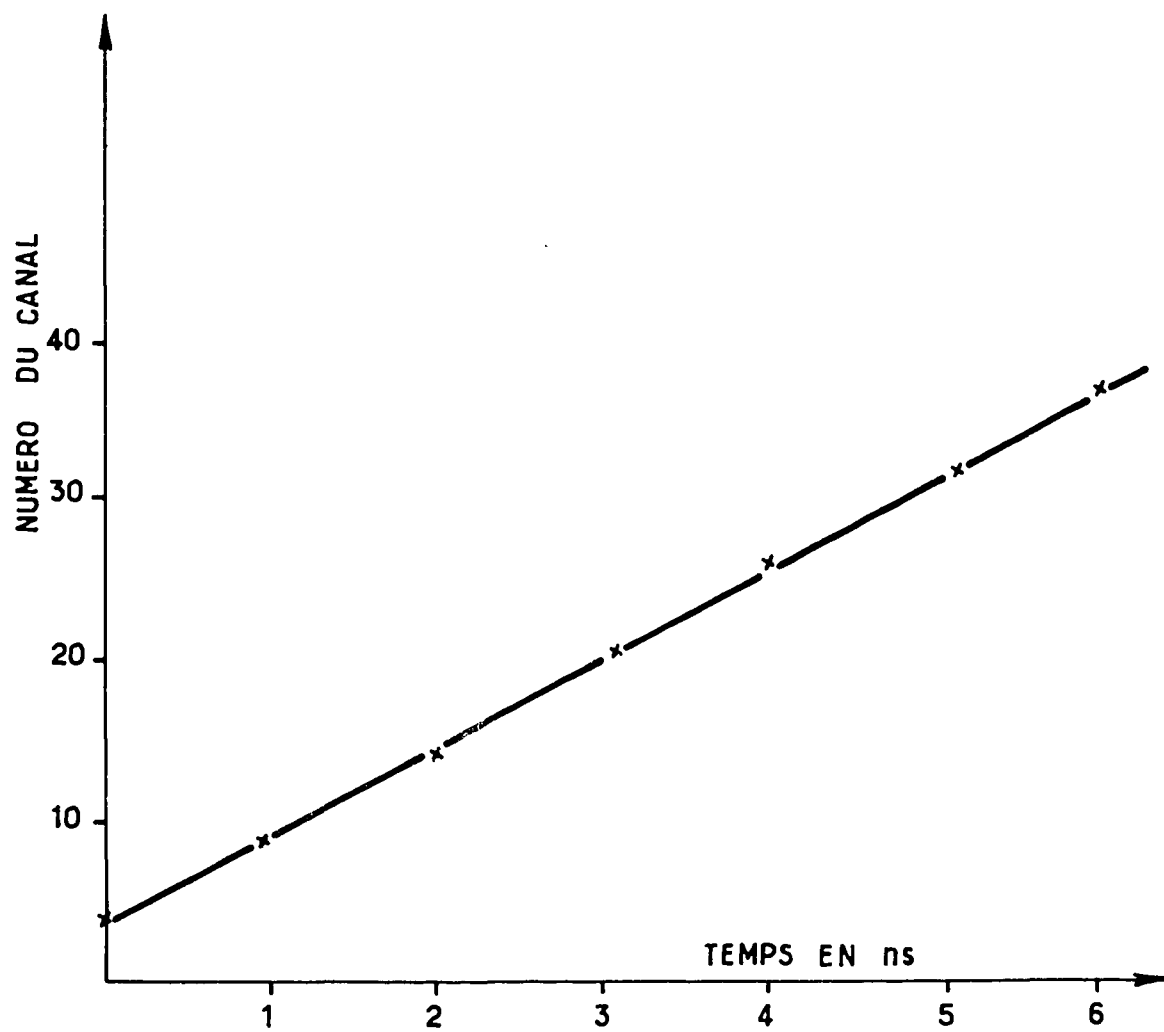


Figure 38 - Courbe de réponse du dispositif.

La figure 38 montre les valeurs des amplitudes moyennes des impulsions de l'E 80 T relatives à différents retards entre les deux impulsions du générateur. Dans ce montage la sensibilité du dispositif est de l'ordre de 4 canaux par nanoseconde et son domaine de mesure d'une dizaine de nanosecondes (durée du front de montée de l'impulsion grille de l'E80T). La sensibilité dépend de l'amplification apportée aux impulsions plaque de l'E80T : celle-ci peut être réglée à volonté par le jeu d'atténuateurs de l'amplificateur 2 MHz (APT 2).

### 3- 3.3 - Estimation expérimentale des variations des délais des photomultiplicateurs

#### 3-3.3.1 - Elaboration du signal définissant l'instant origine par le PMT

Nous nous sommes assurés de la précision avec laquelle le PMT fournit les instants origine liés aux barycentres des impulsions lumineuses à étudier.

Pour cela nous avons mesuré la fluctuation de son délai par rapport à l'impulsion électrique du relais dont les étincelles parviennent au PMT. Le circuit PM $\phi$  est connecté directement à la sortie électrique du relais CLARE qui fournit alors l'impulsion de déflexion de l'E80T à 0,03 ns près. Le PMT reçoit environ 2 000 photons par étincelle et son gain est ajusté pour obtenir des impulsions anodiques de l'ordre du volt. Le délai total de chaque circuit est ajusté comme précédemment et l'enregistrement du spectre d'amplitude des impulsions plaque de l'E80T est alors effectué.

La largeur à mi-hauteur du pic correspondant, dont la valeur minimale est de 0,08 ns, est en accord avec les fluctuations attendues du nombre  $n$  de photoélectrons (environ  $\delta / \sqrt{n}$  avec  $\delta = 1$  ns et  $n = 200$ ).

La valeur minimale des fluctuations de délai dans le photomultiplicateur n'est obtenue qu'après un certain nombre de réglages, en particulier celui de la répartition du champ électrique dans l'optique d'entrée et dans l'espace anode-dernière dynode, ainsi que celui de la largeur de la mise en forme de l'impulsion anodique.

a) Focalisatrice - Sur la figure 39, nous avons indiqué la variation du délai du 56 AVP en fonction des potentiels de l'électrode de focalisation  $F_1$  par rapport à celui de la photocathode. Cette variation est de l'ordre de 0,5 ns par volt et la stabilité de l'alimentation du photomultiplicateur (5/10 000) est suffisante pour n'apporter aucune variation décelable de ce délai une fois fixée la valeur des potentiels.

b) Déflexrice - Le potentiel de l'électrode déflexrice, par contre, a une action très importante sur les fluctuations de délai dont la valeur moyenne reste cependant fixe. Cette action se comprend fort bien car cette électrode commande la proportion des photoélectrons entrant dans le multiplicateur. Nous avons vu que les fluctuations de délai étaient d'autant plus larges que ce nombre était faible (2233).

Ce dernier peut être aussi diminué en fermant le diaphragme placé devant le photomultiplicateur. La figure 40 montre qu'il en est bien ainsi expérimentalement. En diminuant le flux de lumière arrivant par éclairs sur le photomultiplicateur, on provoque une augmentation de l'erreur sur l'élaboration du barycentre. Cette dernière varie bien comme  $1/\sqrt{n}$  où  $n$  est le nombre de photoélectrons entrant dans le multiplicateur.

c) Anode - Le potentiel d'anode devrait être réglé de façon à ce qu'aucune charge d'espace n'apparaisse dans l'intervalle dernière dynode-anode. Cependant, une valeur trop élevée de ce potentiel nuit au bon fonctionnement du 56 AVP où l'anode est en fait une grille placée entre la dernière et l'avant dernière dynode.

Le courant recueilli à l'anode est alors formé de deux composantes : certains électrons quittant l'avant dernière dynode sont captés directement par les fils constituant l'anode tandis que les autres, ayant traversé ces fils, sont multipliés par la dernière dynode puis renvoyés sur l'anode où ils arrivent avec un certain retard sur le premier groupe. Ce retard correspond à l'aller et retour entre l'espace anode-dernière dynode et peut être chiffré à 0,4 ns. L'augmentation du potentiel de l'anode se traduit alors par une diminution du délai provenant d'une part d'une diminution du temps de transit proportionnel à  $V^{-1/2}$  et due d'autre part à l'accroissement du premier groupe d'électrons sur le second.

On voit sur la figure 41 que pour un certain potentiel d'anode, l'augmentation du flux lumineux se traduit à la fois par une augmentation de l'impulsion anodique et par une diminution du délai mesuré par notre dispositif. Cette diminution, fonction de l'amplitude des impulsions anodiques,

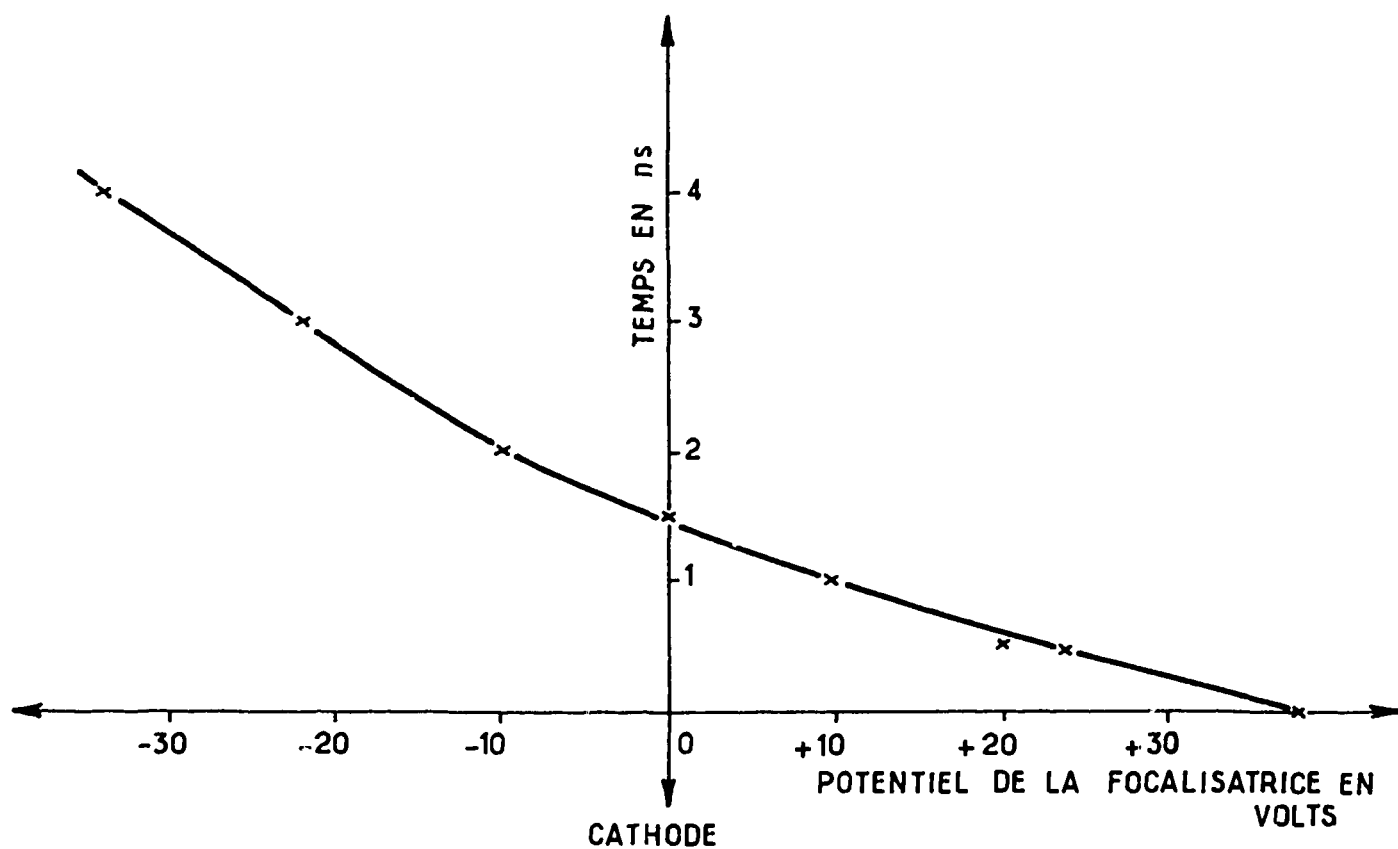


Figure 39 - Influence du potentiel de focalisatrice sur le temps de transit.

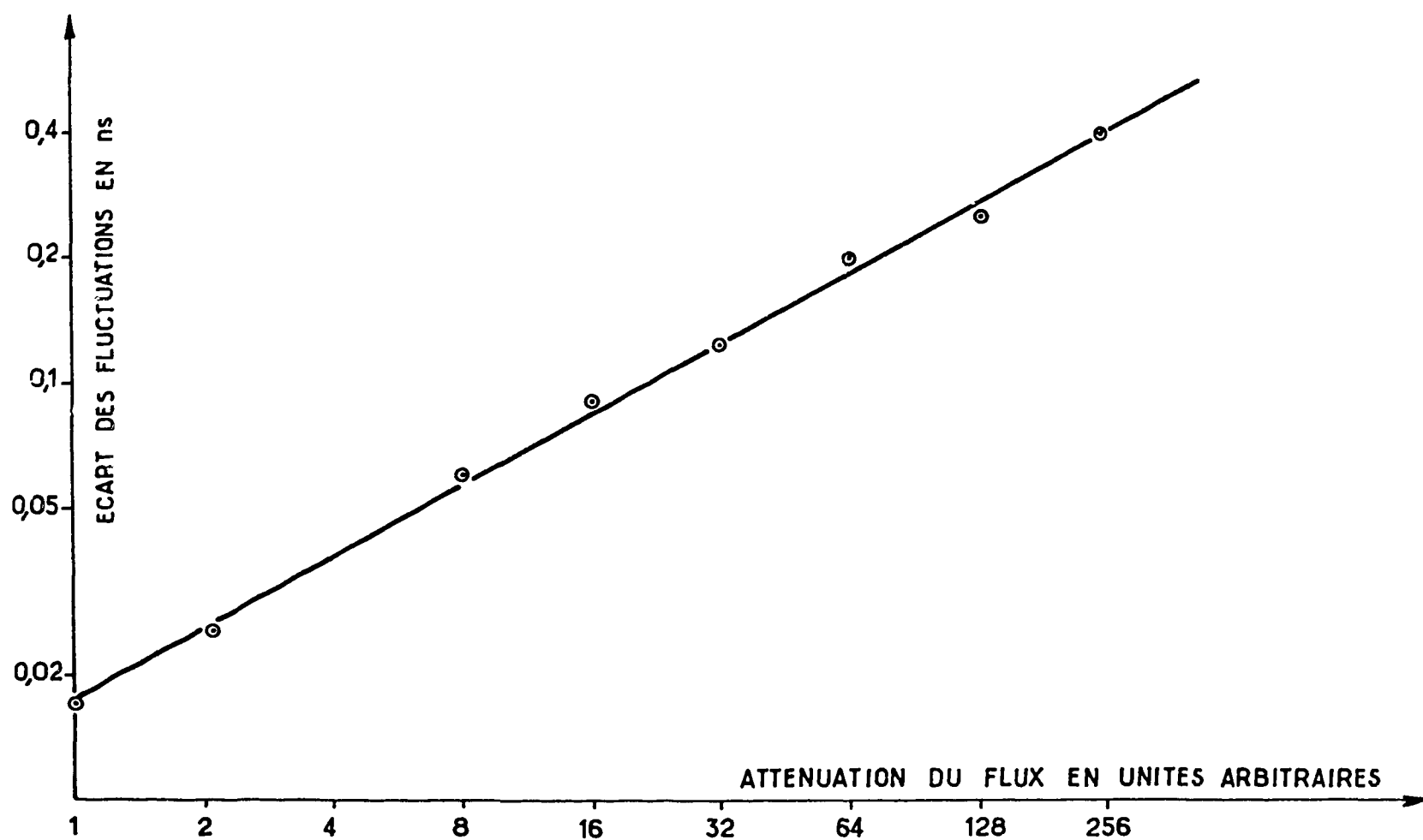


Figure 40 - Augmentation des fluctuations de délai avec l'atténuation du flux lumineux.

est d'autant plus marquée que le potentiel d'anode est plus élevé. Cette diminution est faible pour un potentiel d'anode de 300 volts par rapport à la dernière dynode. Elle est inférieure à 0,1 ns pour des impulsions anodiques comprises entre 0,5 et 4 volts.

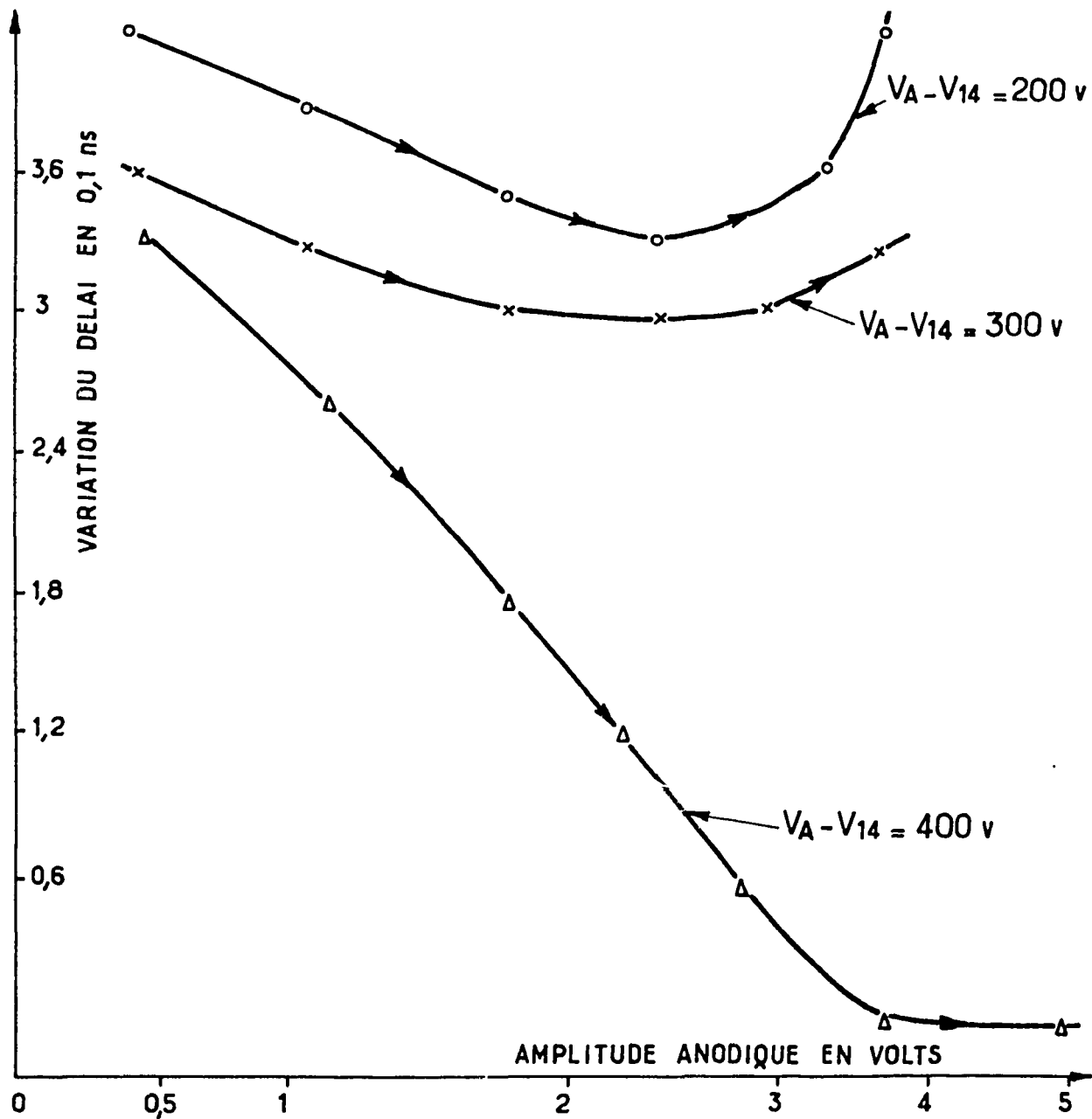


Figure 41 - Variation du délai mesuré en fonction de l'amplitude des impulsions anodiques.

d) Mise en forme - Si l'anode du P.M. est connectée sans mise en forme aux circuits électroniques décrits plus haut (en inversant au préalable la polarité de cette impulsion) le seuil  $s$ , auquel correspond l'époque mesurée, est atteint au tout début de la montée de l'impulsion anodique. On peut montrer alors que les fluctuations sur la mesure de cette époque sont augmentées par suite du faible nombre de photons de l'impulsion lumineuse ayant participé à son élaboration (GATTI et SVELTO, 1959).

C'est bien ce que nous observons expérimentalement, les fluctuations de délai passant de 0,08 ns à 0,14 ns lorsqu'on supprime la mise en forme, toujours pour 200 photoélectrons par impulsion lumineuse. Ainsi les erreurs apportées par les circuits électroniques sont inférieures à 0,03 ns et celles apportées par le PMT sont inférieures à 0,1 ns, compte tenu de l'influence des variations d'amplitude lumineuse, pourvu qu'elles provoquent l'émission de quelques centaines de photoélectrons et que les amplitudes anodiques correspondantes soient comprises entre 0,5 et 5 V.



### 3-3.3.2 - Elaboration du signal définissant l'instant d'arrivée d'un photon par le PM $\phi$

Les fluctuations de délai du 56 AVP relatives à un photoélectron ont été estimées plus haut à 0,4 ns. Nous avons tenté de retrouver cette valeur expérimentalement en éclairant le PM $\phi$  par une impulsion lumineuse aussi courte que possible. Nous avons encore utilisé le relais CLARE mais nous l'avons monté dans une structure coaxiale aussi parfaite que possible et adaptée aux lignes coaxiales que nous utilisons, dont l'impédance caractéristique est de 100  $\Omega$ . La figure 42 montre le relais disposé dans un cylindre métallique terminé par des fiches de raccord (LEMO 100). Le diamètre inférieur a du cylindre a été calculé à partir du diamètre équivalent b de l'ensemble des électrodes du relais par la formule :  $\log a/b = \frac{1}{138} Z_c \cdot \sqrt{\epsilon/\mu}$  où  $Z_c = 100 \Omega$ ,  $\epsilon$  et  $\mu$  étant respectivement la constante diélectrique et la perméabilité magnétique du milieu.

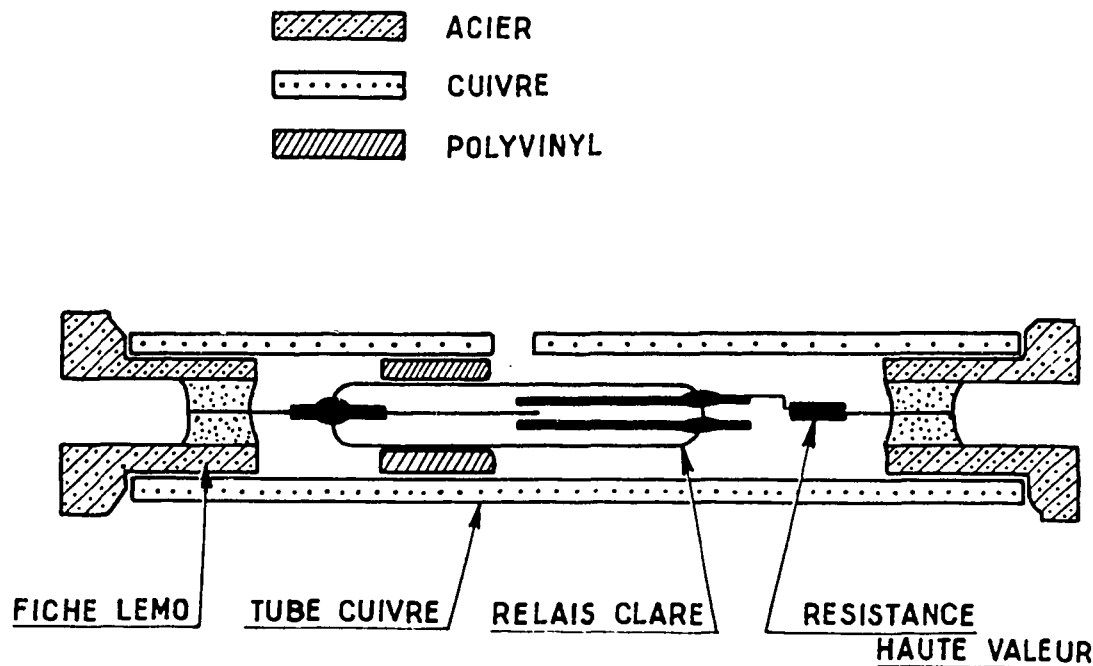


Figure 42 - Disposition du relais Clare dans une structure coaxiale.

Nous avons tenu compte de l'amincissement de l'âme du relais en disposant entre l'ampoule et le cylindre métallique un diélectrique de constante appropriée. Un petit orifice laisse sortir la lumière émise par les décharges du relais. Le relais est placé dans notre montage optique. Les impulsions électriques de décharge du relais ont été reconstituées à l'aide d'un oscilloscope à échantillonnage (Sampling oscilloscope Tektronics).

On voit sur la figure 43 que la largeur à mi-hauteur de la reconstitution est de 0,65 ns. La résolution de l'oscilloscope étant de cet ordre, la vraie largeur à mi-hauteur des impulsions électriques du relais peut être estimée inférieure à cette valeur. Ces impulsions électriques servent à déclencher le circuit de commande de grille de l'E 80 T. Le PM $\phi$  est alors alimenté et reçoit le flux des étincelles du relais CLARE au travers du diaphragme. Lorsque celui-ci est suffisamment fermé, le PM $\phi$  ne fournit plus une impulsion anodique à chaque étincelle : la probabilité d'émission d'un photoélectron par étincelle devient plus petite que un.

Nous avons vérifié que la grande majorité de ces impulsions relatives à un seul photoélectron produisait bien des impulsions de même forme (saturées) sur la plaque de déflexion de l'E 80 T. Les résultats de cette vérification sont résumés sur la figure 44.

On trace le spectre d'amplitude des impulsions de déflexion de l'E 80 T pour deux valeurs de la haute tension alimentant le PM $\phi$ . On voit que pour 2 600 volts on n'obtient que 50 % d'impulsions "utilisables" c'est-à-dire restant supérieures au seuil de bon fonctionnement. Pour 3 000 volts au contraire presque 100 % des impulsions sont "utilisables", même dans le cas où le P.M. ne "voit" qu'un seul photon (cas 5 %). Par la suite nous maintenons l'alimentation du P.M. à la valeur de 3 000 V.

Nous avons enregistré les amplitudes des impulsions plaques de l'E 80 T dans les mêmes conditions. Leur spectre correspondrait aux variations de délai dans le P.M. relatives à un seul photoélectron si les étincelles du relais ne présentaient pas une largeur finie. La figure 45 montre

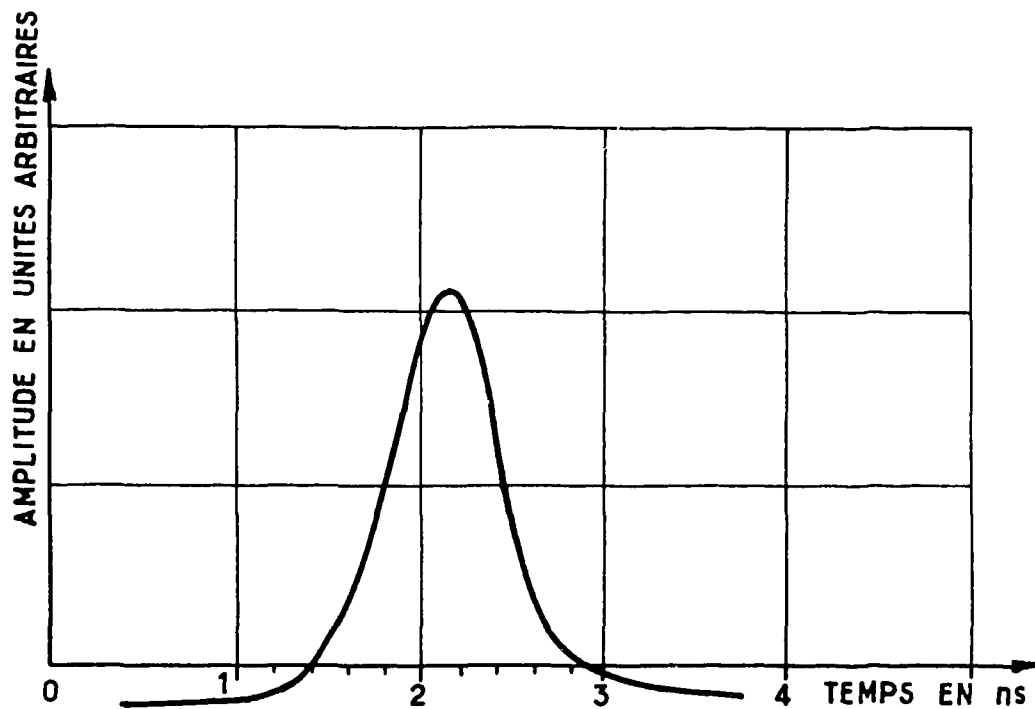


Figure 43 - Impulsion électrique du relais Clare (Coaxial). Oscilloscope "Tektronix sampling".

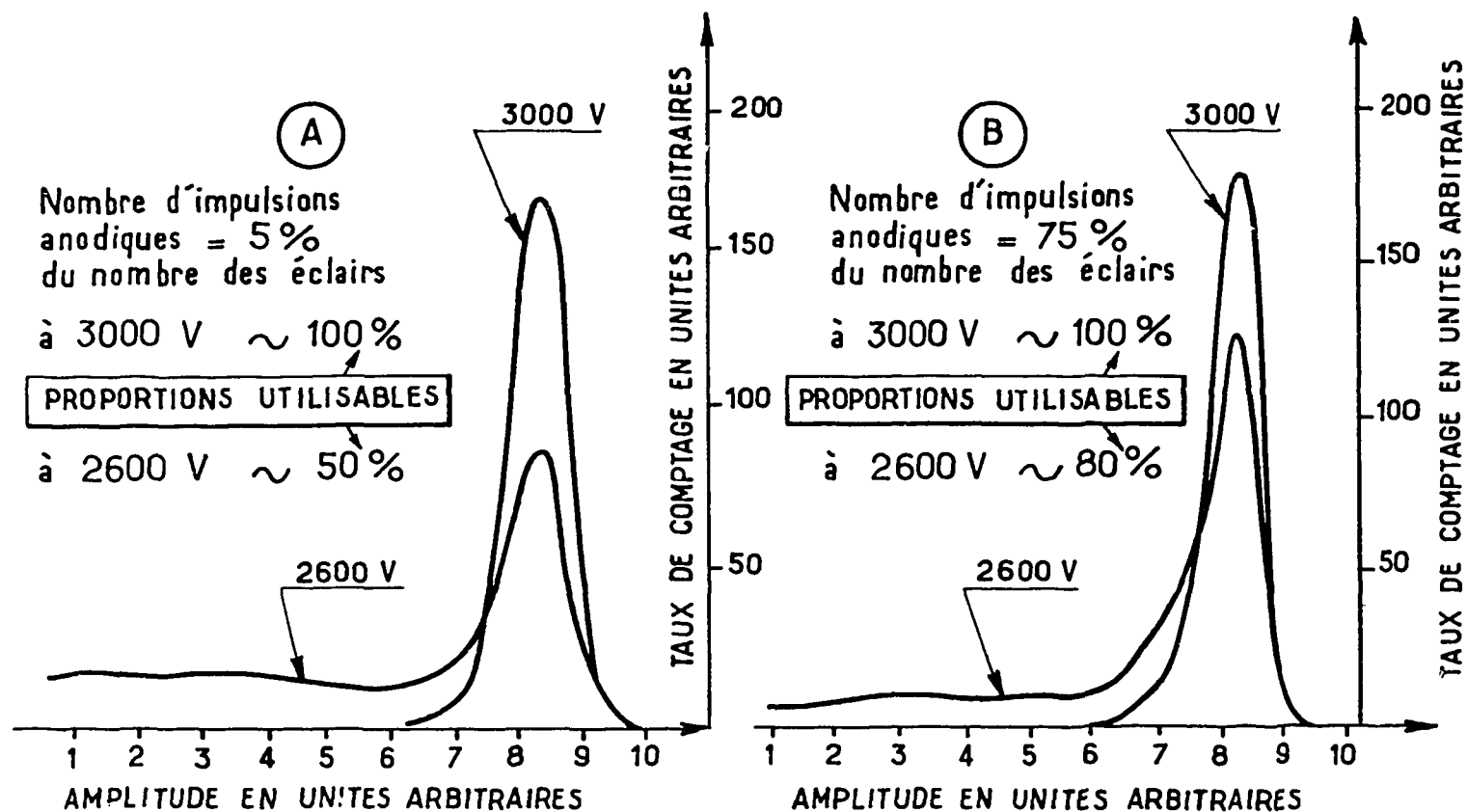


Figure 44 - Proportion d'impulsions "utilisables".

cet enregistrement. La courbe représente la forme de l'éclair du relais CLARE élargie par les fluctuations de délais dans le 56 AVP. La valeur de son écart  $\epsilon_c$  se rapproche beaucoup de la valeur de  $\epsilon$  calculée au chapitre II.

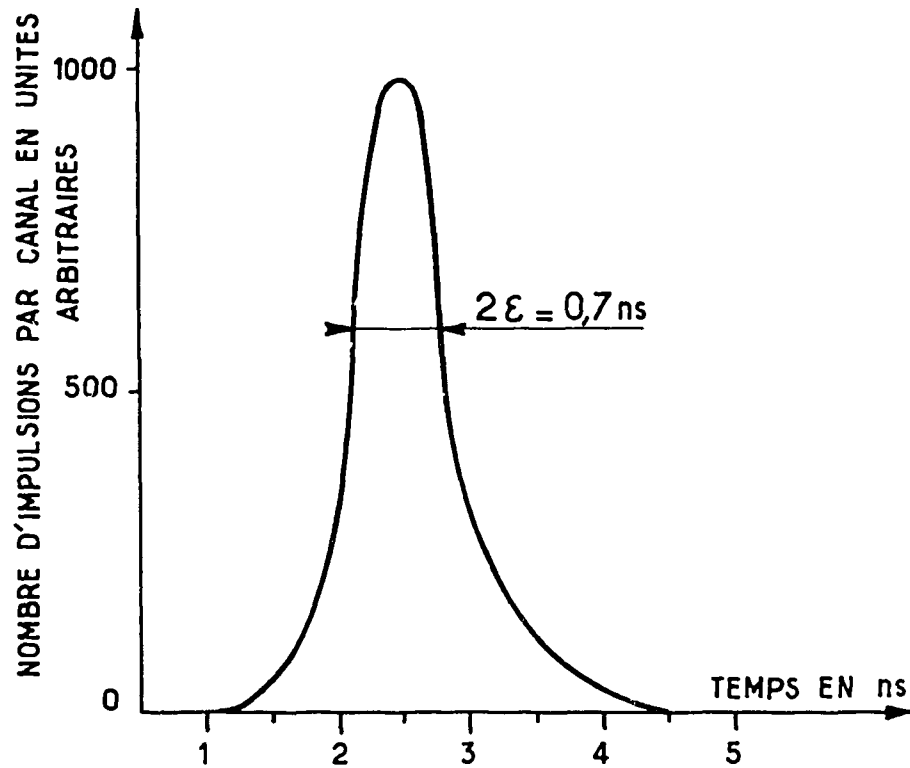


Figure 45 - Distribution des retards des impulsions anodiques du 56 A.V.P. relatives aux photoélectrons produits par les étincelles du relais Clare en structure coaxiale.

Nous avons ainsi une estimation par excès des fluctuations de délai du PM $\phi$ . On peut écrire en effet que  $\epsilon_c^2 = \epsilon^2 + \delta^2$  où  $\delta^2$  est la variance de la distribution des époques d'émission des photons du relais CLARE.  $\epsilon_c$  varie avec le réglage des champs électriques dans l'optique d'entrée et la valeur donnée ci-dessus est obtenue pour le réglage optimal.

En reprenant la relation  $\epsilon^2 = \epsilon_{cd}^2 + \epsilon_{dd}^2 \left(1 + \frac{2}{g}\right) \left(\frac{1}{g-1}\right)$  on remarque l'importance de la contribution de l'étage d'entrée par  $\epsilon_{cd}^2$  et aussi celle de la statistique de l'émission secondaire de la première dynode par le terme  $2/g$  qui provient en fait de  $\frac{2(\epsilon g)^2}{g^2}$  où l'on fait  $(\epsilon g)^2 = g$ , cas de la statistique de Poisson.

Nous avons mesuré l'influence des tensions des électrodes de l'optique d'entrée sur la forme de la courbe de la figure 45. En effet ces tensions interviennent sur  $\epsilon_{cd}$  et sur  $g$ . La figure 46 montre que  $\epsilon_c$  croît avec le potentiel de l'électrode de focalisation. Enfin la figure 47 montre l'action du potentiel  $V$  de la première dynode, la focalisatrice étant réglée à -2 % de  $V$ .

$\epsilon_c$  augmente avec  $V$  au-delà de 500 volts. A cette augmentation de  $V$  devraient pourtant correspondre des champs plus intenses à la surface de la photocathode ainsi que des temps de transit plus faibles dans l'optique d'entrée. Il est alors possible que l'augmentation de  $\epsilon_c$  soit due à des fluctuations plus grandes sur  $g$ . En effet on peut constater sur la figure 47 que la pente de la courbe  $g = f(v)$  pour les surfaces en Ag-Mg affecte la même allure que la variation  $\epsilon_c = f(v)$ , ce qui semblerait en accord avec un effet signalé par G.T. WRIGHT (1954) selon lequel la variance  $(\epsilon g)^2$  ne suivrait plus la loi de Poisson  $(\epsilon g)^2 = g$  lorsqu'on approche du maximum de la courbe  $g = f(v)$  mais deviendrait supérieur à  $g$ .

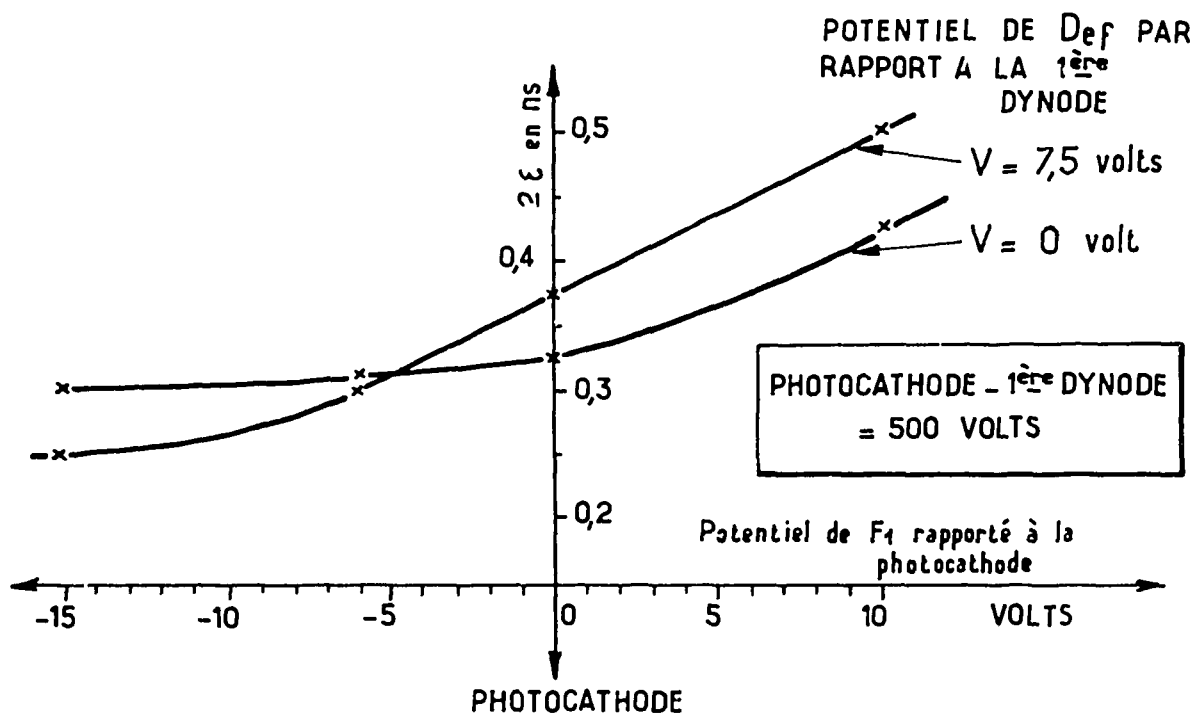


Figure 46 - Variation de la largeur de la figure 45 en fonction des potentiels de l'électrode de focalisation du 56 A.V.P.

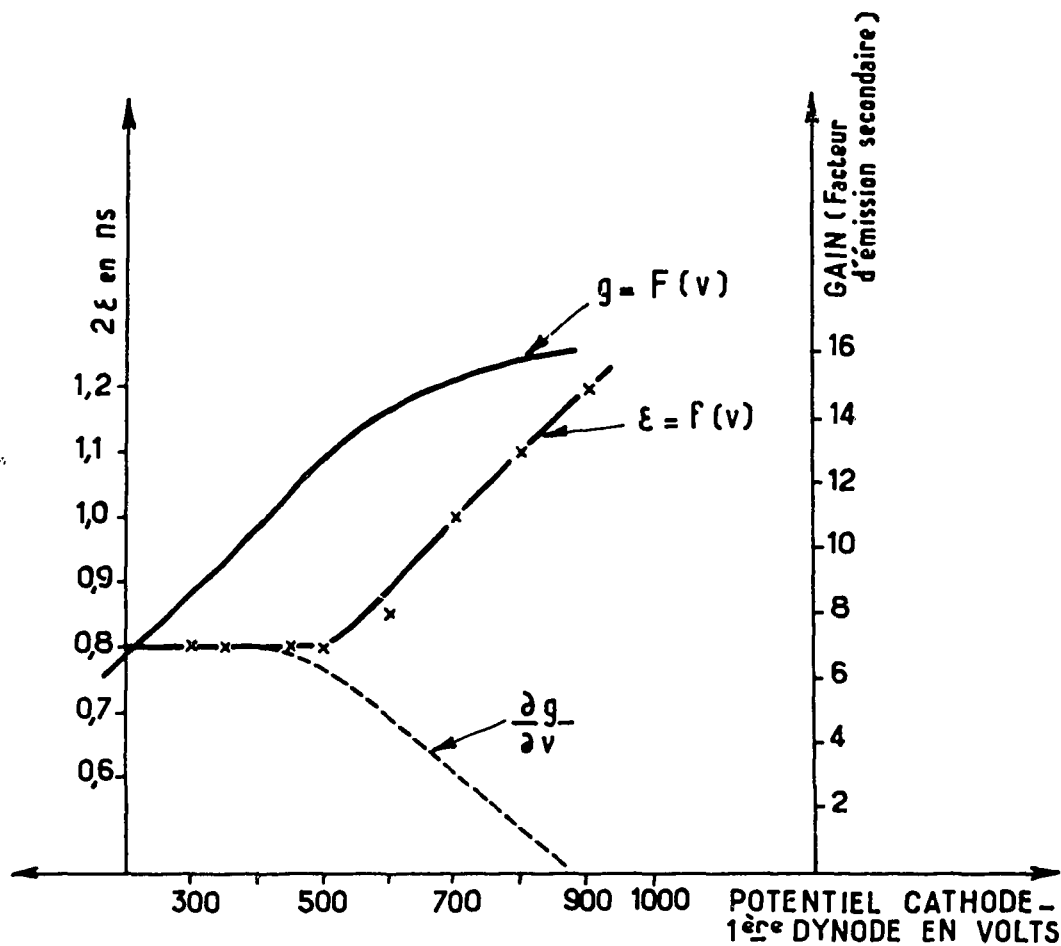


Figure 47 - Variation de la largeur  $2\epsilon$  de la courbe de la figure 45 en fonction du potentiel de l'optique d'entrée.

### 3-3.4 - Tracé de l'histogramme des époques d'émission des photons du relais CLARE par le dispositif électronique

#### 3-3.4.1 - Dispositions expérimentales

Le relais CLARE est monté dans un support non coaxial de façon à élargir son impulsion électrique. Les étincelles qu'il fournit alors sont de plus longue durée que précédemment et se rapprochent des scintillations émises par les liquides fluorescents.

Ces étincelles sont vues par les deux photomultiplicateurs ; le PM $\phi$ , est muni de son diaphragme.

Les conditions électroniques sont les mêmes que précédemment, l'enregistrement des impulsions plaques de l'E 80 T est effectué sur un analyseur 100 canaux (Intertechnique). Le nombre d'impulsions fournies par le PM $\phi$  relatives aux étincelles du relais CLARE correspond à 5 % du nombre total d'étincelles ; la condition d'émission d'un seul photoélectron au plus par étincelle par le PM $\phi$  est réalisée. Le PMT fournit l'époque origine du barycentre de chaque étincelle.

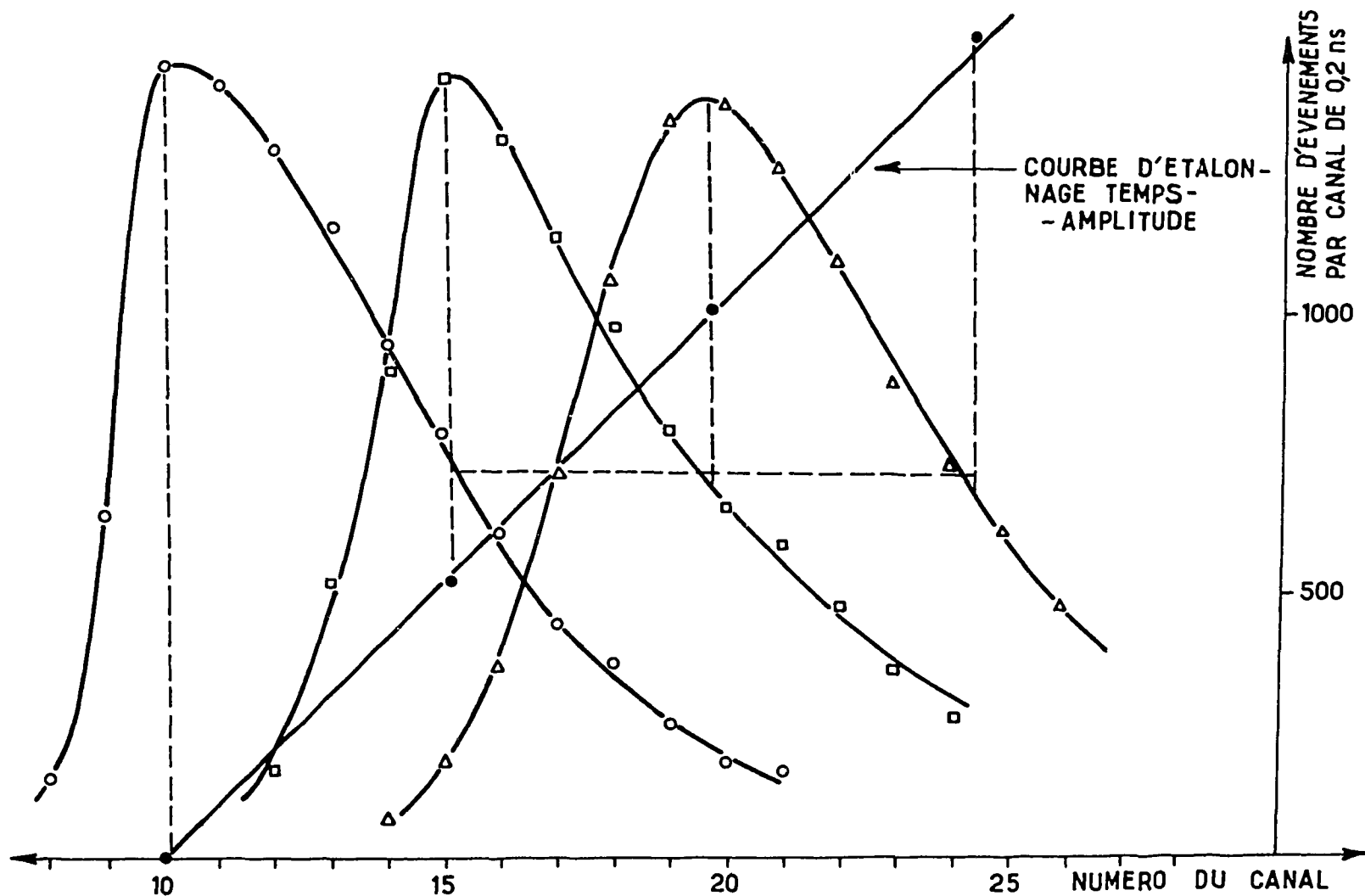


Figure 48 - Distribution des retards des photons émis par le relais Clare en structure non coaxiale - Enregistrement sur analyseur 100 canaux.

La figure 48 montre les trois enregistrements effectués. Chacun correspond à un retard fixe inséré dans le circuit du PM $\phi$  par la boîte à retard (3-3.1.1). La conversion temps-amplitude, qui est ici à peu près linéaire, est ainsi étalonnée directement par les positions des maximums des trois courbes dont les écarts d'abscisse correspondent à 1 ns chacun. On voit que la sensibilité du dispositif est de 0,2 ns par canal. La courbe de distribution des écarts d'émission des photons est alors tracée en tenant compte de cet étalonnage et en effectuant la moyenne des trois enregistrements. La figure 49 représente la forme de l'impulsion lumineuse du relais CLARE lorsqu'il est monté dans une structure non coaxiale.

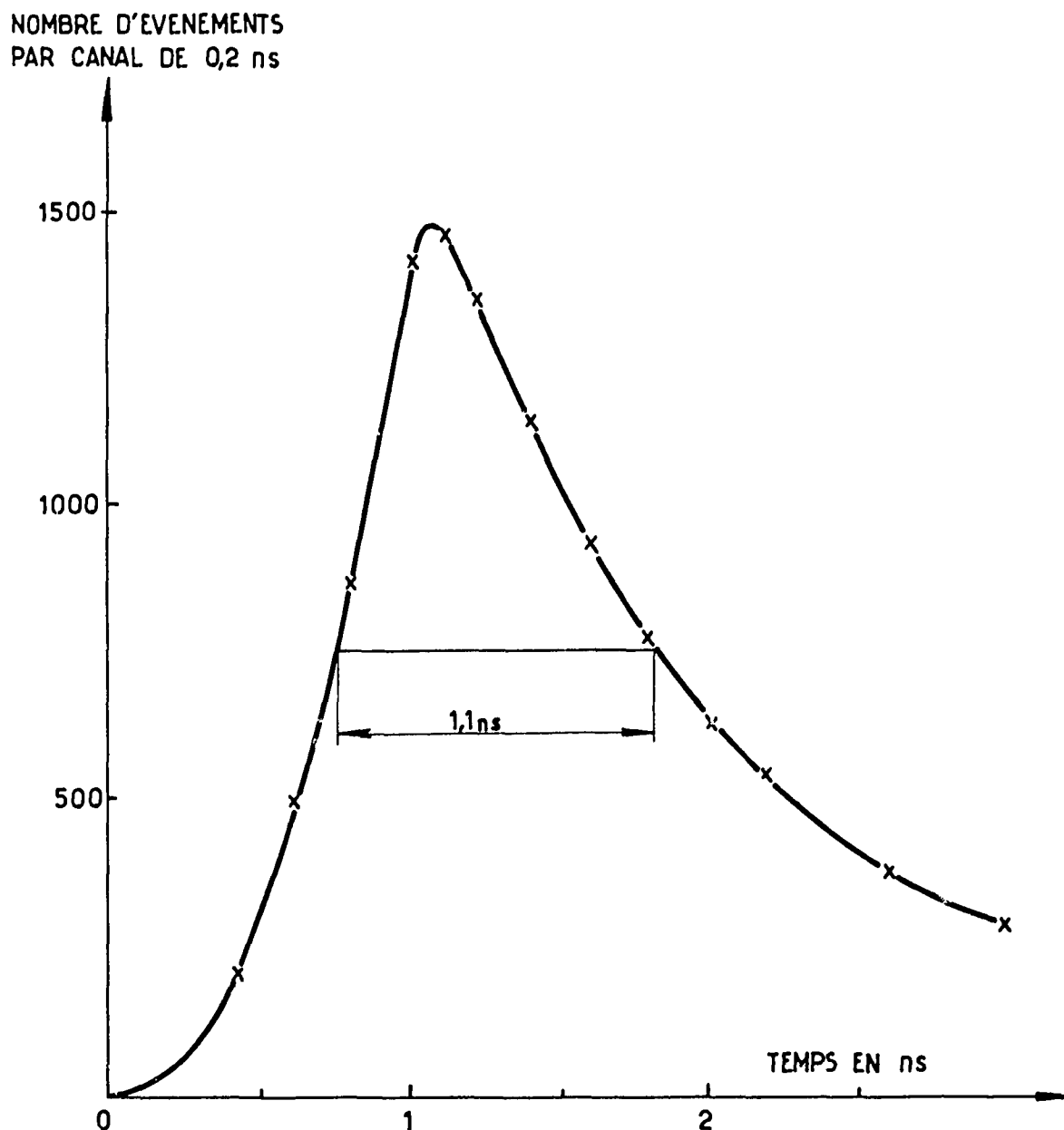


Figure 49 - Forme de l'impulsion lumineuse du relais Clare (structure non coaxiale) obtenue par échantillonnage.

#### 3-3.4.2 - Analyse de la courbe de distribution

La précision obtenue sur la valeur de chaque ordonnée de la courbe de la figure 49 est de l'ordre de 10 % dans les régions du début et de la fin de l'histogramme. Elle est de l'ordre de 3 % pour la région du centre. La largeur des canaux est de 0,2 ns.

La courbe tracée à partir de l'histogramme comporte une montée dont la durée, de 10 à 90 pour cent de l'amplitude est de 0,5 ns et une largeur à mi-hauteur de 1,1 ns. La partie décroissante suit une loi exponentielle de 1,0 ns de constante de temps.

Nous avons appliqué la construction graphique, développée au chapitre II, qui permet de retrouver les fonctions facteurs intervenant dans un produit de convolution sachant que l'une est une fonction exponentielle pure. On voit sur la figure 50 que la fonction  $f(t, \varepsilon, h)$  est une fonction proche d'une distribution de Gauss d'écart quadratique moyenne 0,3 ns. Cette fonction représente la réponse impulsionnelle du dispositif si l'impulsion lumineuse du relais CLARE comporte un front de montée relativement beaucoup plus court. La valeur de 0,3 ns est en bon accord avec la valeur calculée des fluctuations de délai du PMØ relatif à un seul photoélectron, valeur que nous avons trouvée égale à 0,4 ns.

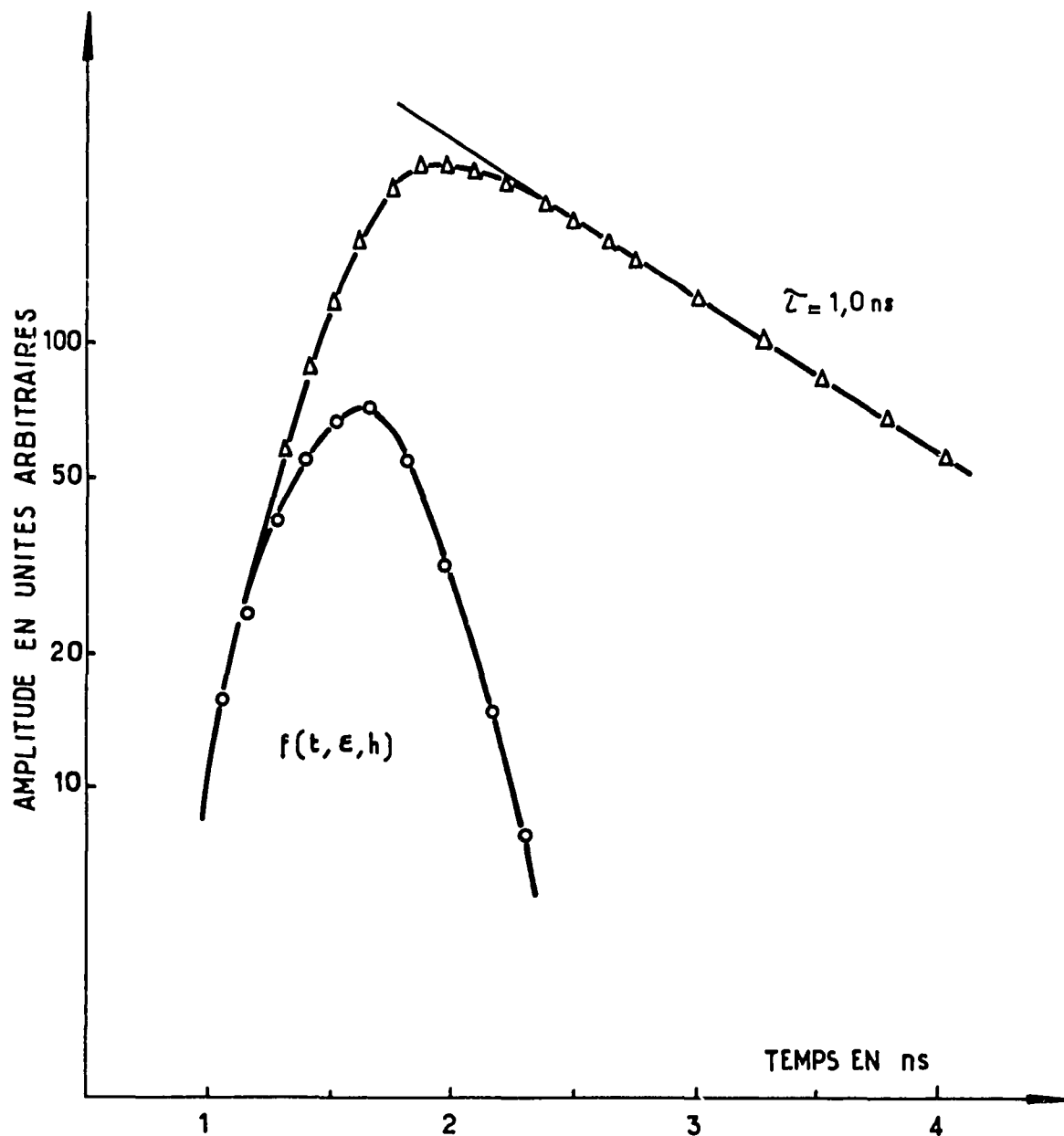


Figure 50 - Estimation de la fonction de réponse de notre dispositif.

### 3-4 - PERFORMANCES DU DISPOSITIF

Dans ce chapitre nous avons vu que la méthode décrite au chapitre II nécessite la détection de l'impulsion lumineuse et l'élaboration d'un instant origine qui peut être son barycentre. Il faut aussi "tirer" au hasard un photon parmi ceux de l'impulsion lumineuse et en déterminer l'instant d'émission par rapport à celui du barycentre.

Les caractéristiques du photomultiplicateur 56 AVP et des circuits électroniques élaborés répondent à ces exigences.

L'élaboration de l'époque origine s'effectue avec une erreur statistique inférieure à 0,1 ns pourvu que l'impulsion lumineuse comporte quelques milliers de photons émis en quelques nanosecondes. Celle de l'instant d'émission du photon "tiré" au hasard se fait avec une erreur statistique inférieure à 0,3 ns.

La détermination de la forme d'une impulsion lumineuse se fait alors avec une erreur statistique de l'ordre de 0,3 ns. Les circuits de mesure de l'écart du photon ont été conçus pour couvrir un intervalle de temps de 10 ns environ. Cet intervalle de temps peut être agrandi moyennant de légères modifications dans le circuit PMT et le circuit porte.

## IV. - APPLICATION DE LA MÉTHODE D'ÉCHANTILLONNAGE A L'ÉTUDE DU MÉCANISME DE LA SCINTILLATION

Dans le chapitre IV nous donnons en première partie un aperçu des théories actuelles du mécanisme de la scintillation dans les corps organiques fluorescents.

Dans la seconde partie nous exposons les relations qui existent entre ce mécanisme et la cinétique des scintillations.

Enfin dans la troisième partie nous appliquons notre dispositif à la mesure des paramètres de temps caractérisant un certain nombre de scintillateurs organiques utilisés en comptage par scintillation.

### 4-1 - MECANISME DE LA SCINTILLATION DANS LES CORPS ORGANIQUES FLUORESCENTS

Le mécanisme donnant lieu à une émission de lumière de fluorescence ou à une scintillation à partir de l'excitation des particules nucléaires n'est pas encore élucidée complètement. Cependant un certain nombre d'auteurs ont cherché à en donner un schéma. Nous nous limiterons ici à l'étude des corps fluorescents organiques.

Dans le développement de la théorie des scintillations dans les cristaux et solutions organiques, l'étude des mécanismes du transfert d'énergie joue un rôle prépondérant. Ces mécanismes comprennent les trois processus suivants :

- a) Transfert de l'énergie de la particule en mouvement aux molécules du scintillateur.
- b) Transfert de l'énergie stockée par ces molécules à d'autres molécules, soit identiques, soit d'un autre corps en solution dans le premier.
- c) Emission, par ces molécules, de photons à l'extérieur du scintillateur (la scintillation proprement dite).

#### 4-1.1 - Excitation du milieu par une particule ionisante

La particule incidente cède son énergie au milieu par excitation et ionisation des molécules situées sur son passage.

Plusieurs auteurs dont LIPSKY et BURTON (1959) ont montré que l'énergie émise sous forme de lumière dans la scintillation vient principalement des molécules du milieu excitées sur leurs niveaux optiques, soit directement, soit par le mécanisme b).

La proportion d'énergie cédée au milieu par la particule sous forme d'excitation sur les niveaux optiques des molécules a été calculée par GALANIN et GRISHIN (1956) d'après les méthodes de WEISZACKER (1954) et WILLIAMS (1935) et appliquée à un cristal d'anthracène.

Le calcul donne une valeur approchée de l'énergie que peut céder un électron à un cristal d'anthracène par excitation optique. Cette valeur représente quelques pour cent de l'énergie cédée.

Les mesures effectuées par GALANIN (1956), WRIGHT (1955), BIRKS (1953b) et FURST (1953) donnent les mêmes ordres de grandeur pour les rendements de scintillation de l'anthracène excité par les particules bêta. Ceci conduit à penser que la scintillation provient essentiellement de cette excitation immédiate.



## 4-1.2 - Désexcitation des molécules fluorescentes

### 4-1.2.1 - Cas d'un corps organique pur

On admet qu'environ 0,1 ns après l'excitation des molécules du milieu par une particule nucléaire, celles-ci retombent sur leur niveau singulet par conversion interne et dégradation. Le retour au niveau fondamental s'effectue alors par émission d'un photon d'énergie correspondant au niveau singulet. La vie moyenne de ce niveau est une constante moléculaire  $\tau$  bien définie pour chaque corps. La variation de l'intensité de la scintillation doit alors affecter la forme  $I = I_0 e^{-t/\tau}$ . On peut calculer la valeur de  $\tau$  par la relation  $3 mc^2 = 8 \pi^2 e^2 \bar{\nu}^2 \tau$  déduite de la théorie électromagnétique classique où  $1/\tau$  représente le facteur d'amortissement de l'oscillateur électronique,  $C$  = vitesse de la lumière,  $m$  et  $e$  masse et charge en u.e.s. de l'électron et  $\bar{\nu}$  nombre d'onde par cm.

Une autre relation fournit aussi  $\tau$  en utilisant les courbes de coefficient d'excitation moléculaire  $\epsilon = \frac{1}{\tau} = 29.10^{10} n^2 \bar{\nu}_0^2 \int \epsilon d\bar{\nu}$  où  $\int \epsilon d\bar{\nu}$  est l'aire située sous cette courbe tracée en fonction du nombre d'onde  $\bar{\nu}$   $n$  est l'indice de réfraction et  $\bar{\nu}_0$  représente la valeur du nombre d'onde correspondant au maximum de la courbe d'absorption (LEWIS et KASHA, 1945). Cette expression fournit des valeurs de  $\tau$  plus élevées que la précédente (environ 10 ns).

Les photons émis lors du retour au niveau fondamental, peuvent sortir du milieu et être alors détectés. Ils peuvent aussi être réabsorbés par les molécules voisines qui, à leur tour les réémettront après un stockage correspondant à leur vie moyenne.

Ce phénomène se produit dans les substances où les courbes d'absorption et d'émission se chevauchent, en particulier dans les cristaux organiques fluorescents.

C'est ainsi que la constante de temps d'émission  $\tau_i$  appelée technique par opposition à celle relative au temps de vie moléculaire, peut être considérablement plus longue ; elle dépend fortement des dimensions géométriques du milieu.

### 4-1.2.2 - Processus d'extinction dans les liquides et solutions

La plupart des corps organiques ne présentent pas de fluorescence bien que la réversibilité d'absorption et d'émission soit un phénomène très commun. Dans la plupart, en effet, l'énergie stockée sur les niveaux optiques, soit par absorption de lumière, soit par excitation par particule nucléaire, est dégradée en chaleur ou encore perdue dans des réactions chimiques.

Le processus de transfert d'énergie aux molécules non fluorescentes est un phénomène d'extinction très important, la brillante fluorescence bleue de l'anthracène par exemple est entièrement éteinte par des traces de phénazine en solution solide (BOWEN, 1949).

### 4-1.2.3 - Extinction par concentration

A grande concentration les substances fluorescentes présentent une auto-extinction<sup>(1)</sup>. L'auto-extinction est un phénomène complexe dû à plus d'une cause :

a) BOWEN (1953) donne l'exemple de l'anthracène en solution dans le benzène à une concentration de  $10^{-2}$  M/litre. Les molécules excitées sur l'état singulet qui entrent en collision avec les molécules normales d'anthracène forment avec ces dernières des diradicaux. Elles peuvent se dissocier à nouveau ou encore former des molécules de dianthracène par processus de liaison. Ces dernières molécules ne sont pas fluorescentes.

b) D'autres cas sont plus complexes. A concentration élevée il peut se former des molécules dimères ou polymères qui absorbent la lumière radiativement mais ne sont pas fluorescentes ou le sont très peu. Elles agissent comme des filtres internes.

c) L'auto-extinction peut provenir aussi du processus de transfert d'énergie où celle-ci migre de molécule en molécule et finit par rencontrer une molécule extinctrice qui s'excitera à son détriment.

-----  
(1) Le terme employé par les auteurs de langue anglaise est self-quenching.

## 4-2 - PROCESSUS DE TRANSFERT D'ENERGIE DANS LES CORPS FLUORESCENTS ORGANIQUES

Nous avons vu que des traces de phénazine en solution dans un cristal d'anthracène éteignent complètement sa fluorescence (BOWEN, 1949). Dans le cristal, l'énergie d'excitation migre de molécule en molécule par processus de résonnance (J. PERRIN, 1927 et F. PERRIN, 1932) jusqu'à ce qu'elle soit captée par une molécule de phénazine car son premier niveau excité est légèrement inférieur. La molécule de phénazine se dégrade rapidement par passage à son état triplet.

La substitution du naphtacène au phénazine donne à l'anthracène une forte fluorescence verte émise par le naphtacène après capture. Un autre cas est le changement d'émission du naphthalène ; il émet sa fluorescence dans le proche UV, mais une légère trace d'anthracène le rend bleu. On admet que ce comportement est dû à un transfert de l'énergie d'excitation.

Dans les solutions liquides, de tels transferts interviennent déjà pour des concentrations de l'ordre de  $10^{-3}$  M/litre où les distances moléculaires sont environ de 100 Å.

### 4-2.1 - Mécanisme de transfert d'énergie

Le terme "transfert d'énergie" englobe généralement le transfert dit radiatif -par absorption et réémission de photons dans le milieu- et le transfert dit non-radiatif où l'énergie d'excitation migre de molécule en molécule sans l'intermédiaire de photons.

Le transfert radiatif intervient lorsque les interactions sont négligeables entre les "nuages" d'électrons  $\pi$  des molécules (que l'on pense responsables du phénomène de fluorescence). Ce transfert est comparable à celui existant entre deux antennes éloignées dans le domaine des phénomènes électromagnétiques. La probabilité de transfert, entre des molécules individuelles, est inversement proportionnelle au carré de la distance qui les sépare. L'anthracène, le trans-Stilbène sont des cristaux où ce transfert est important car ils présentent un chevauchement de leurs courbes d'absorption et d'émission (BIRKS et WRIGHT, 1954). Cependant les solutions solides ou liquides de corps fluorescents, à des concentrations supérieures à  $10^{-3}$  M/litre, présentent un transfert d'énergie d'excitation important et le transfert radiatif ne peut être le seul responsable.

Le transfert non-radiatif intervient lorsque les interactions entre les "nuages" d'électrons  $\pi$  des molécules sont suffisantes pour qu'un couplage intervienne. Ce dernier intervient faiblement lorsque les molécules interagissent entre elles par les forces de Van der Waals. FORSTER (1947, 1949, 1951) a montré que l'énergie transférée par ce couplage "dipôle-dipôle" est inversement proportionnel à la sixième puissance de la distance qui les sépare.

Enfin, l'existence d'interaction forte entre molécules apparaît lorsque les "nuages" d'électrons interfèrent entre eux. Le couplage est tel qu'il peut se produire une migration d'électrons d'une molécule à l'autre, produisant un déplacement de charges. Il arrive aussi que l'énergie d'excitation migre sous forme d'une association neutre électron-trou que FRENKEL (1931) a dénommé l'exciton.

Dans les solutions liquides ou mélanges gazeux, le phénomène d'interaction forte se produit par intermittence à la faveur de collisions au cours desquelles le transfert se produit. Ce phénomène a été étudié par J. PERRIN et CHOUCROUN (1929) et par KALLMANN et LONDON (1929) qui lui ont donné le nom de fluorescence sensibilisée.

Une distinction fondamentale entre le transfert non-radiatif et le transfert radiatif réside dans le fait qu'au cours de ce dernier le temps de vie des molécules n'est jamais diminué ; au contraire, le transfert non-radiatif diminue le temps de vie des molécules parce qu'il intervient avant qu'elles aient pu se désexciter par voie radiative normale (FORSTER, 1959).

### 4-2.2 - Transfert d'énergie dans les scintillations liquides

Si les transferts radiatifs ainsi que les transferts par couplage dipôle-dipôle interviennent d'une façon générale dans les liquides fluorescents (FORSTER, 1949; AGENO et QUERZOLI, 1952), ils ne sont pas aussi importants que le transfert par fluorescence sensibilisée. KALLMANN et FURST (1950) ont fourni un schéma du mécanisme intervenant dans une solution liquide fluorescente en tenant compte du processus de transfert par fluorescence sensibilisée. Un solvant contenant un soluté fluorescent fournit une scintillation, après avoir absorbé l'énergie d'une particule ionisante, par les étapes suivantes :

- 1 - Une particule excite et ionise des molécules du solvant.

2 - L'énergie d'excitation migre parmi les molécules du solvant dont certaines peuvent être le siège d'une extinction.<sup>(1)</sup>

3 - Au cours d'interaction forte entre certaines molécules du solvant et du soluté, l'énergie d'excitation est transférée à ces dernières.

4 - Les molécules du soluté ayant été excitées peuvent alors émettre leur énergie sous forme de photons ou encore être le siège d'une extinction.<sup>(2)</sup>

5 - Si les molécules du soluté sont suffisamment rapprochées, le processus d'auto-extinction<sup>(3)</sup> peut intervenir.

La concentration C du soluté accroît la probabilité du processus 3, et donc le rendement de scintillation  $\eta$ . A forte concentration cependant, l'auto-extinction du soluté intervient et on observe une diminution de  $\eta$ .

KALLMANN et FURST (1950) ont montré que beaucoup de scintillateurs liquides suivaient ce processus. En admettant que les processus de transfert et d'auto-extinction sont proportionnels à la concentration C, ils expriment  $\eta$  en fonction de cette dernière suivant l'expression :

$$\eta = PC/(Q + C)(R + C) \quad (1)$$

Les constantes P, Q, R s'explicitent en fonction des temps de vie des molécules et du temps de transfert.

$Q = 1/\alpha t_q$ , où  $t_q$  représente le temps de vie des molécules du solvant à l'état pur, et  $\alpha$  la constante de proportionnalité à la concentration du processus 3).

$\alpha = \mu k/t_{mig}$  où  $t_{mig}$  est le temps de migration moyen de l'énergie d'excitation entre molécules du solvant et k le rapport de la section efficace de transfert entre molécules de solvant à la section efficace géométrique de ces dernières.

$P = 1/\beta t_s$  où  $t_s$  est le temps de vie moléculaire du soluté et  $\beta$  la constante de proportionnalité à la concentration du processus 5.

$R = (1/\beta)(1/t_i + 1/t_s)$  où  $1/t_i$  représente la probabilité de dégradation interne des molécules du soluté.

L'expression (1) est basée sur le principe que tous les processus décrits sont de nature aléatoire. Les probabilités par unité de temps s'expriment alors par l'inverse des temps de vie correspondants. Ainsi le nombre de molécule du solvant à l'état pur se désexcitant par unité de temps est donné par l'expression  $dN = -\frac{N}{t_q} dt$ . Si le processus de transfert au soluté intervient, alors

$$dN = -\left(\frac{N}{t_q} + N\alpha C\right) dt$$

$\alpha C$  que nous écrirons plus loin  $1/t_t$  représente la probabilité par unité de temps du processus de transfert (proportionnel à C avec la constante  $\alpha$ ). Ainsi le temps de vie apparent  $t_v$  du solvant en présence du soluté est donné par l'expression

$$1/t_v = \frac{1}{t_q} + \frac{1}{t_t}$$

On retrouve ainsi aisément l'expression (1) en énonçant que le rapport de l'énergie transférée aux molécules du soluté à l'énergie totale perdue par le solvant est :

$$(1/t_t) / (1/t_t + 1/t_q)$$

La fraction émise alors sous forme de photons par le soluté est égale au rapport  $(1/t_s)/(1/t_s + 1/t_i + 1/t_t)$  où  $1/t_s$  est la probabilité par unité de temps du processus d'auto-extinction (proportionnel à C avec la constante  $\beta$ ). Il s'ensuit que le temps de vie apparent  $t_v$  des molécules du solvant sera donné par l'expression  $1/t_v = 1/t_q + 1/t_t$ , et le temps  $t_m$  des molécules du soluté par  $1/t_m = 1/t_i + 1/t_s + 1/t_t$ . La variation de l'émission d'une scintillation au cours du temps peut alors s'exprimer mathématiquement (KALLMANN et BRUCKER, 1957).

(1) primary quenching.

(2) internal quenching

(3) self quenching

Si l'on admet qu'une particule ionisante excite principalement les molécules du solvant (à cause de la très faible proportion de molécules du soluté), les équations différentielles suivantes fournissent le nombre  $n_v$  de molécules de solvant et  $n_m$  de soluté, excitées à un instant  $t$  après l'arrivée de la particule.

$$dn_v/dt = - n_v/t_v \quad (2)$$

$$dn_m/dt = n_v/t_t - n_m/t_m \quad (3)$$

où  $1/t_v$  et  $1/t_m$  sont les probabilités par unité de temps de désexcitation des molécules du solvant et des molécules du soluté.  $1/t_t$  est la probabilité par unité de temps de transfert des molécules du solvant à celle du soluté.

Avec les conditions initiales  $n_v = n_0$  et  $n_m = 0$ , les solutions des équations (2) et (3) sont :

$$n_v = n_0 e^{-t/t_v} \quad (4)$$

$$n_m = (n_0/t_t) \frac{t_v \cdot t_m}{t_v - t_m} [e^{-t/t_v} - e^{-t/t_m}] \quad (5)$$

L'émission au cours du temps des photons de la scintillation doit suivre la loi (5), produit de convolution des deux fonctions exponentielles de constantes de temps respectives  $t_v$  et  $t_m$ . La courbe représentant cette loi présente tout d'abord une partie ascendante (front de montée) puis passe par un maximum et décroît ensuite d'une façon continue (partie décroissante).

Jusqu'à présent l'expérience n'a pu mettre en évidence le front de montée des scintillations des liquides fluorescents organiques. Ce front de montée permet de déterminer le plus court des deux temps  $t_v$  ou  $t_m$ . C'est en général  $t_v$  qui est le plus court, sauf aux faibles concentrations où  $1/t_t = \alpha C$  devient négligeable devant  $1/t_v$ . Or la connaissance de  $t_v$  et de sa variation avec la concentration fournit les valeurs de  $t_q$ , temps de vie des molécules du solvant à concentration nulle, et de  $\alpha$  à partir duquel on peut estimer le temps de migration  $t_{mig}$ .

Notre méthode permet la détermination directe de  $t_v$ , en particulier à concentration élevée et grâce à elle nous avons étudié différents scintillateurs couramment employés.

#### 4-3 - ETUDE DE LA CINETIQUE DE LA SCINTILLATION PAR LA METHODE D'ECHANTILLONNAGE

Nous avons procédé comme au chapitre précédent. Le montage optique est le même, à ceci près que les scintillateurs sont disposés jointivement à la fenêtre du PMT à l'aide de baume de Canada. Le dispositif électronique est identique à celui que nous avons décrit au chapitre précédent.

##### 4-3.1 - Cristal de trans-Stilbène

Nous avons tout d'abord étudié un cristal de trans-Stilbène.

Le cristal de t-Stilbène que nous avons utilisé est aminci à environ 100  $\mu$  de telle sorte que le processus d'émission-réabsorption dans le cristal est réduit mais non encore négligeable. On peut donc s'attendre à une décroissance pratiquement exponentielle de la scintillation de constante de temps supérieure à 1,7 ns, le temps de vie moléculaire du t-Stilbène étant de cet ordre (BIRKS, 1953a). Le front de montée de la scintillation est en principe infiniment court s'il n'existe dans le cristal aucun processus de transfert non-radiatif à des impuretés ou à des centres considérés comme tels (SANGSTER, 1952).

La figure 51 montre à gauche la distribution des photons de la scintillation moyenne du trans-Stilbène excité par des photons  $\gamma$  du Ra. On peut voir que la descente suit une loi exponentielle de constante de temps de 2,15 ns, montrant que l'épaisseur du cristal est encore suffisante pour provoquer un allongement du temps de vie moléculaire par le processus d'émission-réabsorption. Les valeurs citées par les auteurs sont d'ailleurs très variables et vont de 3 à 8 ns (SANGSTER, 1952 ; SWANK et BUCK, 1955).

L'application du procédé graphique décrit au chapitre II nous permet de retrouver la fonction réponse de notre dispositif représentée sur la partie droite de la figure 51. Elle est identique, aux erreurs de mesure près, à celle obtenue à partir de la distribution des photons du relais CLARE

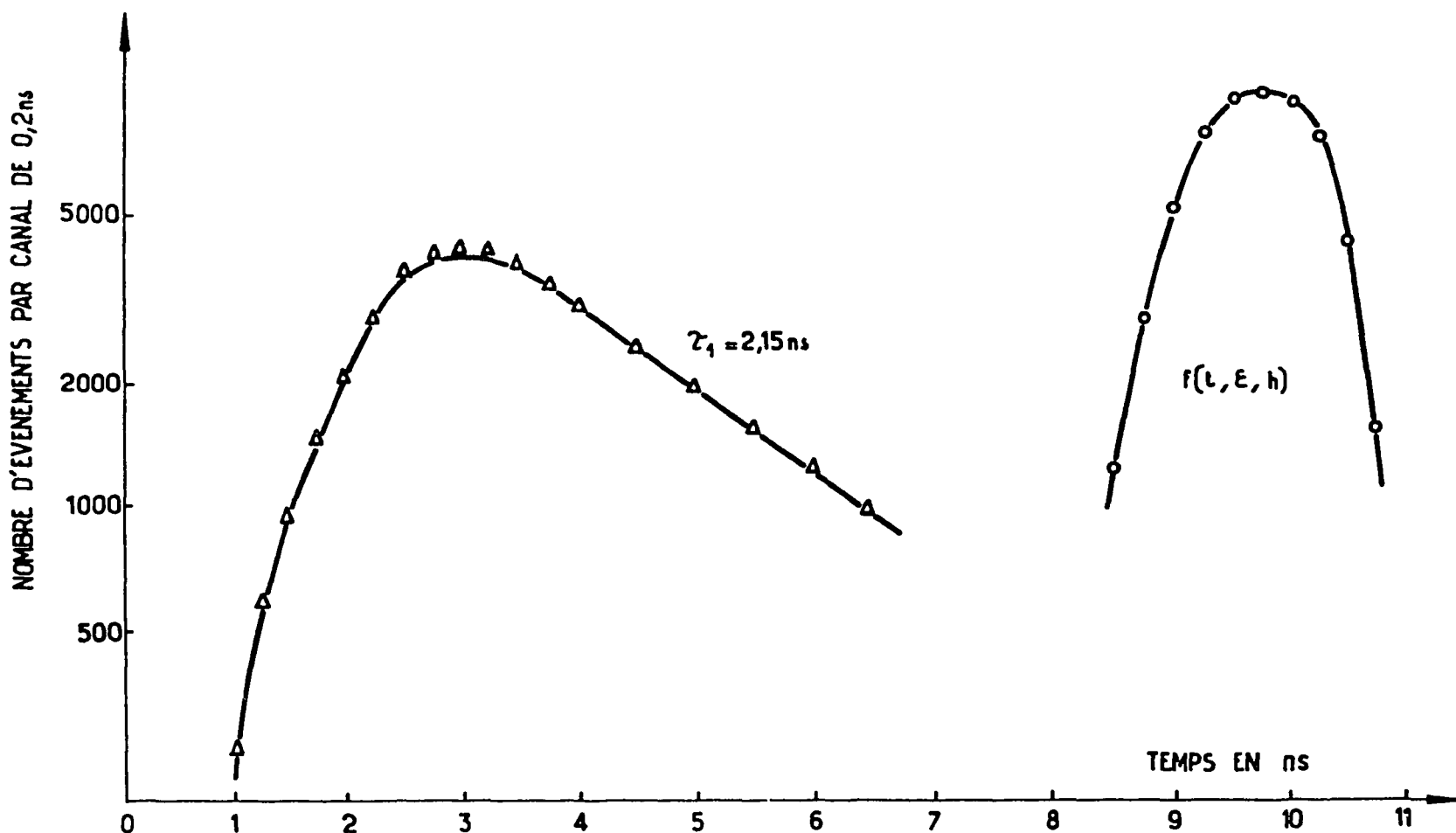


Figure 51 - Enregistrement de la distribution des photons d'une scintillation d'un cristal de Stilbène.

et nous avons là une confirmation du bon fonctionnement de notre dispositif utilisé avec les scintillations.

#### 4-3.2 - Reconstitution de la cinétique de la scintillation dans des liquides organiques fluorescents

Le scintillateur liquide est contenu dans une cuve de verre à faces terminales planes. Ce verre (B 40) est sensiblement de même composition que celui des fenêtres des 56 AVP ; sa transparence s'étend jusque vers 3 000 Å. Les dimensions de la cuve ont été choisies de telle manière qu'elles englobent les trajectoires des particules se ralentissant dans le scintillateur tout en respectant une différence de temps de transit de la lumière inférieure au dixième de nanoseconde. Le dispositif électronique est identique à celui décrit dans le chapitre précédent.

Nous avons tout d'abord vérifié qu'aucune différence de comportement dans nos enregistrements n'intervenait entre les excitations par particules  $\beta$  ou par photons  $\gamma$ , ces derniers étant plus commodes à employer car ils ne nécessitent pas d'ampoules à parois minces. Les photons  $\gamma$  provoquent dans le scintillateur liquide le départ d'électrons rapides par effet Compton. Ces électrons sont engendrés dans tout le volume du scintillateur et il peut apparaître, en particulier, des effets de bord. Par contre, aucun effet de surface sur la scintillation n'est à craindre.

Par la suite, nous emploierons toujours, soit des photons  $\gamma$  émis d'une source de Ra de quelques centaines de microcuries soit les particules  $\alpha$  de 4,76 MeV émis par une source de U 234 au taux de 300 par seconde dans 2  $\pi$  Ster pour une surface de quelques millimètres carrés.

##### 4-3.2.1 - Etude du Toluène contenant en solution du p-Terphényl ou du P.B.D.<sup>(1)</sup>

On sait qu'une solution de p-Terphényl dans le Toluène constitue un scintillateur liquide dans lequel le processus de transfert non-radiatif doit être important (KALLMANN et FURST, 1958). Nous

-----  
(1) P.B.D. est l'abréviation du 2-phényl-5-(4-biphényl)-1,3,4 oxadiazole.

avons reconstitué la forme des scintillations de cette solution organique pour différentes concentrations en excitation par particules  $\alpha$  et par photons  $\gamma$ .

#### 1/ Excitation par photons $\gamma$

Nous avons préparé des échantillons de plusieurs concentrations allant de 1 g/l à 6 g/l de p-Terphényl (ISOMET Cie) dans le Toluène (PROLABO R.P.). La figure 52 montre notre enregistrement (courbe de gauche) pour une concentration de 6 g/l. La décroissance suit une loi exponentielle de constante de temps de  $2,45 \text{ ns} \pm 0,05 \text{ ns}$ . Pour les autres concentrations cette constante de temps reste inchangée, montrant qu'aucune auto-absorption n'intervient dans ces concentrations. Elle nous donne une estimation du temps de vie moléculaire de ce p-Terphényl dans le Toluène qui se rapproche des valeurs fournies par BIRKS (1953 a) et SWANK et BUCK (1955) bien qu'elle ne leur corresponde pas exactement.

En fait, nous avons observé que le temps de vie peut très bien varier pour le p-Terphényl suivant son degré de pureté. C'est ainsi que le p-Terphényl d'une autre provenance présente un temps de vie de  $1,8 \text{ ns}$ , montrant que sa composition comporte un agent extincteur.

Si la décroissance de la courbe de la figure 52 reste inchangée pour différentes concentrations, il n'en est pas de même de son front de montée. La construction graphique décrite chapitre II est appliquée. Nous trouvons ainsi une seconde courbe, représentée figure 52 à droite, qui tend vers une exponentielle pour  $t$  suffisamment grand.

La constante de temps de la seconde fonction exponentielle n'est autre que le temps de vie apparent  $t_v$  des molécules du solvant (KALLMANN et FURST, 1958). Ce temps de vie de  $0,82 \text{ ns} \pm 0,05 \text{ ns}$  pour une concentration de 6 g/litre, varie avec la concentration et augmente, lorsque cette dernière diminue, jusqu'à une valeur de  $4,02 \text{ ns} \pm 0,05 \text{ ns}$  pour 1 g/litre.

Nous avons repris ces mesures sur le P.B.D. en solution dans le Toluène et nous avons trouvé un comportement tout à fait similaire de ses scintillations. La décroissance de la courbe représentant la scintillation (figure 53) est ici de  $1,65 \text{ ns} \pm 0,05 \text{ ns}$  et ne varie pas avec la concentration. C'est donc la valeur du temps de vie moléculaire du P.B.D. On trouve encore une deuxième exponentielle. La constante de temps de cette deuxième exponentielle augmente comme prévu pour des concentrations plus faibles.

Nous avons porté sur la figure 54 les variations de ces constantes de temps en fonction de la concentration du p-Terphényl d'une part et du P.B.D. d'autre part.

On peut remarquer que les inverses de ces constantes de temps  $t_v$  varient linéairement avec la concentration et atteignent une valeur identique à une concentration nulle. Ce comportement corrobore parfaitement les hypothèses de transfert non radiatif. Le temps de vie des molécules du solvant pur est diminué par la probabilité de capture non radiative de son excitation par les molécules du soluté. La valeur de ce temps de vie pour une concentration nulle ( $t_q$ ) est fourni par extrapolation de nos courbes : elle est de  $7,2 \text{ ns} \pm 0,5 \text{ ns}$ , en parfait accord avec la valeur trouvée par SWANK et BUCK (1958).

Ainsi, les courbes de la figure 54 peuvent être mises sous la forme :  $\frac{1}{t_v} = \frac{1}{t_q} + \alpha C$  où  $C$  est la concentration en  $\text{gl}^{-1}$  et  $\alpha$  un coefficient de proportionnalité exprimé en  $\text{lg}^{-1}\text{s}^{-1}$ . Ce coefficient  $\alpha$  est lié, d'après KALLMANN (1958) à l'inverse du temps  $t_{mig}$  que met l'énergie d'excitation à migrer d'une molécule de solvant à une autre et ne doit pas dépendre beaucoup de la nature du soluté. Il apparaît toutefois une différence dans nos mesures du coefficient  $\alpha$  suivant la nature du soluté. De  $0,18 \cdot 10^9$  pour le p-Terphényl, ce coefficient passe à  $0,22 \cdot 10^9$  pour le P.B.D. ; tous deux en solution dans le Toluène. Nous montrons ainsi expérimentalement que la probabilité de transfert de l'énergie du solvant au soluté dépend aussi de la probabilité de transfert de la molécule de solvant à la molécule de soluté.

KALLMANN donne la relation  $\alpha = \pi k/t_{mig}$  où  $\alpha$  est exprimée en  $\text{s}^{-1}$  (si  $C$  l'est en rapport molaire) et où  $k$  représente le rapport de la section efficace de transfert à la section efficace géométrique des molécules du solvant et qu'il considère de l'ordre de 1. En appliquant cette relation à nos résultats nous trouvons une estimation de  $t_{mig}$  qui est  $8 \cdot 10^{-12} \text{ s}$  pour la solution de p-Terphényl dans le Toluène.

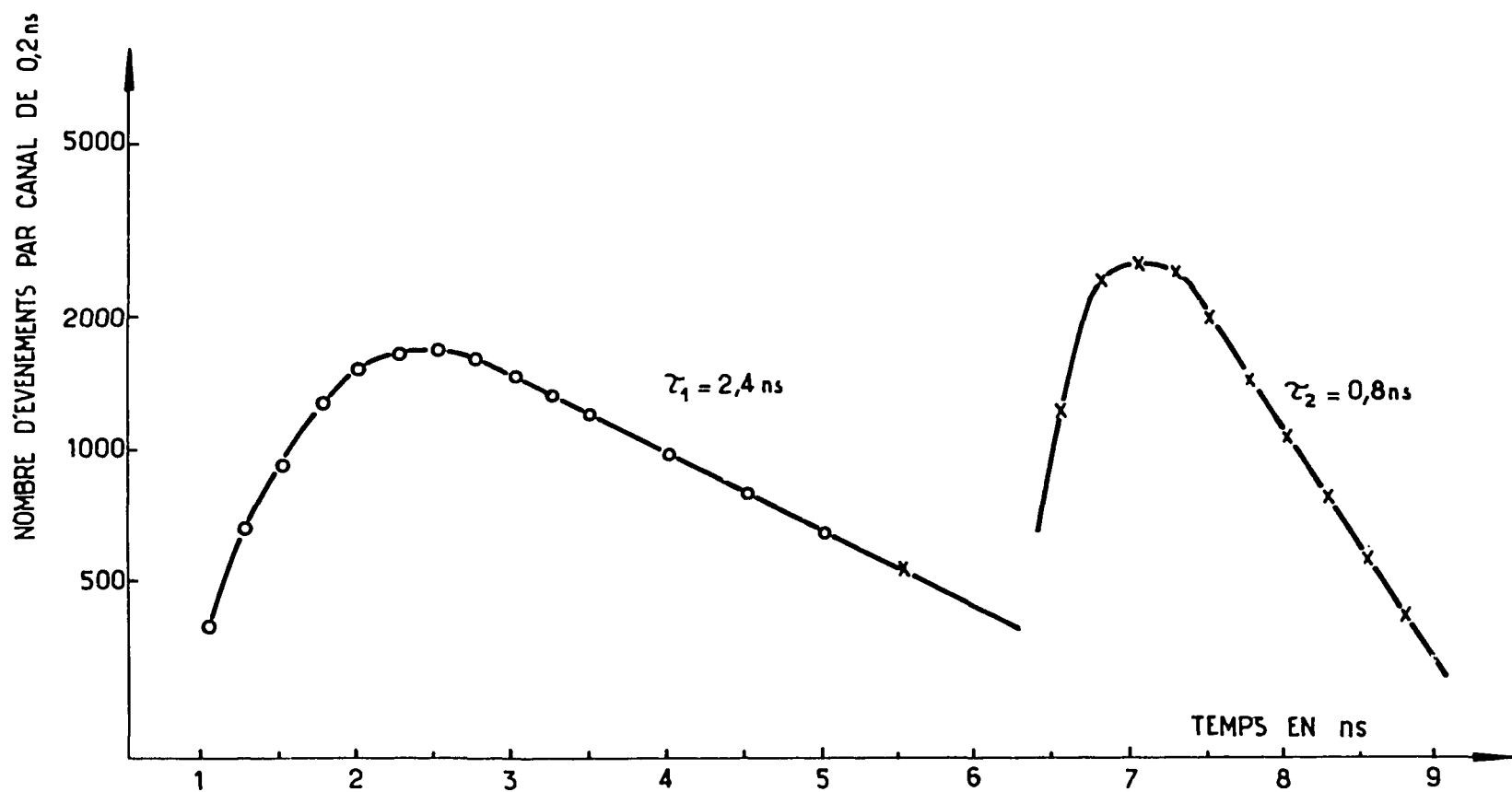


Figure 52 - Distribution des photons dans une scintillation de P.Terphenyl dans le toluène (6 g/l).

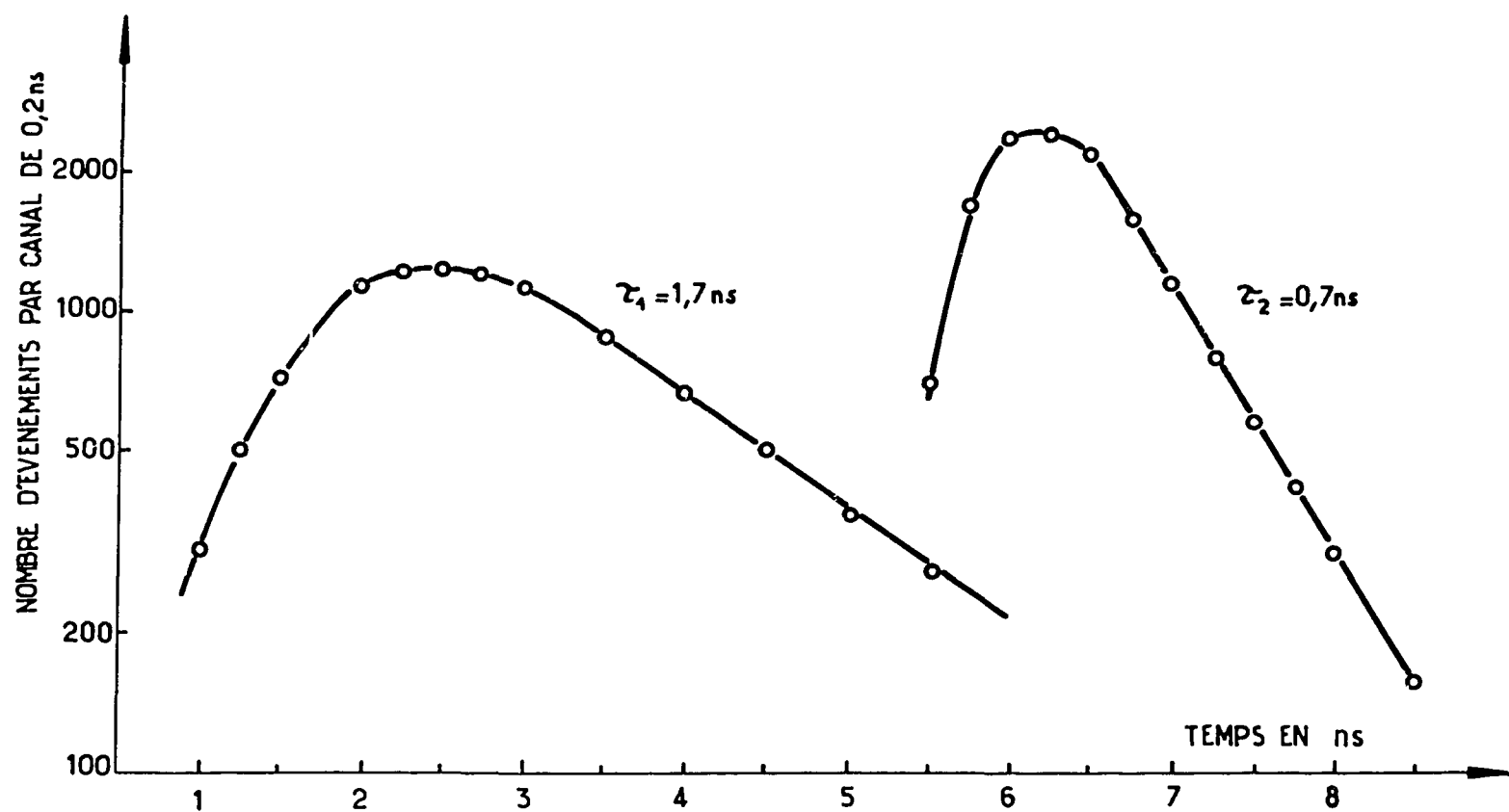


Figure 53 - Distribution des photons dans une scintillation de P.B.D. dans le toluène (6 g/l).

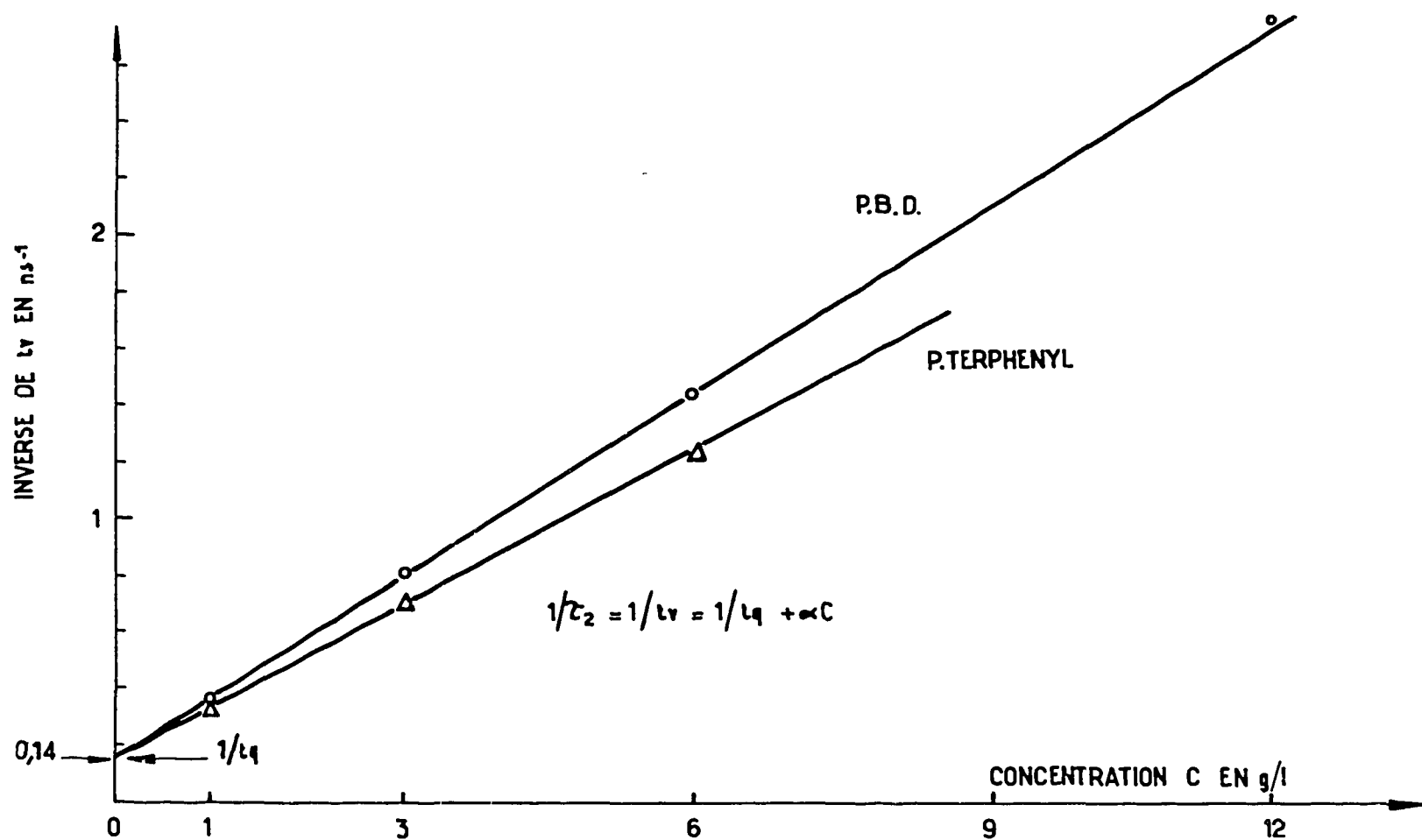


Figure 54 - Inverse de la constante de temps  $\tau^2$  des courbes des figures 52 et 53 en fonction de la concentration de P.B.D. et de P.Terphenyl dans le toluène. Excitation par photons  $\gamma$ .

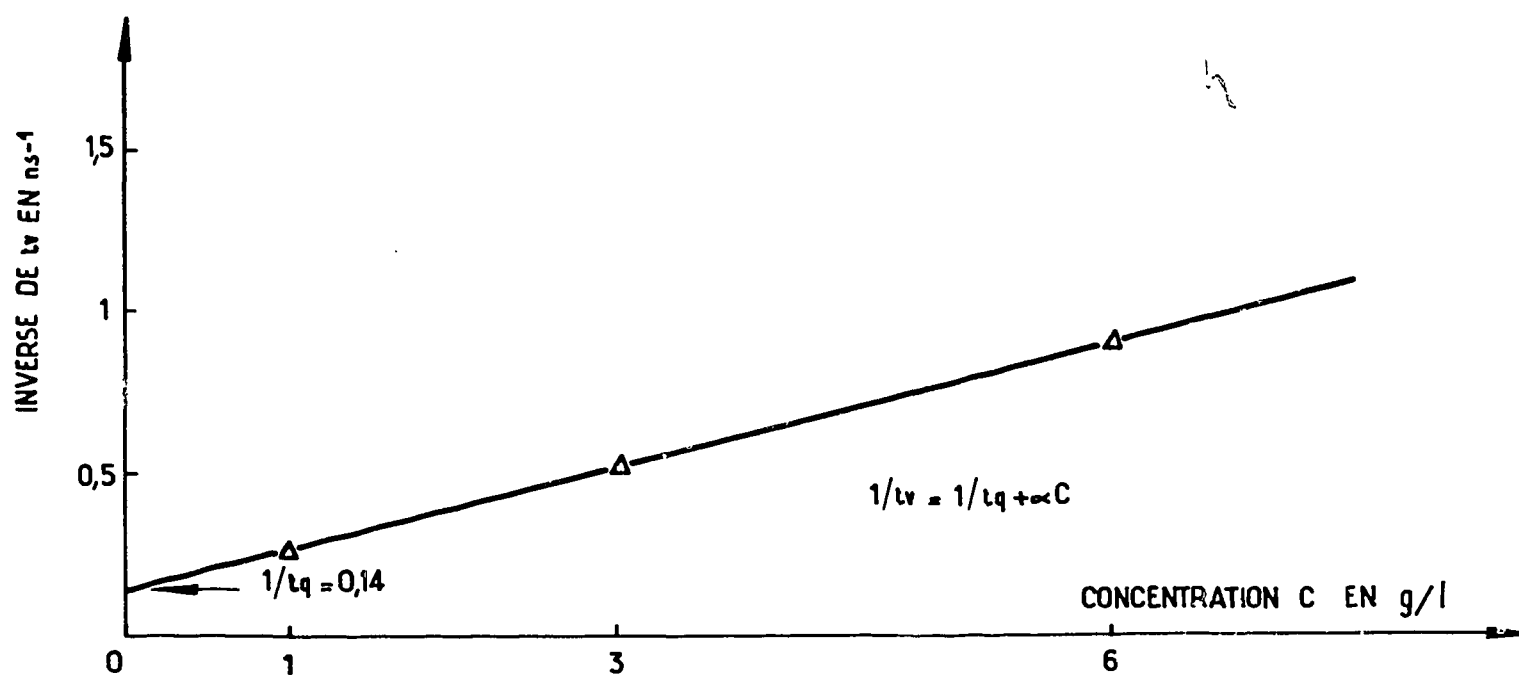


Figure 55 - Inverse du temps de vie apparent  $t_v$  des molécules du toluène contenant du P.Terphenyl, en fonction de la concentration. Excitation par particules  $\alpha$ .



## 2/ Excitation par particules alpha

Nous avons étudié le p-Terphényl en solution dans le Toluène lorsqu'il est excité par des particules  $\alpha$  de 4,7 MeV de l'U 234. On peut voir sur la figure 55 que la valeur extrapolée  $t_q$  reste la même qu'en excitation  $\gamma$ , mais que la valeur de  $\alpha$  est de 1,5 fois plus petite. En effet à concentration égale de p-Terphényl dans le Toluène, le temps de vie apparent  $t_v$  des molécules du Toluène a été trouvé plus long en excitations  $\alpha$  qu'en excitation  $\gamma$ .

La diminution de  $\alpha$  se traduit par une augmentation de  $Q = \frac{1}{\alpha t_q}$  et donc par un affaiblissement du rendement de transfert (proportionnel à  $\frac{C}{C + Q}$ ). Mais cet affaiblissement ne peut expliquer que le rendement de scintillation diminue de près d'un facteur 10 entre excitation par particules  $\beta$  ou photons  $\gamma$  et par particules  $\alpha$  (BIRKS, 1951). Cette action extinctrice est attribuée à la forte densité d'ionisation des particules  $\alpha$ . Elle n'apparaît pratiquement pas dans la cinétique de la scintillation telle que nous avons pu l'analyser expérimentalement, ce qui est conforme aux hypothèses avancées par KALLMANN et BRUCKER (1957); l'action extinctrice de la forte densité d'ionisation disparaît 0,1 à 0,2 ns après l'arrivée de la particule  $\alpha$ . Nos mesures montrent cependant un effet plus permanent qui se traduit par une diminution de la probabilité de transfert du solvant au soluté. Ce phénomène peut être dû à un allongement du temps de migration  $t_{mig}$  ou encore à une diminution du paramètre  $k$ .

Il n'est pas dû à un effet supplémentaire d'extinction qu'apporteraient les molécules détruites dans le solvant par l'action des particules  $\alpha$ . Cet effet d'extinction supplémentaire agirait en diminuant au contraire le temps de vie apparent des molécules du solvant. Il ajouterait à la probabilité de transfert non-radiatif vers les molécules du soluté, une autre probabilité de transfert concurrente vers les molécules détruites.

### 4-3.2.2 - Etude du Benzène contenant du P.B.D. en solution

La figure 56 résume les résultats de notre étude sur les scintillations du Benzène contenant, en solution, du P.B.D. lorsqu'il est excité par des photons  $\gamma$ . Son comportement confirme encore les hypothèses précédentes. Nos résultats montrent que le temps de vie  $t_q$  des molécules du Benzène pur est de  $5,9 \pm 0,5$  ns, valeur légèrement différente de celle trouvée à l'aide de la méthode du retard de phase par KNAU (1957). La courbe de la figure 56 peut encore être mise sous la forme  $\frac{1}{t_v} = \frac{1}{t_q} + \alpha C$  où  $\alpha = 0,18 \cdot 10^9$  et où  $C$  est la concentration en grammes par litre.

### 4-3.2.3 - Etude des scintillations produites par un scintillateur plastique

Notre dispositif permet aussi bien d'étudier les scintillateurs plastiques. Nous montrons sur la figure 57 la forme, déterminée par notre méthode, des scintillations d'un scintillateur plastique excité par des photons  $\gamma$ . Ce scintillateur plastique est constitué par une solution de p-Terphényl à 2,5 % dans du Styène polymérisée auquel nous avons ajouté, avant polymérisation, 0,03 % de P.O.P.O.P.<sup>(1)</sup> Le P.O.P.O.P. a pour fonction de déplacer le spectre d'émission du p-Terphényl, par processus d'absorption-réémission, vers un domaine de longueur d'onde plus proche du maximum de sensibilité des couches de Cs<sub>3</sub>Sb.

On voit que la constante de temps de décroissance est de  $2,55 \text{ ns} \pm 0,05 \text{ ns}$  et que le temps de vie apparent des molécules du Polystyrène est de  $0,65 \text{ ns} \pm 0,05 \text{ ns}$ .

## 4-4 - POSSIBILITES DE MESURES SUR SCINTILLATEURS

Nous avons ainsi étudié le comportement de divers scintillateurs liquides, cristallins ou plastiques, avec le même appareillage. Nous avons pu utiliser soit les rayonnements  $\beta$  ou  $\gamma$ , soit les particules  $\alpha$  et étudier les scintillations pour des concentrations allant de la saturation à 2 g/l. Pour chacune de nos mesures la fonction réponse du dispositif a été trouvée la même. La figure 58 montre le tracé de cette fonction et les points de mesure correspondant aux différents scintillateurs. Nous avons tracé la courbe de Gauss se rapprochant le plus de notre fonction réponse. On peut voir que son écart quadratique est de 0,3 ns. Notre dispositif permet donc de mesurer les fronts de montée des scintillations à partir de 0,3 ns environ. Le procédé graphique de la figure 14 nous permet de retrouver la constante de temps correspondant au temps de vie apparent  $t_v$  des molécules du solvant. Les erreurs apportées par le nombre fini de la taille de l'échantillon cons-

(1) P.O.P.O.P est l'abréviation du 1,4-di-(2-(5-phényloxazolyl)) - benzène.

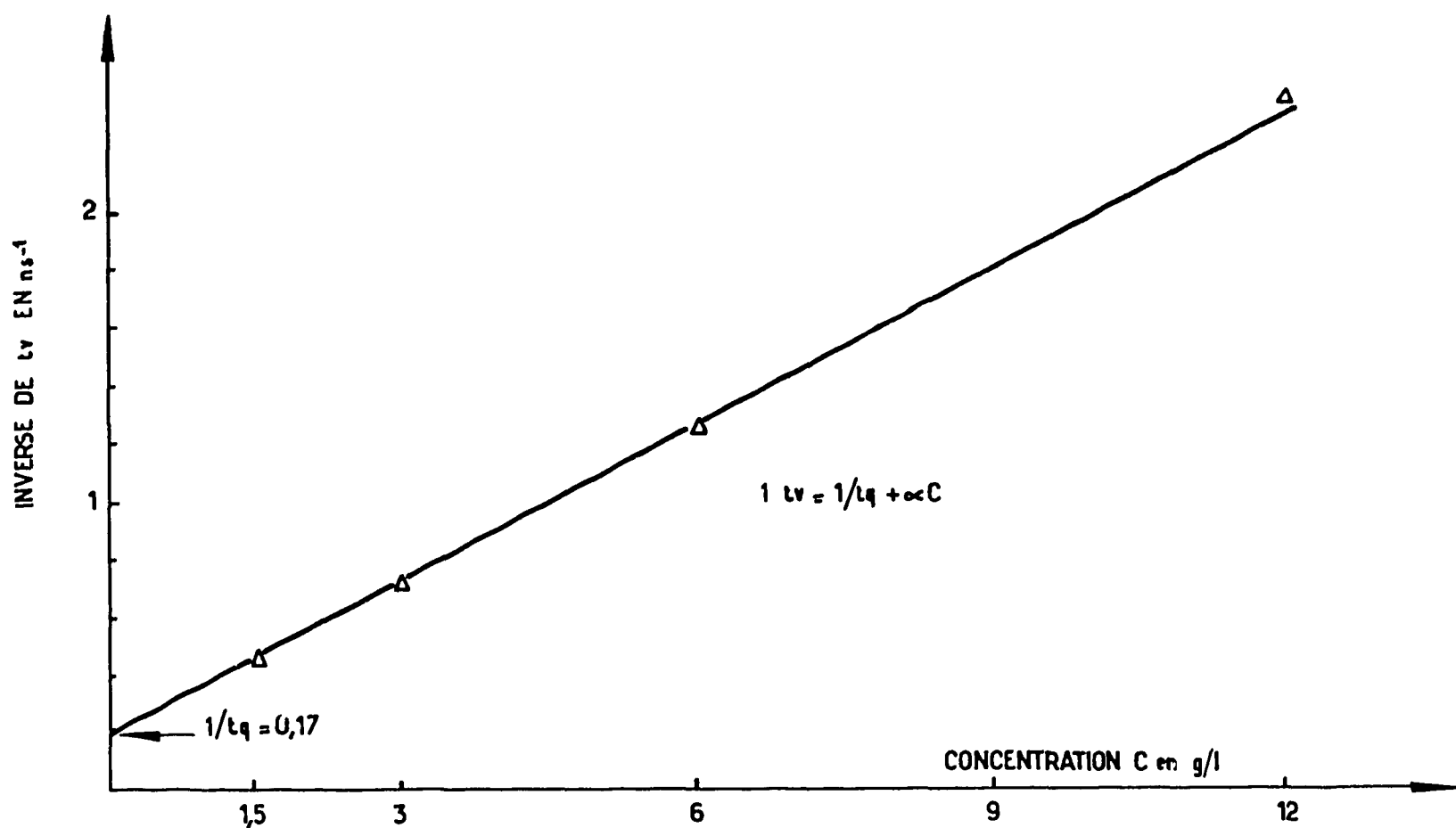


Figure 56 - Inverse du temps de vie apparent  $\tau$ , des molécules du benzène en fonction de la concentration  $C$  du P.B.D.. Excitation par photons  $\gamma$ .

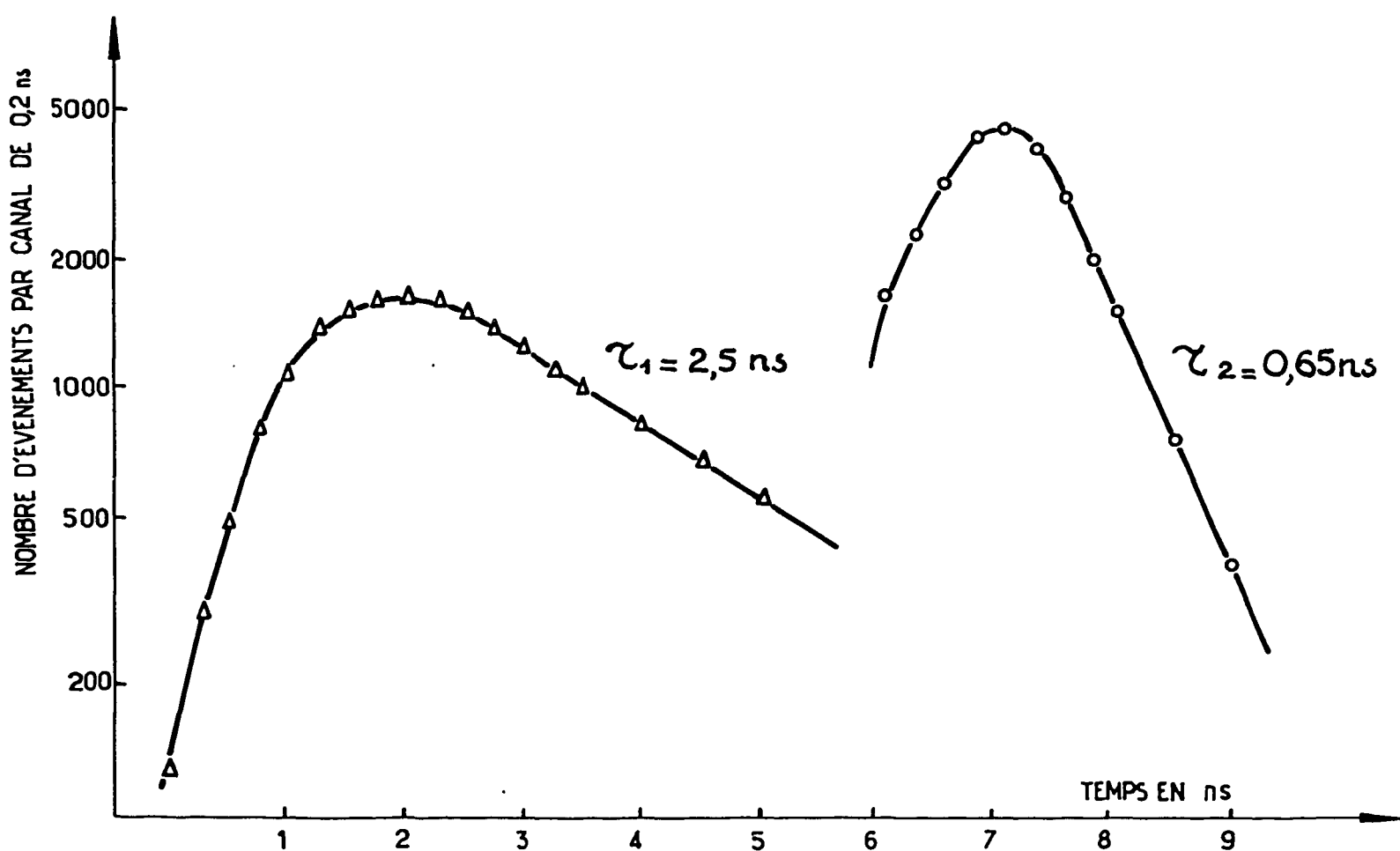


Figure 57 - Distribution des photons dans une scintillation de P.Terphenyl dans le polystyrolène (2,5 %) (photon  $\gamma$ ).

titué nous permettent d'apprécier ce temps de vie à 0,05 ns près, soit une précision de 7 % environ dans le cas de nos mesures. Cette précision se reporte sur la constante  $\alpha$  et le temps de transfert  $t_{mig}$ .

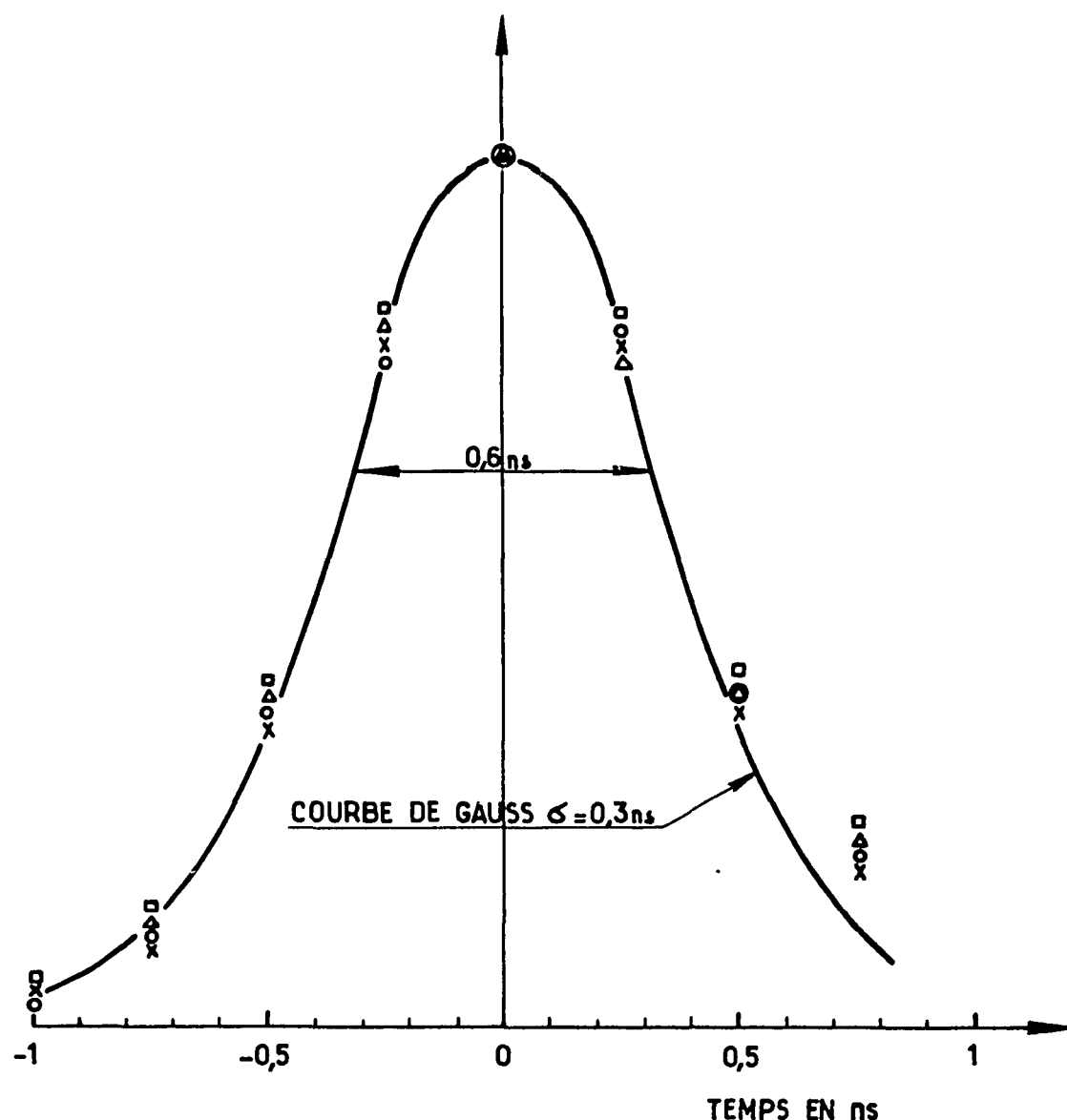


Figure 58 - Tracé de la fonction réponse de notre dispositif, correspondant au :  
 x Relais Clare                      o p.Terphényl dans le toluène  
 □ Stilbène                            Δ P.B.D. dans le Benzène,

Le tableau III fournit les valeurs de  $t_v$ ,  $t_q$ ,  $\alpha$  et  $t_{mig}$  pour les scintillateurs que nous avons étudiés. La constante de transfert  $\alpha$  est donnée en  $l\ g^{-1}\ s^{-1}$  telle qu'elle est mesurée sur nos courbes et en  $s^{-1}$  lorsque la concentration est exprimée en rapport molaire. Le temps de transfert  $t_{mig}$  est donné en secondes ; il est calculé d'après la relation fournie par KALLMANN (1958)  $\alpha = \frac{\pi k}{t_{mig}}$  où  $k$  est pris égal à l'unité.

Enfin nous donnons les valeurs de  $Q = 1/\alpha\ t_q$  déduites de nos mesures.  $Q$  représente ici la concentration du soluté pour laquelle la moitié de l'énergie d'excitation du solvant lui est transmise. Ces valeurs sont en bon accord avec celles publiées par KALLMANN et FURST (1950) et obtenues par la mesure de l'intensité de fluorescence en fonction de la concentration.

Nous donnons dans le tableau IV les constantes molaires relatives aux corps que nous avons utilisés. Le tableau V donne les concentrations de nos solutions en grammes par litre, en moles par litre et en moles par mole.

Tableau III

Constantes de transfert dans les solutions étudiées

Scintillateurs	Temps de vie des molécules du solvant		Constante de transfert $\alpha$		temps de (3) transfert	Constante (4) de concentration Q	
	sans soluté $t_q$ en ns	avec soluté (5) $t_v$ en ns	en l/g-s	en s <sup>-1</sup>	$t_{niq}$ en s	en g/l	en M/M
Toluène + p-Terphényl <sup>(1)</sup>	7,2	0,80	$0,18 \cdot 10^9$	$4,0 \cdot 10^{11}$	$8,0 \cdot 10^{-12}$	0,72	$3,5 \cdot 10^{-4}$
Toluène + P.B.D. <sup>(1)</sup>	7,2	0,69	$0,22 \cdot 10^9$	$5,8 \cdot 10^{11}$	$5,5 \cdot 10^{-12}$	0,65	$2,4 \cdot 10^{-4}$
Benzène + P.B.D. <sup>(1)</sup>	6,3	0,80	$0,18 \cdot 10^9$	$4,6 \cdot 10^{11}$	$6,8 \cdot 10^{-12}$	0,90	$3,4 \cdot 10^{-4}$
Toluène + p-Terphényl <sup>(2)</sup>	7,2	1,08	$0,13 \cdot 10^9$	$2,9 \cdot 10^{11}$	$11 \cdot 10^{-12}$	1,07	$4,9 \cdot 10^{-4}$
Précision	$\pm 0,1$	$\pm 0,05$	$\pm 0,01 \cdot 10^9$	$\pm 0,3 \cdot 10^{11}$	$\pm 0,3 \cdot 10^{-12}$	$\pm 0,08$	$\pm 0,4 \cdot 10^{-4}$

(1) - Excitation par photons  $\gamma$ (2) - Excitation par particules  $\alpha$ (3) - Calculé à partir de  $\alpha$  en s<sup>-1</sup> d'après les hypothèses de KALLMANN (1958)

(4) - Concentration du soluté à laquelle la moitié de l'énergie lui est transmise

(5) à 6 gl<sup>-1</sup>

Tableau IV

Constantes molaires des solvants et solutés étudiés

Substance	Toluène	Benzène	p-Terphényl	P.B.D.
Masse molaire	92,13	78,11	230,29	298,33
densité (g/ml)	0,867	0,879		

Tableau V

Concentrations des solutés en g/l, M/l et M/M

Solutions	Concentrations en		
	g/l	$10^{-3}$ moles/litre	$10^{-4}$ moles/mole
p-Terphényl dans le Toluène	1 à 6	4,35 à 26,1	4,62 à 27,8
P.B.D. dans le Toluène	1 à 12	3,35 à 40,2	3,56 à 42,7
P.B.D. dans le Benzène	1 à 12	3,35 à 40,2	2,98 à 35,7

## V. - CONCLUSION

Nous nous étions proposés au début de ce travail d'analyser la cinétique des impulsions de lumière de très faible durée et en particulier celle des scintillations. En effet, par l'exploration d'un domaine de temps inférieur à la nanoseconde, il est possible d'apporter des éclaircissements sur le mécanisme de la scintillation et du transfert de l'énergie d'excitation dans les milieux fluorescents organiques.

Cependant les méthodes d'investigation mises en oeuvre jusqu'à présent ne fournissent que très incomplètement l'estimation des paramètres intervenant dans ce mécanisme. En particulier l'étude de la cinétique des impulsions lumineuses à partir de l'analyse du courant anodique d'un photomultiplicateur (même le plus rapide à ce jour) est entachée d'une erreur statistique dont l'écart est supérieur à la nanoseconde. Nous avons mis en évidence, au cours de l'étude des caractéristiques temporelles du photomultiplicateur 56 AVP un comportement très intéressant. Bien que sa réponse impulsionnelle soit caractérisée par les fluctuations de temps de transit des électrons migrant dans ce tube, les fluctuations de délai entre le départ d'un photoélectron de sa photocathode et l'apparition de l'impulsion anodique correspondante présentent un écart  $\epsilon$  bien inférieur à la largeur de la réponse impulsionnelle.

Nous avons alors établi que la détermination, précise à  $\epsilon$  près, du départ d'un photoélectron de la photocathode et la nature aléatoire du processus de transformation du photon en électron par cette dernière, amènent à l'élaboration d'une méthode d'échantillonnage sur les scintillations. Nous avons décrit cette méthode qui consiste à mesurer l'écart à l'émission d'un photon, pris au hasard dans une scintillation, par rapport au barycentre de cette dernière. A partir de l'histogramme de ces écarts on peut reconstituer la loi de distribution des photons.

Les impulsions lumineuses doivent se répéter plusieurs milliers de fois statistiquement ou périodiquement. Leur amplitude peut varier statistiquement ou non d'un ordre de grandeur pourvu que la distribution des photons dans l'impulsion obéisse à la même loi, (fonction certaine ou loi de probabilité).

Le dispositif de mesure réalisé dont nous avons donné la description détaillée nous a permis de vérifier les hypothèses de base de notre méthode. Son domaine d'investigation commence à 0,3 ns et couvre une dizaine de nanosecondes. La limite inférieure du domaine d'investigation possible a donc été repoussée de presque un ordre de grandeur.

Nous avons appliqué notre dispositif à la détermination de la loi d'émission des photons par une décharge électrique dans de l'hydrogène sous pression. Nous avons mis en évidence que sous certaines conditions que nous avons précisées, sa durée pouvait être inférieure à 0,6 ns.

Nous avons enfin étudié le mécanisme du transfert de l'énergie d'excitation au sein de solutions liquides de corps organiques fluorescents. Pour la première fois l'existence de ce transfert a été mis en évidence par voie directe pour des concentrations allant jusqu'à la saturation ; le processus de ce transfert est de nature non radiative et son comportement est conforme aux hypothèses avancées par KALLMANN et FURST. Nous avons étudié le mécanisme des scintillations créées par des particules de forte densité d'ionisation. L'action d'extinction due à ces dernières ne dure que quelques dixièmes de nanosecondes après l'arrêt des particules. Loin de contribuer à la naissance de molécules extinctrices durables, qui diminueraient le temps de vie apparent du solvant ou du soluté, la forte densité d'ionisation des particules  $\alpha$  provoque au contraire un ralentissement du processus de transfert.

Notre travail ouvre la voie à une étude approfondie de l'influence de la nature des particules sur la forme des scintillations. Il précise les conditions à remplir pour l'étude des photomultiplicateurs plus rapides en montrant qu'il est nécessaire d'une part, de diminuer les fluctuations de temps de transit dans l'optique d'entrée et d'autre part, d'augmenter le gain des premières dynodes afin de réduire le plus possible la largeur de sa réponse impulsionnelle.

## BIBLIOGRAPHIE

- AGENO M. et QUERZOLI R. (1952) *Nuovo Cimento*, 9, 2.  
 BIRKS J.B. (1951) *Proc. Phys. Soc.*, A, 64, 874.  
 BIRKS J.B. et LITTLE W.A. (1953 a) *Proc. Phys. Soc.*, A, 66, 921.  
 BIRKS J.B. et SZENDREI M.E. (1953 b) *Phys. Rev.*, 91, 197.  
 BIRKS J.B. et WRIGHT G.T. (1954) *Proc. Phys. Soc.*, B, 67, 657.  
 BOLLINGER L.M. et THOMAS G.E. (1961) *Rev. Sci. Inst.*, 32, 9, 1044.  
 BOWEN E.J. (1949) *Proc. Phys. Soc.*, A, 62, 26.  
 BOWEN E.J. et WOKES F. (1953) *Fluorescence of solutions*, Longmans, Grenn et Cie. Londres .  
 BURTON M. (1947) *Phys. Rev.*, 72, 531.  
 BURTON M. et DREESKAMP H. (1959) *Dis. Far. Soc.*, 27, 64.  
 CACHON P. (1960) Thèse - Université d'Alger.  
 CHRISTIANSEN J. (1959) *Nucl. Inst. and Meth.*, 5, 2.  
 FORSTER T. (1947) *Ann. Physik*, 2, 55.  
     (1949) *Z. Electrochem.*, 53, 93.  
     (1951) *Fluoreszenz Organischer Verbindungen*, Gottingen.  
     (1959) *Dis. Far. Soc.*, 27, 7  
 FRENKEL J.I. (1931) *Phys. Rev.*, 37, 17 et 1276.  
 FURST M., KALLMANN H., KRAMER B. (1953) *Phys. Rev.*, 89, 416.  
 GALANIN M.D. et GRISHIN A.P. (1956) *Soviet Phys. JETP*, 3, 32.  
 GATTI E. et SVELTO V. (1959) *Nucl. Inst. and Meth.*, 4, 4.  
 GAVIOLA E. (1927) *Z. Physik*, 43, 853.  
 GORLICH P. et al. (1957) *Exptl. Tech. d. Physik*, 5, 1.  
 HACHENBERG G. et BRAUER W. (1959) *Adv. in Electronics* (XI).  
 HERON S. et al. (1956) *Proc. Roy. Soc.*, 234, 565.  
 KALLMANN H. et LONDON F. (1929) *Z. Physik B*, 2, 207.  
 KALLMANN H. et FURST M. (1950) *Phys. Rev.*, 79, 857.  
 KALLMANN H. et BRUCKER G.J. (1957) *Phys. Rev.*, 108, 1122.  
 KALLMANN H. et FURST M. (1958) *Liquid Scintillation Conting*, édité par C.G. Bell et F.N. Hayes (Pergamon Press, New-York).  
 KERNS Q.A., KIRSTEN F.A., COX G.C. (1959) *Rev. Sci. Inst.*, 30.  
 KNAU H. (1957) *Z. Natur.* 12 a, 11, 881.  
 KOECHLIN Y. (1958) *Comptes rendus du Colloque International sur l'Electronique Nucléaire-Paris*  
     (1961) *Comptes rendus*, 252, 391.

LIPSKY S. et BURTON M. (1959) J. Chem. Phys., 31, 1221.

LEWIS G.N. et KASHA M. (1945) J. Amer. Chem. Soc., 67, 994.

LUNDBY A. (1950) Phys. Rev., 80, 477.

MEUNIER R. (1958) Comptes rendus du Colloque International sur l'Electronique Nucléaire - Paris

MORTON G.A. (1949) R.C.A. Rev. 10, 4, 525.

PERRIN F. (1932) Ann. Chim. Phys., 17, 283.

PERRIN J. (1927) Comptes rendus., 184, 1097.

PERRIN J. et CHOUCROUN (1929) Comptes rendus, 189, 1213.

PIETRI G. (1958) Comptes rendus du Colloque International sur l'Electronique Nucléaire - Paris

PIETRI G. (1961) Acta Electronica, 5, 1, 7.

POST R.F. et SHIREN N.S. (1950) Phys. Rev., 78, 81.

SANGSTER R.C. (1952) M.I.T. Tech. Rep. n° 0 - 4/53.

SINGER S. (1956) Rev. Sci. Inst., 27, 40.

SWANK R.K. et BUCK W.L. (1955) Rev. Sci. Inst., 26, 15.

SWANK R.K. et BUCK W.L. (1958) I.R.E. Trans. on Nucl. Sci. NS-5, 183.

VON WEISZACKER W. (1934) Z. Physik, 88, 612.

WILLIAMS E.J. (1935) Kgl. -Danske Videnskab - Selskab, Mat. Fys. Med., 13, 4.

WRIGHT G.T. (1954) J. Sci Inst., 31, 377.

WRIGHT G.T. (1955) Proc. Phys. Soc., B, 68, 929.

## TABLE DES MATIÈRES

	Pages
I - INTRODUCTION .....	7
II - DESCRIPTION ET CHAMP D'APPLICATION DE NOTRE METHODE D'ECHANTILLON- NAGE.....	9
2-1 - <u>Le Photomultiplicateur (P.M.)</u> .....	9
2-1.1 - P.M. de types courants.....	10
2-1.2 - Le P.M. rapide 56 AVP DARIO.....	10
2-1.2.1 - Nécessité du P.M. rapide en Physique nucléaire.....	10
2-1.2.2 - Performances du P.M. rapide 56 AVP.....	11
2-1.2.3 - Mesure de la rapidité de réponse du 56 AVP.....	13
2-1.2.4 - Limites apportées par le 56 AVP dans la détermination directe de la forme d'une impulsion lumineuse.....	16
2-2 - <u>La Méthode d'Echantillonnage</u> .....	16
2-2.1 - Possibilité d'une investigation plus poussée grâce à une caractéristique par- ticulière du P.M.....	16
2-2.2 - Estimation des fluctuations de temps de transit dans le multiplicateur et des fluctuations de délai dans l'ensemble du P.M.....	17
2-2.3 - Détermination de la forme des impulsions lumineuses par échantillonnage sur l'instant de l'émission de leurs photons.....	18
2-2.3.1 - Principe.....	18
2-2.3.2 - Constitution de l'élément de l'échantillon.....	19
2-2.3.3 - Mesure de la durée comprise entre l'époque d'émission du photon et le barycentre des époques d'émission de l'ensemble des photons....	20
2-2.3.4 - Reconstitution de la forme des impulsions lumineuses.....	21
2-3 - <u>Les possibilités de notre méthode</u> .....	23
III - MISE EN OEUVRE DE LA METHODE AVEC UN GENERATEUR D'IMPULSIONS LU- MINEUSES TRES BREVES .....	27
3-1 - <u>Dispositif électro-optique</u> .....	27
3-1.1 - Description du dispositif.....	27
3-1.2 - Constitution du générateur d'impulsions lumineuses brèves.....	28
3-1.3 - Conditions de fonctionnement du P.M.....	29
3-1.3.1 - Enoncé des conditions.....	29
3-1.3.2 - Vérification expérimentale de ces conditions.....	31
3-2 - <u>Reconstitution de l'impulsion lumineuse du relais CLARE par enregistrement photo- graphique des impulsions du 56 AVP</u> .....	36
3-3 - <u>Enregistrement au moyen de circuits électroniques</u> .....	37
3-3.1 - Principe des circuits.....	38



	Pages
3-3.1.1 - Détail des circuits.....	38
3-3.1.2 - Alimentation des P.M.....	39
3-3.1.3 - Circuit d'adaptation de l'anode.....	40
3-3.1.4 - Mise en forme par ligne court-circuitée.....	41
3-3.1.5 - Amplification.....	42
3-3.1.6 - Elaboration de l'impulsion de commande de grille de l'E 80 T.....	43
3-3.1.7 - Circuit de commande des plaques de déflection de l'E 80 T.....	43
3-3.1.8 - Circuit "porte".....	43
3-3.1.9 - Fonctionnement du tube E 80 T.....	44
3-3.2 - Performances du dispositif d'enregistrement électronique.....	44
3-3.3 - Estimation expérimentale des variations des délais des P.M.....	48
3-3.3.1 - Elaboration du signal définissant l'instant origine de la scintillation.	48
3-3.3.2 - Elaboration du signal définissant l'instant d'arrivée d'un photon de la scintillation.....	51
3-3.4 - Tracé de l'histogramme des époques d'émission des photons du relais CLARE par le dispositif électronique.....	55
3-3.4.1 - Dispositions expérimentales.....	55
3-3.4.2 - Analyse de la courbe de distribution.....	56
3-4 - <u>Performances du dispositif</u> .....	57
IV - APPLICATION DE LA METHODE D'ECHANTILLONNAGE A L'ETUDE DU MECANISME DE LA SCINTILLATION.....	59
4-1 - <u>Mécanisme de la scintillation dans les corps organiques fluorescents</u> .....	59
4-1.1 - Excitation du milieu par une particule ionisante.....	59
4-1.2 - Désexcitation des molécules fluorescentes.....	60
4-1.2.1 - Cas d'un corps organique pur.....	60
4-1.2.2 - Processus d'extinction dans les liquides et solutions.....	60
4-1.2.3 - Extinction par concentration.....	60
4-2 - <u>Processus de transfert d'énergie dans les corps organiques fluorescents</u> .....	61
4-2.1 - Mécanisme de transfert d'énergie.....	61
4-2.2 - Transfert d'énergie dans les scintillateurs liquides.....	61
4-3 - <u>Etude de la cinétique de la scintillation par la méthode d'échantillonnage</u> .....	63
4-3.1 - Cristal de trans-Stilbène .....	63
4-3.2 - Reconstitution de la cinétique de la scintillation dans des liquides organiques fluorescents.....	64
4-3.2.1 - Etude du Toluène contenant en solution du p-Terphényl ou du P.B.D.	64
4-3.2.2 - Etude du Benzène contenant du P.B.D. en solution.....	68
4-3.2.3 - Etude des scintillations produites par un scintillateur plastique .....	68
4-4 - <u>Possibilités de mesures sur les scintillateurs</u> .....	68
V - CONCLUSION.....	73

**FIN**