



Étude cinétique de la scintillation dans les cristaux organiques purs

Daniel Blanc, Francis Cambou, Yann Gervais De Lafond

► To cite this version:

Daniel Blanc, Francis Cambou, Yann Gervais De Lafond. Étude cinétique de la scintillation dans les cristaux organiques purs. Journal de Physique, 1964, 25 (3), pp.319-325. <10.1051/jphys:01964002503031900>. <jpa-00205779>

HAL Id: jpa-00205779

<https://hal.archives-ouvertes.fr/jpa-00205779>

Submitted on 1 Jan 1964

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

ÉTUDE CINÉTIQUE DE LA SCINTILLATION DANS LES CRISTAUX ORGANIQUES PURS

Par DANIEL BLANC, FRANCIS CAMBOU, et YANN GERVAIS DE LAFOND,

Centre de Physique Nucléaire de la Faculté des Sciences de Toulouse.

Résumé. — On complète et généralise les théories antérieures de la composante rapide de la scintillation organique en établissant une équation donnant la loi générale de variation de la densité en quanta d'excitation singulets d'origines « rapides ». On applique cette équation à un cas particulier un peu moins restrictif que ceux des théories précédentes.

On donne une étude cinétique de la composante lente fondée sur l'hypothèse d'une activation bi-moléculaire du niveau triplet le plus bas vers le premier niveau singulet excité. On en déduit l'importance relative de la composante lente pour une excitation particulière et une excitation photonique.

Abstract. — Previous theories of the fast component of organic scintillation are perfected and generalized by setting up an equation giving the general law of variation of density of the "fast generated" singlet quanta of excitation. This equation is applied to a particular case less restrictive than those of the previous theories. Then, assuming the hypothesis of a bi-molecular activation from the lowest triplet state to the first excited singlet state, one proceeds to a kinetic study of the slow component from which the relative amount of the slow component is determined for the two cases of particle and photon excitation.

La scintillation organique comporte essentiellement deux composantes (cf. *fig. 1*) : une composante à décroissance rapide ; une composante à décroissance plus lente.

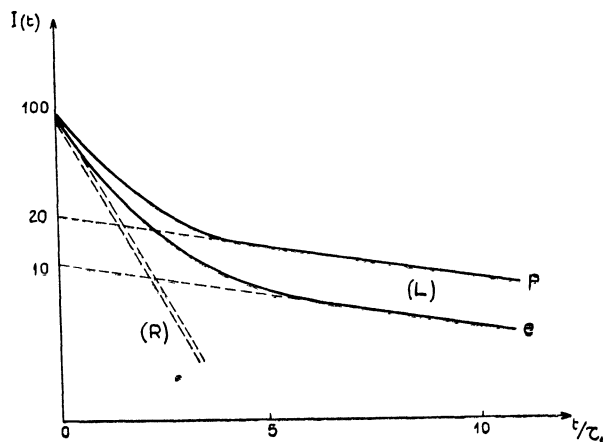


FIG. 1. — Courbes expérimentales de décroissance de l'émission lumineuse dans un cristal épais d'anthracène excité par des électrons et des protons (L).

τ_1 : temps de décroissance de la composante rapide (R).
 $\tau_1 = 30 \times 10^{-9}$ s (valeur qui correspond au cas d'un cristal d'anthracène épais).

L'étude cinétique de la scintillation a deux buts essentiels : la détermination de l'efficacité de la réponse lumineuse du scintillateur au passage de la particule nucléaire ; l'interprétation de la forme expérimentale de la décroissance de l'intensité de l'émission lumineuse.

Celle-ci dépend à la fois : de la forme de la décroissance rapide ; de la forme de la décroissance

lente ; et des proportions relatives de composantes rapide et lente.

I. Mécanisme de la scintillation. — L'émission de lumière est due à la désactivation lumineuse des molécules excitées. Dans ces conditions une étude du mécanisme de la scintillation doit s'intéresser à la nature et à l'origine de l'excitation avant d'aborder le comportement des quanta d'excitation dans le milieu organique scintillant.

NATURE ET ORIGINE DE L'EXCITATION DANS LA MOLÉCULE ORGANIQUE. — L'excitation d'une molécule organique est le résultat d'une augmentation de l'énergie totale de son système d'électrons π . L'énergie totale du système des électrons π est quantifiée ; elle ne peut prendre qu'une suite discrète de valeurs. Ces niveaux énergétiques se groupent en deux familles (*fig. 2*) : l'état singulet, et l'état triplet.

Le passage d'un niveau singulet en un niveau triplet ou vice-versa se produit assez rarement (à cause des règles de sélection spectroscopiques).

DESTINÉE DE L'ÉNERGIE D'EXCITATION. — Normalement, la molécule se trouve dans l'état fondamental S_0 qui est un état singulet (cf. *fig. 2*).

Une cause extérieure à la molécule, comme par exemple le passage d'une particule nucléaire, va porter son état énergétique du niveau S_0 à l'un des niveaux singulets supérieurs S_n ou, exceptionnellement, au niveau triplet T_1 (cf. *fig. 2*). Cette cause extérieure pourra également ioniser la molécule en donnant un électron libre et un ion positif.

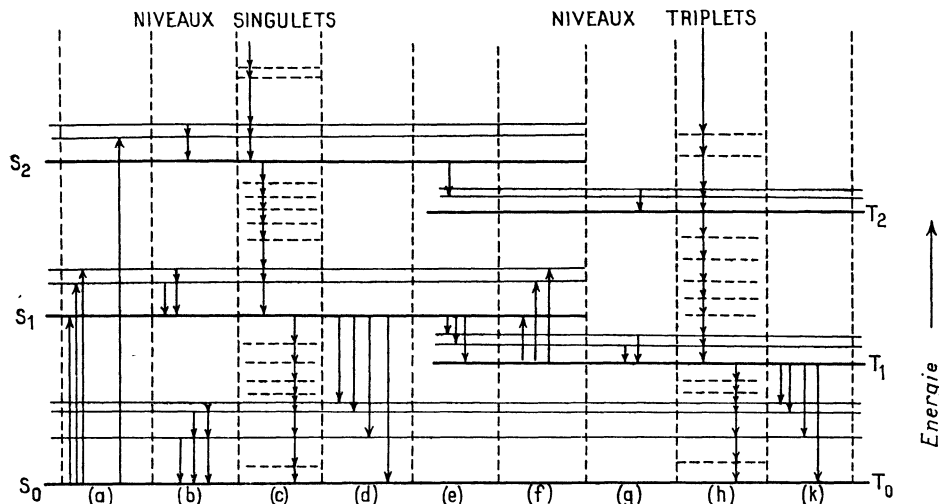


FIG. 2. — Processus de luminescence moléculaire.
(a) Excitation, (b) dégradation interne, (c) conversion interne, (d) fluorescence, (e) conversion, (f) activation $T_1 \rightarrow S_1$, (g) dégradation interne, (h) conversion interne, (k) phosphorescence.

L'électron libre et l'ion positif vont très rapidement se recombiner (en 10^{-13} s environ [2], [3]), en passant éventuellement par l'intermédiaire d'un ion négatif sur lequel se sera attaché l'électron libre (cf. *fig. 3*). Les molécules neutres produites par la recombinaison sont très fortement excitées, 75 % le sont en moyenne à l'état triplet et 25 % à l'état singulet [4].

L'énergie d'excitation située à l'un des niveaux singulets supérieurs S_n se convertit rapidement (en 10^{-11} s. [5]) vers le niveau S_1 . Elle peut aussi passer à l'état triplet T_n immédiatement inférieur par conversion [6]. L'énergie, dans les deux éventualités, est transformée en chaleur.

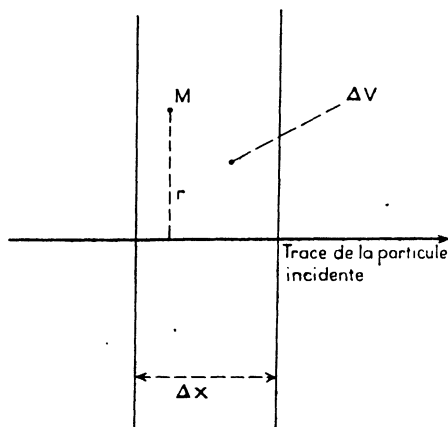


FIG. 3.

L'énergie d'excitation T_n se dégrade aussi très rapidement vers le niveau T_1 .

L'énergie d'excitation reste relativement plus longtemps au niveau S_1 (10^{-8} s) avant de dispa-

raître selon deux processus distincts : dégagement de chaleur (inhibition) ; émission de photons lumineux (c'est la fluorescence, processus essentiel de la scintillation).

Par ailleurs, cette énergie d'excitation peut être transférée au niveau triplet T_1 . L'énergie d'excitation située au niveau T_1 peut être activée au niveau S_1 avant de disparaître selon les processus cités plus haut ; mais l'énergie stationne sur le niveau T_1 pendant un temps bien plus long que sur les autres niveaux et l'émission de photons sera distincte de celle qui constitue la fluorescence : il s'agit de la phosphorescence qui intervient au bout de temps pouvant dépasser la seconde. La contribution de la phosphorescence est négligeable, elle est en outre trop lente.

Au total, par conséquent, la lumière émise lors de la scintillation provient donc de la disparition rayonnante de l'énergie d'excitation située au niveau S_1 . L'étude cinétique de la scintillation globale (composantes lente et rapide) se ramène donc à l'étude de l'excitation des molécules sur le niveau S_1 et leur désexcitation.

La formation des quanta S_1 peut se faire par deux voies différentes : une voie lente qui passe par l'état T_1 ; et une voie plus rapide qui évite l'état T_1 .

L'émission de lumière dans la composante rapide est due aux quanta S_1 formés suivant la seconde voie et nous supposons dans le cadre de cette étude que l'émission lumineuse dans la composante lente provient des quanta S_1 formés suivant la première voie.

II. Étude cinétique de la composante rapide. — ÉTABLISSEMENT DE L'ÉQUATION GÉNÉRALE. — Soit p la probabilité par unité de temps pour qu'un

quantum S_1 soit transformé en photon lumineux, et soit $\frac{\Delta N}{\Delta x}(t)$ le nombre total de molécules excitées sur le niveau S_1 existant à l'instant t sur l'unité de longueur du parcours. L'intensité spécifique de l'émission lumineuse $\frac{\Delta I}{\Delta x}(t)$ qui représente le nombre total de photons émis sur l'unité de longueur serait alors :

$$\frac{\Delta I}{\Delta x}(t) = p \frac{\Delta N}{\Delta x}(t).$$

En fait, cette relation n'est valable que s'il n'y a pas auto-absorption des photons sans le milieu scintillant. Nous verrons que s'il y a auto-absorption :

$$\frac{\Delta I}{\Delta x}(t) = p(1 - k) \frac{\Delta N}{\Delta x}(t)$$

où k est un coefficient indépendant de t .

La variation de l'intensité spécifique de la scintillation peut donc être décrite par celle de $\frac{\Delta N}{\Delta x}(t)$ c'est-à-dire par celle de la densité $n(t)$ en quanta S_1 puisque :

$$\frac{\Delta N}{\Delta x}(t) = \int_V n(t) dv.$$

La densité n dépend à la fois du temps t et de la distance r du point M où l'on se place à la trace de la particule incidente (cf. fig. 3).

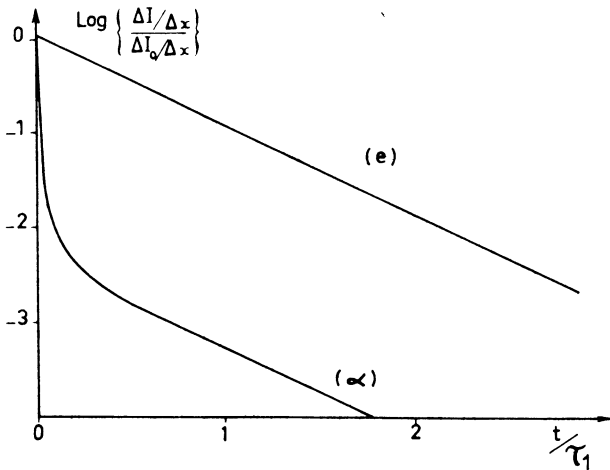


FIG. 4. — Courbes théoriques de décroissance de l'intensité de l'émission lumineuse rapide dans un cristal épais d'anthracène excité par des électrons et des particules α , avec l'hypothèse d'une formation instantanée des quanta S_1 .

Les phénomènes qui agissent sur les quanta S_1 et qui font varier leur densité n au cours du temps sont de trois sortes :

1. Tout d'abord, les processus de désexcitation que l'on peut classer en 3 groupes :

Les processus mono-moléculaires de disparition dont les probabilités par unité de temps sont indépendantes de n : la fluorescence ; l'inhibition uni-moléculaire ; la conversion $S_1 \rightarrow T_1$.

Leur contribution est représentée par :

$$-f(r, t) \times n$$

les inhibitions bi-moléculaires (chocs entre 2 quanta S_1) dont la contribution est :

$$-g(r, t) \times n^2,$$

les inhibitions j -moléculaires (chocs entre j quanta S_1) dont la contribution est :

$$-h_j(r, t) \times n^j.$$

2. Ensuite la diffusion des quanta S_1 qui se fait par transfert de molécule à molécule et dont la contribution est donnée par la loi de Fick :

$$D \nabla^2 n$$

où D est le coefficient de diffusion des quanta S_1 .

3. Enfin, l'auto-absorption des photons provenant de la fluorescence des quanta S_1 (terme en $R(r, t)$ qui donne le nombre de photons absorbés dans l'unité de volume située à la distance r).

Au total, la loi de variation de la densité n des quanta d'excitation S_1 dans la composante rapide peut s'écrire :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D \nabla^2 n - f(r, t) n - g(r, t) n^2 - h_j(r, t) n^j + R(r, t). \quad (1)$$

THÉORIES ANTÉRIEURES CONSIDÉRÉES COMME DES CAS PARTICULIERS DE L'ÉQUATION GÉNÉRALE. — L'introduction d'hypothèses simplificatrices [8] permet de retrouver de nombreuses théories classiques de la scintillation.

1° En supposant que l'inhibition est uni-moléculaire et que la diffusion reste limitée à la zone d'inhibition, l'équation générale (1) se simplifie et s'écrit :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D \nabla^2 n - (p + q) n$$

où p et q représentent respectivement les probabilités par unité de temps de fluorescence et d'inhibition uni-moléculaire.

Une intégration en volume suivie d'une intégration par rapport à t , permet de déterminer l'expression de la fluorescence spécifique, c'est-à-dire le nombre total de photons rapides émis dans la composante rapide et sur l'unité de longueur :

$$\frac{dF}{dx} = \frac{A \times (dE/dx)}{1 + kB(dE/dx)}$$

où dE/dx est la perte d'énergie de la particule incidente sur l'unité de longueur. On retrouve ainsi la relation de Birks [9].

2° En supposant que l'inhibition est uni- et bi-

moléculaire, et en négligeant la diffusion, l'équation générale s'écrit alors :

$$\partial n / \partial t = - (p + q) n - an^2$$

ce qui n'est autre que l'équation de Wright [10].

3° Kallmann [11] avait complété les hypothèses de Wright en introduisant une inhibition j -moléculaire, ce qui donne :

$$\partial n / \partial t = - (p + q) n - an^2 - a_j n^j.$$

4° Supposons enfin l'inhibition uni-moléculaire mais distinguons deux zones cylindriques autour de la trajectoire (une zone où l'inhibition est très considérable et une zone où celle-ci reste normale).

Les quanta S_1 diffusent de la première région vers la seconde sans avoir le temps de se transformer en photons dans la première.

A l'intérieur de la première région, la théorie classique de la diffusion permet d'écrire l'équation générale sous la forme :

$$\frac{d}{dt} \Delta N_i = - \frac{1}{\tau_d} \Delta N_i - \frac{1}{\tau_q} \Delta N_i$$

où $1/\tau_d$ et $1/\tau_q$ représentent respectivement les probabilités par unité de temps de « fuite » hors de la première région et d'inhibition dans la première région.

A l'extérieur de la deuxième région, l'équation générale s'écrit sans difficultés :

$$\frac{d}{dt} \Delta N_e = - (p + q) \Delta N_e + \frac{1}{\tau_d} \Delta N_i.$$

Ces deux expressions ne sont autre que les équations de Kallmann et Brücker [11].

RÉSOLUTION DE L'ÉQUATION GÉNÉRALE EN NÉGLIGEANT L'INHIBITION j -MOLÉCULAIRE ($j \leq 2$). — Nous avons cherché à résoudre l'équation générale en négligeant l'inhibition j -moléculaire et en supposant que les coefficients d'inhibition uni- et bi-moléculaire sont indépendants du temps. L'équation générale s'écrit alors :

$$\partial n / \partial t = D \nabla^2 n - (p + q) n - an^2 + R(r, t). \quad (2)$$

Nous supposons par ailleurs que la répartition spatiale des quanta S_1 autour de la trace de la particule incidente est gaussienne à l'instant initial ($t = 0$) :

$$n(r, 0) = \frac{\Delta N_0}{\Delta x} \times e^{-r^2/b^2} / b^2 \quad (3)$$

en désignant par $\Delta N_0/\Delta x$ le nombre total des quanta S_1 créés sur l'unité de longueur et par b , l'« écart-type » de la distribution relié à la distance moyenne initiale r_0 des quanta S_1 par la relation :

$$b = 2r_0/\sqrt{\pi}.$$

La résolution de l'équation précédente, compte

tenu de la condition initiale ci-dessus, conduit pour $\Delta N/\Delta x$ à l'expression suivante [8] :

$$\Delta N/\Delta x = \frac{\Delta N_0}{\Delta x} \frac{e^{-u}}{e^{-u_0} - \frac{a}{8\pi D} \frac{\Delta N_0}{\Delta x} \{ [-E_i(-u)] - [-E_i(-u_0)] \}}$$

où

$$u = (p' + q) t + (p' + q) b^2/4D$$

$$p' = (1 - k) p$$

$$-E_i(-u) = \int_u^\infty (e^{-w}/w) dw$$

exponentielle intégrale, fonction tabulée k est le coefficient d'absorption des photons de fluorescence dans le milieu considéré. On en déduit immédiatement l'expression de l'intensité spécifique de l'émission lumineuse rapide :

$$\frac{\Delta I}{\Delta x} = p' \frac{\Delta N}{\Delta x} = p' \frac{\Delta N_0}{\Delta x} \frac{e^{-u}}{e^{-u_0} - \frac{a}{8\pi D} \frac{\Delta N_0}{\Delta x} \{ [-E_i(-u)] - [-E_i(-u_0)] \}} \quad (4)$$

où la valeur initiale de $\Delta I/\Delta x$ est :

$$\Delta I_0/\Delta x = p' \times \Delta N_0/\Delta x$$

et où A est le coefficient de proportionnalité entre $\Delta N_0/\Delta x$ et la perte d'énergie spécifique dE/dx .

L'intégration dans le temps d'une expression approchée de $\Delta I/\Delta x$, fournit une bonne approximation de la fluorescence spécifique :

$$\begin{aligned} \frac{dF}{dx} &= \int_0^\infty \frac{\Delta I}{\Delta x} dt \\ &= \int_0^\infty \frac{\Delta I_0}{\Delta x} \frac{e^{-u}}{e^{-u_0} + \frac{a}{8\pi D} \frac{\Delta N_0}{\Delta x} [-E_i(-u_0)]} dt \\ &= \frac{\Delta I_0}{\Delta x} \frac{1}{e^{-u_0} + \frac{a}{8\pi D} \frac{\Delta N_0}{\Delta x} [-E_i(-u_0)]} \times \frac{e^{-u_0}}{p' + q}. \end{aligned}$$

Nous avons appliqué ces résultats au cas d'un cristal épais d'anthracène : Kallmann [11] donne :

$$D = 5 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{s}, \quad r_0 = 0,5 \times 10^{-6} \text{ cm}$$

ce qui conduit à [12] :

$$\frac{\Delta I}{\Delta x} = \frac{\Delta I_0}{\Delta x} \frac{e^{-(p'+q)t}}{1 - 1,8 \times 10^{-3} \frac{dE}{dx} \{ [-E_i(-u)] - 5 \}} \quad (5)$$

dE/dx étant exprimé en MeV/cm.

$$\frac{dF}{dx} = \frac{G \times (dE/dx)}{1 + H \times (dE/dx)} \quad (6)$$

avec $G = 1\,000$ unités arbitraires de réponse / MeV,
 $H = 9 \times 10^{-3} \text{ cm/MeV}.$

La représentation graphique de l'expression ci-dessus de $\Delta I/\Delta x$ est donnée sur la figure 4. La décroissance est exponentielle pour les électrons. Pour des particules fortement ionisantes, comme des particules α de 5 MeV, la décroissance a un début très raide puis elle tend très rapidement vers une exponentielle de même constante de temps que celle qui correspond à une excitation électronique.

Il faut noter que si les études expérimentales montrent que la décroissance de l'intensité de l'émission rapide est exponentielle avec une constante de temps indépendante de la nature de la particule incidente elles n'ont pas permis de mettre en évidence la brusque décroissance initiale pour les particules fortement ionisantes.

REMARQUE. — Ce calcul à partir duquel nous avons construit les courbes de la figure 5, est fondé sur l'hypothèse d'une formation instantanée des

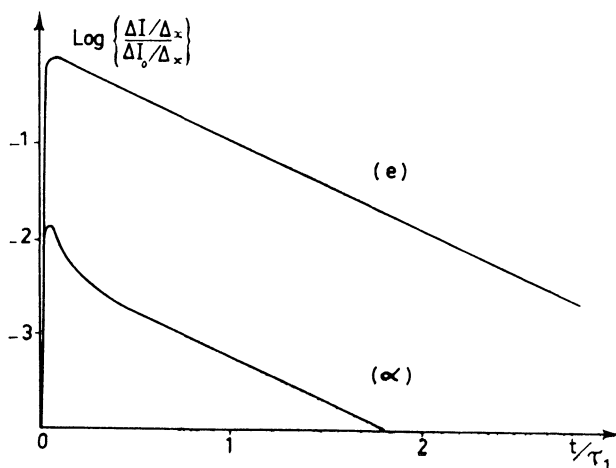


FIG. 5. — Courbes théoriques de décroissance de l'intensité de l'émission lumineuse rapide dans un cristal épais d'anthracène excité par des électrons et des particules α , sans l'hypothèse d'une formation instantanée des quanta S_1 .

quanta S_1 . En fait, elle n'est pas instantanée : elle dure un temps fini qui est de l'ordre de 10^{-10} s., cela suffit pour modifier la forme des courbes repré-

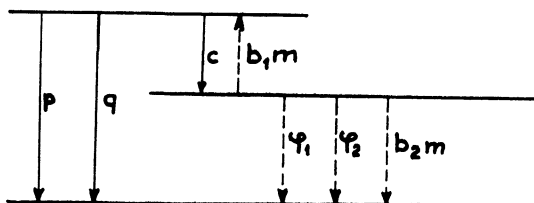


FIG. 6. — Interprétation cinétique de la composante lente de la scintillation.

En trait plein : transitions rapides ($< 10^{-7}$ s).

En trait discontinu : transitions lentes ($> 10^{-7}$ s).

sentant la variation de l'intensité de l'émission lumineuse rapide (cf. fig. 6). Cette modification est cependant très localisée : un calcul approché montre en effet qu'elle s'étend au maximum sur 10^{-9} s, de sorte que les courbes de la figure 5 représentent toujours la forme de la composante rapide de la décroissance de la scintillation sauf à leurs extrêmes débuts.

III. Étude cinétique de la composante lente [13].

— Cette étude est fondée sur une hypothèse fondamentale en ce qui concerne l'origine des quanta S_1 « retardés » dont la disparition rayonnante provoque l'émission lumineuse dans la composante lente. Nous supposons que ces quanta S_1 « retardés » sont formés par activation bi-moléculaire $T_1 \rightarrow S_1$ [13], cette activation se produisant lors de l'interaction de deux molécules activées à l'état T_1 ; il y aurait transfert intégral de l'énergie d'excitation de l'une des deux molécules à l'autre : la molécule réceptrice serait alors portée à l'état excité S_1 .

VARIATION DE LA DENSITÉ DES QUANTA S_1 « RETARDÉS ». — Au moment de leur formation ces quanta S_1 « retardés » sont assez éparpillés dans le milieu scintillant ; leur disparition est donc essentiellement uni-moléculaire. La loi de variation de leur densité $n_1(r, t)$ en fonction du temps s'écrit donc :

$$\partial n_1 / \partial t = D \nabla^2 n_1 - f(r, t) n_1 + R(r, t) + b_1(r, t) \times m^2$$

où $b_1(r, t) m^2$ représente le nombre de quanta S_1 formés par unité de temps et de volume, m est la densité en quanta T_1 à cet instant ; elle est donnée par l'équation :

$$\partial m / \partial t = d \times \nabla^2 m - \varphi(r, t)$$

$$\times m - b(r, t) \times m^2 + T(r, t)$$

où (cf. fig. 6) $\varphi(r, t)$ représente la probabilité par unité de temps de disparition uni-moléculaire des quanta T_1 (phosphorescence φ_1 et inhibition uni-moléculaire φ_2), $b(r, t) m$ représente la probabilité par unité de temps de disparition bi-moléculaire (inhibition bi-moléculaire $b_2 m$ et activation $T_1 \rightarrow S_1$: $b_1 m$) et $T(r, t)$ est le nombre quanta T_1 formés par unité de temps et de volume.

En fait, la disparition uni-moléculaire des quanta T_1 est négligeable devant leur disparition bi-moléculaire, du moins dans l'intervalle de temps qui nous intéresse c'est-à-dire pour $0 < t < 10^{-5}$ s (cette hypothèse est fondée sur les récentes expériences entreprises par Porter et Wright : ils ont observé que la loi de disparition de l'état triplet T_1 de l'anthracène en solution dans de l'hexane est essentiellement bi-moléculaire au début de l'existence des quanta T_1 — c'est-à-dire jusqu'à environ

10^{-5} s après la fin de l'excitation —, ce qui signifie que pour $t < 10^{-5}$ s, les processus de disparition bi-moléculaire éclipsent totalement les processus de disparition uni-moléculaire).

En supposant en outre que les coefficients $f(r, t)$ et $b(r, t)$ sont constants, les deux équations précédentes se simplifient :

$$\partial n_1 / \partial t = D \nabla^2 n_1 - (p + q) n_1 + R(r, t) + b_1 m^2$$

$$\partial m / \partial t = d \nabla^2 m - b \times m^2 + T(r, t).$$

QUANTITÉ TOTALE SPÉCIFIQUE DE LUMIÈRE ÉMISE DANS LA COMPOSANTE LENTE. — L'intégration en volume suivie d'une intégration par rapport au temps de ces deux équations conduit à l'expression de la quantité totale de lumière émise dans la composante lente et sur l'unité de longueur [8] :

$$\begin{aligned} \frac{\Delta L}{\Delta x} &= \frac{p'}{p' + q} \times \frac{b_1}{b} \times \frac{\Delta M_0}{\Delta x} \\ &= A \frac{dE}{dx} \left(K + \frac{B}{C + H \times (dE/dx)} \right) \end{aligned}$$

où A , K , B , C , H sont des constantes indépendantes de dE/dx .

IMPORTANCE RELATIVE DE COMPOSANTE LENTE. — On en déduit alors l'importance relative de composante lente qui est égale au rapport de la quantité totale de lumière émise dans la composante lente à celle qui est émise dans la scintillation totale rapide et lente [8] :

$$P = \frac{K + \frac{B}{C + H(dE/dx)}}{K + \frac{A' + B}{C + H(dE/dx)}}$$

Cette formule montre que P dépend de la nature de la particule excitatrice par l'intermédiaire de la perte d'énergie spécifique dE/dx , ce qui est un fait expérimental bien connu. Ainsi, pour un cristal d'anthracène, l'importance relative de la composante lente varie dans un rapport 2,4 lorsque l'on passe d'une excitation électronique à une excitation protonique [15], et dans un rapport 2,8 lorsque l'on passe d'une excitation électronique à une excitation α , ce qui donne un rapport de l'importance relative de la composante lente pour des particules α et des protons égal à $2,8/2,4 = 1,17$ (cela correspond bien à la valeur trouvée par Walter [16] pour le même rapport dans le cas du stilbène et égale à 1,20) ; pour cette dernière mesure, nous avons fait varier, par l'intermédiaire de la résistance de charge, la constante de temps RC du circuit de sortie du photomultiplicateur : lorsque la constante de temps est petite devant le temps de

décroissance τ_2 de la composante lente mais suffisamment grande devant le temps de décroissance τ_1 de la composante rapide, seule la composante rapide est détectée, et lorsque RC est grand devant τ_2 on détecte la scintillation totale [17].

Enfin, dans le cas d'une excitation uniforme en volume, comme par exemple une excitation par un faisceau de lumière visible ou ultra-violette, l'étude cinétique de la scintillation fut menée de la même façon que pour le cas d'une excitation particulière mais avec les hypothèses supplémentaires caractéristiques d'une excitation uniforme, à savoir : pas de courants de diffusion des quanta S_1 et T_1 ; disparition exclusivement uni-moléculaire des quanta S_1 , « rapides » et « retardés ».

On aboutit, tous calculs faits, à une expression rigoureuse de P :

$$P = \frac{1}{1 + \frac{p' + i}{c} \times \frac{b}{b_1}}$$

où c et i sont respectivement les probabilités par unité de temps de transition $S_1 \rightarrow T_1$ et d'inhibition uni-moléculaire $S_1 \rightarrow S_0$ pour une excitation uniforme.

On voit que P est indépendant de la densité d'excitation, ce qui est conforme au résultat expérimental obtenu récemment par Birks [18].

Conclusion. — En conclusion, cette étude de la scintillation organique se divise essentiellement en trois parties :

1. **CINÉTIQUE DE LA COMPOSANTE RAPIDE.** — Une équation générale permet de décrire la disparition des quanta S_1 en loi généralisant toutes les relations classiques obtenues soit empiriquement, soit par des considérations théoriques. Cette équation a été résolue dans un cas particulier beaucoup moins restrictif que ceux posés implicitement ou explicitement dans les théories antérieures. Les résultats obtenus sont en bon accord avec les faits expérimentaux. La quantité totale de lumière émise par unité de longueur dF/dx dépend de la perte d'énergie spécifique dE/dx de la particule. La décroissance de l'émission lumineuse devient très rapidement exponentielle avec une constante de temps indépendante de la nature de la particule incidente.

2. **CINÉTIQUE DE LA COMPOSANTE LENTE.** — Aucune étude cinétique quantitative n'avait été encore entreprise. Nous avons supposé que la composante lente est due à la formation « retardée » des quanta S_1 par activation bi-moléculaire $T_1 \rightarrow S_1$. Cette hypothèse, que nous ne prétendons pas avoir démontrée, conduit à une équation cinétique comparable à celle de la composante rapide.

3. PROPORTION DE LA COMPOSANTE LENTE DANS LA SCINTILLATION. — L'étude cinétique des deux composantes permet de calculer leurs proportions relatives dans la scintillation. Les résultats obtenus permettent de rendre compte de nombreux faits expérimentaux ; on peut en particulier expliquer

que la proportion de composante lente soit fonction de la densité d'excitation lorsque celle-ci est particulaire, alors qu'elle est indépendante de l'intensité de l'excitation (c'est-à-dire de la densité d'excitation) lorsque celle-ci est uniforme en volume.

Manuscrit reçu le 10 août 1963.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] CAMBOU (F.), Thèse de Doct. Sci., Paris, 1961.
 - [2] KALLMANN (H.) et FURST (M.), « The basic processes occurring in the liquid scintillator » dans « Liquid scintillation Counting », Pergamon Press, 1958.
 - [3] BURTON (M.), « Radiolyse [de liquides organiques] » dans « Actions chimiques et biologiques des radiations », 3^e série Masson, 1958, 1-61.
 - [4] WRIGHT (G. T.), *Proc. Phys. Soc.*, London, 1955, B 68, 929.
 - [5] IGUCHI (K.), *J. Physique Rad.*, 1962, 23, 7, 433.
 - [6] KASHA (M.), *Discuss. Faraday Soc.*, 1950, 9, 14.
 - [7] BOWEN (E. J.), *Nucleonics*, 1952, 10, 7, 14.
 - [8] GERVAIS DE LAFOND (Y.), Thèse Doct. Spécialité, Toulouse, 1962.
 - [9] BIRKS (J. B.), *Phys. Rev.*, 1951, 84, 364.
 - [10] WRIGHT (G. T.), *Phys. Rev.*, 1953, 91, 1282.
 - [11] KALLMANN (H.) et BRUCKER (G. J.), *Phys. Rev.*, 1957, 108, 1122.
 - [12] BLANC (D.), CAMBOU (F.) et GERVAIS DE LAFOND (Y.), *C. R. Acad. Sc.*, 1962, 254, 3187.
 - [13] BLANC (D.), CAMBOU (F.) et GERVAIS DE LAFOND (Y.), C. R. Congrès Int. Phys. Nucl., Clermont, juin 1962 (à paraître).
 - [14] PORTER (G.) et WRIGHT (M. R.), *J. Chim. Phys. Biol. Fr.*, 1958, 55, 705.
 - [15] CAMBOU (F.) et AMBROSINO (G.), *C. R. Acad. Sc.*, 1960, 250, 1034.
 - [16] WALTER (G.), HUCK (A.), TREVTIN (J. P.) et COCHE (A.), *J. Physique*, (à paraître).
 - [17] GERVAIS DE LAFOND (Y.) et BOUYSSOU (J.), *Nucl. Instr. Meth.*, 1963, 22, 365.
 - [18] BIRKS (J. B.), Communications privées, février et mars 1962.
-