



الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية

République Algérienne Démocratique et Populaire

وزارة التعليم العالي و البحث العلمي

Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

المدرسة الوطنية المتعددة التقنيات

Ecole Nationale Polytechnique

Département d'Électronique

Laboratoire des Dispositifs de Communication et de la conversion photovoltaïque



Thèse de Doctorat en Électronique

Étude et caractérisation des matériaux scintillateurs inorganiques pour application en détection nucléaire

Présentée par : Hamza MEKKI

Sous la Direction de M. : Lakhdar GUERBOUS Directeur de Recherche

Présenté(e) et soutenue publiquement le (21/12/2023)

Composition du jury :

Président	Mr. Larbes Cherif	Professeur	ENP	Alger
Directeur de thèse	Mr. Lakhdar Guerbous	Directeur de Recherche	CRNA	Alger
Co-Directeur de thèse	Mr. Hicham Bousbia-Salah	Maitre de Conférence A	ENP	Alger
Examinatrice	Lounis-Mokrani Zohra	Directrice de Recherche	CRNA	Alger
Examineur	Mr. Adnane Mourad	Professeur	ENP	Alger
Examineur	Mr. Kharfi Fayçal	Professeur	UFAS1	Sétif
Examineur	Mr. Benslama Zoubir	Professeur	USDB1	Blida

الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية

République Algérienne Démocratique et Populaire

وزارة التعليم العالي و البحث العلمي

Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

المدرسة الوطنية المتعددة التقنيات

Ecole Nationale Polytechnique

Département d'Électronique

Laboratoire des Dispositifs de Communication et de la conversion photovoltaïque



Thèse de Doctorat en Électronique

**Étude et caractérisation des matériaux scintillateurs
inorganiques pour application en détection nucléaire**

Présentée par : Hamza MEKKI

Sous la Direction de M. : Lakhdar GUERBOUS Directeur de Recherche

Présenté(e) et soutenue publiquement le (21/12/2023)

Composition du jury :

Président	Mr. Larbes Cherif	Professeur	ENP	Alger
Directeur de thèse	Mr. Lakhdar Guerbous	Directeur de Recherche	CRNA	Alger
Co-Directeur de thèse	Mr. Hicham Bousbia-Salah	Maitre de Conférence A	ENP	Alger
Examinatrice	Lounis-Mokrani Zohra	Directrice de Recherche	CRNA	Alger
Examineur	Mr. Adnane Mourad	Professeur	ENP	Alger
Examineur	Mr. Kharfi Fayçal	Professeur	UFAS1	Sétif
Examineur	Mr. Benslama Zoubir	Professeur	USDB1	Blida

ملخص:

تهدف هذه الدراسة إلى توصيف الخصائص الوميضية لكواشف الضوء النانوية من معادن الغارنيت الملقحة بالأتربة النادرة على شكل مساحيق للكشف النووي. تم تطوير طريقتين لقياس الخصائص الوميضية للكواشف النانوية. تحدد الطريقة الأولى مردود إنتاج الضوء، بينما تقيس الطريقة الثانية الخصائص الزمنية. تم استخدام الطرق المطورة لتوصيف الكواشف الوميضية النانوية المطورة حديثاً، وتحديداً كواشف LuAG الملقحة بتركيزات مختلفة من السيريوم و كواشف LuYAG الملقحة بـ 0.1% من السيريوم، مع استبدال أيونات اللوتيتيوم (Lu^{3+}) بتركيزات مختلفة من أيونات الإتريوم (Y^{3+}). تم إجراء جميع القياسات تحت إثارة جسيمات ألفا وبهندسة الانعكاس. تظهر النتائج فعالية الطرق المطورة وتشير إلى أن الكواشف النانوية المطورة حديثاً لديها إمكانات جيدة لأغراض الكشف النووي.

الكلمات المفتاحية: الكواشف الوميضية النانوية، الخصائص الوميضية، كواشف LuAG و LuYAG.

Abstract:

This study aims to characterize the scintillation properties of inorganic, rare earth-doped garnet nano-sized scintillators in powder form for nuclear detection. Two methods were developed to measure the scintillation properties of nano-scintillators. The first method determines the light yield, while the second method measures the timing properties. The developed methods were used to characterize newly developed nano-scintillators, specifically LuAG doped with varying concentrations of cerium and LuYAG doped with 0.1 at.% of cerium, where lutetium ions (Lu^{3+}) were substituted with different concentrations of yttrium ions (Y^{3+}). All measurements were performed under α -particle excitation and in reflection geometry. The results demonstrate the effectiveness of the developed methods and show that the newly developed nano-scintillators have good potential for nuclear detection purposes.

Key words: Nano-scintillators, scintillation properties, LuAG and LuYAG nano-scintillators.

Résumé :

Cette étude vise à caractériser les propriétés de scintillation des scintillateurs nanométriques de grenat inorganiques, dopés aux terres rares, sous forme de poudre, pour la détection nucléaire. Deux méthodes ont été développées pour mesurer les propriétés de scintillation des nano-scintillateurs. La première méthode consiste à déterminer le rendement lumineux, tandis que la seconde méthode sert à mesurer les propriétés temporelles. Les méthodes développées ont été utilisées pour caractériser des nano-scintillateurs nouvellement développés, en particulier le LuAG dopé avec des concentrations variables de cérium et le LuYAG dopé avec 0,1 at.% de cérium, où les ions lutétium (Lu^{3+}) ont été substitués par différentes concentrations d'ions d'yttrium (Y^{3+}). Toutes les mesures ont été effectuées sous excitation par des particules- α et en géométrie de réflexion. Les résultats démontrent l'efficacité des méthodes développées et montrent que les nano-scintillateurs nouvellement développés ont un bon potentiel pour des fins de détection nucléaire.

Mots clés : nano-scintillateurs, propriétés de scintillation, nano-scintillateurs LuAG et LuYAG.

Remerciements

Le travail de thèse a été réalisé en collaboration entre le centre de recherche nucléaire de Birine (CRNB), le centre de recherche nucléaire d'Alger (CRNA), et l'école nationale polytechnique d'Alger (ENP).

Tous d'abord, je tiens à exprimer mes sincère gratitude au directeur de thèse **Dr. GUERBOUS Lakhdar** pour la confiance qu'il placée en moi, en acceptant de diriger ma thèse de doctorat. Monsieur, votre expertise, votre engagement et votre dévouement envers ma recherche ont été inestimables. Votre soutien constant, vos conseils éclairés et votre mentorat ont été d'une grande valeur pour moi tout au long de ce projet de thèse. Je suis reconnaissant de l'opportunité que vous m'avez donnée de travailler sous votre direction.

Je tiens également à remercier mon co-directeur de thèse, **Dr. BOUSBIA-SALAH Hicham**, pour son soutien continu et son acceptation d'encadrement de ma thèse. Monsieur, votre expertise et votre contribution à ma recherche sont inestimables. Votre engagement envers mon succès académique et votre soutien tout au long de ce processus de recherche ont été très appréciés.

Je souhaite également exprimer mes remerciements et ma reconnaissance envers le Directeur Général du centre de recherche nucléaire de Birine (CRNB) **Mr. ABDELLANI Idir** pour son encouragement et son soutien. Monsieur le Directeur, votre confiance en moi et votre appui ont été des facteurs clés de ma motivation pour mener à bien cette thèse de doctorat.

Je tiens à exprimer ma sincère gratitude aux membres de jury, pour avoir accepté d'examiner mon travail de recherche. Je suis honoré que Dr. **LARBES Cherif**, professeur de l'école nationale polytechnique d'Alger (ENP) qui a accepté de présider le jury de ma thèse. Je remercie également Dr. **LOUNIS-MOKRANI Zohra**, Directrice de recherche du centre de recherche nucléaire d'Alger (CRNA), Dr. **ADNANE Mourad**, Professeur de l'école nationale polytechnique d'Alger (ENP), Dr. **KHARFI Fayçal**, professeur de l'université de Setif1 (UFAS1), Dr. **BENSLAMA Zoubir**, Professeur de l'université de Blida1 (USDB1), d'avoir accepté de faire partie du jury de ma thèse en qualité d'examineurs. Madame, messieurs, votre engagement et votre expertise ont été des atouts inestimables tout au long de ce processus, et je suis profondément reconnaissant pour le temps et l'attention que vous avez consacrés à évaluer ma thèse.

Je remercier également à Mr. **LEBBOU Kheireddine** pour son précieuse aide et son soutien inestimable dans la préparation du scintillateur monocristal, qui a été utilisé comme référence de mesure du rendement lumineux.

Mes remerciements à mes collègues : **Mr. ZAHRA Billel, Mr. BOURENANE Aissa, et Mr. HEBBOUL Noureddine** pour leur aide et leur soutien technique notamment au début de la réalisation de ce travail.

Merci à **Mr. BOUKERIKA Allaoua**, Chercheur au CRNA, pour sa contribution à ce travail, notamment la synthèse des matériaux faisant l'objet de l'étude.

Merci au éléments du laboratoire de la spectroscopie d'annihilation de positron au centre de recherche nucléaire d'Alger CRNA, pour leur soutien technique, notamment en matière de chaîne de détection.

Merci à tous ceux qui ont contribué de près ou de loin à la réalisation ce travail.

Table des matières

LISTE DES FIGURES

LISTE DES TABLEAUX

INTRODUCTION GENERALE	16
CHAPITRE 1.....	19
LES SCINTILLATEURS INORGANIQUES : PRINCIPES DE BASES ET GENERALITES	19
1. 1 Introduction	20
1. 2 Notions sur les Scintillateurs et Applications	20
1. 2. 1 Mécanisme de Scintillation.....	21
1.2.1.1 La conversion d'énergie	24
1.2.1.2 Transport et transfert d'énergie.....	25
1.2.1.3 La luminescence	26
1.2.1.4 Phénomène d'extinction (ou Quenching).....	26
1. 2. 2 Domaines d'application des scintillateurs	27
1. 3 Caractéristiques requises des scintillateurs	29
1. 3. 1 Efficacité d'absorption.....	29
1. 3. 2 Le rendement lumineux	29
1. 3. 3 Temps de réponse (déclin de scintillation)	30
1. 3. 4 Résolution en énergie.....	30
1. 3. 5 Longueur d'onde d'émission	31
1. 3. 6 Stabilité	31
1. 3. 7 Proportionnalité.....	31
1. 4 Types de scintillateurs.....	32
1. 4. 1 Scintillateurs inorganiques.....	33

1. 4. 2	Scintillateurs organiques	34
1. 5	Conclusion.....	35
CHAPITRE 2.....	36
CHAINES DE DETECTION NUCLEAIRES A BASE DE SCINTILLATEURS.....	36
2. 1	Introduction	37
2. 2	Chaîne de détection à base de scintillateurs.....	37
2. 2. 1	Le détecteur à scintillation	38
2. 2. 2	Le photo-détecteur	38
2.2.2.1	Photomultiplicateur à tube (PMT).....	39
2. 2. 3	Le préamplificateur	45
2. 2. 4	Electronique d'amplification et de mise en forme	46
2.2.4.1	Circuit dérivateur CR ou filtre passe haut	47
2.2.4.2	Circuit intégrateur RC ou filtre passe bas	49
2.2.4.3	Circuit dérivateur intégrateur CR-RC	51
2.2.4.4	Constante du temps de mise en forme.....	53
2. 2. 5	Le convertisseur analogique numérique CAN	54
2. 2. 6	L'analyseur multicanaux.....	54
2. 3	Interprétation des spectres	56
2. 3. 1	Interaction des rayonnements Gamma avec matière.....	57
2.3.1.1	L'absorption photoélectrique	57
2.3.1.2	La diffusion Compton	58
2.3.1.3	Création de paires Électron- Positron.....	60
2. 3. 2	Interaction des particules chargées	61
2. 3. 3	Composition du spectre d'énergie	62
2.3.3.1	Interaction à l'intérieur du matériau scintillateur	63
2.3.3.2	Interaction en dehors du scintillateur	68
2.3.3.3	Spectre pour gros et petits scintillateurs.....	70
2. 4	Conclusion.....	71

CHAPITRE 3.....	73
CARACTERISTIQUES DES MATERIAUX SCINTILLATEURS ET METHODES DE CARACTERISATION ADOPTEES.....	73
3.1 Introduction	74
3.2 Propriétés de scintillation des matériaux scintillateurs	74
3.2.1 Le rendement lumineux de scintillation.....	74
3.2.1.1 Rendement lumineux absolu	75
3.2.1.2 Rendement lumineux technique	75
3.2.1.3 Coefficient de collection de lumière	76
3.2.2 Méthodes de mesure du rendement lumineux	76
3.2.2.1 Méthode directe ou d'impulsion	76
3.2.2.2 Méthodes de mesure relatives	77
3.2.3 Résolution en énergie.....	81
3.2.4 Temps de déclin de scintillation	83
3.2.5 La linéarité en énergie.....	85
3.3 Méthodes adoptées pour la mesure des propriétés de scintillation des nano- scintillateurs.....	86
3.3.1 Choix de la source d'excitation.....	86
3.3.2 Choix de la géométrie d'excitation	88
3.3.2.1 Excitation par transmission	89
3.3.2.2 Excitation par réflexion.....	89
3.3.3 Sélection de la constante du temps de mise en forme.....	91
3.3.3.1 Effet du déficit balistique	91
3.3.3.2 Effet d'empilement des impulsions de scintillation	93
3.3.4 Méthode adoptée pour la mesure du rendement lumineux et de la résolution.....	96
3.3.5 Méthode adoptée pour la mesure du temps de déclin de scintillation	99
3.3.5.1 Validation de la méthode de mesure du temps de déclin	102
3.4 Conclusion.....	106
CHAPITRE 4.....	108

PROPRIETES DE SCINTILLATION DES NANO-SCINTILLATEURS LUAG ET LUYAG	108
4.1 Introduction	109
4.2 Présentation des nano-scintillateurs à caractériser.....	110
4.2.1 Le nano-scintillateur LuAG dopé au Cérium.....	110
4.2.1.1 Préparation des échantillons du LuAG :Ce	110
4.2.2 Le nano-scintillateur LuYAG :Ce.....	112
4.2.2.1 Préparation des échantillons du LuYAG :Ce	112
4.2.3 Le LuAG :0.1at.%Ce ³⁺ monocristal.....	113
4.2.4 Propriétés de scintillation du nano-scintillateur LuAG :Ce.....	114
4.2.4.1 Rendement lumineux et résolution en énergie	114
4.2.4.2 Temps de déclin de scintillation.....	117
4.2.4.3 Test de linéarité	118
4.2.5 Propriétés de scintillation du nano-scintillateur LuYAG :0.1at.%Ce.....	121
4.2.5.1 Rendement lumineux et résolution en énergie	121
4.2.5.2 Temps de déclin de scintillation.....	124
4.2.5.3 Test de Linéarité.....	127
4.3 Conclusion.....	129
CONCLUSION GENERALE	131
BIBLIOGRAPHIE	134

Liste des figures

Figure 1- 1: Composition d'un détecteur à scintillation	21
Figure 1- 2: structure de bande d'énergie d'un scintillateur cristallin.....	22
Figure 1- 3: processus de scintillation dans un scintillateur inorganique	24
Figure 1- 4 : Détecteurs à scintillation dans le diagnostic par la tomographie par émission de positons	27
Figure 1- 5: Détecteur à scintillation dans la TEP.	28
Figure 1- 6 : Rendements lumineux théoriques et expérimentaux en ph/MeV, de différents scintillateurs, en fonction de l'énergie de la bande interdite $ E V - E c $	30
Figure 1- 7: Rendement lumineux comme fonction de l'énergie d'excitation des scintillateurs YAG :Ce, LuAG :Ce et LYSO :Ce	32
Figure 1- 8 : Quelques scintillateurs inorganiques.....	33
Figure 1- 9: L'Anthracène en forme de cristal solide	34
Figure 2- 1: Synoptique d'une chaîne de détection typique.....	38
Figure 2- 2: photomultiplicateur à tube couplé à un scintillateur.	39
Figure 2- 3: sensibilité spectrale des photocathodes	41
Figure 2- 4: diviseur de tension de la HT au borne d'un PMT	43
Figure 2- 5: Réponse spectrale typique d'un photomultiplicateur de photocathode Bialkali	44
Figure 2- 6 : configuration de base d'un préamplificateur de charges.....	46
Figure 2- 7: Un filtre CR passe-haut ou un réseau différenciateur. La réponse à une fonction échelon est illustrée.....	48
Figure 2- 8: un filtre passe bas ou intégrateur, la réponse à un échelon est illustrée.....	50
Figure 2- 9: réseau mise en forme de type CR-RC	52
Figure 2- 10: forme de l'impulsion à la sortie d'une circuit de mise en forme CR-RC pour des constantes de dérivation et d'intégration de différentes valeurs.....	53
Figure 2- 11: synoptique d'une chaîne de détection typique à base d'un scintillateur NaI(Tl).	55
Figure 2- 12: classification des impulsions par l'analyseur multicanaux dans le spectre d'énergie.	56
Figure 2- 13: dominance relative des trois types d'interaction des rayonnements gamma avec la matière, la ligne à gauche montre l'énergie pour laquelle les probabilités de l'effet	

photoélectrique et de la diffusion Compton sont égaux, et la ligne à droite montre l'énergie pour laquelle les probabilités de la diffusion Compton et de création de paires sont égaux .57	
Figure 2- 14: principe de d'interaction par diffusion Compton	59
Figure 2- 15: principaux types d'interaction des rayonnements Gamma avec un détecteur à scintillation	63
Figure 2- 16: pic d'absorption totale dans un spectre d'énergie (cas idéal).....	64
Figure 2- 17: Spectre d'énergie avec un plateau Compton	65
Figure 2- 18: spectre d'énergie avec simple et double échappement.....	66
Figure 2- 19: Spectre d'énergie avec un pic des X échappées.	67
Figure 2- 20: un spectre d'énergie d'une source Gamma de deux énergies avec	67
Figure 2- 21: un spectre d'énergie avec un pic de rétrodiffusion.....	68
Figure 2- 22: Spectre d'énergie avec un pic d'annihilation.	69
Figure 2- 23: un spectre d'énergie avec un pic X-caractéristique.	70
Figure 2- 24: Spectres du Cs-137 obtenus avec des scintillateurs de tailles : (a) $\Phi 38\text{mm} \times 25\text{mm}$, (b) $\Phi 50\text{mm} \times 50\text{mm}$, (c) $\Phi 75\text{mm} \times 75\text{mm}$	71
Figure 3- 1: spectres d'énergies du photon unique (Gain=150), et du Cs-137 obtenu par un détecteur NaI(Tl) (Gain=1).	78
Figure 3- 2: Spectre du photoélectron unique.	79
Figure 3- 3: définition de la résolution en énergie, avec H est la hauteur du pic photoélectrique. 81	
Figure 3- 4: Forme d'une impulsion de scintillation typique.....	83
Figure 3- 5: Profil temporel du nano-scintillateur LuAG :Ce, excité par des particules- α de 5.48MeV, composé de 03 composantes (rapide, moyenne et lente).....	85
Figure 3- 6: Spectres d'énergies du Cs-37 (662keV) et de l'Am-241 (5.48 MeV) obtenus par le nano-scintillateur LuYAG: 0.1at.% Ce^{3+}	87
Figure 3- 7: Collection des photons de scintillation par la géométrie de Transmission.	89
Figure 3- 8: Collection des photons de scintillation par la géométrie de Réflexion.	90
Figure 3- 9: Spectre d'énergie de l'Am-241 (5.48 MeV) mesuré par l'échantillon nano-scintillateur LuAG:0.1% Ce^{3+} en poudre sous les géométries transmission et réflexion.	91
Figure 3- 10: effet du déficit balistique sur l'amplitude de l'impulsion, STC infini : graph en noir, STC fixe : graph en rouge.....	93
Figure 3- 11: variation du taux de comptage en fonction du temps de mise en forme (effet de repliement des impulsions).	94
Figure 3- 12: variation du rendement lumineux en fonction du temps de mise en forme.	95

Figure 3- 13: Réponse spectrale du photomultiplicateur Dumont-6292	97
Figure 3- 14: Banc expérimental utilisé pour la mesure du rendement lumineux	97
Figure 3- 15: Approximation gaussienne du pic d'absorption totale.	99
Figure 3- 16: Système de mesure du temps de déclin de scintillation	100
Figure 3- 17: Fenêtre d'énergie sélectionnée avec un AMC en mode coïncidence avec le signal TRIGGER, (détecteur NaI(Tl), Excitation par Cs-137 :662 keV).....	101
Figure 3- 18: Impulsion Anode captée par l'oscilloscope en mode TRIGGER pour une énergie de 662 keV d'une source de Cs-137 (en jaune l'impulsion Anode, en bleu le signal TRIGGER).	102
Figure 3- 19: Réglage de la fenêtre du SCA à l'aide d'un AMC en mode coïncidence avec le signal TRIGGER-SCA, (détecteur NaI(Tl), Excitation par Cs-137 :662 keV)	103
Figure 3- 20: Constante de temps de déclin mesuré sur la moyenne de 200 impulsions sur	105
Figure 3- 21: Constante de temps de déclin mesuré sur la moyenne de 200 impulsions sur l'Anode (Énergie d'excitation :662 keV).	105
Figure 3- 22: Constante de temps de déclin mesuré sur la moyenne de 200 impulsions sur l'anode (Énergie d'excitation :1332 keV).....	106
Figure 4- 1: Échantillons du nano-scintillateur LuAG préparés en pastilles (les pastilles sont présentées avec les concentrations du Cérium).	111
Figure 4- 2: Échantillons du nano-scintillateur LuYAG présentés en fonction de la concentration de l'Yttrium.....	113
Figure 4- 3: Le monocristal LuAG :0.1at.%Ce ³⁺	114
Figure 4- 4: Spectres d'énergies de l'Am-241 de 5.48MeV mesurés par le nano-scintillateur LuAG dopés aux différentes concentrations de Cérium, et par le monocristal LuAG :0.1at%Ce ³⁺ , mesures tenues avec un gain d'amplification de 50.	115
Figure 4- 5: Rendements lumineux relatifs et résolution en énergie en fonction de la concentration du dopant (Ce ³⁺).	116
Figure 4- 6: Profils temporels moyens des échantillons du nano-scintillateur LuAG :Ce ³⁺	117
Figure 4- 7: spectres d'énergies des sources (Pu-239, Am-241, Cm-244) obtenus par les Quatre échantillons du LuAG dopé Cérium (les spectres sont normalisés à 1).	119
Figure 4- 8: Courbes de réponses en énergie des échantillons du nano-scintillateur LuAG dopés aux différentes concentrations de cérium.	119
Figure 4- 9: Effet de la concentration du Ce sur la linéarité.	120

Figure 4- 10: Spectres d'énergie des particules- α de l'Am-241, mesurés avec le monocristal LuAG:0,1%at. Ce^{3+} et les échantillons du nano-scintillateur LuYAG: Ce^{3+}	121
Figure 4- 11: Rendement lumineux relatif et résolution en énergie en fonction de la concentration d' Y^{3+}	123
Figure 4- 12: Courbes de décroissances moyennes du LuYAG: Ce^{3+} , LuAG:0.1 at.% Ce^{3+} LuAG:0.1 at.% Ce^{3+} - monocristal, signaux acquis sous l'excitation par des particules- α de 5.48MeV de l'Am-241 (fréquence d'échantillonnage =1GHz, HT=1600V).	125
Figure 4- 13: Discrimination de formes d'impulsions de scintillation obtenues sous l'excitation par des particules- α et des rayonnement gamma (fréquence d'échantillonnage =1GHZ, HT=1600V), le monocristal a été utilisé pour comparaison.	126
Figure 4- 14: Spectres d'énergies des sources alpha (Pu, Am, Cm) obtenus par les quatre échantillons du Y-LuAG dopé Cérium (les comptages sont normalisés à 1).	128
Figure 4- 15: Courbes de linéarité en énergie du Y-LuAG :0.1%Ce avec différentes Concentrations d' Y^{3+}	128
Figure 4- 16: linéarité des échantillons du nano-scintillateur LuYAG en fonction de la concentration d' Y^{3+}	129

Liste des tableaux

Tableau 1- 1: Quelques scintillateurs inorganiques	33
Tableau 1- 2: Quelques scintillateurs organiques.	35
Tableau 2- 1 : Règles de sélection d'un PMT	45
Tableau 3- 1: Résolution en énergie pour les rayonnement Gamma typiques obtenues avec les Scintillateurs NaI(Tl) et le BGO.	83
Tableau 4- 1: Échantillons du nano-scintillateur LuAG:Ce ³⁺	111
Tableau 4- 2: Échantillons du nano-scintillateur LuYAG.	113
Tableau 4- 3: Rendement lumineux et résolution en énergie des échantillons du nano-scintillateur LuAG :Ce ³⁺ mesurés avec un gain de 50.....	116
Tableau 4- 4: Temps de déclin de scintillation des échantillons du nano-scintillateur LuAG:Ce	118
Tableau 4- 5: coefficients de corrélation en fonction de la concentration du Cérium.	120
Tableau 4- 6: Rendement lumineux et résolution en énergie du (Lu _{1-x} Y _x)AG: 0.1at.% Ce ³⁺ ...	122
Tableau 4- 7: Temps de déclin de scintillation des échantillons du LuYAG:0.1at.%Ce ³⁺ , mesurés sous l'excitation par des particules-α de l' Am-241 (5.48 MeV)	126

Introduction

Générale

Introduction générale

Plusieurs applications, telles que la sécurité, le diagnostic par imagerie médicale, la détection des particules de haute énergie (HEP), le contrôle non destructif, la surveillance environnementale [1–3], reposent sur la détection de rayonnement ionisant et utilisent des matériaux scintillateurs comme détecteurs. Certaines caractéristiques du scintillateur sont souvent cruciales pour l'efficacité de telles applications. Par exemple, le rendement lumineux de valeur élevée, les propriétés temporelles rapides, sont très demandés dans les applications de diagnostic par imagerie médicale telles que la tomographie par émission de positons (TEP) en raison de leur contribution à l'amélioration du rapport signal sur bruit, de la qualité des images, de la précision et donc de la réduction de la dose reçue du patient [4–6].

Il existe deux formes principales de scintillateurs : les monocristaux et les poudres nanométriques[7,8]. Chacune de ces formes présente des caractéristiques distinctes en termes de structure, de propriétés et d'applications.

Les monocristaux sont des matériaux solides constitués d'une seule structure cristalline régulière. Ils sont généralement fabriqués par croissance en utilisant des techniques de cristallographie, telles que la méthode de Bridgman ou la méthode de Czochralski [9,10]. Les monocristaux offrent une grande pureté cristalline et une homogénéité dans leur structure, ce qui leur confère une excellente efficacité de détection. Ils sont utilisés dans des applications exigeant une excellente résolution spatiale [11], telle que l'imagerie médicale de haute précision et la détection de rayonnements dans les expériences de physique des particules.

Les poudres nanométriques, quant à elles, sont constituées de petites particules de taille nanométrique dispersées de manière aléatoire. Ces poudres sont généralement fabriquées par des méthodes telles que la précipitation chimique, la pulvérisation ou la mouture mécanique [12]. Les poudres nanométriques offrent une surface spécifique élevée, ce qui facilite l'interaction avec les rayonnements et permet une bonne efficacité de détection[12]. Elles sont souvent utilisées dans des applications nécessitant une sensibilité élevée, comme la dosimétrie et la détection de rayonnements de faible énergie [13].

Les grenats de phosphore en forme de poudres nanométriques dopés aux ions terres rares deviennent une alternative possible pour remplacer les monocristaux dans plusieurs applications [14], car la croissance des monocristaux est plus laborieuse que la synthèse des poudres. Par conséquent, dans certaines applications telles que la physique des hautes énergies (HEP) et la tomographie à rayons X [15], les scintillateurs en forme de poudre peuvent être considérés comme une alternative moins chère que les monocristaux [16–19].

Les scintillateurs sous forme de poudres sont connus comme de matériaux diffusants et auto-absorbants de la lumière [20], les échantillons en poudre préparés avec des épaisseurs allant de 1 à 3 mm ne sont pas transparents, cela signifie qu'une grande partie des photons de scintillation seront dispersés ou réfléchis à l'intérieur du matériau scintillateur. En conséquence, ces photons seront réabsorbés par le matériau lui-même au lieu de traverser l'échantillon pour être détectés à l'extérieur. En outre, en raison de la faible quantité de photons de scintillation qui parvient au photo-détecteur, les signaux de mesure ne présentent pas certaines caractéristiques nécessaires pour évaluer les propriétés de scintillation du matériau scintillateur. Par exemple, cela peut inclure l'absence du pic d'absorption totale dans le spectre d'énergie. Par conséquent, les matériaux en poudre ne sont pas efficaces pour les rayons gamma et X, car l'absorption des rayons gamma/X nécessite une longue profondeur dans le matériau pour être absorbée de manière significative, ce qui n'est pas possible avec de petits échantillons en poudre, d'un côté. De l'autre côté, les échantillons en poudres de grandes épaisseurs diffusent et réabsorbent fortement la lumière de scintillation. Pour cela, un grand soin doit être apporté à la mesure de certaines propriétés de scintillation.

Lorsqu'il s'agit de caractériser des matériaux scintillateurs en poudre, des études ont révélé que les particules- α sont particulièrement plus efficaces comme sources d'excitation par rapport aux rayonnements Gamma/X [20], cela est dû à leur capacité à être absorbées dans les couches superficielles de l'échantillon (à quelques microns de profondeur). Leur haute énergie favorise une production optimale de photons, ce qui se traduit par des signaux de mesures de qualités acceptables.

Le grenat d'aluminium et de lutécium de formule générale $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (LuAG) dopés aux ions terres rares, sous forme de poudres nanométriques, est l'un des scintillateurs inorganiques les plus prometteurs, en raison de ses hautes performances telles que : la stabilité chimique et mécanique, les propriétés optiques et la haute densité [7]. Comme les propriétés d'un tel scintillateur sont fortement liées à sa composition, d'importants travaux théoriques et

expérimentaux sont nécessaires afin de trouver la composition optimale qui conduit aux meilleures performances de scintillation.

Ce travail présente l'étude de caractérisation des scintillateurs inorganiques en forme de poudres nanométriques, de type grenats d'aluminium et de lutécium dopés au Cérium (LuAG :Ce). Ces nano-scintillateurs ont été élaborés par l'équipe des matériaux scintillateurs au niveau du département de physique radiologique et atomique de la division de physique du CRNA.

La caractérisation de ce type de scintillateurs nécessite des méthodes et des outils plus performantes si elle est comparée avec les scintillateurs en forme de monocristaux. Cela repose sur le fait que les monocristaux sont plus faciles à caractériser vu leurs efficacités pour les rayonnement Gamma/X vu leurs transparences pour les gammes des photons produits, ainsi que pour les méthodes utilisées qui sont beaucoup plus maîtrisées, d'une part. D'autre part, la caractérisation des nano-scintillateurs en forme de poudres présente des difficultés liées au fait que ces scintillateurs ne sont pas transparents ainsi qu'ils sont de petites tailles (quelques mm). L'opacité de ces scintillateurs affecte leur efficacité pour les rayonnement d'excitation Gamma/X, ce qui rends la mesure des caractéristiques de plus en plus complexe. Pour cela des méthodes de mesures spéciales ont été développés pour la prise en charge de la caractérisation de ce type de détecteurs.

Le manuscrit de thèse est présenté en quatre chapitres :

Le premier chapitre présente une introduction générale sur les scintillateurs, leurs principes de scintillation et leurs différents types. Le deuxième chapitre aborde les chaînes de mesures et de détection des rayonnements nucléaires, fournissant ainsi une introduction à la méthodologie de détection de rayonnement nucléaire. Le troisième chapitre, décrit les méthodes utilisées pour mesurer les propriétés de scintillations des matériaux scintillateurs. Enfin, le quatrième chapitre présente les résultats de la caractérisation des scintillateurs développés.

Le manuscrit de thèse est finalisé par une conclusion générale, dans laquelle nous avons évalué le travail mené, et nous avons donné des perspectives et des recommandations.

Chapitre 1

**Les scintillateurs inorganiques :
principes de bases et généralités**

1.1 Introduction

Après une période d'avancement relativement lente, le monde des scintillateurs a connu une renaissance qui a commencée au milieu des années 1980 et se poursuit jusqu'à nos jours. Stimulé par la découverte de nouveaux matériaux offrant d'excellents propriétés telles que le rendements lumineux, la résolution et le temps de déclin de scintillation [21], un grand nombre de matériaux de scintillation potentiels sont actuellement en cours de développement, de test et dévaluation dans le monde entier .

Les scintillateurs sont des matériaux qui émettent de la lumière lorsqu'ils sont exposés à des radiations ionisantes telles que les rayons gamma/X ou les particules- α . Les scintillateurs sont largement utilisés dans diverses applications telles que la détection de rayonnements nucléaires, l'imagerie médicale[12,22], la sécurité [23], la thérapie [24] et la dosimétrie [25,26]. Cependant, les scintillateurs traditionnels présentent certaines limites en termes d'efficacité, de résolution spatiale et temporelle, de coût et de durée de vie [27,28]. Ces limitations ont suscité un besoin croissant d'améliorer les scintillateurs existants à travers l'améliorations de certaines techniques de synthèses et de caractérisations, et même de développer de nouveaux scintillateurs de nouvelles formes, avec des performances améliorées, répondantes aux exigences des applications ciblées.

Dans ce chapitre, nous présentons des généralités sur les scintillateurs, leur principe de scintillation et leurs types, les domaines d'applications des matériaux scintillateurs ainsi que les caractéristiques requises des scintillateurs.

1.2 Notions sur les Scintillateurs et Applications

La recherche sur les matériaux scintillants a commencé en 1885 après la découverte des rayons X [29] et est devenue très active depuis les années 1950 avec le développement des tubes photomultiplicateurs [30]. Les scintillateurs sont des outils cruciales dans plusieurs domaines de la science, notamment dans la découverte des électrons, des particules alpha et plus récemment du boson de Higgs [31]. Jusqu'à ce jour, le processus de scintillation reste l'une des techniques les plus utiles dans la recherche scientifique, mais ses applications s'étendent également à de nombreux domaines tels que l'imagerie médicale, le contrôle industrielle, la sécurité des territoires, l'évaluation des déchets nucléaires et l'exploration pétrolière [32].

Un détecteur à scintillateur est constitué de deux parties principales, comme illustré à la figure 1-1, le scintillateur et le photo-détecteur. Le scintillateur est un matériau qui convertit les photons/particules de haute énergie, tels que les rayons γ et X, particules- α en lumière ultraviolet ou visible (photons de faible énergie). Le scintillateur est également capable d'émettre de l'UV/Vis lorsqu'il est excité par des particules chargées, telles que des électrons, des protons ou des neutrons [21]. Les scintillateurs peuvent être des matériaux organiques [33,34] ou inorganiques [34,35], et plus récemment, des cristaux hybrides organiques-inorganiques, tels que les perovskites hybrides, ont émergé comme une nouvelle classe de matériau [36].

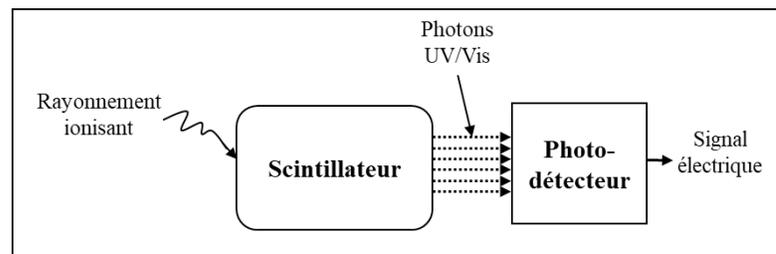


Figure 1- 1: Composition d'un détecteur à scintillation

Le photo-détecteur est un dispositif électronique qui convertit les photons de scintillation en courant électrique. Les photo-détecteurs peuvent être basés sur différents principes de fonctionnement, les tubes photomultiplicateurs (PMT) et les photo-détecteurs à semi-conducteur. Il existe de nombreux types de photo-détecteurs, chacun ayant ses propres avantages et inconvénients. Les photo-détecteurs pixélisés sont souvent utilisés pour l'imagerie par rayons X [37], tandis que les tubes photomultiplicateurs (PMT), les photomultiplicateurs au silicium Si-PM, les photodiodes à avalanche (APD) pour la détection des rayons γ [38–41].

1. 2. 1 Mécanisme de Scintillation

Le mécanisme de scintillation dans les matériaux scintillateurs dépend des états d'énergie déterminés par le réseau cristallin du matériau. Comme le montre la figure 1-2, les électrons ne disposent que de bandes d'énergie discrets dans les matériaux classés comme isolants ou semi-conducteurs. La bande inférieure, appelée la bande de valence, elle représente les électrons qui sont essentiellement liés aux sites du réseau, tandis que la bande de conduction représente les électrons

qui ont une énergie suffisante pour être libres de migrer dans tout le cristal. Il existe une bande intermédiaire d'énergies, appelée *bande interdite*, dans laquelle les électrons ne peuvent jamais être trouvés dans le cristal pur. L'absorption d'énergie peut entraîner l'élévation (excitation) d'un électron de sa position normale dans la *bande de valence* à travers la bande interdite (bande de gap) à la bande de conduction, laissant un trou dans la bande de valence normalement remplie.

Dans le matériau pur, le retour de l'électron à la bande de valence (désexcitation) avec l'émission d'un photon est un processus inefficace. De plus, les largeurs des *bandes interdites* typiques sont grandes, et les photons résultants sont de grandes énergies et ne se situent pas dans le domaine du visible pour qu'il soient détectables.

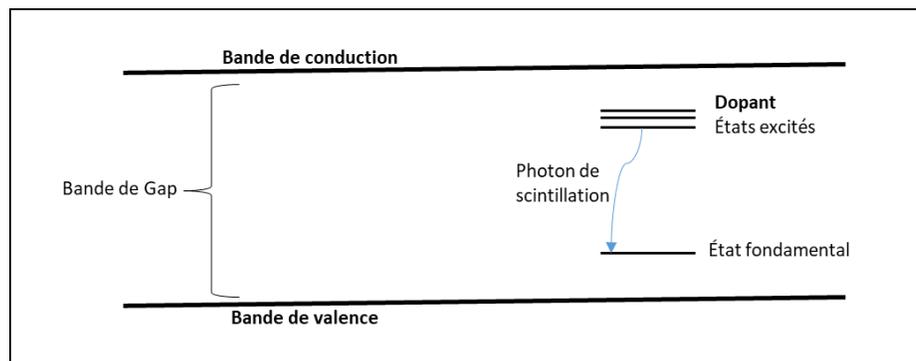


Figure 1- 2: structure de bande d'énergie d'un scintillateur cristallin

Pour augmenter la probabilité d'émission des photons visibles pendant le processus de désexcitation, de petites quantités d'impuretés sont couramment ajoutées aux matériaux scintillateurs inorganiques. Les impuretés ajoutées, appelées *dopants* ou *activateurs*, créent des sites spéciaux dans le réseau où l'énergie normale de la structure de bande est modifiée par rapport à celle du matériau pur. En conséquence, il y aura des états d'énergies créés dans la *bande interdite* à travers lesquels l'électron peut se désexciter pour revenir à la bande de valence. Comme l'énergie des états créés par le dopant est inférieure à celle de l'espace interdit complet, cette transition peut maintenant donner naissance à un photon visible, ce qui peut être considéré comme processus de base de la scintillation.

Les sites de désexcitation sont appelés *centres de luminescence* ou *centres de recombinaison*. Leur structure énergétique dans le réseau cristallin détermine le spectre d'émission du matériau scintillateur (longueur d'onde d'émission).

Lorsqu'un rayonnement/particule traverse le milieu scintillateur, il créera un grand nombre de paires électron-trou suite à l'élévation des électrons de la bande de valence à la bande de conduction. Le trou positif va rapidement vers l'emplacement d'un site activateur et l'ionisera, car l'énergie d'ionisation de l'impureté est inférieure à celle d'un site de réseau typique. Pendant ce temps, l'électron est libre de migrer à travers le cristal et continu d'ioniser d'autres sites jusqu'à ce qu'il rencontre un activateur ionisé. À ce stade, l'électron peut tomber dans le site de l'activateur, créant une configuration neutre qui peut avoir son propre état d'énergie excité. Ces états sont illustrés dans la figure 1-2 sous forme de lignes horizontales à l'intérieur de l'espace interdit. Si l'état de l'activateur qui se forme est une configuration excitée avec une transition autorisée vers l'état fondamental, sa désexcitation se produira très rapidement et avec une forte probabilité d'émission d'un photon correspondant. Si l'activateur est bien choisi, cette transition peut être dans le domaine de l'énergie visible. Les durées de vie typiques de tels états excités sont de l'ordre de 30-500 ns [21]. Comme le temps de migration de l'électron est beaucoup plus court, tous les états excités des impuretés sont formés essentiellement à la fois et seront désexciter ensuite avec la demi-vie caractéristique de l'état excité. C'est le temps de décroissance de ces états qui déterminent donc les caractéristiques *temporelles* de la lumière de scintillation émise.

Certains scintillateurs inorganiques peuvent être caractérisés de manière adéquate par un *seul temps de décroissance* ou un simple exponentiel, bien qu'un comportement temporel plus complexe soit souvent observé avec d'autres.

En guise de description globale, le processus de scintillation peut être résumé en trois étapes principales, comme représenté sur la figure 1-3 : (1) conversion, (2) transport et transfert d'énergie vers le centre de luminescence, et (3) la luminescence [42,43].

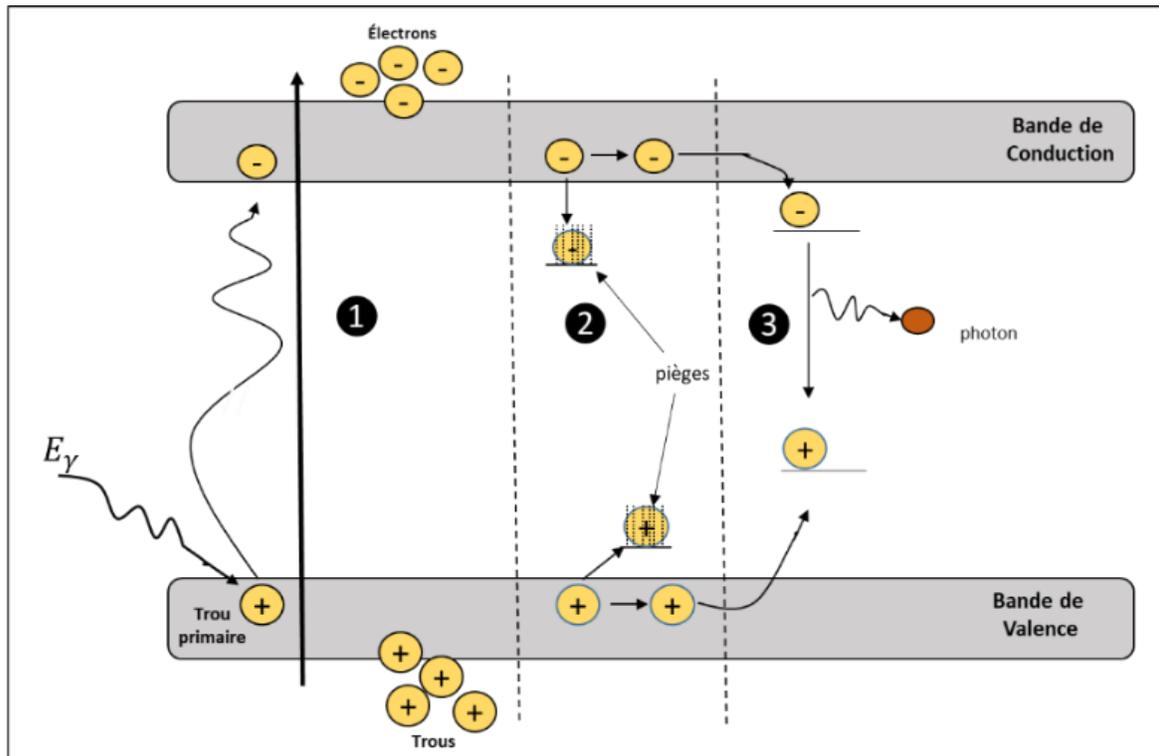


Figure 1- 3: processus de scintillation dans un scintillateur inorganique

1.2.1.1 La conversion d'énergie

La conversion d'énergie, se produit juste après l'interaction avec le rayonnement/particule ionisant. Dans cette étape, l'énergie du rayonnement incident est absorbée par le matériau scintillateur et des électrons et des trous hautement excités sont créés dans le matériau. Le mécanisme d'absorption d'énergie par le scintillateur dépend du type et de l'énergie du rayonnement incident.

pour les photons X ou γ , l'atténuation est décrite par la relation [44]:

$$\frac{I}{I_0} = e^{-\mu d} \quad (1-1)$$

Avec I_0 et I sont les intensités du rayonnement incident et transmis, μ est le coefficient d'absorption linéaire et d est l'épaisseur du scintillateur.

Trois types d'interactions entre le rayonnement et la matière contribue d'une manière pertinente au processus de conversion d'énergie en scintillation : absorption photoélectrique , diffusion Compton, et production de paires ($h\nu > 1022 \text{ keV}$) [45–47] . En raison de leur nature différente, ces processus ont des coefficients d'absorption différents, qui dépendent principalement

du numéro atomique Z des atomes dans le matériau scintillateur et de l'énergie E des rayonnement/particule incidents, ces trois processus d'interaction des rayonnement avec la matière sont bien détaillés dans la section 2.3 du chapitre 2.

En résumé, l'énergie absorbée par le matériau scintillateur conduira à la production d'*électrons chauds* et des *trous profonds* [48] , c'est-à-dire porteurs de charges hautement énergétiques, dans le matériau scintillateur [49]. Les électrons chauds présents dans le matériau vont interagir davantage avec d'autres particules et pseudo-particules dans le solide (électron, plasmon, phonon) dans le réseau du scintillateur, conduisant à l'avalanche des paires électron-trou secondaires déjà créés. Ce processus se poursuivra jusqu'à ce que les électrons chauds et tous les électrons et trous secondaires aient perdu suffisamment d'énergie et devient incapable d'ioniser d'autres ions du réseau.

Le grand nombre de porteurs de charge énergétiques résultants subiront ensuite une dissipation d'énergie par des interactions avec des phonons, cette opération est appelée la thermalisation [44]. L'échelle de temps pour l'étape de conversion, y compris l'absorption et la dissipation d'énergie a été estimée d'être de l'ordre de 1 ps [49,50].

1.2.1.2 Transport et transfert d'énergie

La deuxième étape de scintillation, dite de *transport et de transfert d'énergie*, implique, comme son nom l'indique, le transport du porteur de charge vers les centres de luminescence. C'est probablement l'étape la plus critique pour les pertes, le piégeage et pour les performances temporelles du scintillateur. Dans cette phase, le grand nombre d'électrons et de trous générés lors de la conversion migre à travers le matériau. Au cours de cette étape, plusieurs mécanismes peuvent contribuer à la fois au retard des événements de recombinaison radiative ou à la perte d'efficacité par des processus de recombinaisons non radiatives, plusieurs modèles ont été proposés dans la littérature afin de modéliser ces mécanismes [51].

L'origine de ces pertes est principalement causée par la présence de défauts dans le cristal du scintillateur, provenant généralement des lacunes ioniques, d'impuretés de substitution ou d'états d'interface et de surface [52].

Les porteurs de charge en migration peuvent être piégés dans ces défauts, principalement dans les lacunes, créant une variété d'états de piège. En fonction de la température, les électrons et

les trous piégés peuvent cependant être libérés et migrer davantage, via le transport par sauts assisté par des phonons[28][29].

La phase de transport du processus de scintillation est affectée par le processus de fabrication du matériau scintillateur [55]. L'optimisation des procédures de croissance cristalline et de la morphologie du matériau peut réduire considérablement le nombre de défauts et de pièges dans le matériau et améliorer la mobilité des porteurs de charge et, par conséquent, réduire considérablement les pertes non radiatives ainsi que le retard de la luminescence.

1.2.1.3 La luminescence

La dernière étape du processus de scintillation, dite *la luminescence*, phase (3) de la figure 1-3 **Error! Reference source not found.**, l'électron et le trou sont capturés à travers plusieurs chemins potentiels par le centre luminescent (souvent un ion d'impureté introduit comme dopant dans le réseau et dit *activateur*), le promouvant à un état excité. Il se recombine ensuite d'une manière radiative, en émettant des photons dans le spectre d'UV/visible. Pour une émission rapide, il est important de sélectionner le centre d'émission montrant des transitions permises du dipôle électrique, telles que les transitions $4f^{n-1} 5d \rightarrow 4f^n$ largement utilisées dans certains matériaux des terres rares.

Sinon, si aucune transition autorisée n'est possible, les porteurs de charge devront subir d'autres processus, conduisant à une émission de fluorescence plus lente, ce qui est un inconvénient pour les applications nécessitant des caractéristiques temporelles rapide. Par conséquent, en plus des considérations faites pour les deux étapes précédentes de scintillation, les ions ou molécules dans le matériau du scintillateur doivent être sélectionnés de manière à permettre une recombinaison radiative efficace et un temps de déclin rapide.

Les photons UV/Visible émis par le scintillateur sont finalement détectés par le photo-détecteur pour les convertir en signaux électriques mesurables.

1.2.1.4 Phénomène d'extinction (ou Quenching)

Dans un scintillateur idéal, tous les électrons créés suite à l'excitation par un rayonnement ionisant se recombinent via un processus radiatif avec les trous. En conséquence, il y'aura création

d'un photon de scintillation pour chaque paire électron-trou. Néanmoins, en réalité, ils existent plusieurs sources de pertes (quenching) de luminescence dans le processus de scintillation. Ces pertes sont dues au premier lieu à la présence des niveaux électronique ou pièges électroniques qui ne permettent pas la recombinaison radiative des paires électrons-trous [56]. Il existent d'autres type de pertes liés à l'effet de certains paramètres tels que l'énergie des rayonnements/particules incidents, la concentration du dopant, la température et la concentration des éléments constituant le scintillateur [56,57].

1. 2. 2 Domaines d'application des scintillateurs

Les scintillateurs ont une vaste gamme d'applications dans de nombreux domaines, tels que le diagnostic par radiographie médicale, l'imagerie de haute résolution pour les applications scientifiques et industrielles, la sécurité ainsi que la physique des hautes énergies [32]. Le diagnostic médical repose largement sur les techniques d'imagerie basées sur les scintillateurs, telles que la tomodensitométrie (TDM) (figure 1-4), la tomographie par émission monophotonique (TEMP) (figure 1-5), la radiographie, la mammographie et la tomographie par émission de positons (TEP).

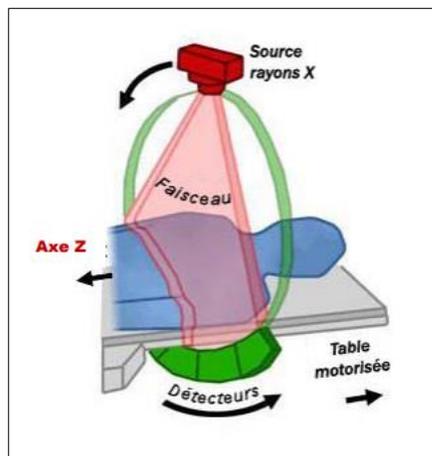


Figure 1- 4 : Détecteurs à scintillation dans le diagnostic par la tomodensitométrie [58].

En TDM, le patient est irradié sous différents angles avec des rayons X [58] pour produire des images en coupes qui peuvent ensuite être reconstruites en images 3D complètes. Dans cette application les scintillateurs détectent les rayons X transmis, tandis qu'en TEP, les scintillateurs détectent les rayons γ produits par l'annihilation des électron-positron dans le patient [59].

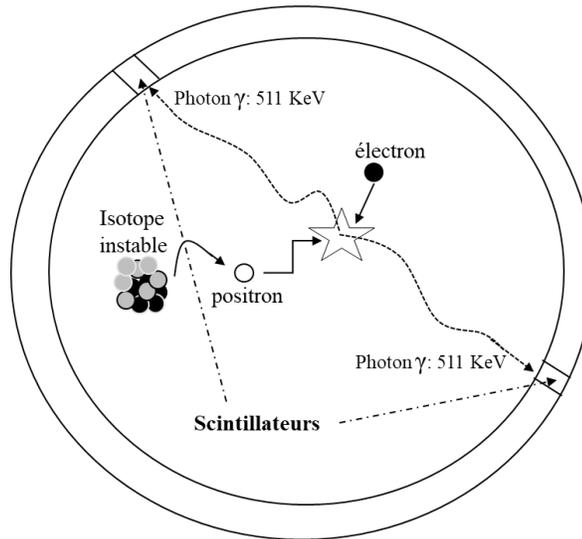


Figure 1- 5: Détecteur à scintillation dans la TEP.

Ces techniques utilisent des blocs de détecteurs à scintillation disposés en cercle autour du patient, comme illustré schématiquement dans les figures 1-4 et 1-5 . Les blocs de détecteurs sont composés de cristaux scintillateurs inorganiques, tels que le germanate de bismuth ($\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$) [60], l'oxyorthosilicate de lutécium dopé au cérium ($\text{Lu}_2\text{SiO}_5 : \text{Ce}^{3+}$) ou le LYSO [61], positionnés devant le photo-détecteurs. Les cristaux scintillateurs sont divisés en tiges (carrées) et séparés par un matériau hautement réfléchissant, agissant comme des pixels pour le bloc de détecteurs[62],

Un autre exemple est la radiographie par rayons X utilisée pour détecter les fractures osseuses, les cicatrices de tuberculose et les problèmes dentaires. Ces techniques sont très similaires à la photographie conventionnelle. En fait, le film radiographique associé à un écran scintillant, généralement l'oxysulfure de gadolinium dopé au terbium ($\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S} : \text{Tb}^{3+}$) [63].

En détection nucléaire, les scintillateurs sont utilisés pour convertir les rayonnements et les particules de hautes énergies aux photons ultraviolet/visible de faible énergie. L'utilisation des photo-détecteurs adéquats avec des chaînes de traitements électroniques permettent la collection des informations nécessaires permettant d'identifier et de caractériser les radionucléides sources de rayonnements/particules (exemple : spectrométrie des rayonnements Gamma/particules- α et des neutrons) [64,65].

1.3 Caractéristiques requises des scintillateurs

Le choix du matériau scintillateur dépend fortement des exigences de l'application pratique ciblée. Il existe plusieurs paramètres qui déterminent le choix d'un scintillateur, en particulier :

1.3.1 Efficacité d'absorption

Ce paramètre détermine l'efficacité avec laquelle un matériau absorbe les rayonnements pendant la conversion en photons de scintillation. L'efficacité de scintillation S est définie par le rapport entre l'énergie des photons de scintillation produits par le scintillateur (L) et l'énergie des photons incidents source d'excitation (E) [66].

$$S = \frac{L}{E} \quad (1-2)$$

Pour la détection des rayons X et des rayons gamma, les matériaux de haute densité et de numéro atomique élevé sont préférés [31].

1.3.2 Le rendement lumineux

Le rendement lumineux est l'un des paramètres les plus importants des scintillateurs, jouant un rôle majeur dans la détermination de leur efficacité, sensibilité et résolution en énergie [67]. Le rendement lumineux dépend du nombre de paires électron-trou pouvant être créées dans les trajectoires d'ionisation résultant de l'interaction entre le rayonnement/particule incident et le matériau scintillant. Le rendement lumineux (RL), exprimé en photons/MeV, est donné par la relation suivante [31,68]:

$$RL = 10^6 \frac{S \cdot Q}{\beta \cdot E_g} \quad (1-3)$$

Avec S est l'efficacité de transport des électron-trou vers les centres de luminescence, Q est l'efficacité quantique du centre de luminescence et β est une constante, et E_g est l'énergie du gap. Une fois la lumière est produite, certaines pertes se produisent également pendant le transport vers le photo-détecteur, dues au phénomènes de diffusion interne et à la réabsorption. Par conséquent, le rendement lumineux d'un scintillateur pourrait être inférieur au rendement théorique. La figure 1-6 illustre la courbe qui décrit la limite théorique du rendement lumineux pour des efficacités S et Q maximales de 100%, et un coefficient β de 2.5 [68].

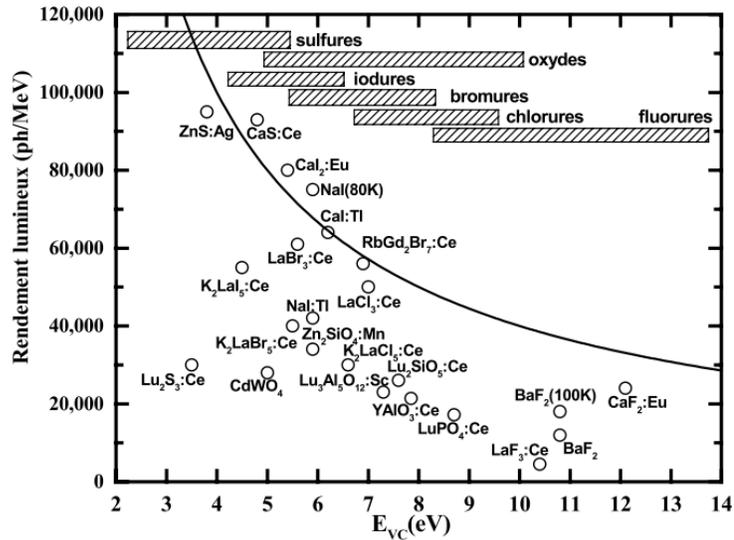


Figure 1- 6 : Rendements lumineux théoriques et expérimentaux en ph/MeV, de différents scintillateurs, en fonction de l'énergie de la bande interdite $|E_V - E_C|$ [68,69].

1. 3. 3 Temps de réponse (déclin de scintillation)

Le temps de réponse est la durée pendant laquelle le scintillateur émet un photon UV/Visible après absorption du rayonnement ionisant. Le temps de réponse est principalement déterminé par le temps de déclin de la scintillation. un temps de réponse rapide implique donc un temps de déclin courts, sont très importants pour les applications où le temps est considéré, comme la tomographie par ordinateur ou la détection de particules dans les accélérateurs [31].

La plupart des scintillateurs sont caractérisés par plusieurs temps de déclin. Des temps de déclin courts (10-100 ns) permettraient un comptage rapide et sont importants pour une bonne résolution temporelle.

1. 3. 4 Résolution en énergie

La résolution en énergie est le rapport entre la largeur à mi-hauteur (FWHM) du pic d'absorption total à une certaine énergie en réponse au rayonnement d'excitation, divisé par la position de l'énergie du pic dans le spectre d'énergie. Ce paramètre est principalement important dans la spectrométrie des rayonnement/particule ionisant, en particulier pour les applications de spectrométrie des rayons γ , et est la capacité du scintillateur à discriminer les différentes énergies.

Les résolutions en énergie de certains matériaux scintillateurs sont données dans le tableau 1-1 (Section 1.4.1).

1. 3. 5 Longueur d'onde d'émission

Un spectre émis par le scintillateur en réponse d'une excitation par le rayonnement doit correspondre au spectre d'absorption du photo-détecteur [67]. Certains scintillateurs couramment utilisés en spectroscopie gamma, tels que le sodium iodure dopé au thallium (NaI(Tl)) , émettent de la lumière avec une longueur d'onde d'environ 415 nanomètres (nm) [70], ce qui correspond à une couleur bleu-vert dans le spectre visible. D'autres scintillateurs, comme lutétium l'oxyorthosilicate de lutétium dopé au cérium (LSO:Ce), émettent de la lumière à une longueur d'onde d'environ 420 nm [68], également dans la plage du bleu-vert.

La longueur d'onde d'émission d'un scintillateur peut varier en fonction de plusieurs conditions telles que de dopage, de composition chimique, de température [71]. Par conséquent, La longueur d'onde d'émission peut être adaptée afin de se conformer avec les spectres d'absorptions des photo-détecteurs commerciaux disponibles, et ainsi selon les exigences de l'application ciblée.

1. 3. 6 Stabilité

La stabilité d'un scintillateur est divisée en stabilité chimique et radiologique. La stabilité chimique concerne la stabilité intrinsèque du matériau, y compris la durée de vie. La stabilité au rayonnement, également appelée dureté au rayonnement, concerne la capacité du matériau à ne pas se dégrader de manière significative lorsqu'il est exposé au rayonnement ionisant [72,73]. La stabilité détermine ainsi combien de temps un matériau peut être utilisé comme scintillateur avant de devoir être changé.

1. 3. 7 Proportionnalité

L'efficacité de scintillation des scintillateurs (le facteur de conversion entre l'énergie déposée et le rendement lumineux) dépend à la fois du type du rayonnement ionisant (alpha, bêta,

gamma, etc.) et de l'énergie du rayonnement/particule qui interagit avec le matériau scintillateur [74]. Ce dernier effet implique que la lumière produite n'est pas exactement proportionnelle à l'énergie déposée dans le scintillateur, conduisant à l'effet référencé comme "la non-proportionnalité «ou "la non linéarité" [75]. L'efficacité de production de la lumière dépend de certains facteurs tel que la densité d'ionisation ou d'excitation [3,75–77]. La figure 1-7 présente les réponses de trois scintillateurs aux différentes énergies d'excitation. Les trois scintillateurs présentent des linéarités dégradées dans la gamme des énergies supérieurs à 100 keV.

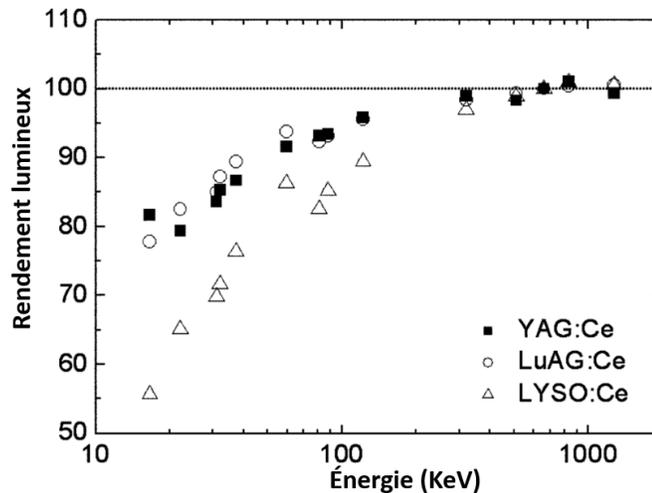


Figure 1- 7: Rendement lumineux comme fonction de l'énergie d'excitation des scintillateurs YAG :Ce, LuAG :Ce et LYSO :Ce [2].

1. 4 Types de scintillateurs

Les matériaux scintillants peuvent être divisés en deux classes principales : les scintillateurs inorganiques et les scintillateurs organiques. La première classe de matériaux est généralement composée de cristaux, alors que la seconde classe de matériaux est souvent constituée de solides amorphes à faible densité et même de liquides[31,78]. Bien que les principales étapes des processus de scintillation et d'absorption du rayonnement restent fondamentalement les mêmes pour tous les types de scintillateurs, les mécanismes exacts de transport de charge, en particulier, et de luminescence dépendent fortement de la morphologie de composition du scintillateur.

1. 4. 1 Scintillateurs inorganiques

Les scintillateurs inorganiques sont principalement des solides ioniques et ils sont généralement développés dans des fours à hautes températures[43]. Certains scintillateurs contiennent une petite quantité d'impuretés introduites comme activateur (dopant). Parmi les impuretés les plus couramment utilisées pour le dopage des scintillateurs inorganiques, figurent le thallium (Tl^+), le sodium (Na^+), le tellure (Te^{2+}), l'argent (Ag^+), les terres rares divalentes ($SrAlF_5$) [79] et les ions de terres rares trivalentes (Ce^{3+} , Pr^{3+} , Eu^{3+} , Tb^{3+} , Gd^{3+} , Yb^{3+}) [80]. Le tableau 1-1 présente une liste de quelques scintillateurs inorganiques avec leurs propriétés de scintillation principales.

Tableau 1- 1: Quelques scintillateurs inorganiques

scintillateur	Rendement lumineux (Ph/MeV)	Résolution En énergie (%@ 662keV)	Longueur d'onde d'émission (nm)	Temps de déclin (ns)
NaI:Tl ⁺	40000	6.6	415	230
CsI:Tl ⁺	66000	6.5	460	1000
CsI:Na ⁺	43000	7.3	425	-

Quelques scintillateurs inorganiques sont présentés dans la figure 1-8. Souvent, de petites quantités de dopant sont ajoutées à ces cristaux en tant qu'activateur. Par exemple, le thallium est utilisé pour activer l'iodure de sodium dans le scintillateur NaI:Tl⁺.



Figure 1- 8 : Quelques scintillateurs inorganiques.

Les activateurs créent des sites spéciaux dans le réseau cristallin du scintillateur, ajoutant des niveaux d'énergie localisés situés dans la bande interdite du cristal. Les activateurs sont généralement utilisés soit pour améliorer le rendement lumineux, soit pour modifier la longueur d'onde d'émission pour une meilleure adaptation avec le photo-détecteur [21]. Les ions dopants ou co-dopants peuvent agir comme centre de luminescence, ou aussi comme pièges pour modifier les processus de transport et de transfert de charges pour de diminuer la rémanence (afterglow) ou/et le temps de montée [81].

1. 4. 2 Scintillateurs organiques

Les scintillateurs sont des composés d'hydrocarbures, sous forme de molécules aromatiques présentant des structures cycliques benzéniques tel que l'anthracène[31]. Les scintillateurs organiques peuvent exister à la fois sous forme de cristaux solides [82] (figure 1-9), de plastiques [83] ou de solutions liquides [84] . Les principaux avantages des scintillateurs organiques sont leur coût de production peu coûteux, nécessitant souvent des températures de traitement généralement basses par rapport aux matériaux inorganiques. Les spectres d'absorption et d'émission optiques des scintillateurs organiques peuvent être réglées grâce à la substitution chimique, ce qui peut permettre une personnalisation facile du scintillateur.



Figure 1- 9: L'Anthracène en forme de cristal solide [82].

Les propriétés telles que le rendement lumineux, la résolution énergétique et l'efficacité d'absorption sont généralement moins intéressantes que celles des cristaux inorganiques. Les scintillateurs organiques les plus courants avec leurs propriétés sont répertoriés dans le tableau 1-2.

Tableau 1- 2: Quelques scintillateurs organiques.

scintillateur	Forme	Densité (g/cm ³)	Rendement lumineux (Ph/MeV)	Longueur d'onde d'émission (nm)	Temps de déclin τ (ns)
Anthracène	cristal	1.25	16000	447	30
Stilbene	cristal	1.16	8000	410	4.5
Naphtalène	cristal	0.96	2000	348	80
Diphenyloxazole	cristal	1.06	8800	405	7

Le rendement lumineux le plus élevé est indiqué pour l'anthracène (16 000 photons/MeV) [85], qui est souvent utilisé comme référence pour les scintillateurs organiques. La meilleure résolution en énergie à 662 keV de 13 % pour les scintillateurs organiques a également été signalée pour l'anthracène [85]. De plus, les scintillateurs organiques cristallins solides ne peuvent pas être développés en grandes tailles, ce qui limite leur utilisation [31].

1.5 Conclusion

Ce premier chapitre a permis de présenter des généralités sur les scintillateurs. Nous avons discuté le principe de la scintillation, des domaines d'application des matériaux scintillateurs. Nous avons également mis en évidence les propriétés des matériaux scintillateurs et leurs avantages potentiels pour diverses applications.

Il est clair que les matériaux scintillateurs sont des matériaux prometteurs pour la détection de rayonnements ionisants dans de nombreux domaines. Cependant, malgré leurs avantages, ces matériaux présentent également des limitations, telles que la résolution en énergie, la sensibilité à l'humidité, et les coûts de production. Ainsi, des recherches supplémentaires sont nécessaires pour améliorer les performances des matériaux scintillateurs existants et développer de nouveaux matériaux adaptés à des applications spécifiques. Le chapitre suivant sera dédié à la présentation des chaînes de détection nucléaires, qui sont essentielles pour la détection et l'analyse des rayonnements ionisants pour des fins de caractérisation des nouveaux matériaux scintillateurs sujet de cette étude.

Chapitre 2

**Chaines de détection nucléaires à
base de scintillateurs**

2.1 Introduction

Dans une chaîne de détection à base de scintillateurs, la mesure des rayonnements ionisant consiste en la mesure de la lumière de scintillation émise par le matériau scintillateur en réponse à l'excitation causée par un rayonnement ou une particule ionisante. Les signaux résultants de l'interaction du rayonnement/particule nucléaire avec le matériau scintillateur sont ensuite mis en formes, traités, statistiquement recensés et enregistrés sous forme d'histogrammes (spectres). L'analyse des signaux enregistrés permet de tirer des informations sur l'énergie du rayonnement/particule incident ainsi que sur les propriétés du scintillateur utilisé.

La proportionnalité entre la quantité de la lumière de scintillation et l'énergie du rayonnement nucléaire incident doit être préservée tout au long de la chaîne de mesure. Les chaînes de détection nucléaires utilisent le même principe de mesure que les chaînes de mesures conventionnelle dans la partie analogique qui comporte le détecteur nucléaire (désigné comme capteur dans la chaîne d'instrumentation conventionnelle), le préamplificateur et l'amplificateur, alors que le principe de mesure est différent dans la partie digitale de la chaîne, vu que l'exploitation des signaux de mesure est différente. Cette différence réside dans la manière d'exploiter les signaux numériques issues du convertisseur analogique numérique (CAN) pour en construire des distributions statistiques, permettant de fournir les informations nécessaires sur le rayonnement/particule ionisant incident ainsi que sur le détecteur utilisé.

Dans ce chapitre, et pour des fins de la caractérisation des nouveaux matériaux scintillateurs développés, il sera utile de présenter une vue d'ensemble des chaînes de détection nucléaire basées sur des détecteurs à scintillation, ainsi que les différentes interprétations des spectres d'énergie en tenant compte des principes de l'interaction des rayonnements avec la matière du scintillateur.

2.2 Chaîne de détection à base de scintillateurs

La détection nucléaire est une technique qui utilise différents éléments physiques et électroniques pour détecter et mesurer les rayonnements nucléaires émis par des sources radioactives. Dans le cas des détecteurs à scintillation, la mesure des rayonnements nucléaire consiste en premier lieu à la conversion des rayonnements de haute énergie (Gamma/X,...) en photons de faible énergie appelés photons de scintillation. Les photons de scintillation seront ensuite convertis en une charge électrique à l'aide d'un photo-détecteur, la charge est intégrée au

moyen d'un préamplificateur pour produire une impulsion de tension mesurable. L'impulsion de tension à la sortie du préamplificateur est amplifiée et mise en forme par l'amplificateur, numérisée par un convertisseur analogique numérique (CAN) et classé dans le canal correspondant à son maximum d'amplitude par l'analyseur multicanaux (AMC) . La figure 2-1 présente une chaîne de détection des rayonnement/particules typique.

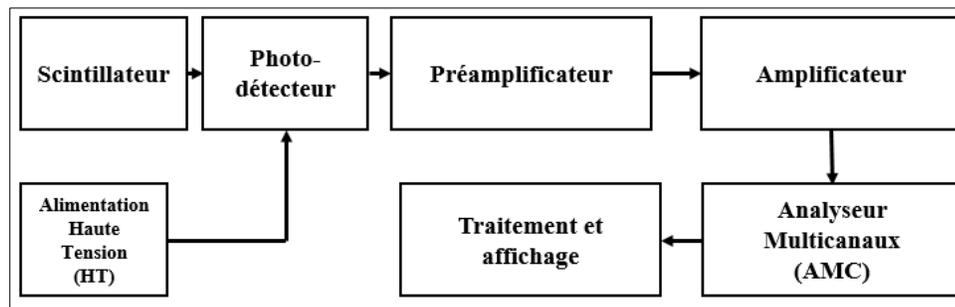


Figure 2- 1: Synoptique d'une chaîne de détection typique

Les éléments de base constituant une chaîne de détection nucléaire sont :

2. 2. 1 Le détecteur à scintillation

Le détecteur à scintillation ou le scintillateur est l'élément sensible de la chaîne de détection nucléaire, son rôle est de convertir les rayonnement/particules incident en lumière.

Le détecteur à scintillation se compose généralement d'un cristal scintillant, tel que le NaI(Tl) ou le CsI(Tl), qui génère de la lumière (ou "scintille") lorsqu'il est excité par un rayonnement/particule ionisant. Le cristal scintillant est couplé à un photo-détecteur qui convertit la lumière en un signal électrique proportionnel à l'énergie des rayonnements détectés, le principe de scintillation a été présenté dans la section 1.2.1 du chapitre 1.

2. 2. 2 Le photo-détecteur

Le photo-détecteur est l'élément qui suit directement le détecteur de rayonnement (scintillateur), son rôle est de capter les photons de scintillation générés par le détecteur à

scintillation, les photons captés sur la fenêtre sensible du photo-détecteur sont ensuite guidés, amplifiés et convertis à un signal électrique de niveau utile pour la mesure. En général, et en détection nucléaire, les photo-détecteurs les plus couramment utilisés pour la mesure de la lumière de scintillation sont des tubes photomultiplicateur, photodiodes, photodiodes à avalanche ou des caméras CCD. Nous nous intéressons dans cette étude au photo-détecteur de type photomultiplicateur à tube car ce dernier est le seul photo-détecteur que nous avons utilisé durant la réalisation de cette étude.

2.2.2.1 Photomultiplicateur à tube (PMT)

Les PMT sont des détecteurs de lumière similaires aux photomultiplicateurs conventionnels, mais avec une construction tubulaire. Ils sont souvent utilisés pour les applications nécessitant une très grande sensibilité à la lumière. Le choix d'un type de photo-détecteur dépend de nombreux facteurs tels que les caractéristiques requises du système de détection, la sensibilité, la vitesse, la stabilité et le coût.

Dans cette étude nous nous intéressons au photo-détecteur de type photomultiplicateur à tube, étant donné que toutes les mesures ont été réalisées à l'aide de ce dispositif.

Le PMT converti les photons de scintillation en un signal électrique de niveau acceptable pour la mesure, il amplifie ainsi le signal à un niveau utile par l'émission des électrons secondaires sous l'effet du champ électrique appliqué. Les éléments principales constituant le photomultiplicateur sont présentés sur la figure 2-2.

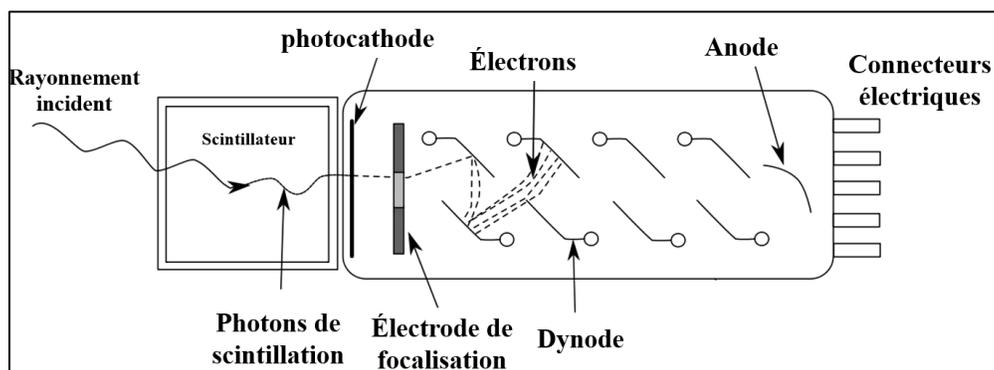


Figure 2- 2: photomultiplicateur à tube couplé à un scintillateur.

2.2.2.1.1 La photocathode

C'est l'élément sensible qui converti les photons de scintillation en électrons ou photoélectrons par l'effet photoélectrique. La majorité des photocathodes sont constitués de composées de semi-conducteur déposés comme matériaux sensibles aux photons. Il en existe deux sortes principales :

- ✓ **Cathode semi-transparente**, le matériau sensible est déposée à l'intérieur de la fenêtre d'entrée du PMT; les photoélectrons sont émis du côté opposé des photons incidents (type transmission). La cathode peut être de grande dimension (de dix à quelques centaines de millimètres de diamètre) et la fenêtre sur laquelle est déposé le matériau peut être plane ou bombée.
- ✓ **Cathode opaque**, le matériau sensible est déposé sur une électrode métallique à l'intérieur du tube PMT. Les photoélectrons sont émis sur le même côté des photons incidents (type réflexion). La surface de la cathode est généralement limitée à quelques centimètres carrés en raison de la taille des électrodes de focalisation.

2.2.2.1.2 Réponse spectrale de la photocathode

L'efficacité de conversion (sensibilité de la photocathode) varie avec la longueur d'onde de la lumière incidente. La relation entre la photocathode et la longueur d'onde de la lumière incidente est appelée *réponse spectrale*. En général, les caractéristiques de réponse spectrale sont exprimées en termes de *sensibilité radiante* et *d'efficacité quantique*.

- ✓ **La sensibilité radiante** est définie comme le courant photoélectrique généré par la photocathode divisé par le flux radiant incident à une longueur d'onde donnée, exprimé en unités d'ampères par watt (A/W). De plus, les caractéristiques de réponse spectrale relative dans lesquelles la sensibilité rayonnante maximale est normalisée à 100 % sont également utilisées de manière pratique.
- ✓ **L'efficacité quantique** est le nombre de photoélectrons émis par la photocathode divisée par le nombre de photons incidents. L'efficacité quantique est symbolisée par η et est généralement exprimée en pourcentage (%).

$$\eta = \frac{\text{nombre de photons emis}}{\text{nombre de photons incidents}} \quad (2-1)$$

Les photons incidents transfèrent de l'énergie aux électrons dans la bande de valence d'une photocathode, ces électrons ne sont pas tous émis sous forme de photoélectrons. Cette photoémission s'effectue selon une certaine probabilité. Les photons qui ont des longueurs d'onde plus courtes transportent une énergie plus élevée que ceux à des longueurs d'onde plus grandes et contribuent à une augmentation de la probabilité de la photoémission. En conséquence, l'efficacité quantique maximale se produit au longueurs d'onde légèrement plus courtes. La figure 2-3 présente la réponse spectrale en terme de sensibilité radiante et d'efficacité quantique d'un certain nombre de photocathodes.

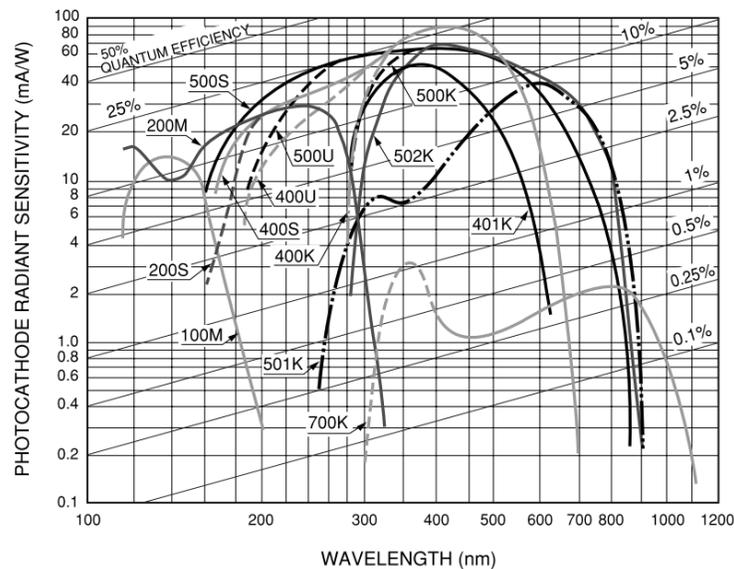


Figure 2- 3: sensibilité spectrale des photocathodes [86]

2.2.2.1.3 Le système de focalisation

C'est l'élément qui focalise et accélère les électrons.

2.2.2.1.4 Le système de multiplication

C'est le système de multiplication des électrons par émission secondaire, il est composé d'une série d'électrode d'émission secondaire, ces électrodes sont appelés Dynodes.

2.2.2.1.5 L'anode

L'anode est l'élément qui collecte les électrons à la sortie du système de multiplication sous forme d'une charge qui sert au signal de sortie.

Dans l'opération de conversion des photons de scintillation en charge électrique utile, le fonctionnement du PMT est basé sur deux phénomènes principales : la *photoémission* et l'*émission secondaire* [87]. La photoémission est due à une fraction des photons incidents qui transmettent toute leur énergie aux électrons liés du matériau de la photocathode, donnant à certains d'entre eux une énergie suffisante pour s'échapper. Les électrons échappés de la photocathode dits photoélectron sont accélérés et guidés vers le premier Dynode. Si le nombre de ces photoélectrons qui frappent la première dynode est n_k , et le gain du Dynode est g_1 le nombre de photoélectron résultant du premier Dynode est $n_k \cdot g_1$. Ensuite, si ces les photoélectrons de la première dynode sont aussi guidés et accélérés par l'effet du champ électrique pour frapper la deuxième dynode et si le gain du deuxième dynode est g_2 , le nombre de photoélectron générés par le deuxième dynode sera $n_k \cdot g_1 \cdot g_2$. Ce processus se répète pour tous les dynodes. Si le PMT comprends N dynode, le nombre de photoélectrons accumulés au niveau de la dernière dynode est qui sera collecté par l'Anode est :

$$n_a = n_k \cdot \sum_{i=1}^N g_i \quad (2-2)$$

Avec n_a est le gain d'amplification du PMT.

2.2.2.1.6 Alimentation du photomultiplicateur

Les électrons sont accélérés et focalisés par l'effet du champ électrique appliqué entre les dynodes, et les gradients de potentiel requis sont obtenus grâce à un diviseur de tension placés aux bornes d'une alimentation haute tension (HT) comme montré dans la figure 2-4.

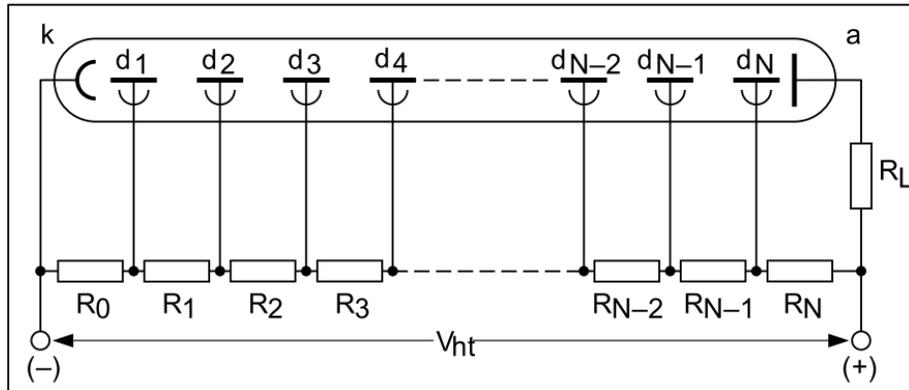


Figure 2- 4:diviseur de tension de la HT au borne d'un PMT [87]

2.2.2.1.7 Réponse spectrale d'un photomultiplicateur

Comme présenté dans la figure 2-5 la réponse spectrale d'un photomultiplicateur est généralement exprimé en termes de sensibilité radiante ou d'efficacité quantique comme fonctions de la longueur d'onde de lumière incidente. La sensibilité radiante est le courant photoélectrique de la photocathode divisée par l'énergie des photons incidents au longueur d'onde donnée, elle est exprimée en A/W . Alors que l'efficacité quantique (QE) est le nombre de photons émis par la photocathode, divisé par le nombre de photons incidents[88] . Pour une longueur d'onde donnée (λ), la sensibilité radiante et l'efficacité quantique d'un photomultiplicateur sont données par la relation suivante [89]:

$$QE = \frac{S \cdot 1240}{\lambda} \cdot 100 \quad (2-3)$$

Avec : S : est la sensibilité radiante de la photocathode en A/W à la longueur d'onde λ en (nm).

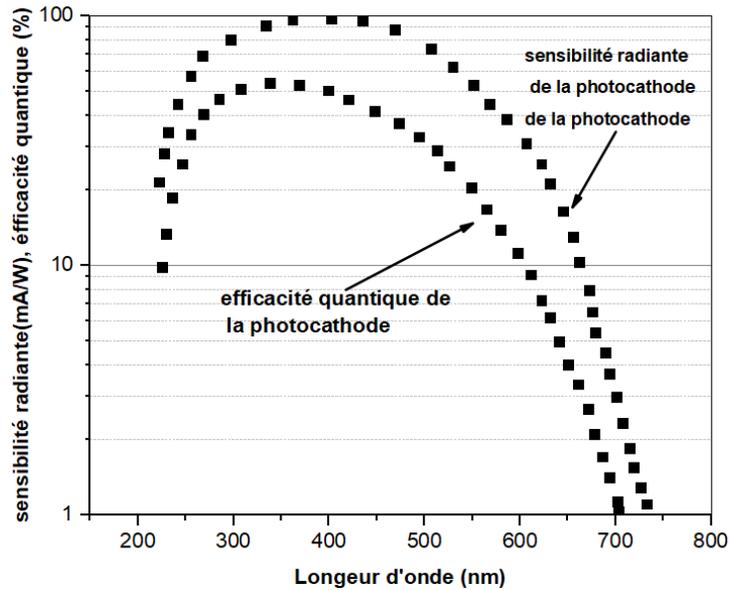


Figure 2- 5: Réponse spectrale typique d'un photomultiplicateur de photocathode Bi-alkali [89]

2.2.2.1.8 Charge électrique en sortie du photomultiplicateur

La charge électrique totale (Q_{tot}) en sortie d'un photomultiplicateur est donnée par la formule suivante :

$$Q_{tot} = N_{ph} \cdot QE \cdot CE \cdot G \cdot q_e \quad (2-4)$$

Avec : G : est le gain d'amplification du photomultiplicateur, QE : est l'efficacité quantique de la photocathode (elle est de 20 à 40% à $\lambda = 400 \text{ nm}$ [90]), N_{ph} : nombre de photons de scintillation captés à la photocathode, CE : est l'efficacité de collection en la première dynode (>80 %), et q_e : est la charge élémentaire ($1.6 \times 10^{-6} \text{ C}$) .

2.2.2.1.9 Règles de sélection d'un photomultiplicateur

Le choix d'un PMT est guidé initialement par le domaine d'application, néanmoins, les caractéristiques de la lumière à mesurer sont les clés de cette sélection. Le tableau 2-1 montre les règles générales de sélection d'un PMT.

Tableau 2- 1 : Règles de sélection d'un PMT [86]

Conditions sur photons incidents	Sélection du PMT
Longueur d'onde	<ul style="list-style-type: none"> • Matériau de la fenêtre ; • Réponse spectrale de la photocathode.
Intensité	<ul style="list-style-type: none"> • Nombre de dynodes ; • Type de la dynode ; • Tension appliquée aux dynodes.
Taille de flux optiques	<ul style="list-style-type: none"> • Diamètre effective • Configuration envisagée (transmission, réflexion)
Vitesse des phénomènes optiques	<ul style="list-style-type: none"> • Réponse temporelle

2. 2. 3 Le préamplificateur

Le signal de sortie d'un détecteur à scintillation (scintillateur + photo-détecteur) est une quantité de charge Q libérée suite à une interaction avec le rayonnement incident. Pour la plupart détecteurs, la charge est si petite qu'il est impraticable de traiter les impulsions du signal sans une étape d'amplification intermédiaire. Le premier élément d'une chaîne de traitement de signal est donc souvent un préamplificateur (figure 2-6).

En raison de leurs amplitudes très faibles, les signaux (impulsions) correspondant à la quantité d'énergie dissipée, mesurée directement à la sortie des détecteurs à scintillation, et pour qu'il soient correctement traités par les amplificateurs, des préamplificateurs sont utilisés pour une pré-amplification. Les préamplificateurs sont placés le plus près possible des détecteurs afin d'améliorer le rapport signal-sur-bruit [21], toute en préservant la proportionnalité des amplitudes des impulsions avec l'énergie dissipée dans le scintillateur. Le préamplificateur sert ainsi comme un adaptateur d'impédance [57], qui permet un transfert maximum de puissance entre l'étage photo- détecteur et amplificateur.

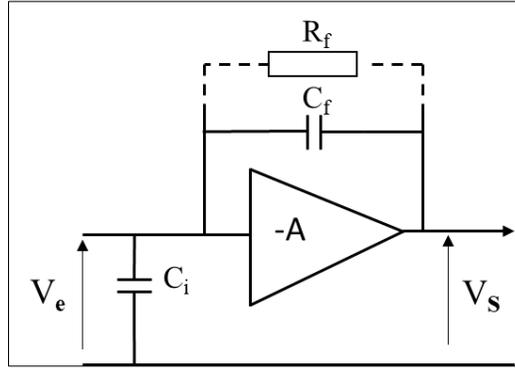


Figure 2- 6 : configuration de base d'un préamplificateur de charges.

Les charges générées à la photocathode du photo-détecteur qui sont proportionnelles à la quantité d'énergie dissipée dans le scintillateur, sont collectées par le préamplificateur. L'amplitude du signal de sortie du préamplificateur peut être décrit par l'équation suivante [91]:

$$V_S = -A \cdot V_e \quad (2-5)$$

Avec C_i représente la capacitance du détecteur plus la capacité parasite [92], Q_i est la charge produite dans le détecteur. La capacité de rétroaction C_f est réfléchié à l'entrée avec une valeur de $(A + 1) \cdot C_f$ et agit en parallèle avec C_i (capacitance du détecteur). Par conséquent, la capacité d'entrée effective est égale à $C_i + (A + 1) \cdot C_f$. Étant donné que le gain en boucle ouverte de l'amplificateur opérationnel est très élevé, toute variation de la capacité du détecteur sera noyée par $C_f (A + 1)$.

$$V_e = \frac{Q_i}{C_i + (A + 1) \cdot C_f} \quad (2-6)$$

$$V_S = -A \cdot \frac{Q_i}{C_i + (A + 1) \cdot C_f} \quad (2-7)$$

Comme A est très grand, et $C_f \gg C_i$: la tension du signal d'entrée peut s'écrire $V_e \cong \frac{Q_i}{A \cdot C_f}$, et donc :

$$V_S \cong -\frac{Q_i}{C_f} \quad (2-8)$$

2. 2. 4 Electronique d'amplification et de mise en forme

Avant d'être traité par les étages de traitement de l'amplificateur, le signal de sortie du préamplificateur doit d'abord être amplifié pour adapter son amplitude à la dynamique d'entrée requise. L'amplificateur assure également une mise en forme du signal en utilisant des circuits de dérivation et d'intégration comme les réseaux CR et RC, ce qui permet la modification de la forme de l'impulsion issue du préamplificateur, pour avoir une forme souhaitée suite à des opérations de dérivation et d'intégration successives.

Dans la terminologie des circuits électroniques, le terme *mise en forme par circuit RC* fait référence à l'utilisation de réseaux passifs de résistances-condensateurs pour effectuer des modifications souhaitées sur la forme des impulsions en sortie des préamplificateurs. Dans le processus de mise en forme des impulsions nucléaires, il est important de distinguer entre les réseaux dérivateurs ou CR d'une part, et les réseaux intégrateurs ou RC d'autre part. Les deux opérations peuvent également être considérées comme un filtrage (filtre passe haut et passe bas) dans le domaine fréquentiel, et l'un des objectifs de la mise en forme des impulsions nucléaires est d'améliorer le rapport signal sur bruit en limitant la réponse de l'instrumentation aux plages de fréquences dans lesquelles le signal a des composants utiles, et en réduisant au maximum la transmission des composantes fréquentielles des différentes sources de bruit [93].

Dans les deux types de réseaux, la constante de temps donnée par le produit de la résistance R et de la capacité C joue un rôle critique. Dans l'analyse qui suit, nous représentons cette constante de temps par τ , où :

$$\tau = RC \quad (2-9)$$

2.2.4.1 Circuit dérivateur CR ou filtre passe haut

Un réseau dérivateur de base CR est schématisé dans la figure 2-7.

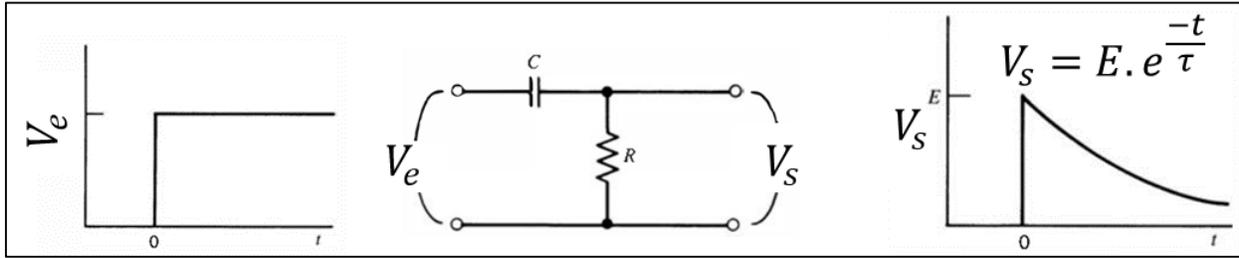


Figure 2- 7:Un filtre CR passe-haut ou un réseau différenciateur. La réponse à une fonction échelon est illustrée.

D'après les équations du circuit, la tension d'entrée V_e et la tension de sortie V_s sont liées par l'équation suivante :

$$V_e = \frac{Q}{C} + V_s \quad (2-10)$$

Où Q représente la charge stockée aux bornes du condensateur C :

La dérivation par rapport au temps de l'équation 2-10 donne [94] :

$$\frac{dV_e}{dt} = \frac{1}{C} \cdot \frac{dQ}{dt} + \frac{dV_s}{dt} \quad (2-11)$$

$$\frac{dV_e}{dt} = \frac{1}{C} \cdot i + \frac{dV_s}{dt} \quad (2-12)$$

En notant que $V_s = R \cdot i$ et que $RC = \tau$, on obtient :

$$\frac{dV_e}{dt} = \frac{1}{C} \cdot \frac{V_s}{R} + \frac{dV_s}{dt} = \frac{1}{\tau} V_s + \frac{dV_s}{dt} \quad (2-13)$$

En multipliant par τ , on obtient :

$$V_s + \tau \frac{dV_s}{dt} = \tau \frac{dV_e}{dt} \quad (2-14)$$

Si la valeur de RC est suffisamment petite, le second terme à gauche peut être négliger, et on obtient :

$$V_s \cong \tau \frac{dV_e}{dt} \quad (2-15)$$

Ainsi, dans la limite de la petite constante de temps τ , le réseau agit pour produire une sortie V_s qui est proportionnelle à la dérivée de la forme de l'impulsion d'entrée V_e , d'où le nom de dérivateur. Pour remplir ces conditions, la constante de temps doit être faible devant la durée de l'impulsion à dériver. A l'extrême opposé, pour une grande valeur de la constante de temps τ , le premier terme à gauche de 2-14 (V_s) peut être négligé, et nous pouvons obtenir :

$$\tau \frac{dV_s}{dt} \cong \tau \frac{dV_e}{dt} \quad (2-16)$$

Donc :

$$V_s \cong V_e \quad (2-17)$$

Par conséquent, si les conditions de dérivation ne sont pas remplies, le réseau aura tendance à laisser passer la forme de l'impulsion sans aucune altération[21].

Pour un signal d'entrée de type échelon unité :

$$V_e = \begin{cases} V & (t \geq 0) \\ 0 & (t < 0) \end{cases}$$

Le signal de sortie du réseau dérivateur est de forme :

$$V_s = V \cdot e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (2-18)$$

Étant donné que les impulsions en sortie du préamplificateur se superposent dans le temps, le premier étage du circuit de mise en forme (l'amplificateur) est un filtre passe-haut ou dérivateur. Cette étape passe sans modification du front montant de l'impulsion de sortie du préamplificateur, alors que la queue de l'impulsion revient rapidement à la ligne de base après une dérivation, afin que les impulsions suivantes puissent être traitées avec précision [91].

2.2.4.2 Circuit intégrateur RC ou filtre passe bas

Un circuit intégrateur de base RC est schématisé dans la figure 2-8 .

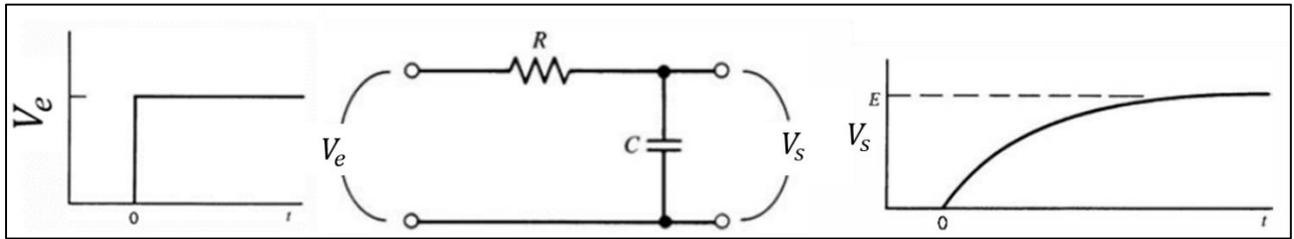


Figure 2- 8: un filtre passe bas ou intégrateur, la réponse à un échelon est illustrée.

Le signal de sortie et d'entrée du réseau intégrateur sont reliés par l'équation suivante :

$$V_e = iR + V_s \quad (2-19)$$

Le courant i représente le taux de charge ou de décharge du condensateur C :

$$i = \frac{dQ}{dt} = C \frac{dV_c}{dt} = C \frac{dV_s}{dt} \quad (2-20)$$

En combinant les équations 2-19 et 2-20, et mettant $RC = \tau$, on obtient :

$$V_e = \tau \cdot \frac{dV_s}{dt} + V_s \quad (2-21)$$

$$\frac{dV_s}{dt} + \frac{1}{\tau} V_s = \frac{1}{\tau} V_e \quad (2-22)$$

Maintenant, si RC est suffisamment grand, seul le premier terme à gauche de l'équation 2-22 est significatif, nous avons donc :

$$\frac{dV_s}{dt} \cong \frac{1}{\tau} V_e$$

Alors :

$$V_s \cong \frac{1}{\tau} \int V_e dt \quad (2-23)$$

D'où le nom intégrateur, et le réseau RC intègre le signal d'entrée dans la condition d'une constante de temps τ est grand.

Dans l'extrême du cas opposé, et dans le cas d'une constante de temps τ petit, seul le second terme à gauche de l'équation 2-22 ($\frac{1}{\tau}V_s$) est significatif, et donc:

$$\frac{1}{\tau} V_s \cong \frac{1}{\tau} V_e \quad (2-24)$$

Alors :

$$V_s \cong V_e \quad (2-25)$$

Par conséquent, si les condition d'intégration ne sont pas remplies, le réseau intégrateur tends à passe l'impulsion d'entrée sans aucune modification.

Pour un signal d'entrée de type échelon unité :

$$V_e = \begin{cases} V & (t \geq 0) \\ 0 & (t < 0) \end{cases}$$

Le signal de sortie du réseau dérivateur est de la forme :

$$V_s = V(1 - e^{-\frac{t}{\tau}}) \quad (2-26)$$

2.2.4.3 Circuit dérivateur intégrateur CR-RC

L'impulsion à la sortie d'un seul réseau de différenciation, qui représente la réponse à une entrée échelon tel qu'il est illustré dans la figure 2-9, n'est pas une forme adéquate pour les systèmes d'analyse d'impulsions (le convertisseur analogique numérique CAN et l'analyseur multicanaux AMC). Le pic très pointu rend difficile l'analyse ultérieure de la hauteur de l'impulsion car l'amplitude maximale n'est maintenue que pendant une très courte période de temps d'une part [21]. D'autre part, étant donné que la différenciation (filtre passe haut) permet à toutes les composantes haute fréquences (front montant de l'impulsion) d'être transmises par le réseau sans modification. Si une étape d'intégration RC est ajoutée après la différenciation, ces deux inconvénients sont cependant considérablement améliorés.

La combinaison d'un seul étage de différenciation suivi d'un seul étage d'intégration est en fait une méthode très utile pour la mise en forme des impulsions du préamplificateur. La figure 2-9 montre les éléments du réseau de mise en forme CR-RC de base. Un amplificateur opérationnel

à gain unitaire (avec une impédance d'entrée infinie et une impédance de sortie nulle) sépare les deux réseaux individuels pour l'isolation d'impédance afin qu'aucun des réseaux n'influence le fonctionnement de l'autre [91,95].

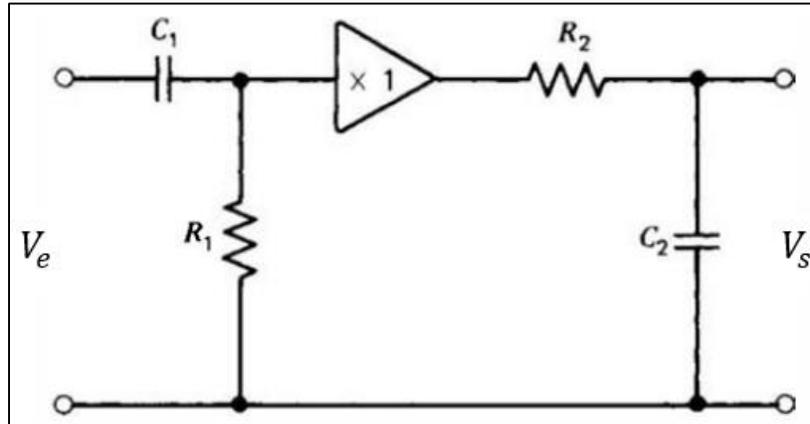


Figure 2- 9: réseau mise en forme de type CR-RC

La réponse du réseau combiné, à un échelon de tension d'amplitude E à t=0 est :

$$V_s = \frac{E \cdot \tau_d}{\tau_d - \tau_{int}} \left(e^{-\frac{t}{\tau_d}} - e^{-\frac{t}{\tau_{int}}} \right) \quad (2-27)$$

Avec τ_d et τ_{int} sont les constantes de temps des réseaux de différenciation et d'intégration respectivement. En général, dans les amplificateurs d'impulsion nucléaires, la mise en forme des impulsions nucléaires par des réseaux CR-RC se fait en considérant des temps de différenciation et d'intégration égaux, et dans ce cas l'équation 2-25 devienne indéterminée, en appliquant le théorème de L'Hôpital, et lorsque ($\tau_d \rightarrow \tau_{int}$) :

$$V_s \cong \frac{E \cdot t}{\tau} \left(e^{-\frac{t}{\tau}} \right) \quad (2-28)$$

La figure 2-10 présente des impulsions mises en forme à la sortie du réseau CR-RC avec des temps d'intégration et de différenciation τ_{int} , τ_d variables.

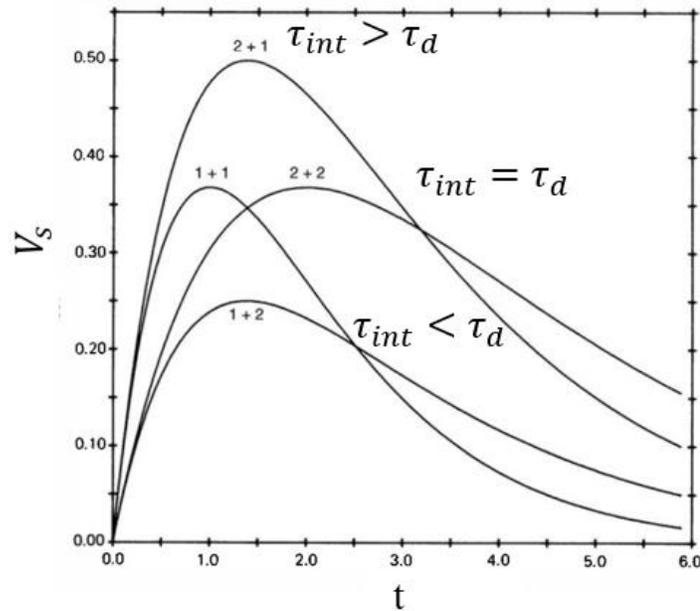


Figure 2- 10: forme de l'impulsion à la sortie d'une circuit de mise en forme CR-RC pour des constantes de dérivation et d'intégration de différentes valeurs.

2.2.4.4 Constante du temps de mise en forme

Les impulsions de sortie du préamplificateur, différenciées, sont ensuite amplifiées à des tensions requises par les circuits de traitement ultérieurs. La présence de bruit haute fréquence dans le signal, nécessite que l'impulsion amplifiée est ensuite transmise à un filtre passe-bas ou à un intégrateur pour améliorer le rapport signal sur bruit. L'impulsion mise en forme résultante est caractérisée par un temps de montée τ_{int} dit constante du temps d'intégration et un temps de décroissance τ_d dit constante de temps de différenciation. Ces deux valeurs sont généralement fixées égales ($\tau_{int} = \tau_d$) et donne la constante de temps de mise en forme τ (ou shaping time) [91,95]. Par conséquent, l'impulsion mise en forme a alors une durée d'ordre τ .

Les amplificateurs de mise en forme commerciaux disposent des temps de mise en forme réglables, et de valeur allant de quelques centaines de ns à quelques dizaines de μ s. Le temps de mise en forme peut être réglé en considérant le temps de collection de charge dans le détecteur [91].

2. 2. 5 Le convertisseur analogique numérique CAN

La fonction de base d'un convertisseur analogique numérique (CAN) est de produire une séquence de codes numériques (ou nombre) à sa sortie, qui est proportionnel à la tension analogique fournie à son entrée. Les conversions sont effectuées en continu à une fréquence d'horloge fixe. Une horloge de 100 MHz produira 100 méga-échantillons par seconde (MSPS), soit un échantillon toutes les 10 ns. Dans une chaîne de détection, Le convertisseur analogique numérique est suivi par un détecteur de pic (amplitude maximale de l'impulsion) qui permet de détecter les pics des impulsions numérisées, c'est les pics des impulsions qui seront utilisées par la suite pour la reconstruction des spectres d'énergies (histogrammes). En fin de chaîne, l'analyseur multicanaux compte, trie et range les impulsions en fonction de leur amplitude, qui correspondent aux énergie déposées dans le détecteur, dans des canaux. Le nombre de canaux peut varier en fonction du nombre de bit du CAN (de 1024 pour un CAN de 10 bits à 16384 pour un CAN de 14 bits).

2. 2. 6 L'analyseur multicanaux

Les signaux issus de la lumière de scintillation (impulsions électriques), amplifiés et mises en formes adéquates par l'amplificateur, sont collectés et classés selon leurs amplitudes par un analyseur multicanaux (AMC). À la sortie de l'AMC, les impulsions classées sont présentées sous forme d'histogramme appelé *spectre d'énergie*. Dans la figure 2-11 nous schématisons un montage type d'une chaîne de détection à base d'un scintillateur inorganique de type monocristal NaI(Tl). Le cristal est couplé optiquement au photomultiplicateur avec de la graisse optique, et excité par des rayonnements γ d'une source Cs-137 de 662 keV. Les photons créés par le scintillateur sont détectés par le photomultiplicateur qui fournit en réponse des signaux sous forme d'impulsions électriques à l'anode. Ces impulsions sont intégrées avec un préamplificateur. Le signal obtenu est ainsi amplifié et mis en forme adéquate (forme semi-gaussienne) par un amplificateur. Pour être classées et comptabilisées, les impulsions à la sortie de l'amplificateur sont numérisées par un convertisseur analogique numérique (CAN), qui peut être un module indépendant ou intégré dans le même boîtier avec l'analyseur multicanaux (AMC).

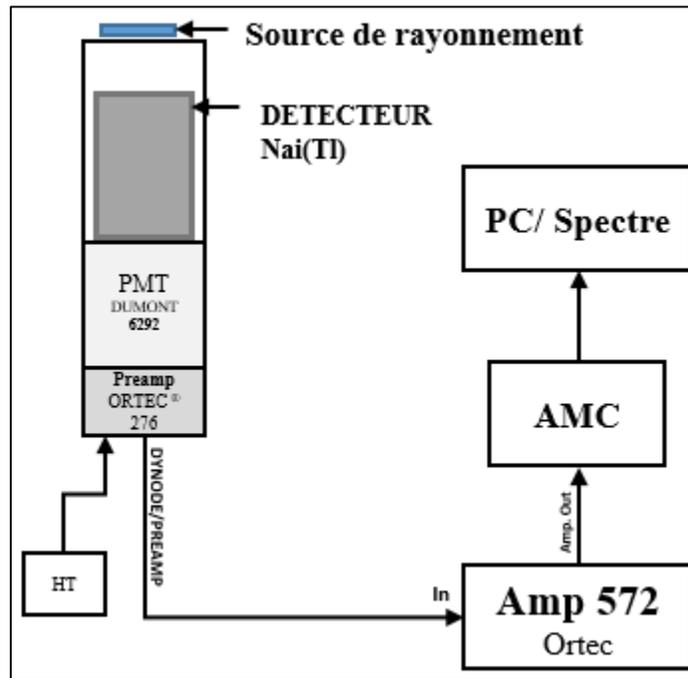


Figure 2- 11:synoptique d'une chaine de détection typique à base d'un scintillateur NaI(Tl).

Les impulsions de scintillation (impulsions) sont classés et comptabilisés par l'AMC. Chaque impulsion est classée dans le canal de AMC correspondant à son amplitude, qui est proportionnel à l'énergie déposée sur le détecteur (figure 2-12). Le numéro du canal dépend de l'intensité du courant I de l'impulsion à l'anode du Photomultiplicateur et par conséquent, du nombre de photoélectrons générées sur la photocathode. Le nombre de canaux est défini par le nombre de bit du convertisseur analogique numérique. Les évènements sont enfin classés et comptabilisés dans un histogramme dit 'spectre d'énergie' ou 'pulse height spectra': les impulsions de même amplitudes A_i sont classées et comptabilisées au niveau du canal numéroté i [96].

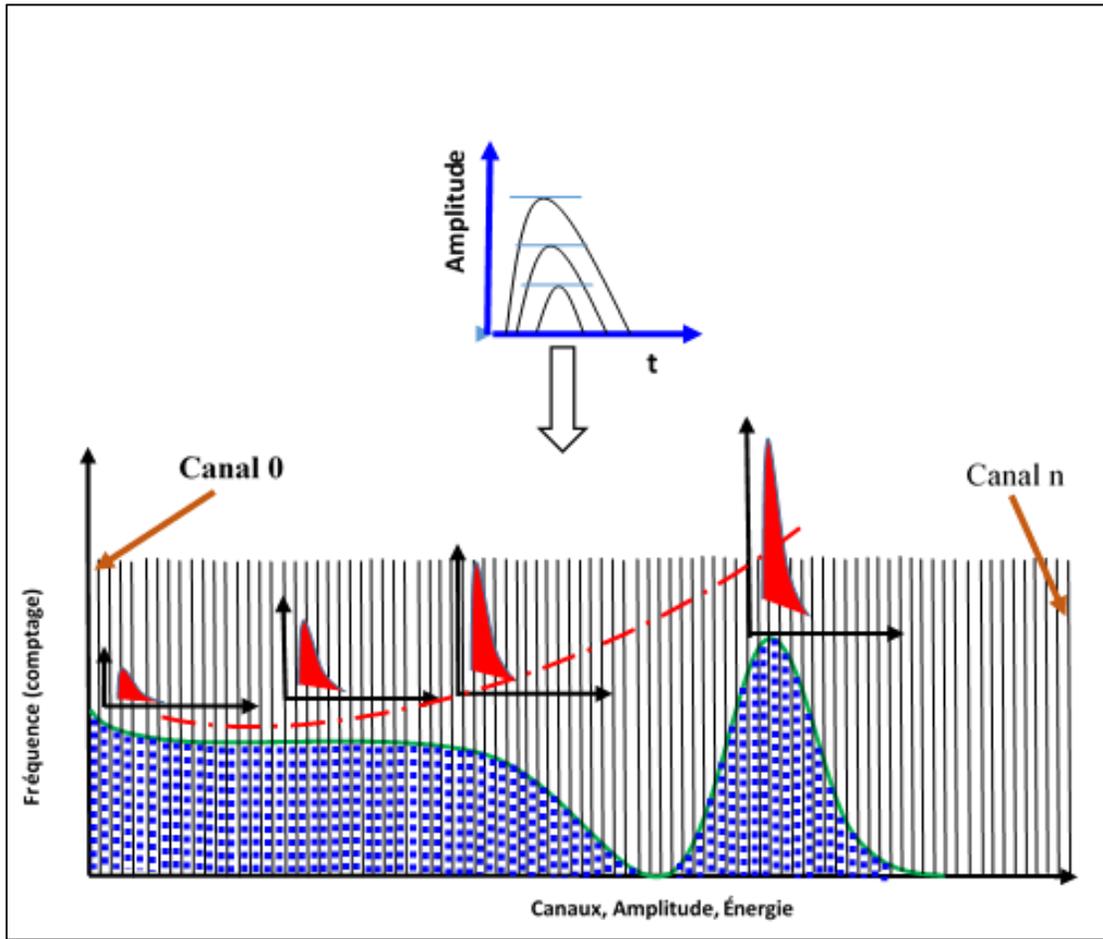


Figure 2- 12: classification des impulsions par l'analyseur multicanaux dans le spectre d'énergie.

2.3 Interprétation des spectres

L'analyse du spectre d'énergie obtenu par un détecteur à scintillation, mesuré par chaîne de détection, permet d'extraire des informations liées à l'énergie des radionucléides sources de rayonnements Gamma/X, de particules- α utilisés pour l'excitation du détecteur, et c'est la technique dite spectrométrie utilisée largement pour l'identification des éléments radioactifs présents dans des échantillons et des substances issues de différents environnements d'une part, et d'autre part d'extraire des informations sur les caractéristiques techniques liées aux détecteurs, on cite par exemple : la résolution, la linéarité, l'efficacité, ainsi que les caractéristiques temporelles tels que le temps mort d'une autre part. dans cette étude nous nous intéressons aux interprétations liées à la caractérisation des détecteurs scintillateurs plutôt que la spectrométrie des éléments radioactifs.

Une bonne interprétation des spectres d'énergies nécessite une bonne connaissance des interactions des rayonnements avec la matière du détecteur, ce qui nous oblige ici de mettre la lumière sur les différentes interactions qui se produites au sein des détecteurs à scintillation, et c'est l'objet de la section suivante de ce chapitre.

2. 3. 1 Interaction des rayonnements Gamma avec matière

Les détecteurs à scintillation sont généralement concernés par la mesure des gammes d'énergies allant de 1keV à 10 MeV [96], lorsque la matière du détecteur absorbe une particule, ou un photon d'un rayonnement ionisant, il y aura lieu à la production de trois processus principaux : *l'absorption photoélectrique*, *la diffusion Compton* et *la création de paires électron-positron* [21,97]. Chaque processus d'interaction est lié à une certain probabilités et à des conditions sur l'énergie des rayonnements incidents, ainsi que sur le numéro atomique Z du matériau détecteur.

La figure 2-13 présente les probabilité d'occurrence de chaque processus d'interaction des rayonnements ionisants avec le milieu détecteur, où chaque processus est dominant dans une plage définit par l'énergie incidente et par le numéro atomique de la matière du détecteur.

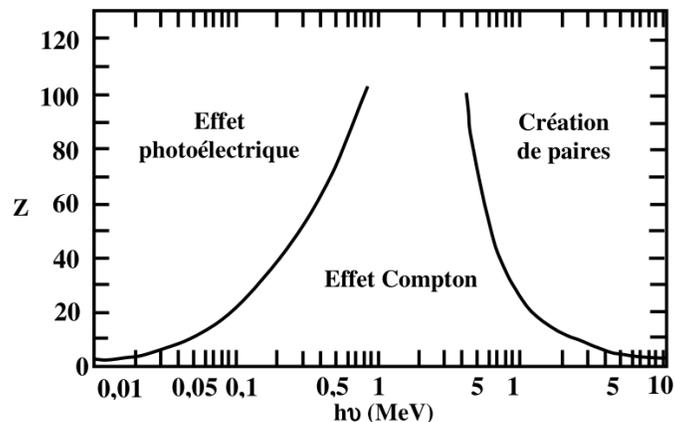


Figure 2- 13: dominance relative des trois types d'interaction des rayonnements gamma avec la matière, la ligne à gauche montre l'énergie pour laquelle les probabilités de l'effet photoélectrique et de la diffusion Compton sont égaux, et la ligne à droite montre l'énergie pour laquelle les probabilités de la diffusion Compton et de création de paires sont égaux [21,96]

2.3.1.1 L'absorption photoélectrique

Dans le processus d'absorption photoélectrique, le photon du rayonnement incident subit une interaction avec l'atome de la matière du détecteur dans laquelle il disparaît complètement en

transférant la totalité de son énergie à un électron de l'atome (couche K ou L) [87], ce qui conduit à son éjection avec une énergie cinétique égale à la différence entre l'énergie du photon incident $h\nu$ et l'énergie de liaison de l'électron éjecté [21], selon l'équation suivante.

$$E_e = h\nu - E_L \quad (2-29)$$

La lacune électronique créée dans la couche de l'atome est rapidement remplie par la capture d'un électron libre du milieu, ou d'un électron des autres couches supérieurs de l'atome qui se traduit par le processus de réarrangement électronique. Ce dernier cas conduit alors à une émission d'un rayon X ou l'émission d'un électron Auger. Le rayonnement X émis, peut en général être réabsorbée par le matériau par le processus photoélectrique à proximité du l'endroit de son origine, ou échappé du détecteur en influençant son réponse par l'apparition d'une signature caractéristique (X caractéristique) du matériau absorbant sous forme d'un pic sur le spectre d'énergie. Dans le cas de l'échappement du rayon X hors du matériau détecteur, on peut considérer que la somme des énergies cinétiques des électrons créés suite à l'interaction photoélectrique et l'énergie du X échappé sera égale à l'énergie du photon Gamma incident.

L'interaction par une absorption photoélectrique est dominante dans le cas des photons de faibles énergies (quelques dizaines de keV), elle est favorisée ainsi dans le cas des matériaux d'atomes de numéro atomique Z élevé. Il n'y a pas d'expression analytique valable pour la probabilité d'absorption photoélectrique par atome et sur toute la gamme d'énergie E_γ et du numéro atomique Z mais plutôt une approximation donnée par:

$$\tau \cong \text{constant} \cdot \frac{Z^n}{E_\gamma^{3.5}} \quad (2-30)$$

Avec n varie entre 4 et 5 [21].

2.3.1.2 La diffusion Compton

Dans le processus d'interaction avec la diffusion Compton, Le photon transfère une partie seulement de son énergie à un électron au repos (libre ou faiblement lié). Ce transfert provoque à la fois l'éjection de l'électron appelé électron de recul et la déviation du photon incident d'un angle θ de sa trajectoire initiale, l'angle θ est fonction de l'énergie du photon, de l'énergie transférée à l'électron et de la masse de l'électron au repos (511 keV). Comme tous les angles de diffusion sont

possibles, l'énergie transférée à l'électron peut varier de zéro à une grande partie de l'énergie des rayons Gamma incident lorsque $\theta = \pi$ (figure 2-14). L'expression reliant le transfert d'énergie et l'angle de diffusion du photon incident, pour toute interaction donnée, peut être dérivée des équations de conservation de l'énergie [98]:

$$h\nu' = \frac{h\nu}{1 + \frac{h\nu}{m_0c^2}(1 - \cos\theta)} \quad (2-31)$$

Avec : $h\nu'$ est l'énergie du photon diffusé, $h\nu$ est l'énergie du photon incident, m_0c^2 est l'énergie de masse de l'électron au repos (= 511 keV).

Le photon Gamma secondaire $h\nu'$ pourra à la fois être réabsorbé par le milieu selon les mêmes conditions que le photon gamma primaire $h\nu$, ou échappé du détecteur.

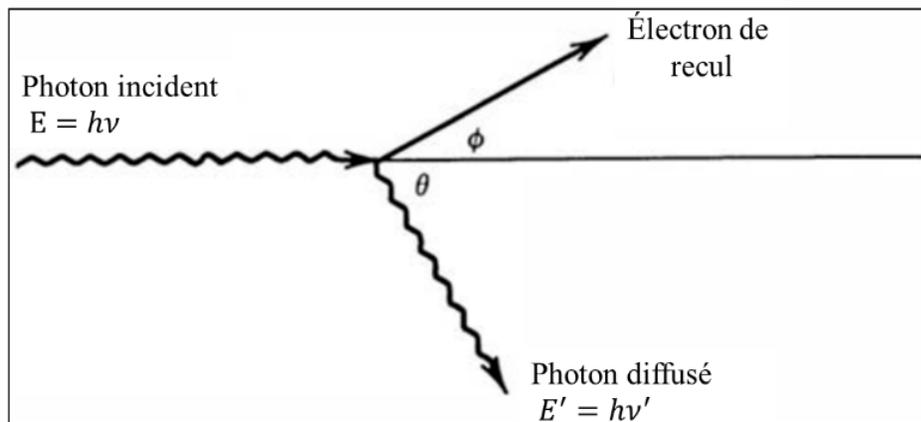


Figure 2- 14:principe de d'interaction par diffusion Compton

La probabilité de diffusion Compton est elle-même proportionnelle au numéro atomique Z. De plus, cette probabilité diminue pour des photons incidents d'énergie élevée.

L'interaction par diffusion comptant est dominante pour les photons incidents d'énergie supérieurs à une centaine de keV et inférieur à quelques MeV.

Dans le processus d'interaction par diffusion Compton des rayonnements Gamma avec le matériau scintillateur, et dans le cas où le photon diffusé quitte le scintillateur, la quantité de la lumière produite est inférieur à la quantité produite par effet photoélectrique.

2.3.1.3 Création de paires Électron- Positron

Pour les photons (Gamma) incidents de hautes énergie ($E_\gamma > 1,02 \text{ MeV}$), le processus de création de paires électron-positron devient possible, le photon incident est complètement absorbé et convertit en paire électron-positron ($\beta^- - \beta^+$) [97]. Le positron β^+ est ensuite annihilé avec un électron du milieu détecteur et donne lieu à la naissance de deux photons Gamma dits photons secondaires d'énergies $E_{\gamma 1}$ et $E_{\gamma 2}$ de 511 keV chacun, et de déphasage de 180° l'un par rapport à l'autre.

Le processus de création de paires électron-positron devient dominant aux très hautes énergies (plusieurs MeV). L'excédent d'énergie est transmis sous forme d'énergie cinétique à l'électron et au positron. En pratique, le parcours moyen du positron est suffisamment faible pour que les deux photons gamma puissent être considérés comme émis au même endroit de la création de paire originelle. La probabilité d'absorption (K_{paire}) par atome de numéro atomique Z par ce processus est proportionnelle à Z^2 [91]:

$$K_{paire} = Z^2 \ln\left(\frac{2E}{m_0 c^2}\right) \quad (2-32)$$

Avec $m_0 c^2$ est l'énergie de masse de l'électron au repos (511 Kev).

Les deux photons Gamma créés ainsi dans le matériau scintillateur peuvent de leur part être réabsorbés par le matériau par effet photoélectrique, ou être échappés du matériau détecteur en simple ou en double échappements, il en résulte dans le spectre d'énergie un ou deux pics dits de simple ou de double échappement.

Parmi les trois types principaux d'interactions, seule l'interaction par effet photoélectrique conduit à une absorption totale de l'énergie du photon Gamma incident, sous forme d'énergie cinétique d'électrons primaires émis à l'endroit de l'excitation. Les interactions par diffusion Compton ou par création de paires ($\beta^- - \beta^+$) vont conduire à la perte d'une fraction de l'énergie du photon incident due à l'échappement des photons Gamma secondaires, et à la diffusion de photons secondaires dans tout le matériau scintillateur, susceptibles d'interagir à leur tour à un endroit plus loin ou de s'échapper complètement du matériau. La capacité du détecteur à obtenir des informations relatives à l'énergie du rayonnement incident est donc dégradée. Pour minimiser les pertes liées aux interactions par diffusion Compton et par création de paires, il est nécessaire de

maximiser le taux d'absorption par effet photoélectrique. Pour cela, et vu que les sections efficaces d'absorption par atome pour les trois processus d'interaction dépendent fortement du numéro atomique Z , l'étude d'évaluation des scintillateurs doit en premier lieu passer par l'étude du numéro atomique Z [96]. On définit ainsi un numéro atomique effectif Z_{eff} qui sera considéré dans le cas des matériaux scintillateurs mixés ou composés de plusieurs éléments :

$$Z_{eff}^x = \sum_i w_i Z_i^x \quad (2-33)$$

Avec w_i est la fraction massique de l'élément i de numéro atomique Z dans la formule chimique du matériau, et n est une valeur comprise entre 3 et 4 [91].

2. 3. 2 Interaction des particules chargées

Lorsque des particules chargées, telles que les électrons, les protons, les particules- α et les positrons pénètrent dans la matière, elles entrent en collision avec les atomes qui composent cette dernière. Cette interaction est régie par les forces électromagnétiques qui s'exercent entre les particules chargées de charges positives et les électrons orbitaux, de charges négatives des atomes du matériau absorbant.

Lorsqu'elle pénètre dans un milieu absorbant, la particule chargée interagit immédiatement et simultanément avec de nombreux électrons. Lors de chaque rencontre, l'électron ressent une impulsion provenant de la force de Coulomb attractive alors que la particule passe à proximité.

Selon la proximité de la rencontre, cette impulsion peut être suffisante soit pour élever l'électron à une couche plus élevée à l'intérieur de l'atome absorbant (excitation), soit pour retirer complètement l'électron de l'atome (ionisation). L'énergie transférée à l'électron doit provenir au détriment de la particule chargée, et sa vitesse est donc réduite en conséquence de la rencontre.

L'énergie maximale pouvant être transférée d'une particule chargée de masse m avec une énergie cinétique E à un électron de masse m_0 lors d'une collision unique est de $4 E m_0 / m$, soit environ 1/500 de l'énergie de la particule par nucléon. Étant donné que c'est une petite fraction de l'énergie totale, la particule primaire doit perdre son énergie lors de nombreuses de telles interactions lors de son passage à travers un absorbant. À tout moment donné, la particule interagit

avec de nombreux électrons, de sorte que l'effet net est de diminuer continuellement sa vitesse jusqu'à ce que la particule soit stoppée.

2. 3. 3 Composition du spectre d'énergie

Le spectre d'énergie est composé de plusieurs composantes résultantes des différentes interactions des photon Gamma/X avec le milieu scintillateur. Le spectre d'énergie ne contient que les signatures relatives aux énergies absorbées par le scintillateur, néanmoins, ces signatures sont marquées par des signaux issues des interactions produites à l'intérieur comme à l'extérieur du scintillateur (environnement extérieur du scintillateur, Ex : château de plomb). Cela veut dire, que même les signaux sont dus au même type d'interaction, la signature sur le spectre est liée par l'endroit d'occurrence de l'interaction. L'interprétation du spectre d'énergie doit donc considérer non seulement le type d'interaction, mais aussi le lieu de cette interaction, la figure 2-15 englobe la majorité des interactions qui peuvent être produites dans un détecteur à scintillation.

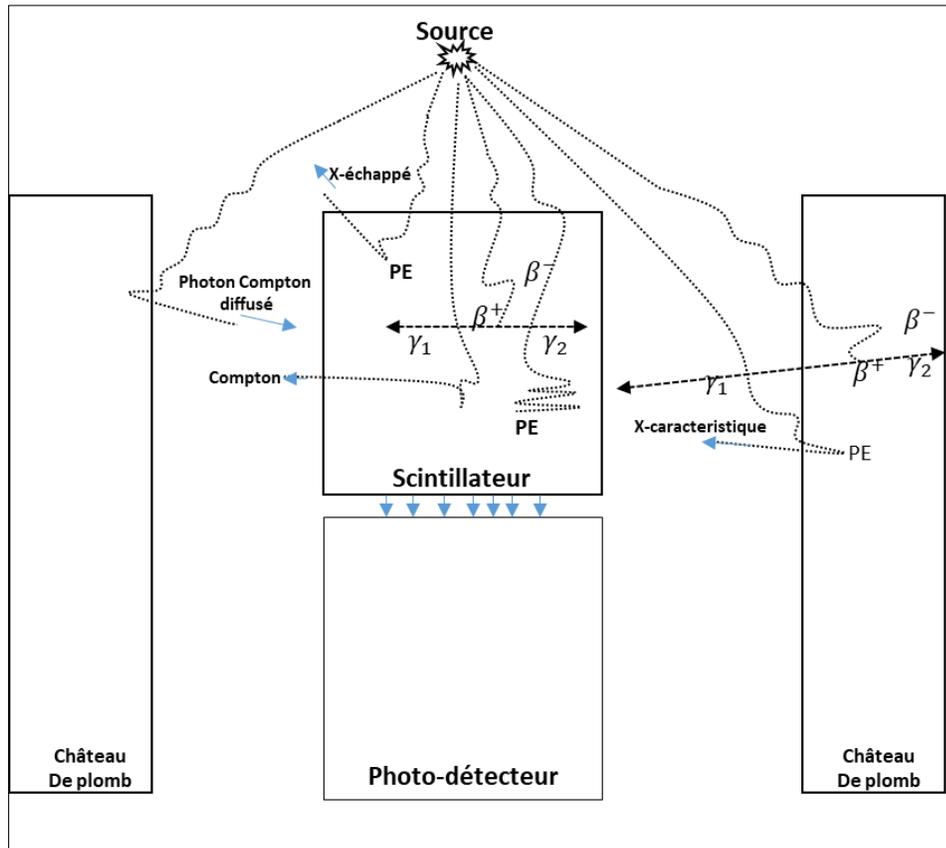


Figure 2- 15: principaux types d'interaction des rayonnements Gamma avec un détecteur à scintillation [98].

2.3.3.1 Interaction à l'intérieur du matériau scintillateur

2.3.3.1.1 Le pic photoélectrique (pic d'absorption totale)

La proportionnalité entre l'énergie primaire E_γ absorbée dans le scintillateur, et le nombre moyen de photons de scintillation captés à la photocathode du photomultiplicateur, dépend des processus d'interaction par lesquels le rayonnement incident absorbé dans le scintillateur libère des électrons et excite ainsi la fluorescence. S'il n'y avait que le processus photoélectrique, le spectre d'énergie dû à une source mono énergétique de rayonnement Gamma/X consiste en un seul pic dit le pic d'énergie totale ou d'absorption totale (figure 2-16), il correspondant à l'énergie d'excitation primaire E_γ , ce type de spectre est très probable dans les gros scintillateurs où la totalité de l'énergie incidente peut être facilement absorbée.

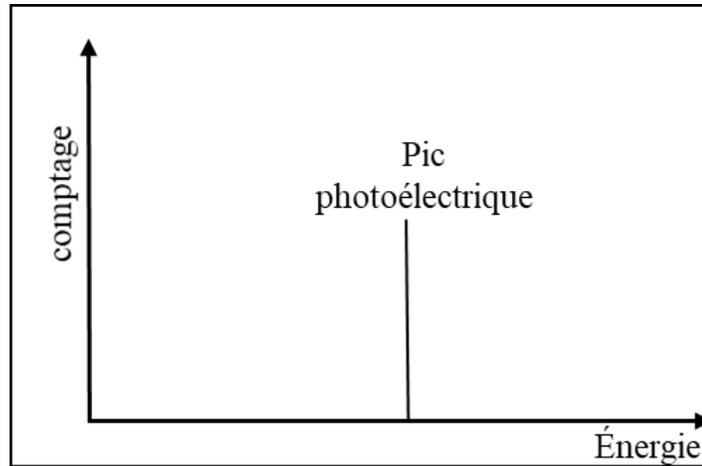


Figure 2- 16: pic d'absorption totale dans un spectre d'énergie (cas idéal).

2.3.3.1.2 Plateau Compton

La diffusion Compton conduit à des impulsions d'amplitudes différentes, cette différence est due à l'angle de diffusion θ variable des photons Gamma secondaires. Si ces photons secondaires sont totalement réabsorbés par le scintillateur, les signaux correspondants sont comptabilisés dans le spectre avec le pic photoélectrique. Dans le cas d'échappement des photons Gamma secondaire, les signaux produits sont inférieures à ceux qui correspondent à l'effet photoélectrique, et dans ce cas, ces impulsions sont d'amplitudes variables d'une valeur minimale à $\theta = 0^\circ$ à une valeur maximale lorsque $\theta = 180$. Ces impulsions ne sont pas comptabilisées dans le spectre d'énergie comme une valeur d'énergie unique, mais plutôt comme des valeurs différentes sur une plage dite *plateau Compton*. L'amplitude maximale d'une impulsion due à une diffusion Compton est comptabilisée dans l'endroit dit *frontière Compton*. La figure 2-17 présente un spectre d'une source mono énergétique qui comporte : un pic photoélectrique, un plateau Compton et une frontière Compton. Le phénomène de diffusion des photons Gamma secondaires est très probable dans le cas des petits détecteurs où les petites profondeurs ne favorisent pas l'absorption totale.

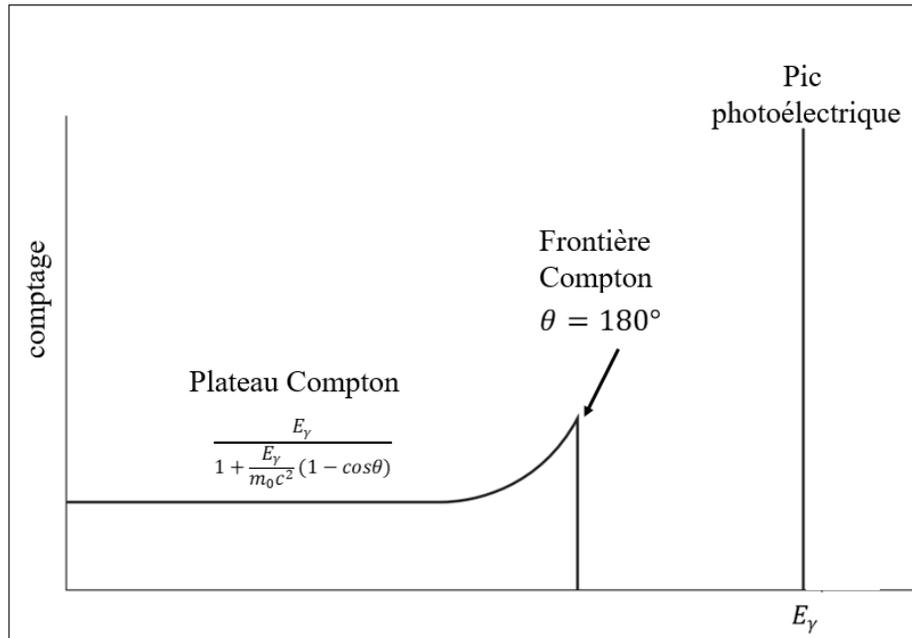


Figure 2- 17: Spectre d'énergie avec un plateau Compton

2.3.3.1.3 Pics relatifs à la création des paires électron-positron

Lorsque le rayonnement Gamma d'énergie $E_\gamma > 1.2 \text{ Mev}$ interagit avec le scintillateur selon le processus de production des paires électron-positron, l'opération d'interaction se termine avec la production de deux photons Gammas secondaires de 511 keV chacun, le comptage des impulsions ainsi produites dans le spectres se fait selon les trois possibilités suivantes (figure 2-18):

- Les deux photons Gammas secondaires sont réabsorbés par le scintillateur lui-même, et dans ce cas les impulsions résultantes ne sont comptabilisés que des contributions au pic photoélectrique.
- Absorption de l'un des deux photons Gamma secondaire et échappement de l'autre (simple échappement). Dans ce cas les impulsions relatives à l'énergie déposée dans le scintillateur seront comptabilisées dans un endroit définit par : $E_\gamma - 511 \text{ keV}$ (ou pic de simple échappement).
- Échappement des deux photons Gammas secondaires, et dans ce cas les impulsions relatives l'énergie déposée dans le scintillateur se comptabilisent dans le spectre sur un pic situé à l'endroit définit par : $E_\gamma - 1022 \text{ keV}$ (ou pic de double échappement).

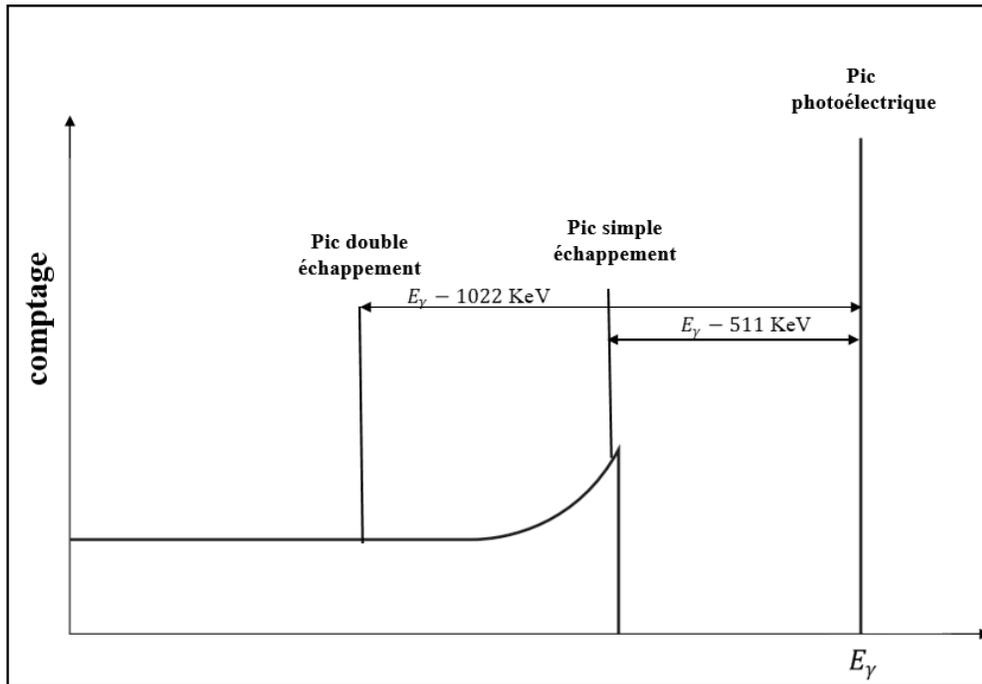


Figure 2- 18: spectre d'énergie avec simple et double échappement.

2.3.3.1.4 Le pic des X échappés

Si un photon X d'une énergie E_X dû à une interaction photoélectrique s'échappe du scintillateur, l'énergie de scintillation pour cette interaction sera diminuée en conséquence. Dans un scintillateur NaI(Tl), la perte s'élève à environ 28 keV. Dans les spectres des sources de rayonnement de faible énergie, cela donne un pic secondaire de 28 keV à gauche du pic photoélectrique ($E_\gamma - E_X$) (figure 2-19). Dans les spectres d'énergie plus élevée, le pic d'échappement X est tellement proche du pic photoélectrique qu'il est impossible de le distinguer [87].

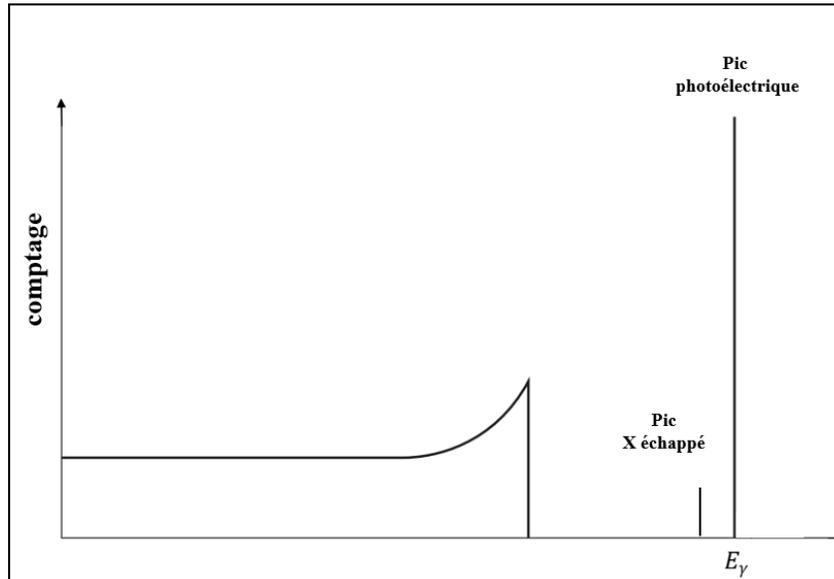


Figure 2- 19: Spectre d'énergie avec un pic des X échappés.

2.3.3.1.5 Pic somme

Pour les sources Gamma qui émettent deux énergies différentes $E_{\gamma 1}$, $E_{\gamma 2}$, en plus du pics d'absorptions totales relatives des deux énergies, il se produit un troisième pic dit *pic somme* [87] qui est placé dans le spectre à la position relative à la somme des deux énergies $E_{\gamma 1} + E_{\gamma 2}$. Le pic somme est produit lorsque les deux Gammas incidents sont émis simultanément par la source, et arrivent au scintillateur dans le temps de réponse du système scintillateur-photomultiplicateur. L'énergie absorbée dans le scintillateur dans ce cas est considéré comme la somme des deux énergies incidentes (figure 2-20).

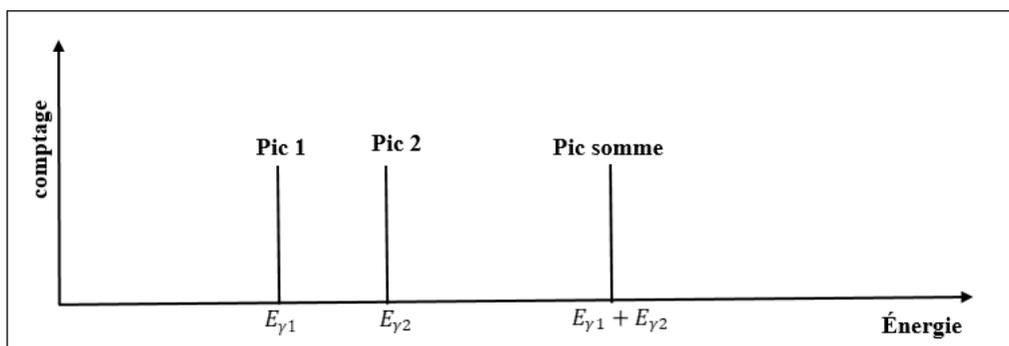


Figure 2- 20: un spectre d'énergie d'une source Gamma de deux énergies avec

2.3.3.2 Interaction en dehors du scintillateur

2.3.3.2.1 Pic de rétrodiffusion

Lorsque les photons Gamma interagissent par diffusion Compton en premier lieu avec le milieu aux alentours du scintillateur (ex : château de plombe), les photons Gamma secondaires de faibles énergies diffusés peuvent être absorbés par le détecteur par effet photoélectrique. Il en résulte sur le spectre, un pic photoélectrique dans le plateau Compton, centré à une énergie légèrement supérieure à $E_\gamma/(1 + 2E_\gamma/m_e c^2)$ [87], ce pic est appelé *pic de rétrodiffusion* (figure 2-21).

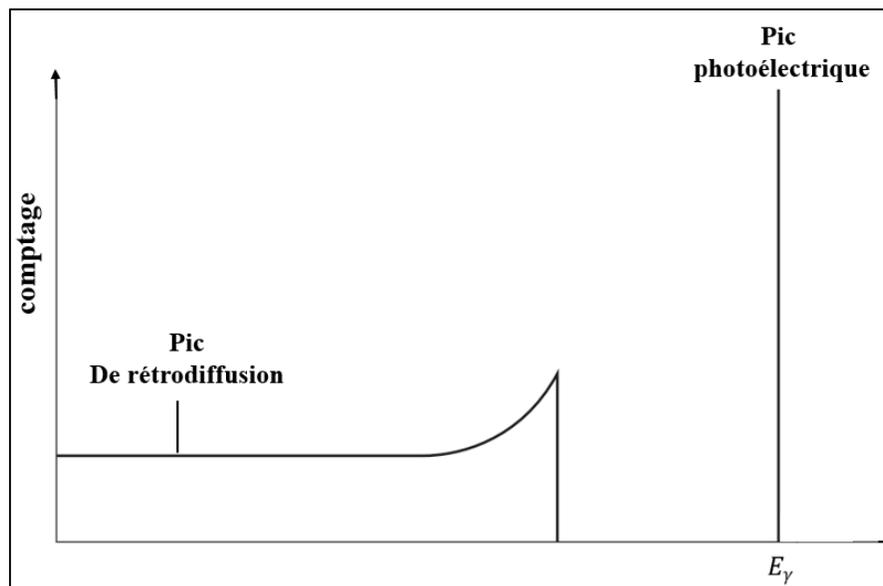


Figure 2- 21: un spectre d'énergie avec un pic de rétrodiffusion

2.3.3.2.2 Pic d'annihilation

L'interaction par création de paires électron-positron qui se produit dans le milieu externe du scintillateur donne lieu à la naissance de deux photons Gamma secondaires de 511 keV dits *photons d'annihilation*, si l'un des deux photons est complètement absorbé par le scintillateur par effet photoélectrique, les signaux correspondants sont comptabilisés dans le spectre dans l'endroit relatif à l'énergie de 511 keV et donne lieu à un pic dit pic d'annihilation (figure 2-22).

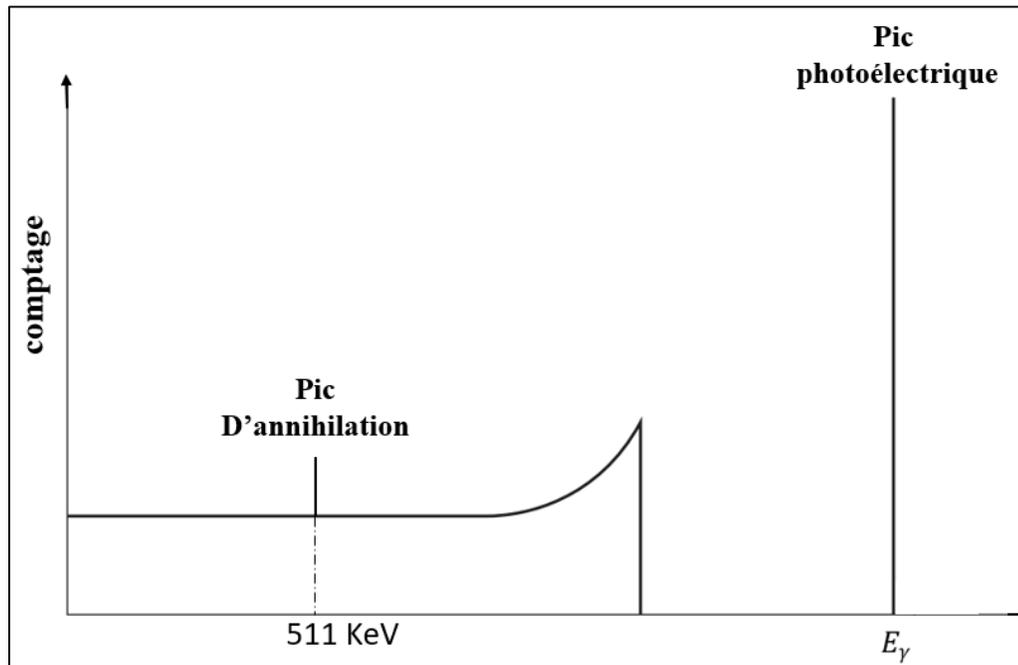


Figure 2- 22: Spectre d'énergie avec un pic d'annihilation.

2.3.3.2.3 Pic X caractéristique

Lorsque le rayonnement Gamma incident est absorbé par effet photoélectrique dans la matière aux alentours du détecteur, il y aura lieu à la production des rayons X par le processus de réarrangement électronique de l'atome dits X-caractéristiques de la matière dans laquelle est produit l'effet photoélectrique (Ex : plomb), si ces X échappent de la matière externe et rentrent dans le scintillateur, l'absorption totale des X-caractéristiques par le scintillateur donne lieu à la création d'un pic photoélectrique sur le spectre, situé à l'endroit relatif à l'énergie X caractéristique de la matière dans laquelle est produite (figure 2-23).

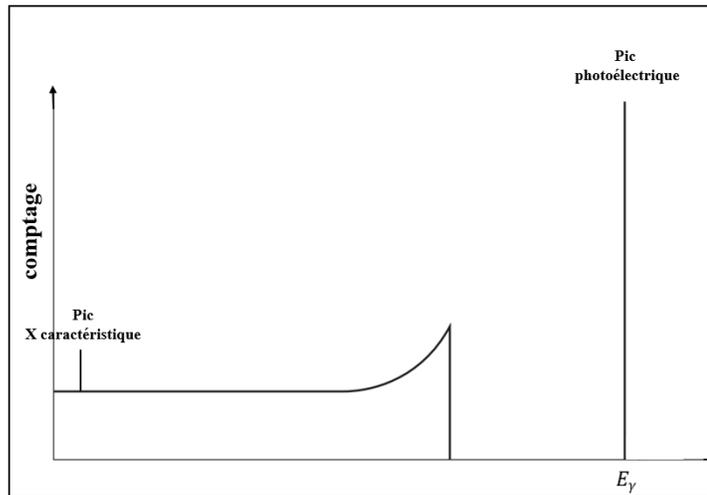


Figure 2- 23: un spectre d'énergie avec un pic X-caractéristique.

2.3.3.3 Spectre pour gros et petits scintillateurs

En général, plus le scintillateur est grand, plus le pic de d'absorption totale est important par rapport aux autres caractéristiques telles que le plateau Compton, les pics de production de paires, de rétrodiffusion et d'échappement X. Ceci est due au fait que les gros scintillateurs permettent des profondeurs suffisantes pour une absorption totale des rayonnement Gamma/X (absorption par effet photoélectrique), ce qui n'est pas possible pour les petits scintillateurs. La figure 2-24 illustre trois spectres comparables du Cs-137 obtenus avec trois scintillateurs de tailles différentes. Le rapport entre le pic photoélectrique et le plateau Compton est minimum dans le cas du scintillateur de la plus petite taille $\Phi 38\text{mm} \times 25\text{mm}$, et maximum dans le cas du scintillateur de plus grande taille ($\Phi 75\text{mm} \times 75\text{mm}$).

Pour les scintillateurs de petites tailles, l'absorption par effet photoélectrique est moins probable, cela est due au fait que les petites distances ne permettent pas dans la majorité des cas l'absorption totale de l'énergie incidente, et dans ce cas les diffusions Compton sont les plus favorables, par conséquent les spectres d'énergies des petits scintillateurs présentent des pic photoélectriques de faibles comptages et voire l'absence totale, et des plateaux Compton de comptages élevés.

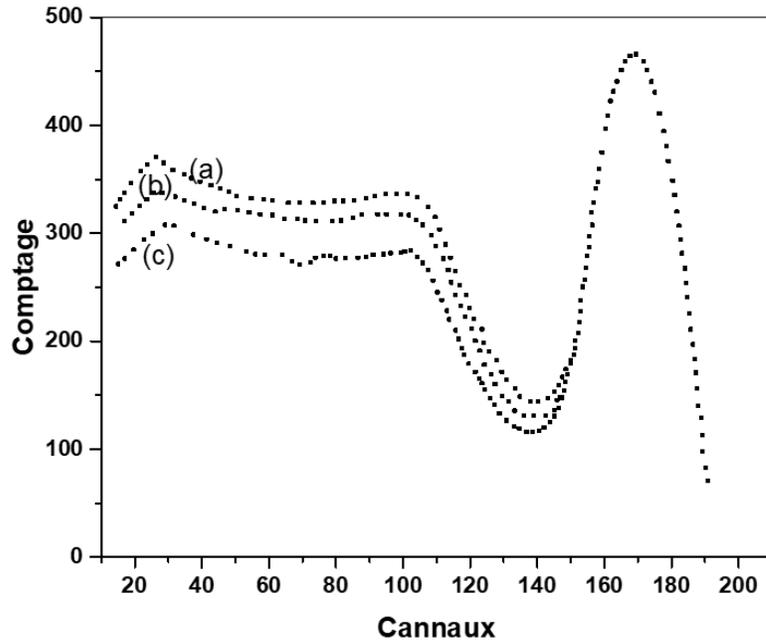


Figure 2- 24: Spectres du Cs-137 obtenus avec des scintillateurs de tailles : (a) $\Phi 38\text{mm} \times 25\text{mm}$, (b) $\Phi 50\text{mm} \times 50\text{mm}$, (c) $\Phi 75\text{mm} \times 75\text{mm}$ [87].

2.4 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté d'une manière générale les principes de base des chaînes de détection nucléaire à base de détecteurs à scintillation, afin de donner une introduction à la détection de rayonnements ionisants. Dans le même contexte, nous avons donné une aperçue sur les processus d'interaction rayonnement-matière ainsi que sur la composition et l'interprétation des spectres d'énergie nécessaires pour l'étude des propriétés de scintillation des matériaux scintillateurs. Bien que les matériaux scintillateurs sujets de cette étude sont taillés à l'échelle nanométriques et assemblés en échantillons de petits volumes, les principes donnés dans ce chapitre restent utiles pour l'étude de caractérisation de ce type des scintillateurs.

Etant donné que certaines propriétés de scintillation des détecteurs à scintillation tel que le rendement lumineux nécessitent obligatoirement une absorption totale de l'énergie incidente, cette propriété qui donne lieu à un pic photoélectrique dans le spectre d'énergie dans le cas d'excitation par rayonnement Gamma/X, ou à un pic d'absorption totale dans le cas d'excitation par des particules chargées telle que les particules- α , reste le seul moyen pour la mesure de cette propriété.

Dans le chapitre suivant, nous présentons les principales caractéristiques des matériaux scintillateurs ainsi que les méthodes que nous avons adopté pour la caractérisation des propriétés de scintillation des scintillateurs développés.

Chapitre 3

**Caractéristiques des matériaux
scintillateurs et méthodes de
caractérisation adoptées**

3.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous présentons les principales caractéristiques des matériaux scintillateurs, ainsi que les méthodes et les techniques de caractérisations. Etant donné que les scintillateurs traités dans cette étude sont des matériaux inorganiques synthétisés à l'échelle nanométrique, et que les échantillons traités sont de petits volumes et opaques, les mesures des caractéristiques diffèrent de celles des monocristaux, qui sont généralement de gros volumes et transparents. Cette différence est due au fait que les détecteurs en formes de monocristaux sont de volumes suffisants pour absorber efficacement les rayonnements Gamma/X d'une part, et d'autre part leur transparence permet aux photons de scintillation de traverser le matériau du détecteur pour atteindre la surface sensible du photo-détecteur, et dans ce cas les signaux de mesure proportionnels aux énergies déposées peuvent être facilement discriminés des signaux du bruit.

Les scintillateurs en forme de nano-poudre sont généralement opaques par rapport aux longueurs d'ondes de leurs photons de scintillation (visible, infrarouge et UV), cette propriété conduit à l'absorption des photons émis par le détecteur lui-même, cette propriété est appelée ainsi l'auto-absorption. L'auto-absorption des photons par le matériau scintillateur exige des contraintes sur les tailles des échantillons à caractériser qui doivent être de petites tailles, ce qui se traduit par des détecteurs de petites profondeurs, par conséquent, cela pose le problème d'inefficacité d'absorption des rayonnements Gamma et X.

Dans notre étude, nous focalisons nos efforts sur les méthodes efficaces pour la caractérisation de ce type de matériaux en se basant en premier lieu sur le choix du type de rayonnement (Gamma/X ou particules- α) à utiliser pour l'excitation des échantillons, ainsi que sur le choix de la méthode d'excitation (géométrie d'excitation) efficace pour obtenir des signaux de mesure utiles pour réussir les expériences de la caractérisation.

3.2 Propriétés de scintillation des matériaux scintillateurs

3.2.1 Le rendement lumineux de scintillation

Le rendement lumineux de scintillation est l'un des paramètres les plus cruciaux des matériaux scintillateurs. Dans la majorité des applications de la détection nucléaire, le rendement lumineux est considéré comme un paramètre principal [99] et décisif dans l'évaluation des scintillateurs. Une étape logique dans la caractérisation des nouveaux types de scintillateurs serait

la détermination du nombre de photons émis par énergie déposée, généralement exprimé en Ph/MeV [100]. Il faut distinguer entre deux type de rendement lumineux de scintillation :

3.2.1.1 Rendement lumineux absolu

Le rendement optique absolu est lié à l'efficacité de scintillation et au rendement optique technique [101]. Le rendement lumineux absolu η est le rapport entre l'énergie totale des photons de scintillation (E_p) et l'énergie déposée par le rayonnement ionisant dans le scintillateur (E) [99].

$$\eta = \frac{E_p}{E} \quad (3-1)$$

Le rendement lumineux absolu se caractérise par le nombre de photons (N_p) de scintillation par 1 MeV d'énergie de rayonnement absorbée par le scintillateur.

$$N_p = \frac{E_0}{\varepsilon} \cdot \eta \quad (3-2)$$

Avec ε est l'énergie moyenne des photons de scintillation, et E_0 est l'énergie de 1MeV des rayonnements absorbés.

3.2.1.2 Rendement lumineux technique

Alors que le rendement technique est le rapport entre l'énergie totale des photons de scintillation traversant la fenêtre du photo-détecteur (L_p) et l'énergie (E) déposée par les rayonnements ionisant dans le scintillateur :

$$T = \frac{L_p}{E} \quad (3-3)$$

Le rendement lumineux technique est caractérisé par le nombre de photons ($N_{p\tau}$) traversant la fenêtre du photo-détecteur pour 1 MeV d'énergie déposée dans le scintillateur.

$$N_{p\tau} = \frac{E_0}{\varepsilon} \cdot T \quad (3-4)$$

3.2.1.3 Coefficient de collection de lumière

Le coefficient de collection de la lumière peut être conclu des relations du rendement absolu et technique comme suit :

$$T = \tau \cdot \eta \quad (3-5)$$

Avec $\tau = \frac{L_p}{E}$ et le coefficient de collection de la lumière dans le détecteur à scintillation.

3. 2. 2 Méthodes de mesure du rendement lumineux

Le problème de la mesure du rendement lumineux est assez compliquée en raison de la nécessité de déterminer précisément les valeurs des paramètres des détecteurs et des photo-détecteurs utilisés, ce qui introduisent de grosses erreurs dans les résultats [99]. En générale, la mesure du rendement lumineux comprend la mesure des signaux de la lumière en sortie du détecteur à caractériser, corrélés à des signaux de références. Les signaux de références peuvent être générés par des instruments dédiés à ce type de mesures (générateur de photon unique), ou de même, par des détecteurs à scintillation dont le rendement lumineux est déjà connu. Les détecteurs à scintillation en formes de monocristaux, caractérisés par leurs hauts rendements lumineux à base de NaI(Tl), d'anthracène ou de stilbène [99] sont souvent utilisés comme détecteurs de référence.

Dans cette section nous présentons les méthodes les plus utilisées pour la détermination du rendement lumineux de scintillation (rendement lumineux de la radio-luminescence).

3.2.2.1 Méthode directe ou d'impulsion

La méthode d'impulsion est une méthode directe de mesure du rendement lumineux, elle consiste en la mesure des amplitudes des signaux (V) correspondants aux événements de scintillation à la sortie d'un spectromètre (une chaîne de spectrométrie). Les amplitudes des signaux sont associées au rendement lumineux par la relation suivante :

$$T = \frac{V \cdot \epsilon \cdot C}{\sum .K.E.e} \quad (3-6)$$

Avec :

C : la capacité du condensateur de sortie du photo-détecteur (Photomultiplicateur), Σ est la sensibilité effective de l'anode du photomultiplicateur, K : facteur d'amplification de la chaîne de mesure, E : est l'énergie des rayonnement d'excitation, e : est la charge d'électron, ϵ : est l'énergie des photons de scintillation.

3.2.2.2 Méthodes de mesure relatives

Les méthodes relatives de mesure du rendement lumineux de scintillation sont basées sur la comparaison des signaux générés par les scintillateurs à caractériser avec des signaux standards [101]. Les signaux standard peuvent être issues des scintillateurs standard de rendements lumineux connus ou des sources de lumière dites sources de photon unique.

3.2.2.2.1 Méthode du photon unique

Le rendement lumineux est mesuré ici en utilisant une chaîne de détection calibrée pour mesurer la réponse du photo-détecteur (photomultiplicateur) à un seul photon [102,103]. Deux spectres d'énergies sont nécessaires pour réussir l'opération. Une source optique pulsée dite de photon unique peut être utilisée pour la calibration de la chaîne de détection. Le photomultiplicateur mesure les photons uniques générés par la source de photons et les signaux de mesure sont classés par l'analyseur multicanaux dans un spectre dit le spectre de référence. Le deuxième spectre est celui du scintillateur à caractériser (figure 3-1), il est obtenu suite à une excitation par une source de rayonnement/particules d'une énergie connue. La comparaison du spectre de référence avec le spectre de scintillateur à caractériser (comparaison des pics d'absorption totale) donne lieu à la valeur du rendement lumineux de scintillation en photon/MeV [103,104]. Les conditions expérimentales tels que le gain d'amplification, ainsi que l'alimentation Haute Tension (HT) du PMT doivent être considérées.

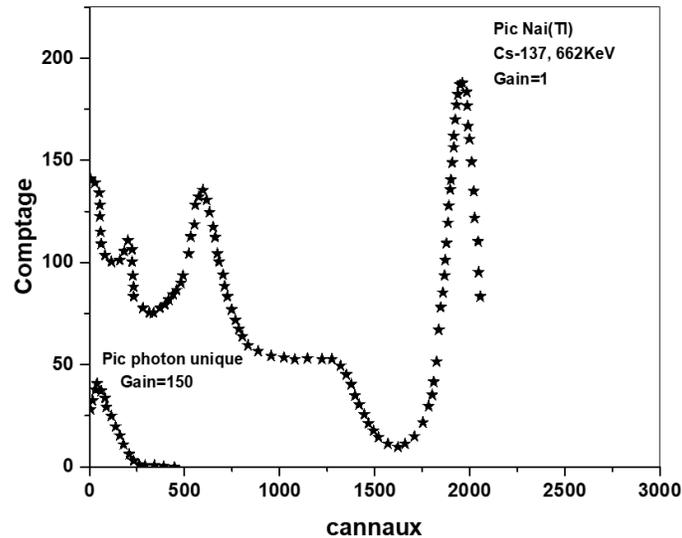


Figure 3- 1: spectres d'énergies du photon unique (Gain=150), et du Cs-137 obtenu par un détecteur NaI(Tl) (Gain=1).

3.2.2.2.2 Méthode du photoélectron unique

Les spectres d'énergie mesurés ne permettent pas de calculer le rendement lumineux absolu en Ph/MeV. Il est nécessaire de calibrer le nombre de photoélectrons par rapport au numéro du canal de sortie dans l'analyseur multicanaux (AMC). Le spectre appelé *du photoélectron unique* (figure 3-2 **Error! Reference source not found.**), est réalisé sans excitation lumineuse externe. Dans ces conditions, un photoélectron peut se créer dans la photocathode du PMT par excitation thermique [96], et subit les mêmes transformations que le photoélectron dans le PMT, le phénomène de création des photoélectrons dans la photocathode sous l'effet thermique est appelé aussi bruit thermoïonique [93]. Ce photoélectron unique est amplifié par le photomultiplicateur et l'impulsion obtenue à l'anode sert de référence comme étant l'impulsion d'un électron unique.

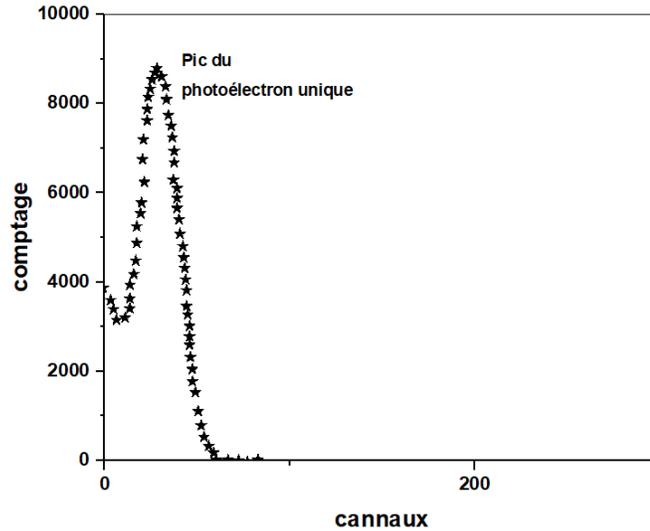


Figure 3- 2: Spectre du photoélectron unique.

Le nombre de photoélectrons N_{phe} secondaires, peut se calculer alors à partir de la position en canal du pic du *photoélectron unique* Ch_{se} , et du photo pic du détecteur à caractériser, Ch_{pp} :

$$N_{phe} = \frac{Ch_{pp}}{Ch_{se}} \cdot \frac{A_{se}}{A_{pp}} \quad (3-7)$$

avec A_{se} et A_{pp} les gains d'amplifications choisis pour la détection des spectres du *single électron* et du Photo pic du détecteur à caractériser.

Le rendement lumineux, RL exprimé en Ph/ MeV, est lié au nombre de photoélectrons N_{phe} , par l'équation suivante :

$$RL = \frac{N_{ph}}{E} = \frac{N_{phe}}{E \cdot QE(\lambda) \cdot \eta_L} \quad (3-8)$$

Avec : E est l'énergie en MeV du photon incident, η_L est l'efficacité de détection de la lumière ($\sim 0,9$) et $QE(\lambda)$ est l'efficacité quantique moyenne du photomultiplicateur fournie par le fabricant, elle peut être aussi exprimées par l'équation [86,88,89]:

$$QE(\lambda) = \frac{S \cdot 1240}{\lambda} \cdot 100 \quad (3-9)$$

Où S est la sensibilité radiante de la photocathode du PMT, elle est donnée en W/A, et λ est la longueur d'onde d'émission du détecteur à scintillation (nm).

3.2.2.2.3 Méthode du détecteur de référence

Vu la difficulté de calibration du nombre de photoélectrons par rapport au canal de sortie sur le l'analyseur multicanaux dans la méthode dite du “*photon unique*”, ont fait souvent recours à des méthodes plus aisées pour faire des mesures du rendement lumineux relatif de scintillation.

Ces méthodes sont basées sur des détecteurs à scintillation standards dits détecteurs de références, et dont les rendements lumineux de scintillations sont à priori connus. La position en canal du pic d'absorption totale dans le spectre d'énergie obtenu par le scintillateur à caractériser est comparée à celle du détecteur référence pour en déduire le rendement relatif. Dans cette méthode, L'excitation des échantillons à caractériser et du détecteur de référence peut se faire en utilisant une source gamma/X (ex : Cs-137)[88], ou une source de particules- α (ex : Am-241) [20]. Les conditions expérimentales à considérer pour réussir une telle mesure sont le gain d'amplification et l'alimentation Haute Tension du photo-détecteur.

$$RL_r(\%) = \frac{PP_{-D}}{PP_{-DR}} * \frac{G_{DR}}{G_D} * 100 \quad (3-10)$$

Avec : RL_r est le rendement lumineux relatif, PP_{-D} : est la position du pic d'absorption totale du spectre d'énergie obtenu par le détecteur à caractériser, PP_{-DR} : est la position du pic d'absorption totale du spectre d'énergie obtenu par le détecteur de référence, G_D : est le gain amplification appliqué pour le détecteur à caractériser, G_{DR} : est le gain amplification appliqué pour le détecteur de référence.

Le rendement lumineux absolu en Ph/MeV peut être aussi calculé en multipliant la valeur du rendement relatif du détecteur à caractériser par le rendement absolu du détecteur de référence déjà connu.

$$RL_D = RL_r \cdot RL_{DR} \quad (3-11)$$

Avec : RL_D : est le rendement lumineux absolu du détecteur à caractériser, RL_r : est le rendement lumineux relatif du scintillateur à caractériser, RL_{DR} : est le rendement lumineux absolu du détecteur de référence.

3. 2. 3 Résolution en énergie

Dans le spectre d'énergie, la discrimination des impulsions selon leur amplitude est très importante pour déterminer les pics photoélectriques produits par divers types de rayonnement. Ceci est évalué en tant que résolution en énergie.

Comme montré dans la figure 3-3 la résolution en énergie d'un détecteur à scintillation est généralement exprimé en % comme suit [86,105]:

$$R (\%) = \frac{\Delta P}{P} .100 \quad (3-12)$$

avec : R est la résolution en énergie du détecteur à scintillation, P : est le centre du pic photoélectrique, ΔP : est la largeur à mi-hauteur du pic photoélectrique.

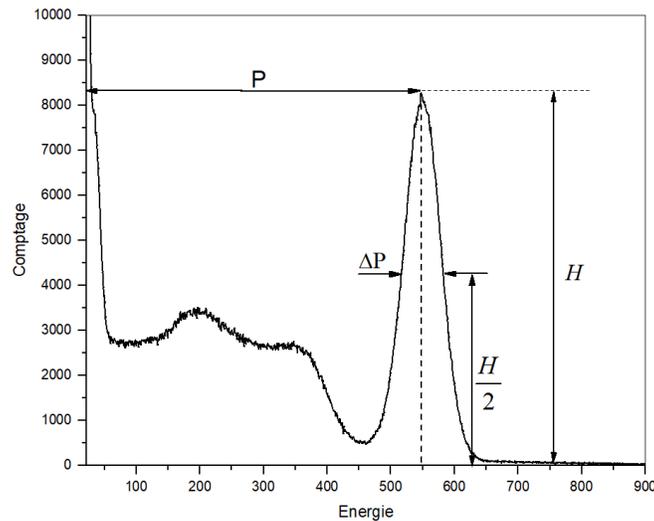


Figure 3- 3: définition de la résolution en énergie, avec H est la hauteur du pic photoélectrique.

La résolution énergétique peut être affectée par les facteurs suivants :

- ✓ Rendement de conversion énergétique du scintillateur
- ✓ Résolution en énergie intrinsèque du scintillateur
- ✓ Efficacité de collection de la lumière de la photocathode du photomultiplicateur
- ✓ Efficacité quantique (η) de la photocathode du photomultiplicateur
- ✓ Efficacité de collection (α) à la première dynode
- ✓ Fluctuations dans la section multiplicateur (dynodes) du tube photomultiplicateur.

En générale, la résolution en énergie est donnée par [106] :

$$R^2(E) = R_s^2(E) + R_p^2(E) \quad (3-13)$$

Avec : $R(E)$: est la résolution en énergie, et $R_p(E)$: est la résolution en énergie du photomultiplicateur, elle est exprimée dans l'équation suivante :

$$R_p^2(E) = \frac{5.56}{N.\eta.\alpha} \left(\frac{\delta}{\delta-1} \right) \quad (3-14)$$

Avec : N est le nombre moyen des photons incident au photocathode par unité de désintégration, η : est l'efficacité quantique du photocathode, α : est l'efficacité de collection de la première dynode du photomultiplicateur, δ : est le rendement d'émission secondaire pour chaque dynode (on assume qu'il est constant).

$R_s(E)$: est la résolution en énergie du scintillateur.

La résolution en énergie du scintillateur $R_s(E)$ et du photomultiplicateur $R_p(E)$ dépendent de l'énergie (E) du rayonnement incident, alors que $R_p^2(E)$ est inversement proportionnelle à E [86].

Pour obtenir une résolution en énergie plus élevée ($R(E)$ plus petite en valeur), les tubes photomultiplicateurs doivent avoir une efficacité quantique et une efficacité de collection élevées, en plus de l'utilisation d'un scintillateur d'efficacité de conversion élevée [107]. Un bon couplage optique entre le scintillateur et le tube photomultiplicateur doit être fait pour réduire au maximum les pertes optiques [108,109]. A cet effet, il est nécessaire de coupler le scintillateur et le tube photomultiplicateur à l'aide d'une graisse optique ou d'huile de silicone [106,110,111] ayant un indice de réfraction proche de celui de la fenêtre en verre du tube photomultiplicateur [103].

Dans le tableau 3-1, nous présentons quelques résolutions en énergie pour des rayonnements Gamma de différentes énergies, obtenues par deux différents scintillateurs NaI(Tl) et le BGO.

Tableau 3- 1: Résolution en énergie pour les rayonnement Gamma typiques obtenues avec les Scintillateurs NaI(Tl) et le BGO.

Source γ	Energie (keV)	NaI(Tl) (%)	BGO(%)
Fe-55	5.9	41 à 51	-----
Am-241	59.5	11 à 16	71 à 151
Co-57	122	8.3 à 10.5	36 à 52
Na-22	511	7.4 à 9.2	12.6 à 26
Cs-137	662	6.3 à 8.3	11 à 20
Co-60	1170	5.2 à 6.7	8.5 à 11
	1330	4.4 à 5.6	8 à 9.5

3. 2. 4 Temps de déclin de scintillation

Les impulsions lumineuses de scintillation (flashes de lumière) sont généralement caractérisées par une montée rapide de l'intensité dans le temps, suivie d'une décroissance exponentielle. L'impulsion de scintillation typique est présentée dans la figure 3-4. Le temps de déclin (ou décroissance) d'un scintillateur est défini par le temps au bout duquel l'intensité de l'impulsion lumineuse est revenue à $1/e$ ($\approx 37\%$) de sa valeur maximale. Soit I_0 l'intensité lumineuse maximale d'une impulsion de scintillation, I est son intensité au temps t et τ est la constante du temps de déclin de scintillation.

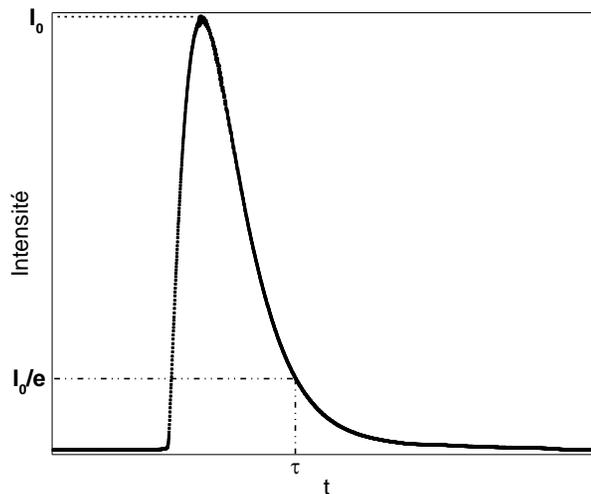


Figure 3- 4: Forme d'une impulsion de scintillation typique.

La décroissance exponentielle de l'intensité lumineuse d'une impulsion de scintillation peut être décrite par l'équation suivante [112] :

$$I(t) = I_0 \cdot e^{-t/\tau} \quad (3-15)$$

Au temps $t = \tau$:

$$I(\tau) = I_0 \cdot e^{-1} = \frac{1}{e} \cdot I_0 \quad (3-16)$$

Le profile temporelle de certains scintillateurs peut comporter une ou plusieurs composantes temporelles [113–115]. L'approximation du profile temporel par une fonction exponentielle décroissante permet de calculer la constante du temps de déclin de scintillation ainsi que l'intensité de chaque composante selon l'équation suivante :

$$I(t) = Y_0 + I_0 \cdot e^{-\frac{t}{\tau_0}} + I_1 \cdot e^{-\frac{t}{\tau_1}} + \dots + I_i \cdot e^{-\frac{t}{\tau_i}} \quad (3-17)$$

Avec : I_0 est l'intensité de la composante 0, I_1 est l'intensité de la composante 1 et I_i est l'intensité de la composante i . τ_0 est le temps de déclin de la composante 0, τ_1 est le temps de déclin de la composante 1 et τ_i est le temps de déclin de la composante i . Y_0 est le terme de bruit de fond.

Pour un profile temporelle de trois composantes, le temps de déclin dont la valeur est la plus petite est appelé *rapide*, et celui de la valeur moyenne est appelé *moyenne*, le temps de la plus grande est appelé *lent*. La figure 3-5 présente le profil temporel du nano-scintillateur LuAG dopé à 0.1at.% Ce^{3+} , composé de trois composantes temporelles. Le profil temporel a été approximé par une fonction exponentielle décroissante de trois composantes. L'approximation exponentielle a été appliquée à la queue de l'impulsion de scintillation [116] .

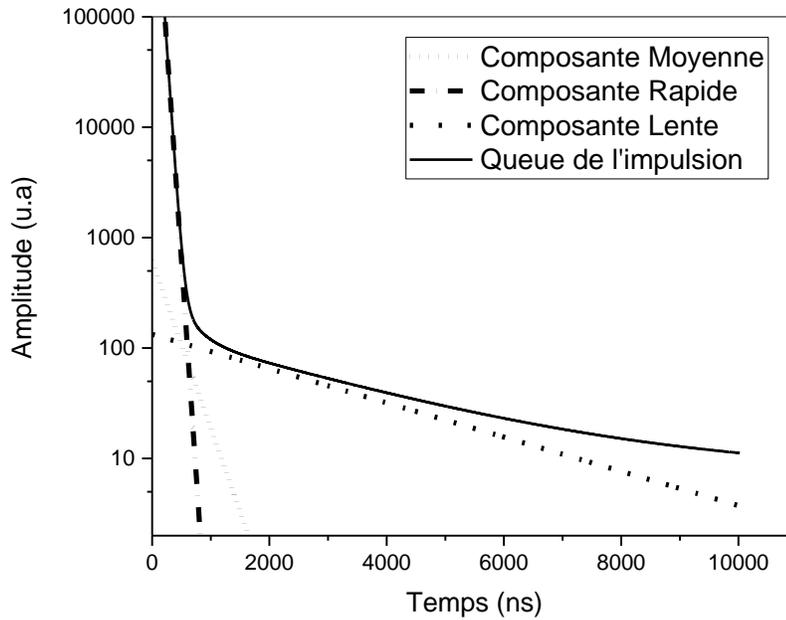


Figure 3- 5: Profile temporel du nano-scintillateur LuAG :Ce, excité par des particules- α de 5.48MeV, composé de 03 composantes (rapide, moyenne et lente).

3. 2. 5 La linéarité en énergie

La lumière de scintillation produite suite à l'excitation d'un détecteur à scintillation doit être proportionnel à l'énergie déposée dans le détecteur, cette proportionnalité doit être aussi conservée pour toutes la gamme d'énergie de fonctionnement du détecteur. La linéarité en énergie d'un détecteur à scintillation peut être mesurer suite une calibration en énergie de la chaine de mesure. Trois sources d'excitation de différentes énergies sont généralement utilisées pour calibrer la chaine de détection en énergie, et d'en conclure la linéarité du scintillateur. En premier lieu, et pour chaque échantillon du matériau scintillateur en forme de nano-poudre, trois spectres d'énergies différentes sont collectés, en utilisant un photomultiplicateur comme photo-détecteur, un amplificateur spectroscopique linéaire et un analyseur multicanaux (AMC). Le centre du pic d'absorption total sont déterminés suite à une approximation gaussienne. La courbe de réponse du scintillateur fonction des énergies d'excitation est approximée par une ligne droite linéaire de la forme :

$$E = A. C + b \quad (3-18)$$

Avec : E est l'énergie de la source d'excitation et C le numéro du canal du pic d'absorption totale, A et B sont les coefficients de l'équation de la droite linéaire.

Le coefficient de corrélation (R^2) de la droite de calibration obtenu peut être considéré comme facteur de linéarité en énergie du détecteur scintillateur [88]. Un coefficient de corrélation proche de 1 indique une relation linéaire forte, tandis qu'un coefficient de corrélation faible ou négatif indique une faible linéarité.

3. 3 Méthodes adoptées pour la mesure des propriétés de scintillation des nano-scintillateurs

Avant d'entamer la présentation des méthodes adoptées pour la mesure des propriétés de scintillation des nano-scintillateurs développés, et présentés dans la partie précédente, et vu que les scintillateurs en forme de poudres sont connus par certaines propriétés optiques liées à leur opacité, il est crucial de sélectionner certains outils éprouvés qui sont essentiels pour caractériser ce type de matériau, y compris le type de la source d'excitation et la géométrie d'excitation [117].

3. 3. 1 Choix de la source d'excitation

Les nano-scintillateurs en forme de poudre sont connus par leur diffusion de la lumière de scintillation et par le phénomène d'auto-absorption des photons de scintillation par des processus non-radiatives [44], ce qui pose le problème de difficulté de transmission des photons de scintillation vers le photo-détecteur, seule une petite fraction des photons peut dans ce cas atteindre la fenêtre du photo-détecteur, il en résulte des signaux de mesure de petites amplitudes, et dans ce cas, la discrimination des signaux utiles (signaux dus à une absorption totale) des signaux de bruits est difficile et voire impossible dans certains cas.

Afin d'avoir des signaux de mesures efficaces pour la mesure des caractéristiques de scintillation des nano scintillateurs en forme de nano poudres, nous avons élaboré une expérience de test pour choisir la source d'excitation efficace. On distingue ici entre deux types de sources d'excitation : l'excitation par rayonnement Gamma/X et l'excitation par particules- α [118]. L'échantillon du nano scintillateur LuYAG:0.1 at.% Ce a été utilisé pour cette expérience, cet échantillon est l'un du jeu d'échantillons sujets à cette étude de caractérisation. Une chaîne de

détection composée d'un photomultiplicateur utilisé comme photo-détecteur, d'un amplificateur spectroscopique. Un analyseur multicanaux (AMC) a été utilisée afin de collecter les spectres d'énergies des sources d'excitation utilisées. En premier lieu, l'échantillon du nano scintillateur a été excité par une source Gamma de Cs-137 d'énergie 662 keV, le spectre d'énergie a été collecté et enregistré. En deuxième lieu, nous avons excité le même échantillon par une source Alpha de l'Am-241 d'une énergie de 5.48 MeV, et nous avons collecté le spectre correspondant. La figure 3-6 présente les deux spectres d'énergies obtenus suite à l'excitation par des rayonnements Gamma et par des particules- α .

Dans le spectre obtenu suite à l'excitation par la source Gamma, on remarque l'absence du pic d'absorption totale caractéristique de l'énergie déposée sur l'échantillon du nano-scintillateur en forme de poudre utilisé comme détecteur.

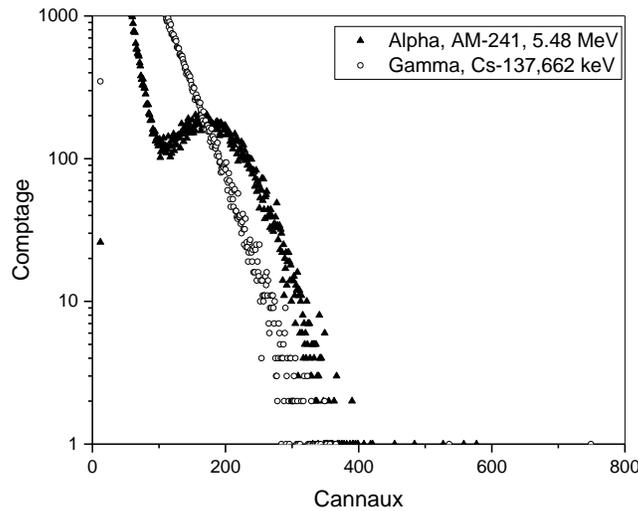


Figure 3- 6: Spectres d'énergies du Cs-37 (662keV) et de l'Am-241 (5.48 MeV) obtenus par le nano-scintillateur LuYAG: 0.1at.% Ce^{3+} .

Cela est due en premier lieu au fait que l'échantillon est très petit et ne peut stopper (absorber) qu'une partie de l'énergie des photons Gamma incidents (les photons Gamma nécessitent une longue distance pour être absorbés efficacement), il en résulte que les signaux obtenus sont considérés comme des signaux de bruits dans le spectre d'énergie, et en deuxième lieu, et à cause des propriétés d'auto-absorption et de diffusion de photons des matériaux non transparents, et dans ce cas une grande fraction des photons de scintillation créés le long du matériau scintillateur ne peuvent pas atteindre la fenêtre du photomultiplicateur pour être mesurer

correctement, seule une petite fraction peut être mesurée et les signaux correspondants sont plutôt classés aussi comme bruit par l'AMC, et dans ce cas, la proportionnalité entre les signaux mesurés et l'énergie déposée sur l'échantillon détecteur est perdue. Par conséquent, la mesure des caractéristiques de scintillation n'est pas efficace sous l'excitation par des rayonnements Gamma [119].

Dans le spectre obtenu sous l'excitation par des particules- α , nous remarquons la présence du pic d'absorption totale caractéristique d'énergie déposée sur le détecteur nano scintillateur. Cela est dû aux raisons suivantes :

- La distance d'absorption des particules Alpha est très petite (quelques microns) ce qui conduit à une absorption totale de l'énergie incidente dans la couche superficielle de l'échantillon (interaction obligatoire des particules Alpha) [20], et comme le jeu source-échantillon-photomultiplicateur sont placés selon la géométrie de *réflexion*, les photons créés dans la couche superficielle n'ont qu'à traverser une petite distance en air, et la majorité de ces photons peuvent atteindre la fenêtre du photomultiplicateur pour être mesurés.
- La grande énergie des particules Alpha (5.48 MeV) permet de créer une grande quantité de photons de scintillation, ce qui donne naissance à des signaux électriques d'amplitudes importantes et faciles à discriminer des signaux bruits [20]. Les signaux de mesure dans ce cas sont proportionnels à l'énergie déposée sur le scintillateur ce qui donne naissance au pic d'absorption totale caractéristique de l'énergie déposée. L'étude de caractérisation des scintillateurs est basée sur le pic d'absorption totale dans le spectre d'énergie vu que les signaux des mesures qui contribuent à la formation du pic sont dus à une absorption totale et ne sont pas dus au bruit.

3.3.2 Choix de la géométrie d'excitation

La géométrie d'excitation est la manière dont sont positionnées les éléments : source, échantillon, photo-détecteur (photomultiplicateur), l'un par rapport aux autres. Deux géométries d'excitation sont les plus communément utilisées :

3.3.2.1 Excitation par transmission

Dans la géométrie de transmission, le jeu : Source, détecteur, photo-détecteur sont positionnée l'un après l'autre sur cet ordre et sur une ligne droite comme montré dans la figure 3-7.

Dans cette géométrie le photo-détecteur collecte les photons créés le long de toute la matière du détecteur sur la face opposée à la face d'excitation.

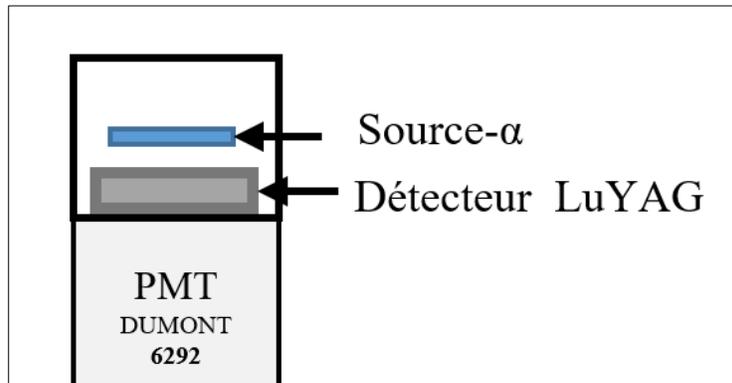


Figure 3- 7: Collection des photons de scintillation par la géométrie de Transmission.

La géométrie dite de transmission est la géométrie standard pour les détecteurs transparents [20] (monocristaux). La condition de transparence des détecteurs est la condition la plus nécessaire pour réussir la détection. Vu que les nano-scintillateurs inorganiques en forme de nano- poudre sont opaques et sont connus par la propriété de diffusion des photons et d'auto absorption de la lumière, l'excitation par transmission n'est pas efficace pour la mesure des caractéristiques de telles scintillateurs.

3.3.2.2 Excitation par réflexion

Les matériaux inorganiques en poudres sont opaques et connues comme matériaux diffuseurs et auto-absorbants des photons [20,120], donc seuls les photons créés dans les couche superficielles peuvent êtres collecter d'une manière efficace, les photons créés dans des profondeurs élevées dans le matériaux souffrent d'une grande diffusion et se réabsorbent par le détecteur lui-même. Donc le but est de trouver une méthode efficace pour collecter la majorité et

voire la totalité des photons de scintillation. Dans la géométrie dite par réflexion le jeu Source-détecteur sont placé tous les deux en face du photo-détecteur, ainsi la source est placée en face du détecteur avec une inclinaison de 45° comme présenté dans la figure 3-8 , c'est la géométrie qui est efficace avec les détecteurs en forme de poudres, dans cette géométrie une grande fraction des photons créés à la surface du détecteur se réfléchit vers le photo-détecteur et peut être détecter.

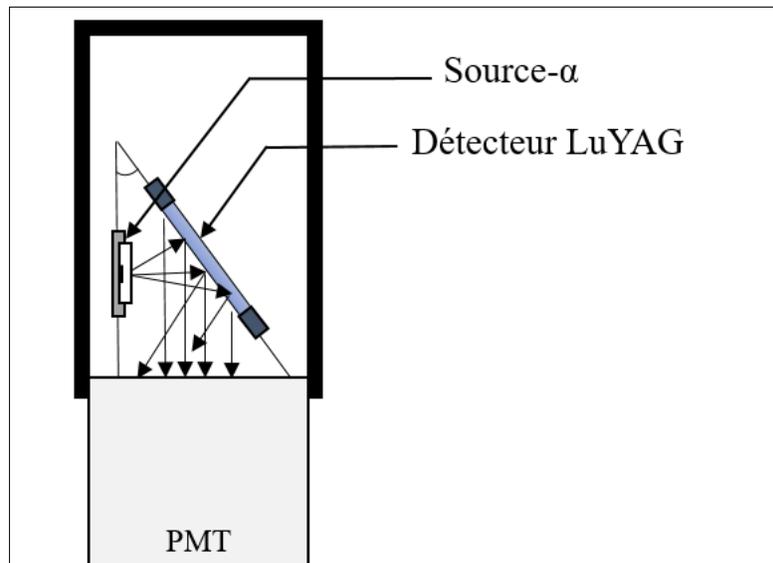


Figure 3- 8: Collection des photons de scintillation par la géométrie de Réflexion.

La figure 3-9 présente deux spectres d'énergie de l'Am-241 de 5.48 MeV mesurés avec un échantillon du matériau scintillateur LuYAG :Ce en forme de poudre en utilisant les deux géométries d'excitation : transmission et réflexion. Il est clair que dans la géométrie de transmission, le spectre d'énergie ne contient pas de pic d'absorption totale caractéristique de l'énergie absorbée par le détecteur, cela est due au fait que la majorité des photons générés par le scintillateur suite à l'excitation sont diffusés ou réabsorbés par le matériau du détecteur lui-même, et par conséquent, la quantité des photons qui peuvent atteindre le photo détecteur est très minime, ce qui conduit à des signaux de mesure de petites amplitudes (pas de séparation des signaux relatifs aux énergies d'excitation des signaux de bruit). Et dans cette situation la discrimination des signaux d'amplitudes proportionnelles à l'énergie déposée dans le scintillateur est impossible, le résultat donne un spectre inutile vu l'absence du pic d'absorption totale.

Au contraire, dans le spectre mesuré sous la géométrie de réflexion, on remarque la présence du pic d'absorption totale caractéristique de l'énergie déposée sur le détecteur, cela peut être expliquer par la possibilité de détection d'une grande quantité de photons créés dans la couche

superficielle du détecteur, vu que ces photons peuvent facilement traversés une petite distance en air et peuvent atteindre le photo-détecteur. La grande quantité des photons détectés par le photo détecteur donne lieu à la création d'une grande quantité de charges et par conséquent la création des signaux de mesure d'amplitudes proportionnelles à l'énergie déposée. Ainsi la discrimination des signaux de mesure proportionnelles à l'énergie déposée soit facile, ce qui se traduit par la présence du pic d'absorption totale caractéristique de l'énergie déposée dans le détecteur.

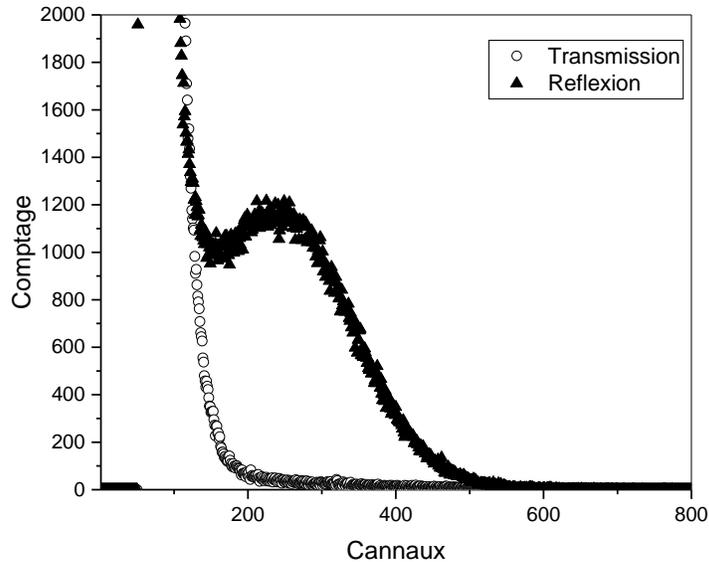


Figure 3- 9: Spectre d'énergie de l'Am-241 (5.48 MeV) mesuré par l'échantillon nano-scintillateur LuAG:0.1%Ce³⁺ en poudre sous les géométries transmission et réflexion.

En conclusion des deux expériences effectuées pour choisir le type de source d'excitation et de la géométrie d'excitation, et étant donné que les échantillons étudiés sont trop petits pour permettre une absorption significative de photons gamma et qu'ils sont opaques, auto-absorbants et diffusent les photons de scintillation, les sources de particules alpha et la géométrie de réflexion ont été choisies pour étudier les propriétés des nano-scintillateurs développés.

3. 3. 3 Sélection de la constante du temps de mise en forme

3.3.3.1 Effet du déficit balistique

La constante de temps de mise en forme τ ou le temps de formation du signal est un paramètre très important dans la détermination du rendement lumineux de scintillation[121]. Cette importance est due au fait que cette constante de temps est liée au temps de collection de charge dans le détecteur (tous type de détecteur), et par conséquent au temps de collection de la lumière dans les détecteurs à scintillation. La constante de mise en forme peut être déterminé par l'étage de mise en forme des signaux qui est dans ce cas l'amplificateur.

Si la valeur de la constante de temps de mise en forme est trop petite que le temps de collection de la lumière dans le scintillateur, la charge collectée à la sortie du photo-détecteur ne peut représenter qu'une petite partie des charges créées par la lumière de scintillation, et par conséquent, l'impulsion vue à la sortie de du circuit de mise en forme (l'amplificateur) perd de sa part une partie de son amplitude ΔV , ce qui altère la position du pic d'absorption totale (pic photoélectrique) [122], ce phénomène est connu comme le déficit balistique.

De plus, si le temps de mise en forme est plus grand que le temps de collection de la lumière dans le scintillateur, cela signifie que le circuit de mise en forme prends plus de temps que le temps nécessaire pour traiter une impulsion, et que les impulsions qui arrivent dans le même intervalle de temps sont perdues, ce qui réduit le taux de comptage requis pour la production d'un pic photoélectrique utile, on parle alors d'effet d'empilement (pile-up). Dans la figure 3-10 nous présentons une impulsion de scintillation mise en forme par le circuit de mise en forme (amplificateur spectroscopique) avec deux valeurs du temps de mise en forme : RC fini, et RC infini. Dans le cas du temps de mise en forme infini, il est clair que le circuit de mise en forme peut recevoir de nouvelles impulsions avant qu'il termine le traitement de l'impulsion en cours (pas de retour à la ligne de base), et dans ce cas, la probabilité d'empilement des impulsions est élevée. Par contre, dans le cas où le temps de mise en forme est fini, la probabilité d'empilement est réduite, vu que le retour à la ligne de base est possible.

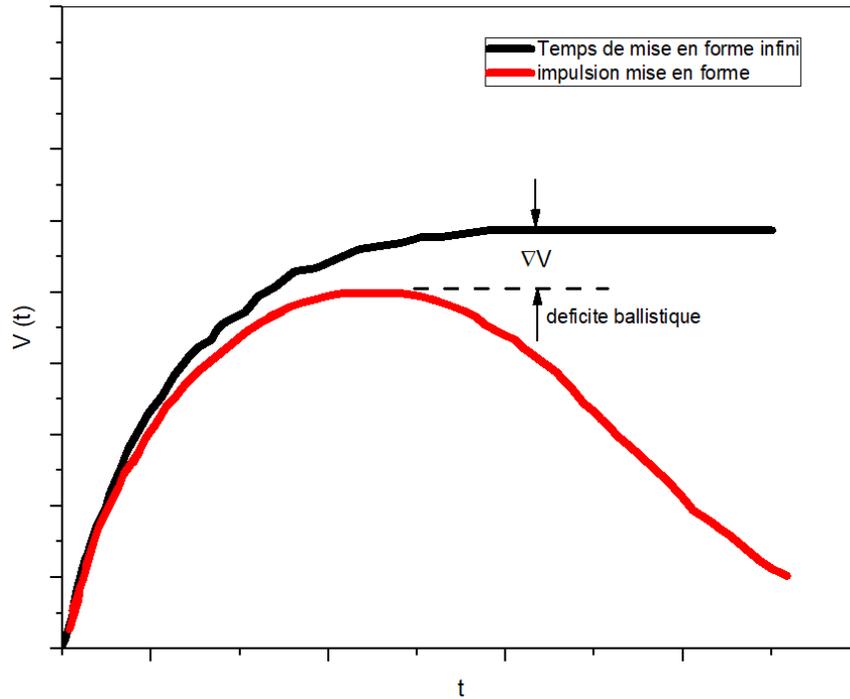


Figure 3- 10: effet du déficit balistique sur l'amplitude de l'impulsion, STC infini : graph en noir, STC fixe : graph en rouge, de [21] avec modification.

En conséquence, pour une détermination précise du rendement lumineux de scintillation, la valeur du temps de mise en forme $\tau = RC$ doit être sélectionnée d'une manière à collecter en premier lieu le maximum et voire la totalité des photons de scintillation[123], cela se traduit par une collection maximale et voire totale des charges à la sortie du photo-détecteur [124], et en deuxième lieu et à minimiser les pertes d'évènements dues au phénomène d'empilement [125].

3.3.3.2 Effet d'empilement des impulsions de scintillation

La même manipulation avec les mêmes conditions a été faite, mais dans cette fois-ci le but est d'évaluer l'effet du temps de mise en forme sur le nombre d'évènements de scintillation compté par l'analyseur multicanaux (le nombre d'évènements compté est évalué comme la surface nette du pic d'absorption totale), cela se traduit par l'effet du temps de mise en forme sur le taux de pertes d'évènements. L'intérêt de cette manipulation est en fait de choisir la valeur du temps de mise en forme qui ne conduit pas à une perte importante des évènements de scintillation, cela se traduit par l'obtention d'un pic d'absorption totale utile dans un temps réduit. Cette manipulation est ainsi importante dans le cas des scintillateurs rapides utilisés dans les applications de haut taux de comptage. Le résultat de la manipulation est présenté dans la figure 3-11 :

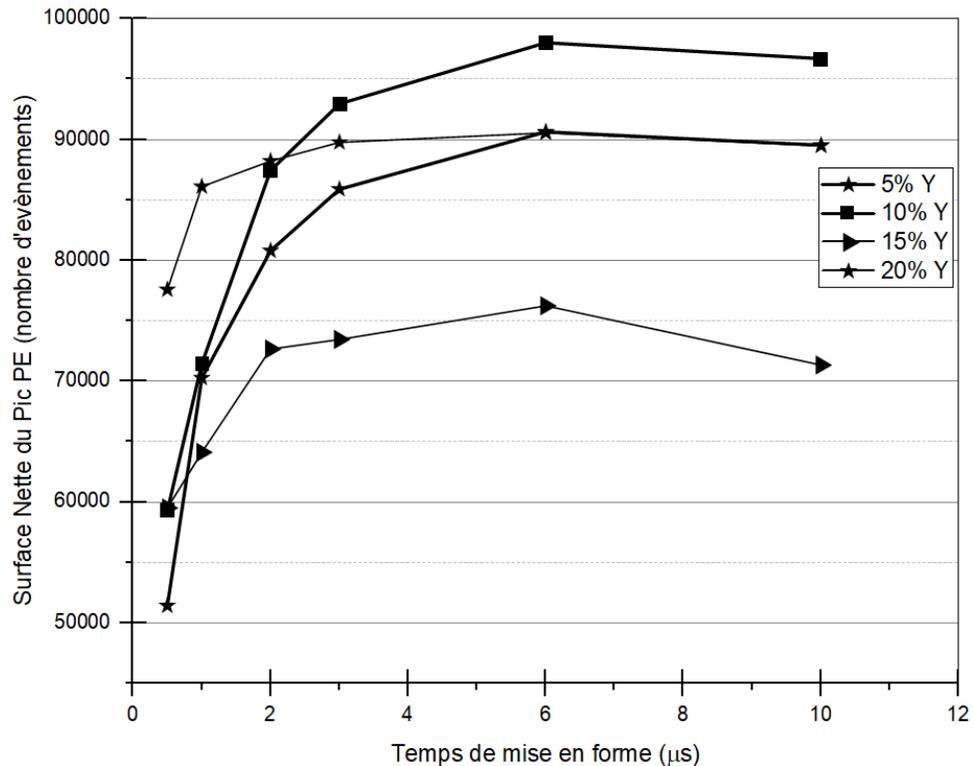


Figure 3- 11: variation du taux de comptage en fonction du temps de mise en forme (effet de repliement des impulsions).

Une augmentation des surfaces (comptage) des pics d'absorptions totales pour tous les échantillons examinés est enregistrée dans la plage du temps de mise en forme de (0,5 μs à 6 μs), cela peut être traduit par l'effet du déficit balistique, qui suite aux pertes dans les amplitudes des impulsions de scintillation, une quantité importante de ces événements est classés dans l'AMC comme des bruits plutôt que dans les pics d'absorption totales, ce qui justifié les petits comptages dans cet intervalle du temps de mise en forme.

Il est remarquable aussi que pour les valeurs du temps de mise en forme plus longues (> 6 μs), les taux de comptage ont présenté des décroissances, les décroissances dans les valeurs de comptage sont dues à l'effet d'empilement des impulsions (pile-up), vu que le système de mise en forme ou l'amplificateur une fois commence le traitement d'une impulsion, il rejette toutes les autres impulsions qui arrivent à son entrée avant qu'il termine la mise en forme de la première impulsion. En conséquence, et pour compter le maximum d'évènement, il est préférable de choisir la valeur du temps de mise en forme de manière à éviter des pertes importantes d'évènements.

Dans cette partie de l'étude nous avons établi une expérience de sélection de la valeur convenable du temps de mise en forme pour une mesure précise du rendement lumineux de scintillation des matériaux nano-scintillateurs. L'idée est basée en premier lieu sur l'évaluation de

la position du pic d'absorption totale (rendement lumineux) en fonction de la valeur du temps de mise en forme ($0,5 \mu\text{s}$ à $10 \mu\text{s}$) afin de trouver la valeur qui conduit à une collection totale des charges. Le scintillateur en forme de nano-poudre de type grenat Y-LuAG :0.1Ce avec différentes concentrations de l'Yttrium (0 à 20%) a été utilisé comme détecteur. Les échantillons sont étiquetés respectivement : S0, S5, S10, S15, S20. Une source de particules- α d'Am-241 (5.48 MeV) a été utilisée pour l'excitation sous la géométrie de réflexion, les spectres d'énergies ont été collectés pour une durée de 200 s pour chaque échantillon. Les résultats de cette évaluation est donné dans la figure 3-12.

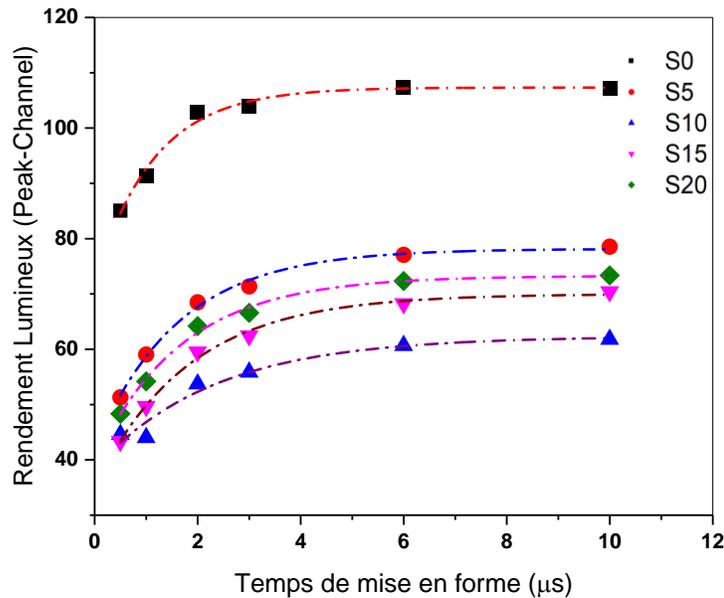


Figure 3- 12: variation du rendement lumineux en fonction du temps de mise en forme.

Pour tous les échantillons du nano scintillateur étudiés, une forte augmentation du rendement lumineux (évalué comme position du pic d'absorption totale) est observée dans l'intervalle ($0,5 \mu\text{s}$ à $2 \mu\text{s}$) du temps de mise en forme, cela signifie que ce temps est trop petit que le temps de collection des charges dans le condensateur de sortie du PMT (temps de collection des photons de scintillation dans le scintillateur). Cela signifie que seule une petite quantité des charges a été collectée par le circuit de mise en forme, cela est dû au *déficit balistique* qui a conduit à une réduction des amplitudes des impulsions de scintillation, et à une réduction des positions des pics (un shift vers la gauche du pic d'absorption totale). De plus, une légère croissance est également notée jusqu'à un temps de mise en forme égale à $6 \mu\text{s}$, cela signifie que la valeur du temps de mise

en forme devient proche d'être dans la plage du temps de collection de charges et permettant la collecte de la charge maximale créée par la lumière de scintillation. Pour des valeurs du temps de mise en forme plus longs ($>6 \mu\text{s}$), aucune augmentation importante du rendement optique n'a été observée.

En conclusion de cette manipulation, et en tenant compte des valeurs de rendements lumineux et des surfaces des pics d'absorption totale enregistrés en fonction du temps de mise en forme, nous avons constaté que le temps de mise en forme approprié pour une mesure précise du rendement optique des scintillateurs en forme de nano-poudres sujets à cette étude est de $6 \mu\text{s}$.

3. 3. 4 Méthode adoptée pour la mesure du rendement lumineux et de la résolution

En raison du fait que le spectre d'émission des nano-scintillateurs LuAG et LuYAG dopés au Ce^{3+} se trouve dans la gamme d'émission verte-jaune allant de 450 nm à 650 nm, un photodétecteur de type photomultiplicateur (PMT) avec une réponse spectrale appropriée a été choisi et utilisé pour mesurer la lumière de scintillation, à savoir le DuMont 6292. La réponse spectrale du PMT est présentée sur la figure 3-13. L'électronique associée au PMT comprend un préamplificateur (Ortec 276) qui fournit la haute tension (HT) au PMT et améliore le rapport signal sur bruit. Un amplificateur spectroscopique (Ortec 572) a été utilisé pour amplifier les signaux à des niveaux appropriés et mettre en forme les impulsions à une forme gaussienne, un analyseur multicanaux (Ortec Easy-MCA-8K-CH) est utilisé pour collecter les spectres d'énergie, une alimentation haute tension (HT) [126].

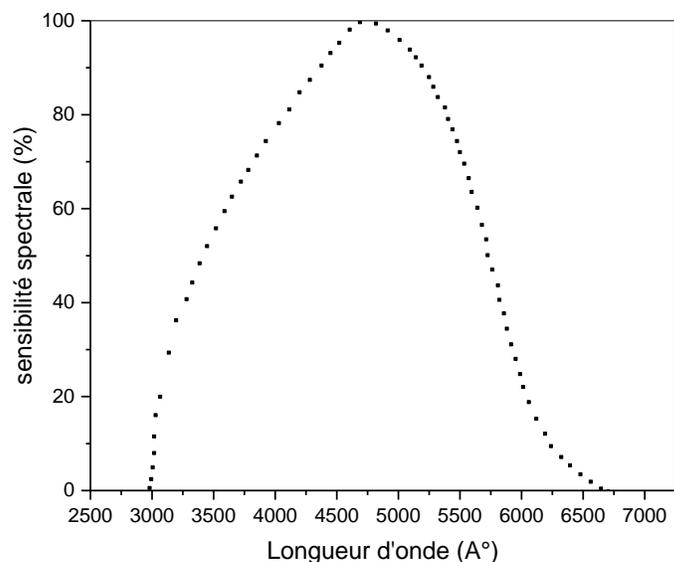


Figure 3- 13: Réponse spectrale du photomultiplicateur Dumont-6292 [127]

Le dispositif expérimental proposé pour mesurer le rendement lumineux de scintillation des nano-scintillateurs développés est présenté sur la figure 3-14. Le rendement lumineux a été mesuré sous l'excitation par les particules- α et sous la géométrie de réflexion.

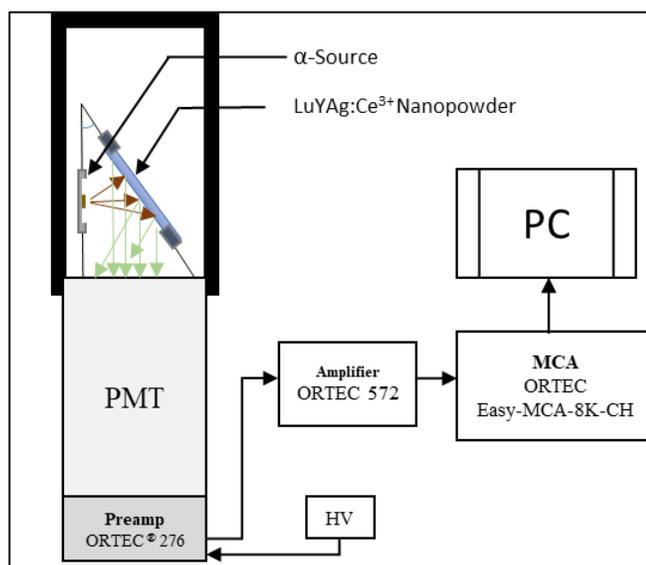


Figure 3- 14: Banc expérimental utilisé pour la mesure du rendement lumineux [117].

La mesure du rendement lumineux de scintillation consiste à acquérir et à analyser le spectre d'énergie des particules alpha pour chaque échantillon de nano-scintillateurs. Le rendement lumineux a été initialement évaluée comme la position du pic d'absorption totale dans le spectre d'énergie. Par la suite, et afin d'avoir des valeurs plus représentatives, les positions des pics d'absorption totales ont été comparées avec celle obtenue par un scintillateur monocristal de type LuAG :0.1at.% utilisé comme détecteur de référence [117,126]. Le pic d'absorption totale pour chaque échantillon a été approximé par une fonction gaussienne afin de déterminer la position exacte dans le spectre ainsi que pour le calcul de la largeur à mi-hauteur (FWHM) pour le calcul de la résolution en énergie. La fonction gaussienne utilisée pour approximer les pics d'absorption totale est donnée par l'équation suivante :

$$y = y_0 + \frac{A}{w \sqrt{\frac{\pi}{2}}} e^{-2 \frac{(x-x_c)^2}{w^2}} \quad (3-19)$$

Avec : y_0 est le bruit de fond, x_c est le centre du pic (la valeur médiane), w est le double de l'écart-type.

La valeur de la largeur à mi-hauteur (full width at half maximum, FWHM) sert au calcul de la résolution en énergie et peut être calculer de sa part par la relation suivante :

$$FWHM = w \cdot \sqrt{\ln(4)} \quad (3-20)$$

La figure 3-15 présente une approximation par la fonction gaussienne du pic d'absorption total d'un spectre d'énergie de l'Am-241 de 5.48MeV mesuré par l'échantillon du LuAG dopé à 0.1at.% Ce³⁺.

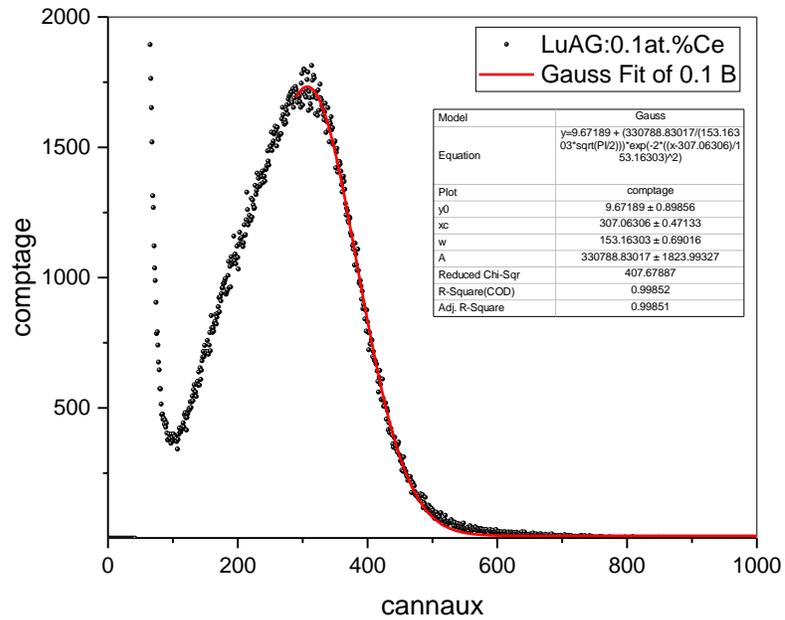


Figure 3- 15: Approximation gaussienne du pic d'absorption totale.

3. 3. 5 Méthode adoptée pour la mesure du temps de déclin de scintillation

Le dispositif expérimental de mesure des constantes de temps de scintillation en utilisant les particules- α et la géométrie de réflexion est présenté par la figure 3-16. Le principe de mesure du temps de déclin de scintillation par la méthode proposée est basé sur l'acquisition par un système d'acquisition rapide (oscilloscope) de l'impulsion de scintillation générée sur l'Anode (signal direct, de même forme que l'impulsion lumineuse) du PMT créée suite à une absorption totale de l'énergie d'excitation.

L'image de l'impulsion de scintillation produite sur la sortie DYNODE (sortie d'investigation des énergies, signal intégré par le préamplificateur) du PMT est utilisée pour générer le signal TRIGGER pour l'oscilloscope, ce qui lui permet de fixer uniquement les impulsions correspondantes à l'énergie du pic d'absorption totale (ex :662 keV). L'impulsion à la sortie Dynode utilisée pour la génération du signal TRIGGER permet de garantir que les impulsions des deux lignes sont dues au même évènement de scintillation, donc le signal TRIGGER et due à la même impulsion de scintillation qui a généré l'impulsion Anode fixée par l'oscilloscope.

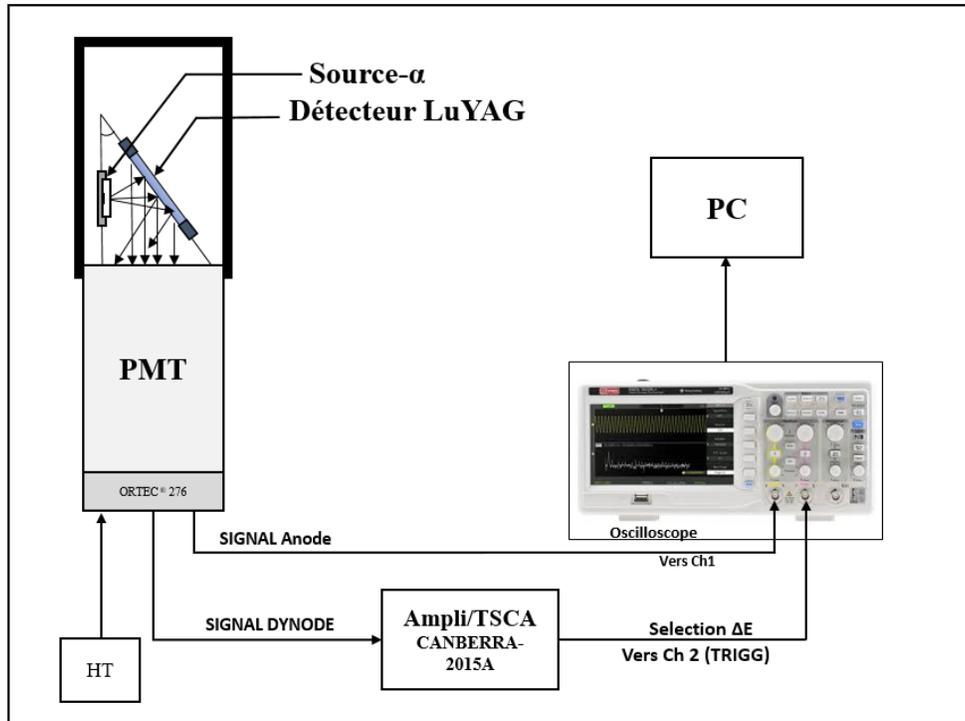


Figure 3- 16: Système de mesure du temps de déclin de scintillation [117].

L'impulsion à la sortie DYNODE est amplifiée par un amplificateur spectroscopique, et à l'aide d'un analyseur multicanaux (AMC), le spectre d'énergie peut être visualiser afin de fixer la position du pic d'absorption total correspondant à l'énergie d'excitation. Une fois le pic d'absorption total est localisé sur le spectre d'énergie, un discriminateur est utilisé pour ne faire passer que les impulsions appartenant au pic d'absorption total, cela est due à la sélection de la fenêtre correspondante au pic. Le signal à la sortie du discriminateur est connecté à l'entrée de l'oscilloscope (CH2) qui est utilisée comme source de TRIGGER. La fenêtre d'énergie du pic d'absorption total (ΔE) peut être dans ce cas ajustée par l'analyseur multicanaux fonctionnant en mode coïncidence avec le signal TRIGGER généré par le discriminateur (figure 3-17).

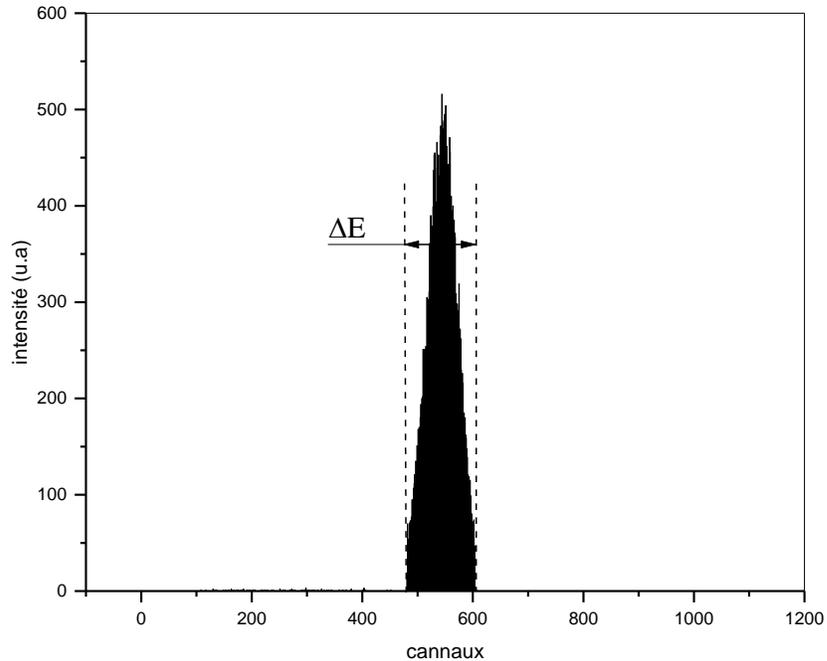


Figure 3- 17: Fenêtre d'énergie sélectionnée avec un AMC en mode coïncidence avec le signal TRIGGER, (détecteur NaI(Tl), Excitation par Cs-137 :662 keV).

Le signal TRIGGER permet à l'oscilloscope de fixer seulement les impulsions à la sortie Anode (CH1) qui correspondent à la fenêtre d'énergie déjà sélectionnées par le discriminateur (figure 3-18). L'impulsion sur l'Anode déjà fixée par l'oscilloscope est enregistrée directement sur ordinateur via une interface USB, un script Matlab a été développé pour l'acquisition et le traitement des signaux.

Vu que les impulsions de scintillation ne se décroissent pas de la même manière, le temps de déclin mesuré sur des impulsions individuelles n'est pas de même valeur, pour cette raison une étude statistique doit se faire sur un ensemble d'impulsions pour se rapprocher de la valeur exacte du temps de déclin de scintillation du matériaux [128]. Le temps de déclin peut être estimer correctement en augmentant le nombre d'impulsions dans l'ensemble statistique [129]. Une impulsion moyenne est calculée sur l'ensemble d'impulsions enregistrées et le temps de déclin est calculé sur cette impulsion moyenne[130].

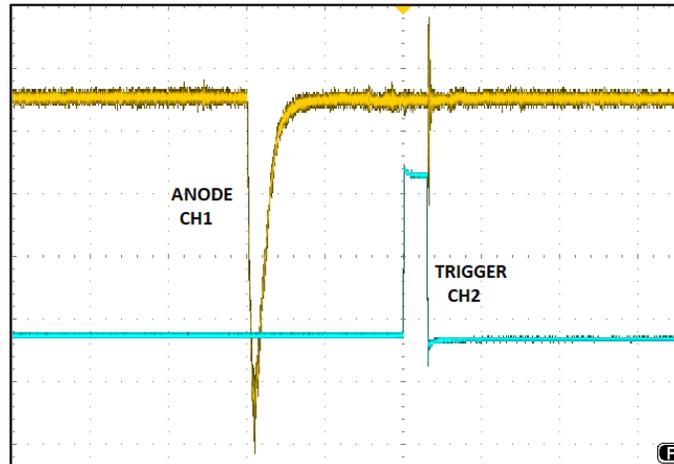


Figure 3- 18: Impulsion Anode captée par l'oscilloscope en mode TRIGGER pour une énergie de 662 keV d'une source de Cs-137 (en jaune l'impulsion Anode, en bleu le signal TRIGGER).

En comparaison avec la méthode de mesure du temps de déclin conventionnelle [131] (méthodes de coïncidence retardée, de BOLLINGER), La méthode directe de mesure du temps de déclin de scintillation est avérée plus simple à réaliser, vu la disponibilité des équipements de mesure rapides au niveau de notre laboratoire d'une part, et vu la complexité de la méthode de BOLLINGER. Avant l'utiliser comme moyen de mesure du temps de déclin de scintillation des nouveaux nano-scintillateurs inorganiques développés, la méthode proposée a été validée expérimentalement [130].

3.3.5.1 Validation de la méthode de mesure du temps de déclin

Afin de valider notre méthode de mesure du temps de déclin de scintillation, nous avons effectué plusieurs tests sur un scintillateur standard dont le temps de déclin est déjà connu. Le scintillateur le plus couramment utilisé pour cet objectif est le NaI(Tl). Selon la littérature, ce scintillateur présente des constantes de temps de déclin mesurés sous excitation Gamma, plus ou moins variable, compris entre 230 ns et 350 ns, qui dépendent fortement du taux de dopage en thallium (0,1 % à 0,5 %), ainsi que de l'énergie d'excitation [87,132].

Une impulsion moyenne est calculée en prenant la moyenne de 200 impulsions de scintillation mesurées sur l'Anode du PMT et enregistrées par un oscilloscope (GDS-3054, 500 MHz, 5 Gs/s) avec un temps d'échantillonnage de 1 ns.

Comme le temps de déclin de scintillation dépend de l'énergie d'excitation [133], trois expériences de validation ont été élaborées. Dans chacune de ces expériences, nous avons utilisé une source d'excitation d'énergie différente. Le but est d'étudier ainsi la non linéarité du temps de déclin en fonction d'énergie d'excitation. Trois sources gamma ont été utilisées, il s'agit de l'Am-241 de 59keV, du Cs-137 de 662 keV, et du Co-60 de 1.332MeV. Comme les scintillateurs NaI(Tl) sont des cristaux hautement hygroscopique [119,134,135], et sont couverts en aluminium sur leurs côtés et leurs faces supérieures, la face couplée avec le PMT est recouverte par une fenêtre de verre ou de quartz pour éviter toute pénétration possible d'humidité [136,137], les particules- α ne peuvent être utilisées comme source d'excitation dans cette expérience.

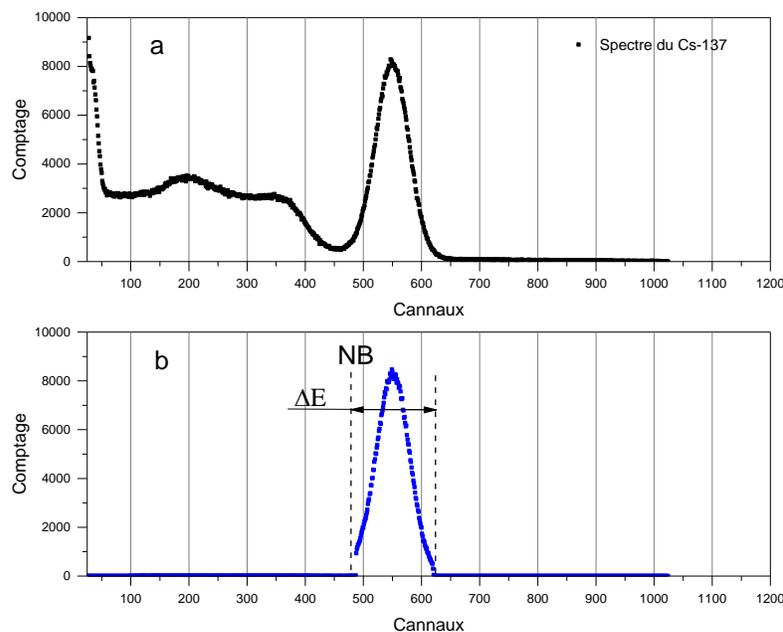


Figure 3- 19: Réglage de la fenêtre du SCA à l'aide d'un AMC en mode coïncidence avec le signal TRIGGER-SCA, (détecteur NaI(Tl), Excitation par Cs-137 :662 keV)

Pour sélectionner uniquement les impulsions de scintillation dont leur origine sont dues aux énergies d'excitation (énergies de pic Photoélectrique), un analyseur multicanaux en mode Coïncidence a été utilisé pour ajuster la fenêtre d'énergie du pic. Un discriminateur (analyseur monocanal) a été utilisé pour la sélection de la fenêtre d'énergie du Pic ainsi pour la génération du signal TRIGGER. La fenêtre du discriminateur est réglée afin de sélectionner la totalité d'impulsions appartenant au pic photoélectrique, la sortie du discriminateur (signal TRIGGER) est branchée sur l'entrée Gate de l'analyseur multicanaux afin de régler les niveaux BAS (NB) du

discriminateur pour mettre sa fenêtre exactement sur le pic photoélectrique. La figure 3-19 **Error! Reference source not found.** présente deux spectres d'énergie du Cs-137, (a) : le spectre d'énergie complet, (b) : le spectre d'énergie après la sélection du pic photoélectrique (ΔE).

Une fois que la gamme d'énergie du pic photoélectrique est sélectionnée, la sortie du SCA est reconnectée à l'entrée TRIGGER de l'oscilloscope pour enregistrer uniquement les impulsions correspondantes au pic photoélectrique, tout en ignorant les autres impulsions telles que le bruit et les rayonnement cosmiques à haute énergie.

Un oscilloscope numérique a été utilisé pour l'acquisition des impulsions de scintillation issues directement de l'Anode du PMT. Les impulsions de scintillation ont été acquises à une fréquence d'échantillonnage de 1Ghz pour les trois sources d'excitation. Une interface USB a été utilisée pour enregistrer les impulsions sur ordinateur. Des impulsions moyennes ont été calculées sur 2000 impulsions de scintillation pour chaque énergie d'excitation.

Pour calculer la constante de temps de scintillation du scintillateur NaI(Tl), les impulsions moyennes précédemment calculées, ont été approximées par une fonction exponentielle décroissante de forme suivante :

$$Y(t) = A. e^{\frac{-t}{\tau}} + Y_0 \quad (3-21)$$

Avec : τ , est la constante de temps de déclin de scintillation du scintillateur NaI(Tl).

La plage d'approximation par la fonction exponentielle est identique pour les trois impulsions moyennes, afin de garantir des résultats comparables, elle s'étend de 1100 ns jusqu'à la fin de l'impulsion [117,129] .

Cette procédure est répétée pour les mesures du temps de déclin de scintillation, la seule différence entre les trois manipulations étant les niveaux de déclenchement de TRIGGER qui sont fixés en fonction de la position du pic photoélectrique, ce qui dépend de l'énergie d'excitation.

L'alimentation HT du PMT est réglée à sa valeur maximale tolérée afin d'obtenir des impulsions de grandes amplitudes sur l'Anode (dans notre cas HT=1600V), ce qui facilite leur analyse [129], et permet d'obtenir une résolution spectrale optimale des impulsions [138]. Les impulsions moyennes calculées pour chaque énergie d'excitation ainsi que leur approximation en fonction exponentiel décroissante sont présentées dans les figures 3-20, 3-21 et 3-22.

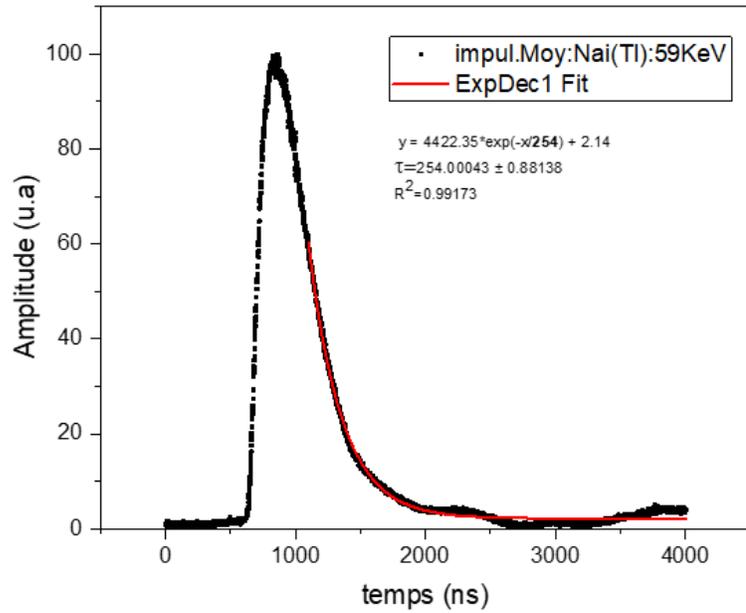


Figure 3- 20: Constante de temps de déclin mesuré sur la moyenne de 200 impulsions sur l'Anode (Énergie d'excitation :59 keV).

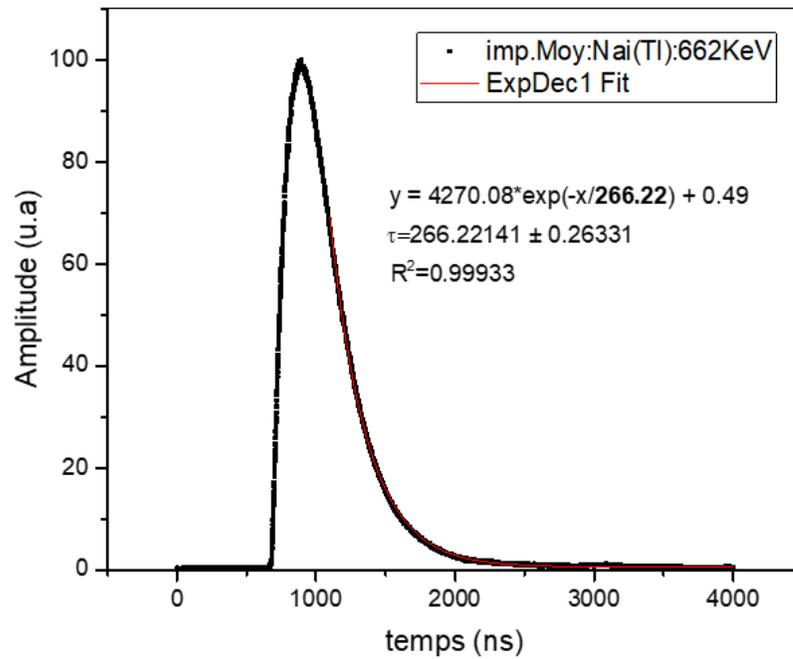


Figure 3- 21: Constante de temps de déclin mesuré sur la moyenne de 200 impulsions sur l'Anode (Énergie d'excitation :662 keV).

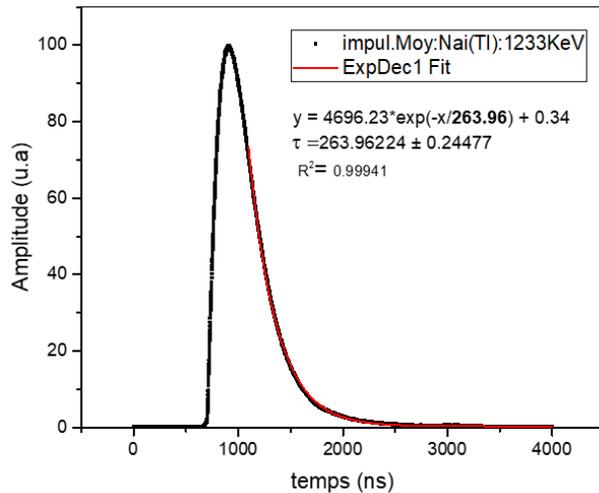


Figure 3- 22: Constante de temps de déclin mesuré sur la moyenne de 200 impulsions sur l'anode (Énergie d'excitation : 1332 keV).

La régression exponentielle optimale calculée sur une impulsion moyenne de 200 impulsions mesurées sur l'Anode du PMT lorsque le scintillateur NaI(Tl) est excité par une source X d'Am-241 de 59 keV a donné un temps de déclin de scintillation $\tau = 254 \text{ ns}$, avec un coefficient de détermination $R^2 = 99.17\%$. Une valeur de 266.22 ns avec un coefficient de détermination 99.93% a été obtenue lorsque le scintillateur NaI(Tl) est excité par une source Gamma de Cs-137 de 662 keV. Une valeur de 263.96 ns avec un coefficient de détermination de 99.94% a été obtenue lorsque le scintillateur NaI(Tl) est excité par une source de Co-60 de 1332 keV.

Les valeurs des constantes de temps de scintillation obtenues appartiennent à l'intervalle des temps de déclin typiques du scintillateur monocristal NaI(Tl), ce qui confirme l'efficacité de la méthode proposée.

3.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les principales caractéristiques des matériaux scintillateurs ainsi que les méthodes les plus courantes pour leur mesure. Nous avons ainsi présenté les méthodes que nous avons développées et adoptées pour la mesure des propriétés de scintillation des nano-scintillateurs développés. Les scintillateurs taillés à l'échelle nanométrique sont connus par certaines propriétés optiques telles que la diffusion et l'absorption de la lumière de scintillation, en plus de ces deux caractéristiques, les petites tailles des échantillons des scintillateurs étaient une

autre contrainte de mesure, ce qui nécessite une attention spéciale dans l'adoption de certaines méthodes de mesures des propriétés de scintillation. Pour contourner au maximum ces contraintes, le choix de la source de rayonnement/ particules d'excitation ainsi que la géométrie d'excitation était un grand défi pour la réussite des mesures.

Le chapitre suivant sera exclusivement dédié à la présentation des nano-scintillateurs développés au niveau du centre de recherche nucléaire d'Alger (CRNA), ainsi qu'à la présentation des résultats de mesures de leurs propriétés de scintillation.

Chapitre 4

**Propriétés de scintillation des nano-
scintillateurs LuAG et LuYAG**

4.1 Introduction

Dans ce chapitre, les résultats de mesures des propriétés de scintillation des scintillateurs inorganiques développés à l'échelle nanométrique sont présentés. Il est connu que les caractéristiques de tels matériaux dépendent fortement de différents paramètres et conditions, on cite par exemples les conditions liées à la synthèse et à la préparation du matériau qui sont principalement les températures de préparation et les concentrations des dopants qui ont des effets forts sur quelques caractéristiques comme le rendement lumineux de scintillation, la résolution en énergie, la linéarité en énergie, ainsi que sur les caractéristiques temporelles tel que le temps de déclin et la résolution temporelle. Nous nous concentrons dans ce chapitre à l'étude des caractéristiques des matériaux scintillateurs de type grenats en forme de nano-cristaux poudres qui ont été développés au niveau du centre de recherche nucléaire d'Alger (CRNA). Il s'agit des nano-scintillateurs LuAG :Ce³⁺ et le LuYAG :Ce³⁺. Les caractéristiques structurales et de la photoluminescence des deux nano-scintillateurs ont été étudiées dans des études précédentes [139–141]. Dans la présente étude, nous nous intéressons principalement à la caractérisation des propriétés de scintillation des deux matériaux, à savoir : le rendement lumineux de scintillation, le temps déclin scintillation, la résolution en énergie et la linéarité en énergie.

En premier lieu, Quatre échantillons du nano-scintillateur LuAG dopés aux différentes concentrations de Cérium (0.1, 0.5, 1 et 2at.%) ont été caractérisés en fonction de la concentration du dopant. L'étude de caractérisation avait pour objet la sélection de la concentration du dopant conduisant au meilleur rendement lumineux, il a été trouvé que l'échantillon dopé à 0.1at.% donne les meilleures performances de photoluminescence [142], ainsi qu'un meilleur rendement lumineux[120]. En deuxième lieu, quatre échantillons du nano-scintillateur LuAG dopés a 0.1at.% Ce³⁺ avec des substitutions des ions du lutécium (Lu³⁺) par les ions de l'Yttrium (Y³⁺) avec des concentrations de 05, 10, 15, 20 at.% ont été développés est caractérisés. L'objectif principale de cette substitution était le développement d'un matériau scintillateur moins couteux que le LuAG, étant donné que l'Yttrium présente un cout inférieur à celui du Lutécium. Le choix de la substitution à des faibles concentrations est choisie afin de maintenir au maximum la densité élevée du matériau, tout en le rapprochant de celle du LuAG :Ce³⁺ (6.73g/cm³ [143]).

4.2 Présentation des nano-scintillateurs à caractériser

4.2.1 Le nano-scintillateur LuAG dopé au Cérium

Les nano-poudres de grenat d'aluminium et de lutétium dopés au ions de cérium Ce^{3+} (LuAG: Ce^{3+}) ont été synthétisées par la méthode sol-gel. Les effets des concentrations de Ce^{3+} (0.1 at.%, 0.5 at.%, 1.0 at.% et 2.0 at.%) et de la température de recuit sur les propriétés structurales et de luminescence ont été étudiés et discutés dans l'étude menée par BOUKERIKA et autres [140]. Les nano-poudres LuAG: Ce^{3+} résultantes ont été caractérisées par la calorimétrie différentielle à balayage (DSC), la technique de diffraction des rayons X (XRD), la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) et la spectroscopie de photoluminescence (PL). Les analyses DSC ont montré que la température de cristallisation du LuAG est d'environ 960 °C. L'analyse par diffraction des rayons X a indiqué que la phase cristalline de LuAG formée est de forme cubique. En augmentant la concentration du dopant Ce^{3+} , la taille moyenne des cristallites diminue et en augmentant la température de recuit, la taille moyenne a augmentée. De plus, les valeurs de déformation du réseau ont diminué au cours de l'augmentation de la taille des cristallites.

Les spectres de photoluminescence mesurés en température ambiante ont révélé une forte large bande d'émission vert-jaune dans la gamme de 450 à 700 nm, caractéristique de la transition $5d \rightarrow 4f$ de l'ion Ce^{3+} . Il a été constaté aussi que le nano-poudre LuAG de la plus faible concentration de Ce^{3+} (0,1 at.%) présente l'intensité de luminescence la plus élevée. L'effet de la taille des cristallites sur les paramètres spectroscopiques de luminescence a été étudié dans la même étude.

Dans la présente étude, les propriétés de scintillation du LuAG dopé au cérium pour les concentrations de 0.1 at.%, 0.5 at.%, 1.0 at.% et 2.0 at.%, ont été investiguées et discutés.

4.2.1.1 Préparation des échantillons du LuAG :Ce

Les échantillons du nano-scintillateurs sont présentés dans le tableau 4-1, les échantillons sont étiquetés respectivement selon la concentration du dopant comme suit : S01 pour la concentration 0.1at.%, S05 pour la concentration 0.5 at.%, S10 pour la concentration 1.0 at.% et

S20 pour la concentration 2.0at%. Le monocristal LuAG :0.1at.% a été utilisé comme référence pour la détermination du rendement lumineux, il a été étiqueté MC.

Tableau 4- 1: Échantillons du nano-scintillateur LuAG:Ce³⁺

Echantillons	Formule	Concentration du Cérium (at.%)
S01	Lu ₃ Al ₅ O ₁₂ :Ce	0.1
S05	Lu ₃ Al ₅ O ₁₂ :Ce	0.5
S1	Lu ₃ Al ₅ O ₁₂ :Ce	1
S2	Lu ₃ Al ₅ O ₁₂ :Ce	2
MC	Lu ₃ Al ₅ O ₁₂ :Ce	0.1

Les échantillons du scintillateur LuAG en forme de nano-poudres ont été préparés et compactés à la presse en pastilles de 10 mm de diamètre et de 1.5 mm d'épaisseur. Les pastilles ont été ensuite chauffées jusqu'à 140°C pendant cinq heures pour évaporer l'humidité résiduelle. Après chauffage, les pastilles ont été laissées refroidir à température ambiante. Les pastilles préparées sont illustrées dans la figure 4-1.

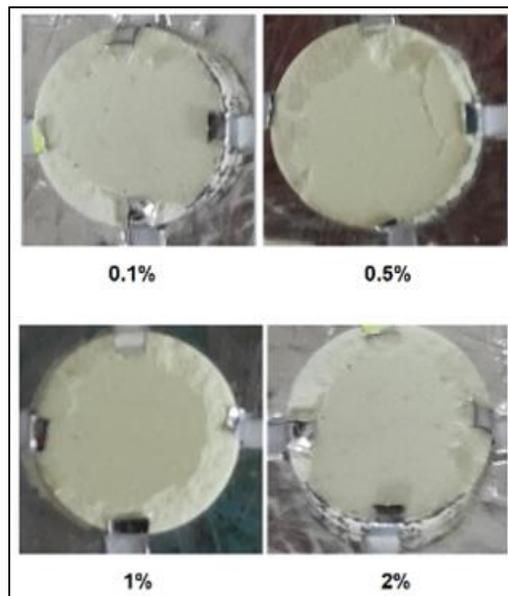


Figure 4- 1: Échantillons du nano-scintillateur LuAG préparés en pastilles (les pastilles sont présentées avec les concentrations du Cérium).

4. 2. 2 Le nano-scintillateur LuYAG :Ce

Le grenat d'aluminium et de lutétium dopés au ions de cérium Ce^{3+} (LuAG: Ce^{3+}) à une concentration de 0.1at.%, et dans lequel les ions du lutécium (Lu^{3+}) ont été substitués graduellement par les ions de l'Yttrium (Y^{3+}) à des concentrations allant de 0 at.% à 20 at.% avec un incrément de 5at.% pour former le LuYAG :0.1at.% Ce^{3+} . L'objectif de la substitution est de développer un nouveau matériaux scintillateur à l'échelle de nano, moins cher que le LuAG. Cinq échantillons ont été développés. Les cinq échantillons ont été synthétisées par la méthode sol-gel. Les effets de la concentration du substituant Y^{3+} (05 at.%, 10 at.%, 15 at.% et 20 at.%) et de la température de recuit sur les propriétés structurales et de luminescence ont été étudiés et discutés dans l'étude menée par BOUKERIKA et autres[141]. Les nano-poudres LuAG: Ce^{3+} résultantes ont été caractérisées par la calorimétrie différentielle à balayage (DSC), la technique de diffraction des rayons X (XRD), la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) et la spectroscopie de photoluminescence (PL). Les analyses DSC ont montré que la température de cristallisation du LuYAG est d'environ 960 °C. L'analyse par diffraction des rayons X a indiqué qu'une seule phase cristalline, pure et cubique du LuYAG est formée. Les spectres de photoluminescence mesuré en température ambiante ont révélé une forte large bande d'émission vert-jaune dans la gamme de 450 à 700 nm avec un maximum situé à 500 nm, caractéristique attribuée à la transition $5d \rightarrow 4f$ de l'ion Ce^{3+} . Il a été constaté aussi que plus la concentration du substituant augmente, l'intensité d'émission du LuYAG :0.1at.% augmente.

4.2.2.1 Préparation des échantillons du LuYAG :Ce

Les échantillons développés du nano-scintillateur sont présentés dans le tableau 4-2. Les échantillons sont codés respectivement selon la concentration du substituant (Y^{3+}) comme suit : S0 pour la concentration 0at.%, S05 pour la concentration 05at.%, S10 pour la concentration 10 at.%, S15 pour la concentration 15 at.% et S20 pour la concentration 20at.%.

Tableau 4- 2: Échantillons du nano-scintillateur LuYAG.

Échantillon	Formule	Concentration d'Yttrium (at.%)
S0	$[(\text{Lu}_{1-x}\text{Y}_x)_{1-z}\text{Ce}_z]_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, (x=0.00, Z=0.001)	0
S5	$[(\text{Lu}_{1-x}\text{Y}_x)_{1-z}\text{Ce}_z]_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, (x=0.05, Z=0.001)	5
S10	$[(\text{Lu}_{1-x}\text{Y}_x)_{1-z}\text{Ce}_z]_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, (x=0.10, Z=0.001)	10
S15	$[(\text{Lu}_{1-x}\text{Y}_x)_{1-z}\text{Ce}_z]_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, (x=0.15, Z=0.001)	15
S20	$[(\text{Lu}_{1-x}\text{Y}_x)_{1-z}\text{Ce}_z]_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, (x=0.20, Z=0.001)	20
MC	LuAG : 0.1 at.% Ce^{3+}	0

Les échantillons du scintillateur LuYAG en forme de nano-poudres ont été préparés et compactés à la presse en pastilles de 10 mm de diamètre et de 1,5 mm d'épaisseur. Les pastilles ont été ensuite chauffées jusqu'à 140°C pendant cinq heures pour évaporer l'humidité résiduelle. Après chauffage, les pastilles ont été laissées refroidir lentement à température ambiante. Les pastilles préparées sont illustrées dans la figure 4-2.

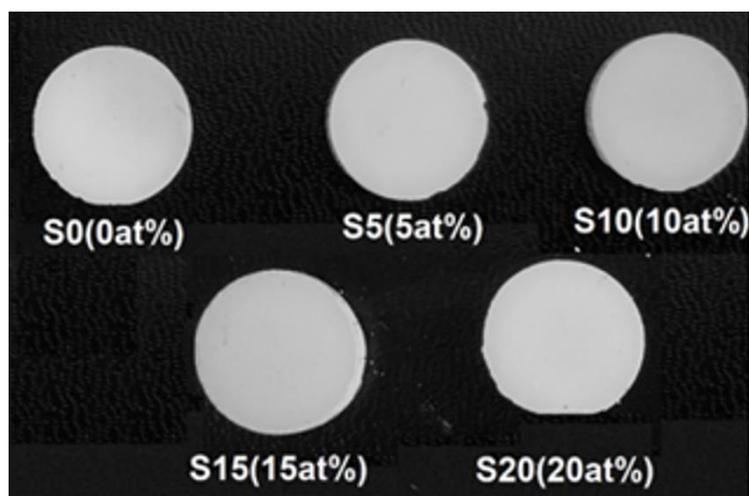


Figure 4- 2: Échantillons du nano-scintillateur LuYAG présentés en fonction de la concentration de l'Yttrium.

4. 2. 3 Le LuAG :0.1at.% Ce^{3+} monocristal

Dans le but d'être utilisé comme détecteur de référence dans le processus de détermination du rendement lumineux des nano-scintillateurs développés, un scintillateur monocristal (MC)

LuAG dopé à 0.1 at.% Ce^{3+} a été développé par la méthode de tirage de Czochralski (Cz), à partir du mélange de Lu_2O_3 , Al_2O_3 et CeO_2 , poudres de haute pureté (4N et 5N). Le mélange préparé a été fritté à 1500°C pendant 12 heures dans une atmosphère d'air. Les phases ont été identifiées à température ambiante, par des mesures de diffraction des rayons X sur poudre, sur un diffractomètre à rayons X (Bruker-AXS D8 ADVANCE) [144,145] . Le cristal a été tiré à une vitesse de 1.5 mm/h et à une vitesse de rotation de 8 tr/min. Il en résulte, un cristal transparent, de couleur légèrement verte et exempt de défauts macroscopiques visibles. Le diamètre du cristal est d'environ 30 mm et la longueur est d'environ 85 mm. Ce monocristal a été développé à l'Institut Lumière Matière (ILM), UMR5306 CNRS, Université de Lyon 1, France. Le monocristal développé est présenté dans la figure 4-3. Une fraction à taille comparable aux échantillons développés a été utilisée comme référence de mesure du rendement lumineux [117].

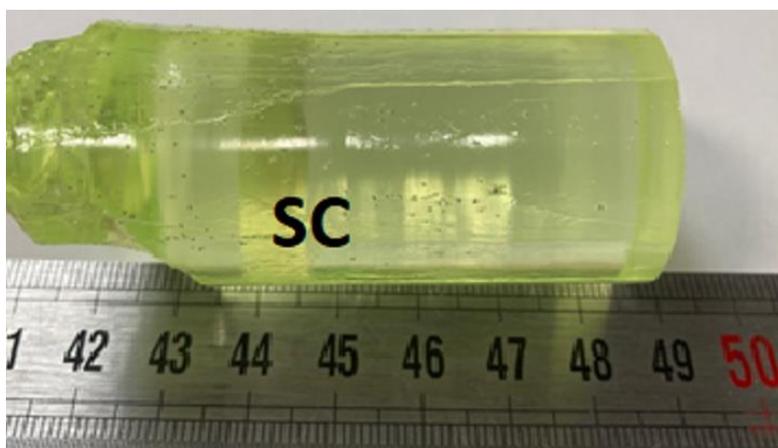


Figure 4- 3: Le monocristal LuAG :0.1at.% Ce^{3+} .

4. 2. 4 Propriétés de scintillation du nano-scintillateur LuAG :Ce

4.2.4.1 Rendement lumineux et résolution en énergie

Les spectres d'énergie de l'Am-241 de 5.48MeV mesurés par les échantillons du nano-scintillateur LuAG ainsi que par le scintillateur monocristal LuAG :0.1at.% Ce^{3+} sont présentés dans la figure 4-4.

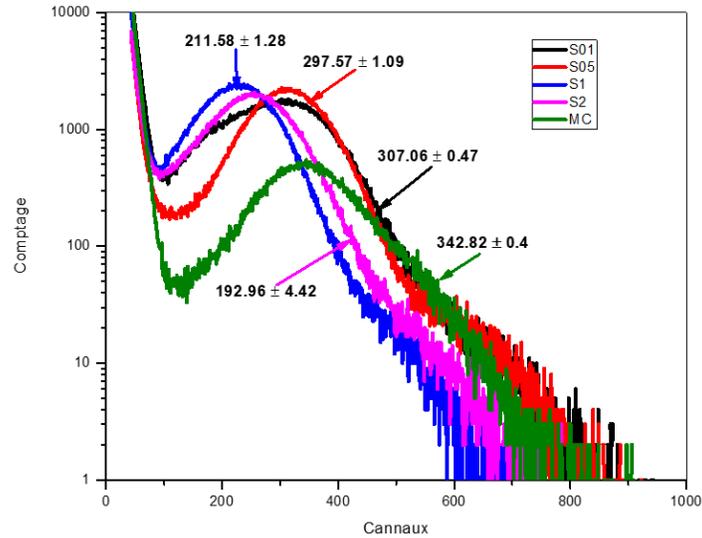


Figure 4- 4: Spectres d'énergies de l'Am-241 de 5.48MeV mesurés par le nano-scintillateur LuAG dopés aux différentes concentrations de Cérium, et par le monocristal LuAG :0.1at%Ce³⁺, mesures tenues avec un gain d'amplification de 50.

Comme nous pouvons le voir, le LuAG dopé à 0.1 at.% de Ce³⁺ donne le rendement lumineux le plus élevé (pic situé au canal 342.82) avec une valeur relative au monocristal de 89.30%, et l'échantillon dopé à 2 % de Ce³⁺ présente le rendement lumineux le plus faible (pic situé au canal 192.96), avec une valeur relative au monocristal de 56.11%. De plus, en augmentant la concentration du dopant, le rendement lumineux diminue, la dégradation du rendement lumineux observée peut être associée au phénomène de quenching (affaiblissement de la lumière) des photons, induit par l'augmentation de la concentration du cérium [120].

La résolution en énergie R de chaque échantillon du nano-scintillateur LuAG :Ce a été calculé selon l'équation suivante:

$$R(\%) = \frac{\Delta E}{E} = \frac{FWHM}{PP} \cdot 100 \quad (4-1)$$

Avec : FWHM est la largeur à mi-hauteur du pic d'absorption total (Full Width at Half Maximum), PP: la position du pic d'absorption totale.

L'évolutions du rendement lumineux et de la résolution en énergie des échantillons du nano-scintillateur LuAG en fonction de la concentration du dopant sont présentées dans la figure

4-5. Les valeurs obtenues du rendement lumineux (position du pic d'absorption totale) ont été comparées avec le rendement lumineux du LuAG:0.1Ce³⁺ MC utilisé comme détecteur de référence afin de calculer les rendements lumineux relatifs.

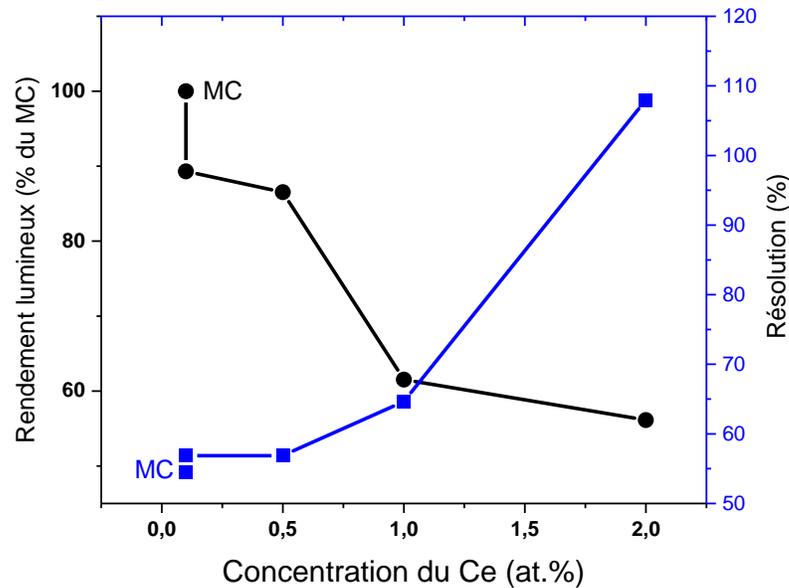


Figure 4- 5: Rendements lumineux relatifs et résolution en énergie en fonction de la concentration du dopant (Ce³⁺).

Tableau 4- 3: Rendement lumineux et résolution en énergie des échantillons du nano-scintillateur LuAG :Ce³⁺ mesurés avec un gain de 50.

Echantillons	RL (canal)	FWHM (Canal)	RL relative au monocristal (%)	Résolution(@E=5.48MeV) (%)
MC	342.82±0.4	186.90±1.24	100	54.51±0.67
S01	307.06 ± 0.47	180.33± 0.80	89.30 ± 0.13	58.72±0.47
S05	297.57 ± 1.09	169.20±1.20	86.54 ± 0.31	56.85±0.80
S1	211.58 ± 1.28	161.10±1.30	61.53 ± 0.37	76.13±1.05
S2	192.96 ± 4.42	208.35± 3.10	56.11 ± 1.28	107.8±2.72

Les valeurs du rendement lumineux en canal des pics et relatives au monocristal LuAG :0.1at.% Ce³⁺, ainsi que les résolutions en énergie sont présentées dans le tableau 4-3.

Il est remarquable que la résolution en énergie se dégrade considérablement en augmentant la concentration du dopant (Ce³⁺), et les échantillons dopés à 0.1 et 0.5 at.% ont présentés les

meilleures résolutions, ($\approx 59\%$ et $\approx 57\%$ respectivement), ce qui peut être associé aux valeurs de rendements lumineux élevées pour ces deux échantillons. D'autre part, la résolution en énergie se dégrade dans l'intervalle du dopant de 0.5-2at.%, et l'échantillon dopé à 2at.% a présenté la mauvaise résolution ($\approx 108\%$), ce qui peut être relié aux faibles rendements lumineux (quenching).

4.2.4.2 Temps de déclin de scintillation

Les profils temporels moyens calculés sur 2000 impulsions de scintillation mesurées sur l'Anode du photomultiplicateur suite à des excitations par des particules- α ($E=5.48\text{MeV}$), des échantillons du nano-scintillateur LuAG :Ce³⁺ sont présentés dans la figure 4-6.

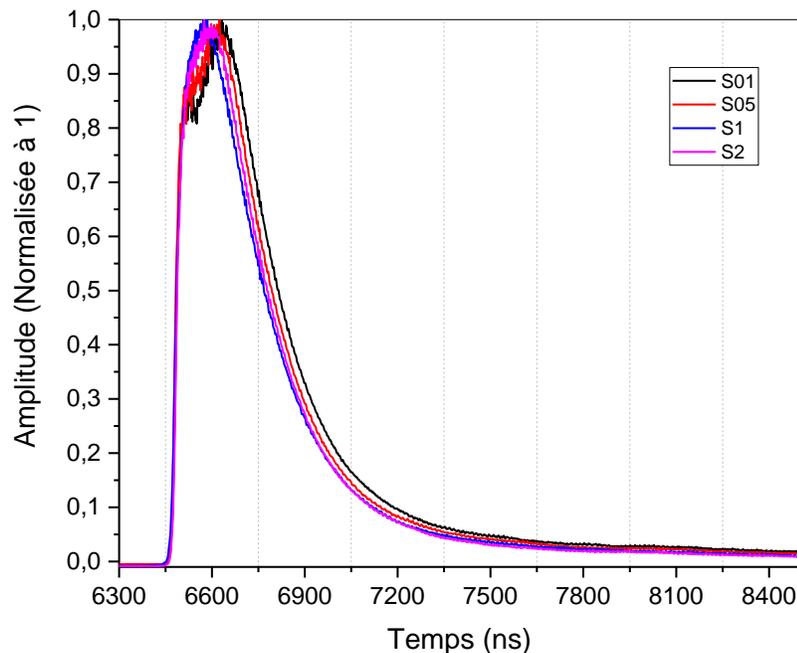


Figure 4- 6: Profils temporels moyens des échantillons du nano-scintillateur LuAG :Ce³⁺

Les profils temporels ont été approximés par des fonctions exponentielles de trois composantes. Les résultats de mesure des temps de déclin de scintillation des échantillons du nano-scintillateurs LuAG dopé aux différentes concentrations de Cérium, ainsi que les contributions de chaque composante temporelle sont présentés dans le tableau 4-4.

Tableau 4- 4: Temps de déclin de scintillation des échantillons du nano-scintillateur LuAG:Ce

Echantillon	τ_1 (ns)	fraction(%)	τ_2 (ns)	fraction(%)	τ_3 (ns)	fraction(%)
S01	75.8(1.3)	74	161.6 (1.6)	12	937.5(33.6)	13
S05	70.8(1.5)	68	170.5 (1.5)	10	966.6 (22.3)	22
S1	69.6 (2.5)	70	175.5 (2.5)	13	980.7 (18.5)	17
S2	68.5 (3.3)	71	172.6 (3.3)	15	990 (20.2)	14

D'après le tableau 4-4, les temps de déclin de scintillation des composantes rapides, des échantillons du nano-scintillateur LuAG étudiés, en fonction de la concentration du dopant présentent des valeurs proches entre 68 et 75 ns avec des contributions majeures, qui peuvent être attribuées aux recombinaisons rapides des paires électrons-trous aux centres de luminescence du Cérium (transition $5d \rightarrow 4f$: 70 ns) [146]. Les composantes lentes avec des contributions mineures, sont généralement liées au présence de défauts, ainsi qu'au processus de relaxations lents des états excités aux centres de luminescence du Ce^{3+} (relaxation retardées).

4.2.4.3 Test de linéarité

La linéarité des échantillons du nano-scintillateur LuAG a été étudiée dans la gamme des énergies des particules- α allant de 5 MeV à 6 MeV. Trois sources de particules Alpha ont été utilisées pour l'excitation des échantillons à savoir : le Pu-239 de 5.15 MeV, l'Am-241 de 5.48 MeV et le Cm-244 de 5.8MeV. L'étude de la linéarité des nano scintillateurs est basée sur la calibration en énergie pour chaque échantillon [88].

Les droites de calibrations ont été obtenues suite à l'analyse des spectres d'énergies des trois sources Alpha, obtenus par les quatre échantillons du nano-scintillateur. Les pics d'absorptions totales des spectres d'énergies ont été approximés par une fonction Gaussienne afin d'en déterminer les positions des centres.

La figure 4-7 présente les spectres d'énergies obtenus par les différents échantillons du nano-scintillateur LuAG dopés aux différentes concentrations de Cérium.

Les courbes de linéarités en énergies des quatre échantillons sont illustrées dans la figure 4-8.

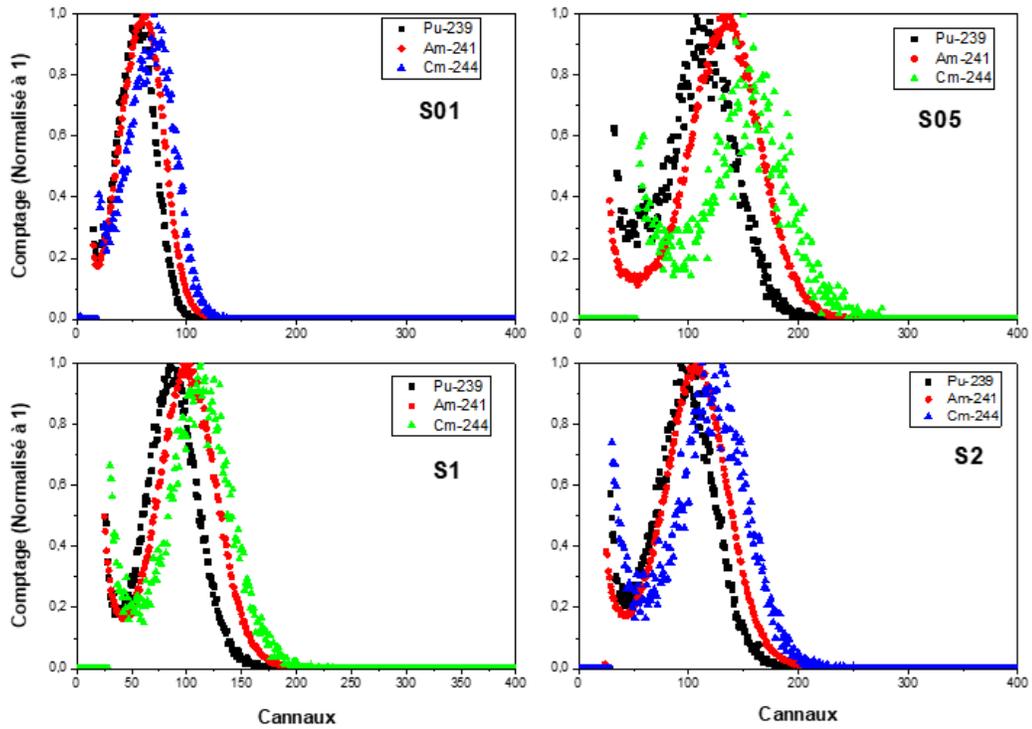


Figure 4- 7: spectres d'énergies des sources (Pu-239, Am-241, Cm-244) obtenus par les Quatre échantillons du LuAG dopé Cérium (les spectres sont normalisés à 1).

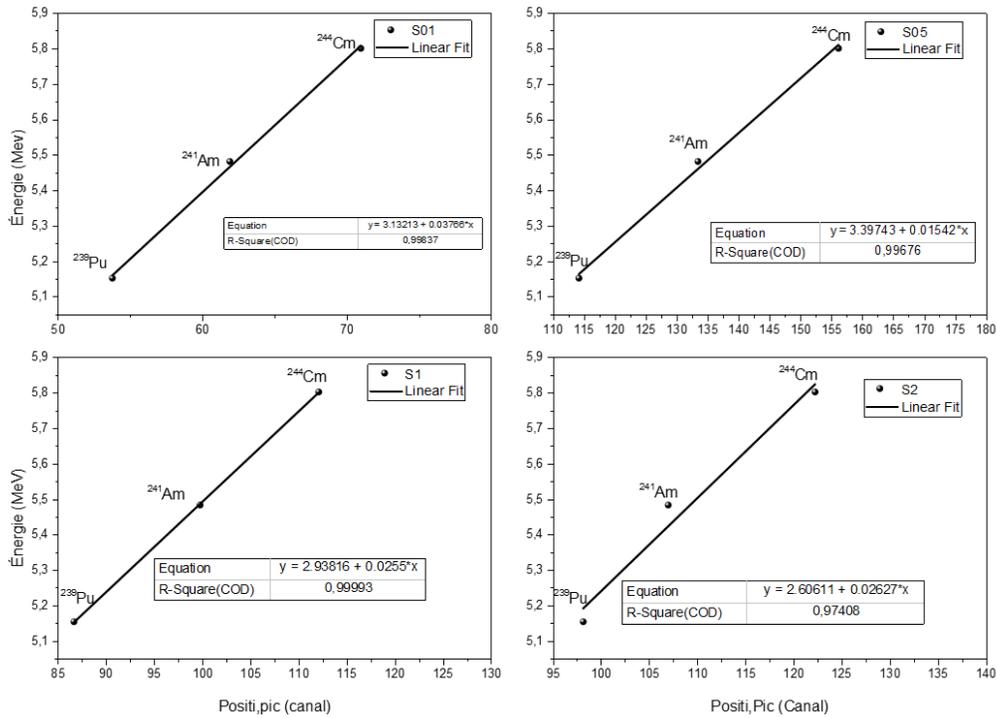


Figure 4- 8: Courbes de réponses en énergie des échantillons du nano-scintillateur LuAG dopés aux différentes concentrations de cérium.

4.2.4.3.1 Effet de la concentration du Cérium sur la linéarité

L'effet de la concentration du dopant (Ce^{3+}) sur la linéarité du nano-scintillateur LuAG a été évalué en considérant le coefficient de corrélation (R^2). Les valeurs du coefficient de corrélation obtenues pour chaque échantillon sont données dans le tableau 4-5.

Tableau 4- 5: coefficients de corrélation en fonction de la concentration du Cérium.

échantillons	R^2	$R^2(\%)$
S01	0.9984	99.84
S05	0.999	99.9
S1	0.9982	99.82
S2	0.9741	97.41

La figure 4-9 montre l'évolution du coefficient de détermination en fonction de la concentration du Cérium pour les quatre échantillons du nano scintillateur LuAG.

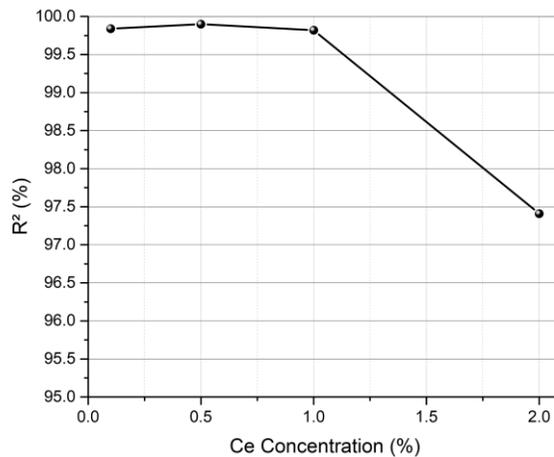


Figure 4- 9: Effet de la concentration du Ce sur la linéarité.

Bien que la mesure de la linéarité peut également être influencée par d'autres facteurs tels que la géométrie de la source radioactive, la distance entre la source et le scintillateur, la température, qui sont mis fixe pour tous les échantillons, il est remarquable que, les échantillons dopés au cérium à des concentration inférieures à 1 at.% montrent des linéarités similaires ($R^2 > 99\%$), alors que l'échantillon dopé à une concentration supérieure à 1at.% présente une linéarité de $R^2= 97,41\%$.

4. 2. 5 Propriétés de scintillation du nano-scintillateur LuYAG :0.1at.%Ce

4.2.5.1 Rendement lumineux et résolution en énergie

Comme montré dans la figure 4-10, les spectres d'énergie des particules α obtenus par les échantillons du nano-scintillateur LuYAG:Ce³⁺ avec différentes concentrations d'ions d'Y³⁺ et du scintillateurs monocristal LuAG :0.1at.% montrent des pics d'absorptions totales bien définis avec des positions variables appelées rendement lumineux [147]. Les pics d'absorptions totales des spectres obtenus ont été approximés par une fonction gaussienne pour déterminer les valeurs exactes de rendement lumineux. La répétabilité des mesures a été vérifiée dans les mêmes conditions expérimentales. Dix mesures consécutives pour chaque échantillon étudié ont été effectuées et les valeurs moyennes du rendement lumineux et des FWHM ont été calculées. Les résultats montrent une bonne répétabilité des mesures, avec des déviations standards maximales (SD) de 1.15% pour rendement lumineux et 1.3% pour la FWHM.

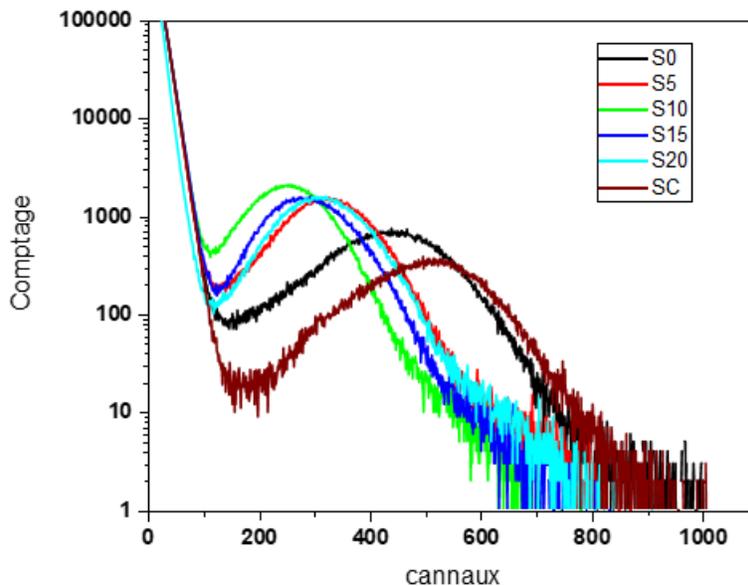


Figure 4- 10: Spectres d'énergie des particules- α de l'Am-241, mesurés avec le monocristal LuAG:0,1%at. Ce³⁺ et les échantillons du nano-scintillateur LuYAG:Ce³⁺.

Le rendement lumineux de tous les échantillons a également été mesuré pendant cinq différents jours pour évaluer la reproductibilité [148], et une variation jour à jour du rendement de lumière inférieure à 2% a été observée. Le rendement lumineux, la largeur à mi-hauteur (FWHM) et la résolution en énergie des échantillons poudres du nano-scintillateur sont présentés dans le tableau 4-6. Les valeurs du rendement lumineux ont ensuite été comparées au rendement lumineux du monocristal référence LuAG :0.1at.% (pic au canal 517.20 ± 0.63) afin de calculer le rendement

relatif. Parmi les échantillons du nano-scintillateur LuYAG étudiés, l'échantillon S0 présente le plus haut rendement relatif ($85.05 \pm 0.03\%$ du monocristal) et la meilleure résolution en énergie ($R = 41.32 \pm 0.12\%$ @ $E = 5.48$ MeV). À partir du tableau, on peut voir que l'échantillon S10 a montré le minimum des rendements relatifs ($48.70 \pm 0.02\%$ du monocristal) correspondant à la plus mauvaise résolution en énergie ($R = 52.31 \pm 0.08\%$).

La figure 4-11 montre l'évolution de la résolution en énergie et le rendement lumineux relatif du nano-scintillateur LuYAG en fonction de la concentration des ions d' Y^{3+} . Le rendement relatif et la résolution en énergie des échantillons du LuYAG diminuent considérablement d'environ 36% et 11%, respectivement, dans la l'intervalle 0-10 at.% d' Y^{3+} , puis augmentent légèrement dans l'intervalle 10-20 at.%.

Tableau 4- 6: Rendement lumineux et résolution en énergie du (Lu $_{1-x}Y_x$)AG: 0.1at.% Ce^{3+}

Paramètres	MC	S0	S5	S10	S15	S20
Position du pic(canal)	517.02(8)	439.90(15)	324.49 (3)	251.88(4)	283.39(3)	310.65(3)
FWHM(canal)	156.59(21)	181.79(34)	147.03 (8)	131.76(9)	145.22(8)	155.01(10)
Résolution (@5.48MeV) (%)	30.27(13)	41.32(12)	45.31(10)	52.31(8)	51.24(10)	49.89(5)
Rendement relatif (% du MC)	100	85.05(3)	62.73 (2)	48.70(2)	54.79(2)	60.06(2)

De plus, les résultats montrent que tous les échantillons du LuYAG présentent un rendement inférieur à celui de l'échantillon LuAG (S0), et la dégradation maximale du rendement lumineux et de la résolution en énergie ont été observée pour l'échantillon S10. Cependant, le rendement lumineux et la résolution en énergie tendent à s'améliorer dans la gamme 10-20 at.% d' Y^{3+} . Le comportement du rendement lumineux pourrait être lié aux différentes étapes du processus physique de la scintillation dans les matériaux scintillateurs, à savoir : la production de paires, thermalisation des électrons et des trous, transfert ainsi que le rendement quantique des centres de luminescence [20] .

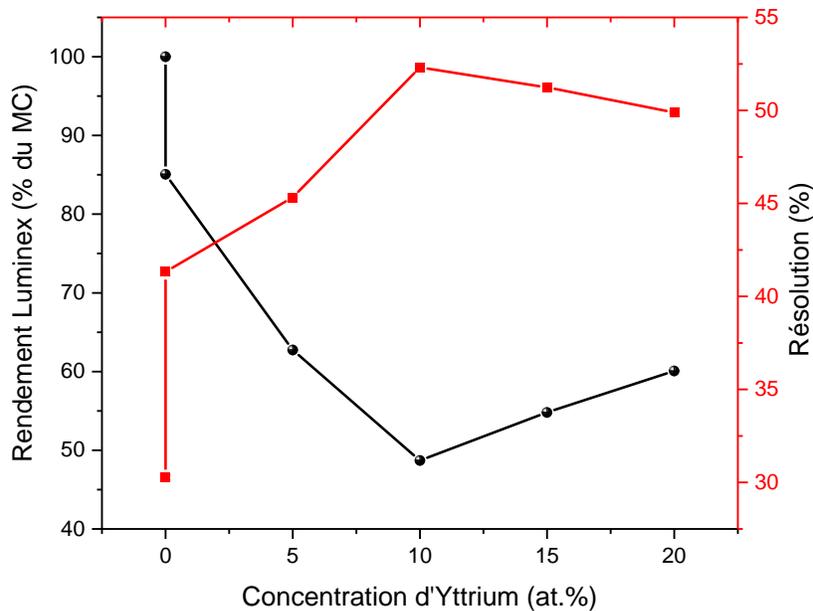


Figure 4- 11: Rendement lumineux relatif et résolution en énergie en fonction de la concentration d' Y^{3+} .

Dans l'étude menée par Drozdowski et autres [149] qui porte sur l'évaluation du rendement lumineux des monocristaux du LuYAG dopés praséodyme ($(Lu_xY_{1-x})_3Al_5O_{12}:Pr^{3+}$), il a été constaté que le rendement lumineux a considérablement augmenté en ajoutant des ions Y^{3+} comme substituants des ions Lu^{3+} à des concentrations allant de 25 à 75%. De plus, le cristal LuYAG: Pr avec une concentration de Y^{3+} de 25% montre la plus grande valeur du rendement. L'amélioration observée était attribuée à la réduction des profondeurs des pièges, ce qui réduit le phénomène de d'extinction de la lumière (quenching). En fait, dans les matériaux nano, et étant donné que la plupart des atomes des impuretés (défauts) sont distribués sur la surface plutôt que dans le volume [12], différents types de défauts de surface, avec différentes densités, profondeurs et distributions peuvent exister.

Par conséquent, en ajoutant progressivement de l' Y^{3+} dans le LuAG, on peut changer le type, la densité, la profondeur et la distribution des défauts, ce qui influe le phénomène d'extinction (quenching). Dans notre étude, bien que cette affirmation nécessite une étude de la thermoluminescence en fonction de la concentration en Y^{3+} , qui peut fournir des informations sur les modifications des pièges dans la solution solide [150], on peut relier la détérioration du

rendement lumineux des nano-scintillateurs LuYAG à ce même phénomène, mais dans le sens inverse de ce qui a été rapporté pour les monocristaux [149]. En effet, on peut penser que la réduction du rendement lumineux avec l'augmentation d' Y^{3+} jusqu'à 10% dans la matrice LuAG du nanomatériau est due à l'augmentation de la profondeur des pièges et, par conséquent, à une augmentation de l'extinction (quenching). De plus, pour une concentration d' Y^{3+} de 10 à 20%, l'augmentation légère du rendement peuvent être associées à une réduction de la profondeur des pièges [117].

De plus, dans l'étude publiée par Kofanov et autres [151], qui porte sur la caractérisation des monocristaux LuAG non dopés, LuAG dopés au Ce^{3+} et LuYAG dopés au Ce^{3+} . Pour les cristaux LuYAG dopés au Ce^{3+} , le rendement lumineux et la résolution en énergie ont été évalués en fonction de la concentration en yttrium allant de 0 à 100 at.%, avec un incrément de 25at.%. Les résultats obtenus par Kofanov et autres montrent que le rendement lumineux diminue dans la plage d' Y^{3+} de 0-25at.% et augmente dans la plage 25-75at.%. De plus, il a été constaté que tous les cristaux LuYAG dopés au Ce^{3+} avec des teneurs en Y^{3+} allant de 0 à 50 at.% ont montré un rendement lumineux plus faible que celui du cristal avec 0 at.% d' Y^{3+} . Nous pensons que les résultats obtenus par Kofanov et autres sont très comparables aux résultats obtenus dans la présente étude pour les nano-cristaux LuYAG dopés au Ce^{3+} en termes de comportement et de dégradation du rendement lumineux, en particulier dans la plage d' Y^{3+} de 0-25at.%.

4.2.5.2 Temps de déclin de scintillation

Afin de comprendre comment la concentration en Y^{3+} affecte les caractéristiques temporelles de la scintillation, les constantes de temps de déclin de la scintillation des nano-scintillateurs grenat LuYAG: Ce^{3+} aux différentes concentrations en Y^{3+} ont été mesurées et comparées à celles de l'échantillons S0 (0at.% Y^{3+}). Les profils temporels de décroissance mesurés sur 2000 impulsions de scintillation pour tous les échantillons sont présentées dans la figure 4-12.

Etant donné que la cinétique de scintillation mesurée sous des particules- α est différente de celle mesurée sous des rayonnements gamma [152], la discrimination de formes d'impulsion des particules- α provenant de l'Am-241 ($E = 5,48$ MeV) et de gamma provenant du Cs-137 ($E = 662$ keV) a également été vérifiée pour les échantillons de nano-scintillateur étudiés. L'échantillon S20 a été testé et le monocristal MC a été utilisé pour comparaison. Les formes d'impulsion des

échantillons S20 et MC sont présentées sur la figure 4-13. Il a été constaté que l'échantillon S20 montre une meilleure discrimination de formes pour les particules- α et les rayons gamma que le MC.

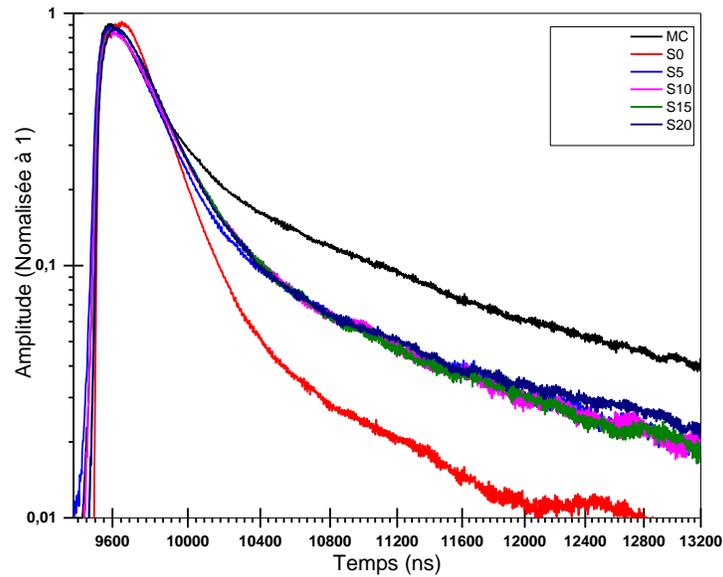


Figure 4- 12: Courbes de décroissances moyennes du LuYAG:Ce³⁺, LuAG:0.1 at.% Ce³⁺ LuAG:0.1 at.%Ce³⁺- monocristal, signaux acquis sous l'excitation par des particules- α de 5.48MeV de l'Am-241 (fréquence d'échantillonnage =1GHz, HT=1600V).

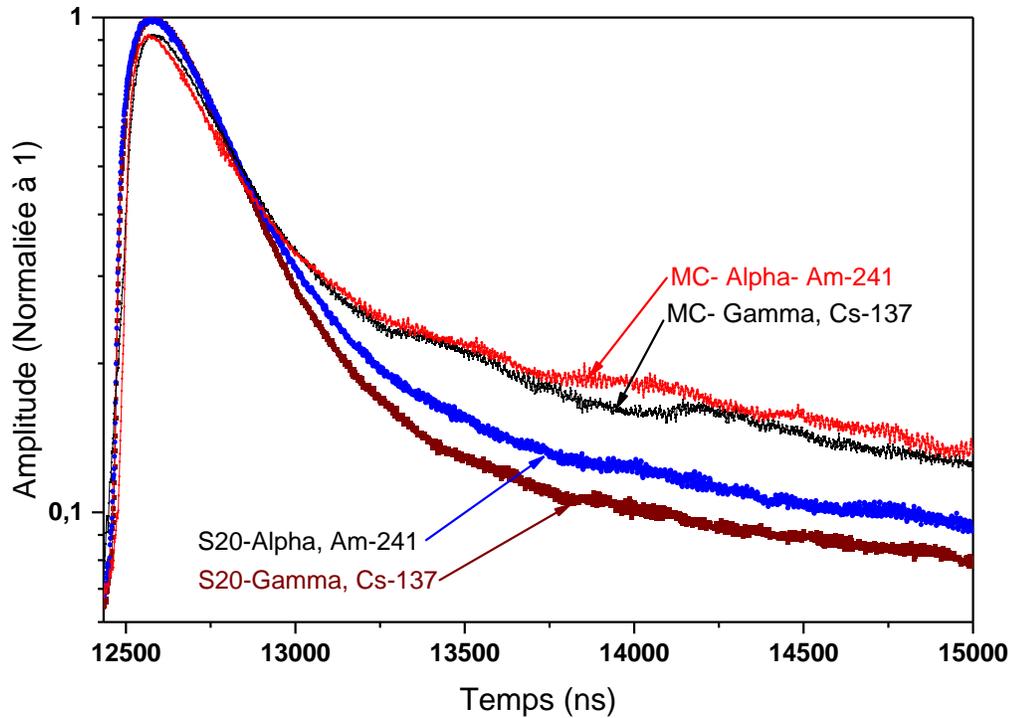


Figure 4- 13: Discrimination de formes d'impulsions de scintillation obtenues sous l'excitation par des particules- α et des rayonnement gamma (fréquence d'échantillonnage =1GHZ, HT=1600V), le monocristal a été utilisé pour comparaison.

Les constantes de temps de déclin des composants de scintillation et la contribution de chaque composant des échantillons de nano-scintillateur LuYAG étudiés, ainsi que les contributions correspondantes des composantes temporelles sont présentées dans le tableau 6.

Tableau 4- 7: Temps de déclin de scintillation des échantillons du LuYAG:0.1at.%Ce³⁺, mesurés sous l'excitation par des particules- α de l' Am-241 (5.48 MeV)

Echantillon	τ_1 (ns)	fraction(%)	τ_2 (ns)	fraction(%)	τ_3 (ns)	fraction(%)
S0	75.8(1.3)	74	161.6(1.6)	12	937.5(33.6)	13
S5	63.8(2.5)	47	196.9(2.8)	22	1198.5(36.6)	31
S10	70.2(3.4)	45	203.8(3.5)	21	1300.6(49.5)	34
S15	66.3(2.9)	44	197.3(3.3)	23	1234.2(40.5)	33
S20	98.5(5.2)	46	158.6(6.0)	19	1027.5(26.2)	35

D'après le tableau 5, on peut constater que l'échantillon S0 présente des constantes de temps de déclin de 75.8 ± 1.3 ns avec la plus grande contribution de la composante rapide (74%). Les

constantes de temps de déclin de la composante rapide des échantillons S5, S10, S15 et S20 sont dans l'intervalle de 60 à 100 ns, ce qui peut être attribué à la luminescence du Ce^{3+} (recombinaison rapides au centre de luminescence du cérium) et présente des intensités clairement dominantes. Cependant, les contributions de la composante rapide ont été réduites par rapport à celle de S0 d'environ 40% avec l'augmentation de la teneur en Y^{3+} . Ce comportement n'a pas encore été expliqué et nécessite plus d'investigations.

Les constantes de temps de déclin de la composante moyenne sont comprises entre 160 et 203 ns et leurs intensités ont doublés par rapport à celle de S0 avec l'augmentation de la concentration en ions Y^{3+} . Les composantes lentes présentent des constantes de temps de déclin compris entre 930 et 1300 ns et leurs intensités augmentent d'environ trois fois par rapport à celle de S0.

Il a déjà été indiqué dans les monocristaux LuAG : Ce^{3+} que de telles composantes de scintillation lentes sont généralement causées par le piégeage de porteurs de charges libres dans des pièges peu profonds, entraînant une recombinaison retardée dans les centres de luminescences du Ce^{3+} [153], ce qui soutient des concentrations plus élevées et des profondeurs thermiques plus importantes des pièges liés aux défauts anti-site dans la matrice LuAG par rapport au YAG [154].

De plus, S10 présente les composantes les plus lentes parmi tous les échantillons, ce qui peut être lié à son rendement lumineux relative le plus faible.

4.2.5.3 Test de Linéarité

En vue de l'étude de la linéarité du nano-scintillateur LuYAG: 0.1at.% Ce^{3+} , nous avons mesuré les spectres d'énergies des trois sources de particules- α Alpha (Pu-239, Am-241 et Cm-244). Les spectres d'énergie obtenus sont présentés dans la figure 4-14, les pics d'absorption totales ont été approximés par une gaussienne afin d'en déterminer avec précision les positions des centres des pics d'absorption totale. Les courbes de linéarités correspondantes aux différents échantillons du nano-scintillateur LuYAG :0.1 at.% Ce^{3+} avec différentes concentrations de l' Y^{3+} sont présentés dans la figure 4-15.

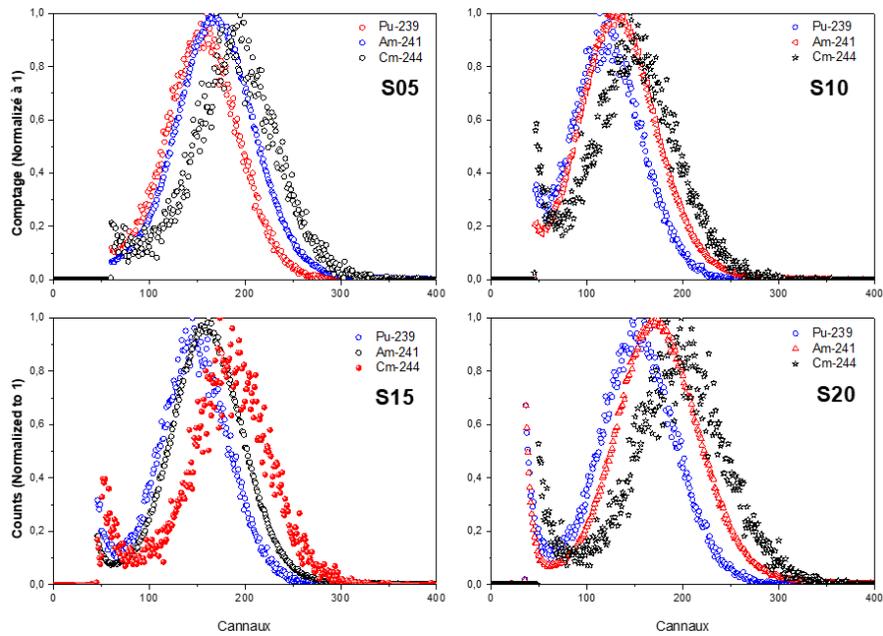


Figure 4- 14: Spectres d'énergies des sources alpha (Pu, Am, Cm) obtenus par les quatre échantillons du Y-LuAG dopé Cérium (les comptages sont normalisés à 1).

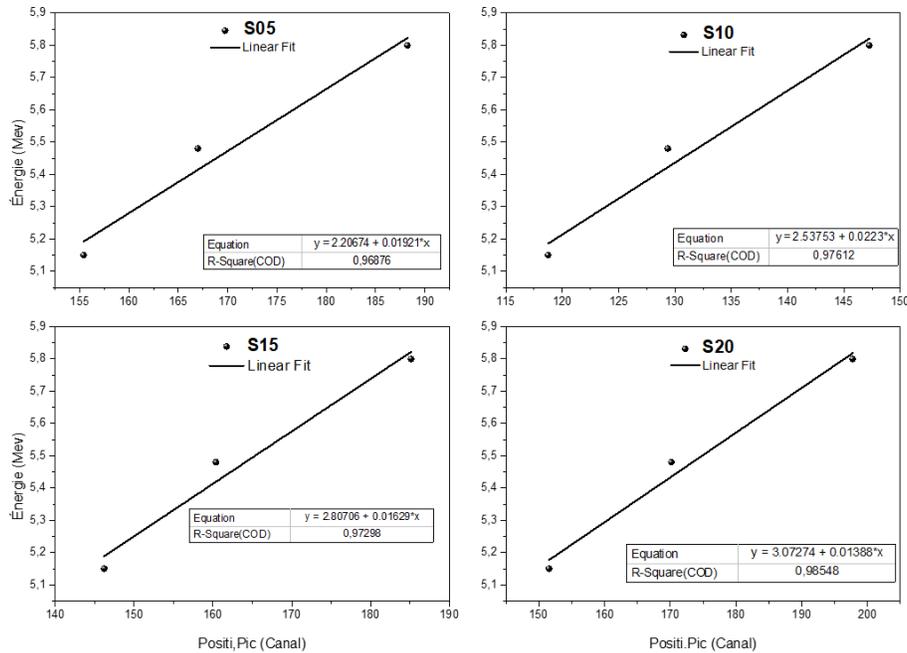


Figure 4- 15: Courbes de linéarité en énergie du Y-LuAG :0.1%Ce avec différentes Concentrations d' Y^{3+} .

4.2.5.3.1 Effet de la concentration d'Y sur la linéarité

L'étude de la linéarité des échantillons de LuYAG:0.1%Ce³⁺ avec différentes concentrations du substituant du Lu³⁺ (Y³⁺) a montré la dégradation de la linéarité en énergie par rapport au échantillons du LuAG :Ce sans substitution (LuAG:0.1at.%Ce³⁺) étudié précédemment.

La figure 4-16 présente la courbe de linéarité en fonction de la concentration de l'Y. D'après la courbe, nous pouvons remarquer que la meilleure linéarité a été enregistrée avec l'échantillon qui présente une substitution en Yttrium de 20 at.% ($R^2 \approx 98.55\%$), alors que la mauvaise linéarité a été enregistrée avec celui de 5at.% ($R^2 \approx 96.9\%$).

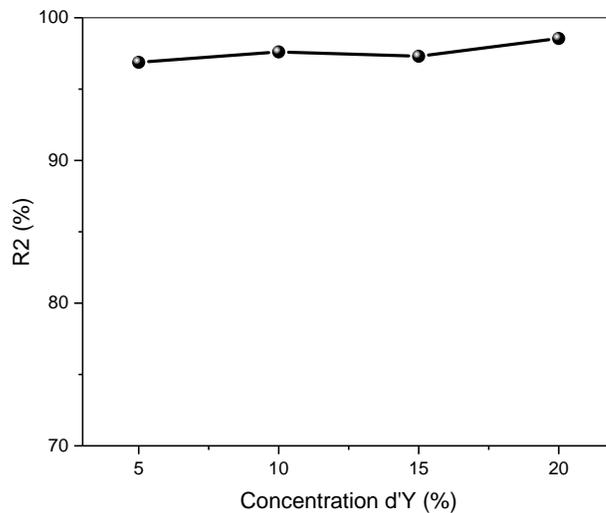


Figure 4- 16: linéarité des échantillons du nano-scintillateur LuYAG en fonction de la concentration d'Y³⁺

4.3 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté les différents résultats de la caractérisation des deux nouveaux matériaux scintillateurs inorganiques synthétisés à l'échelle nanométrique. Les propriétés principales mesurées sont le rendement lumineux, la résolution en énergie, le temps de déclin et la linéarité en énergie. Ce que nous avons conclu des résultats obtenus, c'est que le rendement lumineux du matériau LuAG se dégrade en fonction de la concentration du dopant Ce³⁺, et que la concentration de Ce³⁺ de 0.1at.% a donné le meilleur rendement lumineux. En ce qui concerne le

temps de déclin, les quatre échantillons du LuAG ont présenté des valeurs comparables dues au temps de vie de la transition $5d \rightarrow 4f$ du Ce^{3+} (70 ns).

La substitution du Lu^{3+} par l' Y^{3+} dans la matrice du scintillateur LuAG pour former le LuYAG dopé à 0.1at% de Ce^{3+} a conduit à une dégradation du rendement lumineux dans la plage d' Y^{3+} de 0 à 10 at.%. Une augmentation du rendement lumineux a été remarquée dans l'intervalle d' Y^{3+} de 10-20at.%, ce qui peut être considéré comme signe d'amélioration du rendement lumineux pour des concentrations d' Y^{3+} de plus de 20 at.%.

Conclusion Générale

Cette étude vise à proposer des méthodes de mesure des propriétés de scintillation des nano-scintillateurs en forme de poudres. Les propriétés principales étudiées sont le rendement lumineux et le temps de déclin de scintillation. Pour les scintillateurs en forme de monocristaux la mesure de telles caractéristiques est beaucoup moins facile en raison de leurs propriétés optiques, et leurs grosses tailles. En revanche, les nano-scintillateurs en formes de poudres sont des matériaux non transparents et de très petites tailles, ce qui nécessite des méthodes différentes pour la mesure de leurs propriétés de scintillation. Dans cette étude nous avons proposé des méthodes de mesure du rendement lumineux et du temps de déclin de scintillation. Au premier lieu, nous avons adopté le type du rayonnement/particule d'excitation ainsi que la géométrie d'excitation efficace pour ce type de matériaux. Il a été démontré que les particules- α sont plus efficaces plutôt que les rayonnements Gamma utilisés dans la caractérisation des scintillateurs en forme de monocristaux. En deuxième lieu, nous avons adopté les chaînes de mesures nucléaires nécessaires à la mesure des propriétés de scintillation. Le rendement lumineux a été mesuré sous l'excitation par particules- α et en utilisant une chaîne de mesure nucléaire. Les valeurs obtenues ont été comparées avec celles d'un scintillateur monocristal de même type de matériau et de forme monocristal. De même, les propriétés temporelles ont été mesurées sous l'excitation par les particules- α et sous la géométrie de réflexion en utilisant un système d'acquisition rapide (oscilloscope rapide).

Deux matériaux nano-scintillateurs développés par la méthode Sol-Gel, ont été caractérisés par les méthodes développées au cours de cette étude. Le premier matériau nano-scintillateur est le LuAG dopé aux différentes concentrations de cérium pour lequel, les propriétés de scintillation ont été évaluées en fonction de la concentration du dopant. Le deuxième matériau nano-scintillateur est le LuYAG dopé à 0.1at% de Cerium, et pour lequel, les ions du Lutécium (Lu^{3+}) ont été substitués par les ions de l'Yttrium (Y^{3+}) à des faibles concentrations allant de 0 à 20 at.%.

La substitution avait pour but de produire des matériaux scintillateurs moins coûteux (LYAG) en remplaçant le Lutécium par l'Yttrium dans la matrice du LuAG. En outre, la substitution à des faibles concentrations permet de maintenir la densité du matériau proche de celle du LuAG.

Les résultats de caractérisation obtenus ont montré une efficacité importante des méthodes proposées pour la mesure de certaines propriétés de scintillation. Néanmoins, certaines caractéristiques ne sont pas encore mesurées, on cite par exemple la résolution temporelle en coïncidence qui est caractéristique des rayonnement Gamma de 511 keV, et comme nous avons déjà vue dans le chapitre 03, les scintillateurs en forme de poudres ne sont pas efficaces pour les

rayons Gamma, cet inconvénient est lié aux propriétés d'auto-absorption et de diffusion de la lumière connues pour les matériaux en poudre. La mesure de cette propriété (CTR) nécessite peut-être le passage vers une forme plus compacte telle que la forme céramique pour l'amélioration de la transmission de la lumière et donc l'efficacité du scintillateur pour le rayonnement Gamma.

Ce travail a été valorisé par une publication, une communication internationale et une communication nationale.

Bibliographie

- [1] C. Dujardin, E. Auffray, E. Bourret-Courchesne, P. Dorenbos, P. Lecoq, M. Nikl, A.N. Vasil'Ev, A. Yoshikawa, R.Y. Zhu, Needs, trends, and advances in inorganic scintillators, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 65 (2018) 1977–1997. <https://doi.org/10.1109/TNS.2018.2840160>.
- [2] W. Chewpraditkul, L. Swiderski, M. Moszynski, T. Szczesniak, A. Syntfeld-Kazuch, C. Wanarak, P. Limsuwan, Scintillation properties of LuAG:Ce, YAG:Ce and LYSO:Ce crystals for gamma-ray detection, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 56 (2009) 3800–3805. <https://doi.org/10.1109/TNS.2009.2033994>.
- [3] W. Setyawan, R.M. Gaume, R.S. Feigelson, S. Curtarolo, Comparative study of nonproportionality and electronic band structures features in scintillator materials, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 56 (2009) 2989–2996. <https://doi.org/10.1109/TNS.2009.2027019>.
- [4] V. Sanchez-Tembleque, L.M. Fraile, V. Vedia, M. Carmona, K. Kamada, Y. Shoji, A. Yoshikawa, J.M. Udias, Evaluation of inorganic scintillators for high performance ToF PET applications, 2015 IEEE Nucl. Symp. Med. Imaging Conf. NSS/MIC 2015. (2016) 1–3. <https://doi.org/10.1109/NSSMIC.2015.7582202>.
- [5] G. Ariño, M. Chmeissani, G. De Lorenzo, C. Puigdengoles, E. Cabruja, Y. Calderón, M. Kolstein, J.G. Macias-Montero, R. Martinez, E. Mikhaylova, D. Uzun, Energy and coincidence time resolution measurements of CdTe detectors for PET, *J. Instrum.* 8 (2013). <https://doi.org/10.1088/1748-0221/8/02/C02015>.
- [6] K.S. SHAH, *New Scintillation Detectors for PET*, Technische Universiteit Delft, 2010.
- [7] C. Dujardin, D. Amans, A. Belsky, F. Chaput, G. Ledoux, A. Pillonnet, Luminescence and scintillation properties at the nanoscale, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 57 (2010) 1348–1354. <https://doi.org/10.1109/TNS.2009.2035697>.
- [8] N. V. Klassen, V. V. Kedrov, Y.A. Ossipyan, S.Z. Shmurak, I.M. Shmyt'ko, O.A. Krivko, E.A. Kudrenko, V.N. Kurlov, N.P. Kobelev, A.P. Kiselev, S.I. Bozhko, Nanoscintillators for microscopic diagnostics of biological and medical objects and medical therapy, *IEEE Trans. Nanobioscience.* 8 (2009) 20–32. <https://doi.org/10.1109/TNB.2009.2016551>.
- [9] C. Dujardin, The study of small and large size LuAlO₃:Ce³⁺, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 45 (1998) 467–471. <https://doi.org/10.1109/23.682428>.
- [10] M. Nikl, P. Bohacek, E. Mihokova, N. Solovieva, A. Vedda, M. Martini, G.P. Pazzi, P. Fabeni, M. Kobayashi, Complete characterization of doubly doped PbWO₄:Mo,Y scintillators, *J. Appl. Phys.* 91 (2002) 2791–2797. <https://doi.org/10.1063/1.1436561>.
- [11] V. Kononets, E. Auffray, C. Dujardin, S. Gridin, F. Moretti, G. Patton, K. Pauwels, O. Sidletskiy, X. Xu, K. Lebbou, Growth of long undoped and Ce-doped LuAG single crystal fibers for dual readout calorimetry, *J. Cryst. Growth.* 435 (2016) 31–36. <https://doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2015.11.024>.
- [12] S. Min, H. Kang, B. Seo, J. Cheong, C. Roh, S. Hong, A review of nanomaterial based scintillators, *Energies.* 14 (2021) 1–43. <https://doi.org/10.3390/en14227701>.
- [13] C.M. Allen, A.A. Eldek, A.Z. Elsherbeni, C.E. Smith, C.P. Huang, K. Lee, Advantages and Problems of Nanocrystalline Scintillators, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 55 (2008) 1–6.
- [14] W. Chewpraditkul, N. Pattanaboonmee, W. Chewpraditkul, K. Kamada, K.J. Kim, A. Yoshikawa, M. Makowski, M.E. Witkowski, W. Drozdowski, A. Beitlerova, R. Kucerkova, V. Babin, M. Nikl, Optical and scintillation characteristics of Lu₂Y(Al_{15-x}Ga_x)O₁₂:Ce,Mg

- multicomponent garnet crystals, *Opt. Mater. (Amst)*. 134 (2022) 113186. <https://doi.org/10.1016/j.optmat.2022.113186>.
- [15] G. Dosovitskiy, A. Fedorov, P. Karpyuk, D. Kuznetsova, A. Mikhlin, D. Kozlov, A. Dosovitskiy, M. Korjik, Polycrystalline scintillators for large area detectors in HEP experiments, *J. Instrum.* 12 (2017) 1–23. <https://doi.org/10.1088/1748-0221/12/06/C06045>.
- [16] Q. Zeng, H. Liang, G. Zhang, M. Danang Birowosuto, Z. Tian, H. Lin, Y. Fu, P. Dorenbos, Q. Su, Luminescence of Ce³⁺ activated fluoro-apatites M₅(PO₄)₃F (M = Ca, Sr, Ba) under VUV–UV and x-ray excitation, *J. Phys. Condens. Matter.* 18 (2006) 9549. <https://doi.org/10.1088/0953-8984/18/42/002>.
- [17] S. Derenzo, G. Bizarri, R. Borade, E. Bourret-Courchesne, R. Boutchko, A. Canning, A. Chaudhry, Y. Eagleman, G. Gundiah, S. Hanrahan, M. Janecek, M. Weber, New scintillators discovered by high-throughput screening, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 652 (2011) 247–250. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.nima.2010.09.156>.
- [18] K.B. Stephen Derenzo, Martin Boswell, Marvin Weber, Scintillation Properties, (2019). <http://scintillator.lbl.gov/>.
- [19] Y. Porter-Chapman, E. Bourret-Courchesne, S.E. Derenzo, Bi³⁺ luminescence in A₂BiO₂Cl (A=Sr, Ba) and BaBiO₂Br, *J. Lumin.* 128 (2008) 87–91. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2007.05.007>.
- [20] E. Gordienko, A. Fedorov, E. Radiuk, V. Mechinsky, G. Dosovitskiy, E. Vashchenkova, D. Kuznetsova, V. Retivov, A. Dosovitskiy, M. Korjik, R. Sandu, Synthesis of crystalline Ce-activated garnet phosphor powders and technique to characterize their scintillation light yield, *Opt. Mater. (Amst)*. 78 (2018) 312–318. <https://doi.org/10.1016/j.optmat.2018.02.045>.
- [21] G.F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, Fourth Ed, John Wiley & Sons, Inc, 2010.
- [22] J. Touš, M. Horváth, L. Pina, K. Blažek, B. Sopko, High-resolution application of YAG:Ce and LuAG:Ce imaging detectors with a CCD X-ray camera, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 591 (2008) 264–267. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2008.03.070>.
- [23] N. Kawano, K. Shinozaki, D. Nakauchi, H. Kimura, T. Yanagida, Scintillation properties of organic-inorganic layered perovskite nanocrystals in glass, *J. Appl. Phys.* 127 (2020). <https://doi.org/10.1063/5.0007084>.
- [24] D. geon Kim, S. Lee, J. Park, J. Son, T.H. Kim, Y.H. Kim, K. Pak, Y.K. Kim, Performance of 3D printed plastic scintillators for gamma-ray detection, *Nucl. Eng. Technol.* 52 (2020) 2910–2917. <https://doi.org/10.1016/j.net.2020.05.030>.
- [25] M. Jönsson, Evaluation of scintillation materials and silicon photomultiplier for dosimetry, (2010).
- [26] A. Fedorov, V. Gurinovich, V. Guzov, G. Dosovitskiy, M. Korzhik, V. Kozhemyakin, A. Lopatik, D. Kozlov, V. Mechinsky, V. Retivov, Sensitivity of GAGG based scintillation neutron detector with SiPM readout, *Nucl. Eng. Technol.* 52 (2020) 2306–2312. <https://doi.org/10.1016/j.net.2020.03.012>.

- [27] Y.C. Chuang, C.H. Chu, S.H. Cheng, L. De Liao, T.S. Chu, N.T. Chen, A. Paldino, Y. Hsia, C.T. Chen, L.W. Lo, Annealing-modulated nanoscintillators for nonconventional X-ray activation of comprehensive photodynamic effects in deep cancer theranostics, *Theranostics*. 10 (2020) 6758–6773. <https://doi.org/10.7150/thno.41752>.
- [28] N. V Klassen, V. V Kedrov, Y.A. Ossipyan, S.Z. Shmurak, I.M. Shmyt'ko, O.A. Krivko, E.A. Kudrenko, V.N. Kurlov, N.P. Kobelev, A.P. Kiselev, S.I. Bozhko, Nanoscintillators for microscopic diagnostics of biological and medical objects and medical therapy, *IEEE Trans. Nanobioscience*. 8 (2009) 20–32. <https://doi.org/10.1109/TNB.2009.2016551>.
- [29] G. Blasse, Scintillator materials, *Chem. Mater.* 6 (1994). <https://doi.org/10.1021/cm00045a002>.
- [30] M.J. Weber, Inorganic scintillators: today and tomorrow, *J. Lumin.* 100 (2002) 35–45. [https://doi.org/10.1016/S0022-2313\(02\)00423-4](https://doi.org/10.1016/S0022-2313(02)00423-4).
- [31] F. Maddalena, L. Tjahjana, A. Xie, Arramel, S. Zeng, H. Wang, P. Coquet, W. Drozdowski, C. Dujardin, C. Dang, M.D. Birowosuto, Inorganic, organic, and perovskite halides with nanotechnology for high-light yield x- and γ -ray scintillators, *Crystals*. 9 (2019). <https://doi.org/10.3390/cryst9020088>.
- [32] C. Dujardin, E. Auffray, E. Bourret-Courchesne, P. Dorenbos, P. Lecoq, M. Nikl, A.N. Vasil'Ev, A. Yoshikawa, R.Y. Zhu, Needs, trends, and advances in inorganic scintillators, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 65 (2018) 1977–1997. <https://doi.org/10.1109/TNS.2018.2840160>.
- [33] O. SELLÈS, Halogénures de lanthane dopés cérium Des scintillateurs rapides pour l'imagerie médicale, Paris VI, 2007. <https://pastel.archives-ouvertes.fr/tel-00135649/document>.
- [34] A. Horimoto, N. Kawano, D. Nakauchi, H. Kimura, M. Akatsuka, T. Yanagida, Photoluminescence and scintillation properties of organic–inorganic perovskite-type compounds with bromophenethylamine, *Sensors Mater.* 32 (2020) 1395–1404. <https://doi.org/10.18494/SAM.2020.2747>.
- [35] J. Singh, Study of nonproportionality in the light yield of inorganic scintillators Study of nonproportionality in the light yield of inorganic scintillators, 024503 (2011). <https://doi.org/10.1063/1.3607247>.
- [36] C.W.E. van Eijk, J.T.M. de Haas, P.A. Rodnyi, I. V Khodyuk, K. Shibuya, F. Nishikido, M. Koshimizu, Scintillation properties of a crystal of $(C_6H_5(CH_2)_2NH_3)_2PbBr_4$, in: 2008 IEEE Nucl. Sci. Symp. Conf. Rec., 2008: pp. 3525–3528. <https://doi.org/10.1109/NSSMIC.2008.4775096>.
- [37] H.K. Kim, I.A. Cunningham, Z. Yin, G. Cho, On the development of digital radiography detectors: A review, *Int. J. Precis. Eng. Manuf.* 9 (2008) 86–100.
- [38] O. Mineev, A. Afanasjev, G. Bondarenko, V. Golovin, E. Gushchin, A. Izmailov, M. Khabibullin, A. Khotjantsev, Y. Kudenko, Y. Kurimoto, T. Kutter, B. Lubsandorzhev, V. Mayatski, Y. Musienko, T. Nakaya, T. Nobuhara, B.A.J. Shaibonov, A. Shaikhiev, M. Taguchi, N. Yershov, M. Yokoyama, Scintillator counters with multi-pixel avalanche photodiode readout for the ND280 detector of the T2K experiment, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 577 (2007) 540–551. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2007.04.161>.

- [39] M. Jeong, M. Hammig, Development of hand-held coded-aperture gamma ray imaging system based on GAGG(Ce) scintillator coupled with SiPM array, *Nucl. Eng. Technol.* 52 (2020) 2572–2580. <https://doi.org/10.1016/j.net.2020.04.009>.
- [40] S. Gundacker, F. Acerbi, E. Auffray, A. Ferri, A. Gola, M. V. Nemallapudi, G. Paternoster, C. Piemonte, P. Lecoq, State of the art timing in TOF-PET detectors with LuAG, GAGG and L(Y)SO scintillators of various sizes coupled to FBK-SiPMs, *J. Instrum.* 11 (2016). <https://doi.org/10.1088/1748-0221/11/08/P08008>.
- [41] T. Hakamata, *Photomultiplier Tubes: Basics and Applications Fourth Edition*, 2017.
- [42] G. Blasse, Scintillator materials, *Chem. Mater.* 6 (1994) 1465–1475. <https://doi.org/10.1021/cm00045a002>.
- [43] C.W.E. van Eijk, Inorganic, organic, and perovskite halides with nanotechnology for high-light yield x- and γ -ray scintillators, *Nucl. Tracks Radiat. Meas.* 21 (1993) 5–10. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/1359-0189\(93\)90035-8](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/1359-0189(93)90035-8).
- [44] F. Maddalena, L. Tjahjana, A. Xie, Arramel, S. Zeng, H. Wang, P. Coquet, W. Drozdowski, C. Dujardin, C. Dang, M.D. Birowosuto, Inorganic, organic, and perovskite halides with nanotechnology for high-light yield x- and γ -ray scintillators, *Crystals.* 9 (2019). <https://doi.org/10.3390/cryst9020088>.
- [45] H. Hall, The Theory of Photoelectric Absorption for X-Rays and γ -Rays, *Rev. Mod. Phys.* 8 (1936) 358–397. <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.8.358>.
- [46] P. Eisenberger, P.M. Platzman, Compton Scattering of X Rays from Bound Electrons, *Phys. Rev. A.* 2 (1970) 415–423. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.2.415>.
- [47] J.H. Hubbell, Electron–positron pair production by photons: A historical overview, *Radiat. Phys. Chem.* 75 (2006) 614–623. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2005.10.008>.
- [48] C. DUJARDIN, Matériaux scintillateurs inorganiques, *Tech. l'ingénieur.* (2017). <https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/electronique-photonique-th13/materiaux-pour-l-optique-et-les-lasers-42450210/materiaux-scintillateurs-inorganiques-e6347/>.
- [49] P.A. Rodnyi, P. Dorenbos, C.W.E. van Eijk, Energy Loss in Inorganic Scintillators, *Phys. Status Solidi.* 187 (1995) 15–29. <https://doi.org/https://doi.org/10.1002/pssb.2221870102>.
- [50] M. Nikl, Scintillation detectors for x-rays, *Meas. Sci. Technol.* 17 (2006). <https://doi.org/10.1088/0957-0233/17/4/R01>.
- [51] P. Dorenbos, Scintillation mechanisms in Ce 3+ doped halide scintillators, *Phys. Status Solidi Appl. Mater. Sci.* 202 (2005) 195–200. <https://doi.org/10.1002/pssa.200460106>.
- [52] Kinchin, The displacement of atoms in solids during irradiation, *Solid State Phys.* 2 (1956) 307.
- [53] D.P. Karim, A.T. Aldred, Localized level hopping transport in La(Sr)CrO₃, *Phys. Rev. B.* 20 (1979) 2255–2263. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.20.2255>.
- [54] P. Lecoq, *Scintillation Detectors for Charged Particles and Photons*, 2011. https://doi.org/10.1007/978-3-642-03606-4_3.

- [55] J.A. Shepherd, S.M. Gruner, M.W. Tate, M. Tecotzky, Study of afterglow in x-ray phosphors for use on fast-framing charge-coupled device detectors, *Opt. Eng.* 36 (1997) 3212–3222. <https://doi.org/10.1117/1.601530>.
- [56] G. Patton, G. Patton, C. Dujardin, A. Belsky, Étude des effets mémoire dans les matériaux scintillateurs To cite this version : HAL Id : tel-01235990 Th e ^ me de Doctorat Dipl o, (2015).
- [57] detectors, S.N. photodetectors Ahmed, Scintillation detectors and photodetectors, 2015. <https://doi.org/10.1016/b978-0-12-801363-2.00006-1>.
- [58] F.N. Nadon, Normand, Étude Des Doses En Tomodensitométrie, Québec, 2008.
- [59] D. Vodovar, J. Aboab, S. Silva, N. Tournier, Understanding positron emission tomography (PET) imaging, *Med. Intensive Reanim.* 28 (2019) 347–352. <https://doi.org/10.3166/rea-2019-0092>.
- [60] C.L. Melcher, Scintillation crystals for PET., *J. Nucl. Med.* 41 (2000) 1051–1055.
- [61] C.L. Melcher, J.S. Schweitzer, Cerium-doped lutetium oxyorthosilicate: a fast, efficient new scintillator, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 39 (1992) 502–505. <https://doi.org/10.1109/23.159655>.
- [62] D.L. Bailey, D.W. Townsend, Positron Emission Tomography, (n.d.).
- [63] Y. Tian, W.-H. Cao, X.-X. Luo, Y. Fu, Preparation and luminescence property of Gd₂O₂S:Tb X-ray nano-phosphors using the complex precipitation method, *J. Alloys Compd.* 433 (2007) 313–317. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2006.06.075>.
- [64] M. Hamel, F. Carrel, Pseudo-gamma Spectrometry in Plastic Scintillators, in: *New Insights Gamma Rays*, n.d. <https://doi.org/http://dx.doi.org/10.5772/67134> 49.
- [65] M.B. Smith, M. McClish, T. Achtzehn, H.R. Andrews, M.J. Baginski, D.J. Best, B.S. Budden, E.T.H. Clifford, N.A. Dallmann, C. Dathy, J.M. Frank, S.A. Graham, H. Ing, L.C. Stonehill, Assessment of photon detectors for a handheld gamma-ray and neutron spectrometer using Cs₂LiYCl₆:Ce (CLYC) scintillator, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 715 (2013) 92–97. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2013.03.023>.
- [66] S.R. Cherry, J.A. Sorenson, M.E. Phelps, chapter 12 - Counting Systems, in: S.R. Cherry, J.A. Sorenson, M.E.B.T.-P. in N.M. (Fourth E. Phelps (Eds.), W.B. Saunders, Philadelphia, 2012: pp. 173–194. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/B978-1-4160-5198-5.00012-5>.
- [67] S. Faraj, Growth and characterization of Ce doped LuAG single crystal fibers by the micropulling down technique, UNIVERSITE DE LYON, 2017.
- [68] L. Pidol, Scintillateurs denses et rapides pour la détection de rayonnement gamma . Monocristaux à base de silicates de lutécium dopés Ce³⁺, 2005.
- [69] P. Dorenbos, Light output and energy resolution of Ce³⁺-doped scintillators, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 486 (2002) 208–213. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(02\)00704-0](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(02)00704-0).
- [70] J. Kim, K. Park, J. Hwang, H. Kim, J. Kim, H. Kim, S.H. Jung, Y. Kim, G. Cho, Efficient design of a Ø 2×2 inch NaI(Tl)scintillation detector coupled with a SiPM in an aquatic environment, *Nucl. Eng. Technol.* 51 (2019) 1091–1097. <https://doi.org/10.1016/j.net.2019.01.017>.

- [71] B. ALLAOUA, Elaboration par voie sol-gel et caractérisation des matériaux inorganiques de type grenats (Y, Lu)₃Al₅O₁₂ activés aux ions cérium, Université de Jijel, Faculté des Sciences exactes et informatique, 2014.
- [72] Y.N. Kharzheev, Radiation Hardness of Scintillation Detectors Based on Organic Plastic Scintillators and Optical Fibers, *Phys. Part. Nucl.* 50 (2019) 42–76. <https://doi.org/10.1134/S1063779619010027>.
- [73] S. Liao, R. Erasmus, H. Jivan, C. Pelwan, G. Peters, E. Sideras-Haddad, A comparative study of the radiation hardness of plastic scintillators for the upgrade of the Tile Calorimeter of the ATLAS detector, *J. Phys. Conf. Ser.* 645 (2015). <https://doi.org/10.1088/1742-6596/645/1/012021>.
- [74] W.W. Moses, G.A. Bizarri, R.T. Williams, S.A. Payne, A.N. Vasil'Ev, J. Singh, Q. Li, J.Q. Grim, W.S. Choong, The origins of scintillator non-proportionality, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 59 (2012) 2038–2044. <https://doi.org/10.1109/TNS.2012.2186463>.
- [75] G. Bizarri, W.W. Moses, S.A. Payne, R.T. Williams, Towards an understanding of nonlinearity in scintillator detector materials, *Hard X-Ray, Gamma-Ray, Neutron Detect. Phys.* XIII. 8142 (2011) 81420X. <https://doi.org/10.1117/12.896001>.
- [76] R.F. Lang, G. Angloher, M. Bauer, I. Bavykina, A. Bento, A. Brown, C. Bucci, C. Ciemniak, C. Coppi, G. Deuter, F. von Feilitzsch, D. Hauff, S. Henry, P. Huff, J. Imber, S. Ingleby, C. Isaila, J. Jochum, M. Kiefer, M. Kimmerle, H. Kraus, J.-C. Lanfranchi, M. Malek, R. McGowan, V.B. Mikhailik, E. Pantic, F. Petricca, S. Pfister, W. Potzel, F. Pröbst, S. Roth, K. Rottler, C. Sailer, K. Schäffner, J. Schmalzer, S. Scholl, W. Seidel, L. Stodolsky, A.J.B. Tolhurst, I. Usherov, W. Westphal, Scintillator Non-Proportionality and Gamma Quenching in CaWO₄, (2009) 1–5. <http://arxiv.org/abs/0910.4414>.
- [77] W.W. Moses, G.A. Bizarri, R.T. Williams, S.A. Payne, A.N. Vasil'Ev, J. Singh, Q. Li, J.Q. Grim, W.S. Choong, The origins of scintillator non-proportionality, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 59 (2012) 2038–2044. <https://doi.org/10.1109/TNS.2012.2186463>.
- [78] N. Connor, Qu'est-ce que le scintillateur organique – Définition, (2020). <https://www.radiation-dosimetry.org/fr/quest-ce-que-le-scintillateur-organique-definition/>.
- [79] E.W. Henderson, J.P. Meehan, Optical properties of divalent rare earth ions in SrAlF₅, *J. Lumin.* 8 (1974) 415–427. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0022-2313\(74\)90082-9](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0022-2313(74)90082-9).
- [80] Jong Hyeon Lee, R.H. Byrne, Complexation of trivalent rare earth elements (Ce, Eu, Gd, Tb, Yb) by carbonate ions, *Geochim. Cosmochim. Acta.* 57 (1993) 295–302. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0016-7037\(93\)90432-V](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0016-7037(93)90432-V).
- [81] S. Blahuta, A. Bessière, B. Viana, P. Dorenbos, V. Ouspenski, Evidence and consequences of Ce⁴⁺ in LYSO:Ce,Ca and LYSO:Ce,Mg single crystals for medical imaging applications, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 60 (2013) 3134–3141. <https://doi.org/10.1109/TNS.2013.2269700>.
- [82] N. Balamurugan, A. Arulchakkaravarthi, P. Ramasamy, Scintillation characteristics on anthracene-doped naphthalene crystal for ¹³⁷Cs- γ ray source, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 568 (2006) 767–771. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2006.08.035>.
- [83] T.A. Kerry Williams, Neil Robinson, Jamie Trapp, A portable organic plastic scintillator dosimetry system for low energy X-rays: A feasibility study using an intraoperative X-ray

- unit as the radiation source, *J. Med. Phys.* 32 (2007). <https://doi.org/10.4103/0971-6203.33245>.
- [84] M.G. Paff, S.D. Clarke, S.A. Pozzi, Organic liquid scintillation detector shape and volume impact on radiation portal monitors, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 825 (2016) 31–39. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2016.03.102>.
- [85] F.T. Porter, M.S. Freedman, F. Wagner, I.S. Sherman, Response of NaI, anthracene and plastic scintillators to electrons and the problems of detecting low energy electrons with scintillation counters, *Nucl. Instruments Methods.* 39 (1966) 35–44. [https://doi.org/10.1016/0029-554X\(66\)90041-3](https://doi.org/10.1016/0029-554X(66)90041-3).
- [86] S. V. Polyakov, Photomultiplier Tubes, *Exp. Methods Phys. Sci.* 45 (2013) 69–82. <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-387695-9.00003-2>.
- [87] S. Flyckt, C. Marmonier, Photomultiplier tubes: Principles and applications, *Photonis, Brive, Fr.* (2002) 265–304. <http://cdsweb.cern.ch/record/712713%5Cnhttp://cds.cern.ch/record/712713>.
- [88] C.H. Lee, J. Son, T.H. Kim, Y.K. Kim, Characteristics of Plastic Scintillators Fabricated by a Polymerization Reaction, *Nucl. Eng. Technol.* 49 (2017) 592–597. <https://doi.org/10.1016/j.net.2016.10.001>.
- [89] Hamamatsu Photonics, photomultiplier tubes and related products, 2016. https://www.hamamatsu.com/resources/pdf/etd/PMT_TPMZ0002E.pdf.
- [90] J. Peyré, Scintillateurs & détecteurs de lumière, (2015) 1–35. http://formation.in2p3.fr/TechBaseDet15/4_JPe_Oleron_Scintillateurs_&_Photodetecteurs.pdf.
- [91] G.F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, Fourth Edi, John Wiley & Sons, Inc, 2010.
- [92] S.R.Chendvankar, charge sensitive préamplifier, Mumbai, n.d.
- [93] M.-N. PERON, ETUDE DE LA REPOSE LUMINEUSE DES SCINTILLATEURS LIQUIDES A DES ELECTRONS MONOENERGETIQUES DE BASSE ENERGIE, UNIVERSITE DE PARIS-SUD CENTRE D'ORSAY, 1995.
- [94] S.H. BYUN, Pulse Processing, *Radiat. Radioisot. Methodol.* 1 (2015) 79–94.
- [95] Soo Hyun BYUN, Pulse Processing, n.d. <https://www.science.mcmaster.ca/>.
- [96] O. SELLÈS, Halogénures de lanthane dopés cérium Des scintillateurs rapides pour l'imagerie médicale, Paris VI, 2007. <https://pastel.archives-ouvertes.fr/tel-00135649/document>.
- [97] G. Blasse, B.C. Grabmaier, *Luminescent Materials*, Springer Ser. Fluoresc. Vol. 7. (1994).
- [98] ORTEC, *Gamma-Ray Spectroscopy Using NaI(Tl)*, 2010. <http://www.ortec-online.com/download/Application-Note-AN34-Experiments-Nuclear-Science-Experiment-3.pdf>.
- [99] E. Sysoeva, V. Tarasov, O. Zelenskaya, Comparison of the methods for determination of scintillation light yield, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers,*

- Detect. Assoc. Equip. 486 (2002) 67–73. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(02\)00676-9](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(02)00676-9).
- [100] R.M. Turtos, S. Gundacker, S. Omelkov, E. Au, P. Lecoq, Light yield of scintillating nanocrystals under X-ray and electron excitation, 215 (2019). <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2019.116613>.
- [101] B. V. Grinyov, V.D. Ryzhikov, O.T. Sidletskiy, G.M. Onyshchenko, S.N. Galkin, A.I. Ivanov, V.A. Tarasov, O. V. Zelenskaya, D.A. Kurtsev, L.A. Piven, I.M. Zenya, Absolute light yield determination for LGSO:Ce, CWO, ZnSe:Al, and GSO:Ce crystals, IEEE Trans. Nucl. Sci. 57 (2010) 1236–1240. <https://doi.org/10.1109/TNS.2010.2047732>.
- [102] M.Al. yield determination in large sodium iodide detectors applied in the search for dark matter. Oliván, J. Amaré, S. Cebrián, C. Cuesta, E. García, M. Martínez, Y. Ortigoza, A. Ortiz de Solórzano, C. Pobes, J. Puimedón, M.L. Sarsa, J.A. Villar, P. Villar, Light yield determination in large sodium iodide detectors applied in the search for dark matter, Astropart. Phys. 93 (2017) 86–95. <https://doi.org/10.1016/j.astropartphys.2017.06.005>.
- [103] W. Wang, H. Qi, F. Liu, H. Meng, J. Cai, S. Xu, S. Jing, F. Hong, Y. Zhu, H. Xu, R. Xu, J. Lai, F. Xu, L. Wang, Approaching the Theoretical Light Yield Limit in CsI (Tl) Scintillator Single Crystals by a Low-Temperature Solution Method, Cryst. Growth Des. (2020) 3474–3481. <https://doi.org/10.1021/acs.cgd.0c00256>.
- [104] E. Auffray, B. Frisch, F. Geraci, A. Ghezzi, S. Gundacker, H. Hillemanns, P. Jarron, T. Meyer, M. Paganoni, K. Pauwels, M. Pizzichemi, P. Lecoq, A comprehensive and systematic study of coincidence time resolution and light yield using scintillators of different size and wrapping, IEEE Trans. Nucl. Sci. 60 (2013) 3163–3171. <https://doi.org/10.1109/TNS.2013.2270089>.
- [105] E. Dolev, A. Manor, I. Brandys, D. Tirosh, G. Ziskind, I. Orion, Small size integrated CsI(Tl) spectrometer efficiency and properties dependence on temperature, IEEE Trans. Nucl. Sci. 55 (2008) 1237–1240. <https://doi.org/10.1109/TNS.2008.922843>.
- [106] A. Phunpueok, W. Chewpraditkul, P. Limsuwan, C. Wanarak, Light output and energy resolution of Lu_{0.7}Y_{0.3}AlO₃:Ce and Lu_{1.95}Y_{0.05}SiO₅:Ce scintillators, Procedia Eng. 32 (2012) 564–570. <https://doi.org/10.1016/j.proeng.2012.01.1309>.
- [107] M. Mazhdi, M.J. Tafreshi, The investigation of scintillation properties of gadolinium doped zinc oxide nanoparticles for nuclear radiation detection, Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip. 959 (2020) 163604. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2020.163604>.
- [108] M. Kronberger, E. Auffray, P.R. Lecoq, Improving light extraction from heavy inorganic scintillators by photonic crystals, IEEE Trans. Nucl. Sci. 57 (2010) 2475–2482. <https://doi.org/10.1109/TNS.2010.2063438>.
- [109] M. Salomoni, R. Pots, E. Auffray, P. Lecoq, Enhancing light extraction of inorganic scintillators using photonic crystals, Crystals. 8 (2018) 1–35. <https://doi.org/10.3390/cryst8020078>.
- [110] J.S. Gearhart, Investigation of BCF-12 plastic scintillating coherent fiber bundle timing properties, (2012).
- [111] P. Sibczynski, A. Broslawski, A. Gojska, V. Kiptily, S. Korolczuk, R. Kwiatkowski, S. Mianowski, M. Moszyński, J. Rzakiewicz, L. Swiderski, A. Szydłowski, I. Zychor,

Characterization of some modern scintillators recommended for use on large fusion facilities in γ -ray spectroscopy and tomographic measurements of γ -emission profiles, *Nukleonika*. 62 (2017) 223–228. <https://doi.org/10.1515/nuka-2017-0032>.

- [112] S.N. detectors and photodetectors Ahmed, *Scintillation detectors and photodetectors*, 2015. <https://doi.org/10.1016/b978-0-12-801363-2.00006-1>.
- [113] S. Gundacker, R.M. Turtos, E. Auffray, P. Lecoq, Precise rise and decay time measurements of inorganic scintillators by means of X-ray and 511 keV excitation, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 891 (2018) 42–52. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2018.02.074>.
- [114] W.L. Zhong, Z.H. Li, C.G. Yang, J. Cao, Measurement of decay time of liquid scintillator, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 587 (2008) 300–303. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2008.01.077>.
- [115] H.M. O’keeffe, E. O’sullivan, M.C. Chen, Scintillation decay time and pulse shape discrimination in oxygenated and deoxygenated solutions of linear alkylbenzene for the SNO experiment, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 640 (2011) 119–122. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2011.03.027>.
- [116] S. Sinha, J. Kwong, W.G.J. Langeveld, P. Ryge, Characterization of ZnO, BaF₂ and PbWO₄ scintillator detectors for cargo inspection using transmitted X-ray spectroscopy, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 60 (2013) 1016–1023. <https://doi.org/10.1109/TNS.2013.2241451>.
- [117] H. Mekki, L. Guerbous, A. Boukerika, K. Lebbou, Scintillation properties of (Lu_{1-x}Y_x)₃Al₅O₁₂:Ce³⁺ nanoscintillator solid solution garnet materials, *J. Instrum.* 18 (2023). <https://doi.org/https://doi.org/10.1088/1748-0221/18/02/P02007>.
- [118] C. Alfieri, A.B. Cavalcante, C. Joram, M.W. Kenzie, An experimental set-up to measure Light Yield of Scintillating Fibres, 2015. <https://cds.cern.ch/record/2011567>.
- [119] C. Sailer, B. Lubsandorzhev, C. Strandhagen, J. Jochum, Low temperature light yield measurements in NaI and NaI(Tl), *Eur. Phys. J. C.* 72 (2012) 1–4. <https://doi.org/10.1140/epjc/s10052-012-2061-7>.
- [120] H. Mekki, Light yield measurement of the Ce³⁺ activated LuAG nanopowder garnet scintillator, in: 1st Natl. Conf. Appl. Sci. Adv. Mater. (NCASAM’2021), December 20-22, 2021, Skikda-Algeria, n.d.
- [121] A.M.kudin, B.V.Grinyov, V.Yu.Gres’, A.I.Mitichkin, A possible reason for non-proportionality of response in NaI:Tl and CsI:Tl scintillation crystals, *Funct. Mater.* 01 (2006) 54–59. <http://dspace.nbuv.gov.ua/handle/123456789/139604>.
- [122] L. Fiserova, J. Janda, Scintillation powders for the detection of neutrons, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 65 (2018) 2140–2146. <https://doi.org/10.1109/TNS.2018.2818299>.
- [123] I. V. Khodyuk, P. Dorenbos, Trends and patterns of scintillator nonproportionality, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 59 (2002) 3320–3331. <https://doi.org/10.1109/TNS.2012.2221094>.
- [124] K.S. Shah, J. Glodo, W. Higgins, E. V.D. Van Loef, W.W. Moses, S.E. Derenzo, M.J. Weber, CeBr₃ scintillators for gamma-ray spectroscopy, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 52 (2005) 3157–3159. <https://doi.org/10.1109/TNS.2005.860155>.
- [125] M. Nakhostin, A technique for the reduction of pulse pile-up effect in pulse-shape

- discrimination of organic scintillation detectors, *Nucl. Eng. Technol.* 52 (2020) 360–365. <https://doi.org/10.1016/j.net.2019.07.035>.
- [126] H. Mekki, L. Guerbous, H. Bousbia-salah, B. Zahra, A. Bourenane, A. BOUKERIKA, Effect of the Ce³⁺ concentration on the Scintillation light yield of the LuAG: Ce³⁺ Nanoscintillator in form of powder, in: 3rd Int. Conf. Radiations Appl. (ICRA A'3) Algiers, Novemb. 21-23 2022, Algiers, 2022.
- [127] DUMONT, DUMONT_PMT_6292, n.d. https://frank.pocnet.net/sheets/085/6/6292.pdf02/Dumont_PMT_6292.pdf.
- [128] A. Syntfeld-Kazuch, L. Swiderski, M. Moszynski, A. V. Gektin, Non-proportionality components in doped CsI, 2014 IEEE Nucl. Sci. Symp. Med. Imaging Conf. NSS/MIC 2014. (2016). <https://doi.org/10.1109/NSSMIC.2014.7431220>.
- [129] S. Sinha, J. Kwong, W.G.J. Langeveld, P. Ryge, Characterization of ZnO, BaF₂ and PbWO₄ scintillator detectors for cargo inspection using transmitted X-ray spectroscopy, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 60 (2013) 1016–1023. <https://doi.org/10.1109/TNS.2013.2241451>.
- [130] X. Wen, A. Enqvist, Measuring the scintillation decay time for different energy deposited by γ -rays and neutrons in a Cs₂LiYCl₆:Ce³⁺ detector, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 853 (2017) 9–15. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2017.02.019>.
- [131] L.M. Bollinger, G.E. Thomas, Measurement of the time dependence of scintillation intensity by a delayed-coincidence method, *Rev. Sci. Instrum.* 32 (1961) 1044–1050. <https://doi.org/10.1063/1.1717610>.
- [132] L. Swiderski, M. Moszynski, A. Syntfeld-Kazuch, M. Szawlowski, T. Szczesniak, Measuring the scintillation decay time for different energy depositions in NaI:Tl, LSO:Ce and CeBr₃ scintillators, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 749 (2014) 68–73. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2014.02.045>.
- [133] X. Lu, S. Gridin, R.T. Williams, M.R. Mayhugh, A. Gektin, A. Syntfeld-Kazuch, L. Swiderski, M. Moszynski, Energy-Dependent Scintillation Pulse Shape and Proportionality of Decay Components for CsI:Tl: Modeling with Transport and Rate Equations, *Phys. Rev. Appl.* 7 (2017) 1–23. <https://doi.org/10.1103/PhysRevApplied.7.014007>.
- [134] Q. Xu, J. Wang, W. Shao, X. Ouyang, X. Wang, X. Zhang, Y. Guo, X. Ouyang, A solution-processed zero-dimensional all-inorganic perovskite scintillator for high resolution gamma-ray spectroscopy detection, *Nanoscale.* 12 (2020) 9727–9732. <https://doi.org/10.1039/d0nr00772b>.
- [135] L. Swiderski, M. Moszynski, A. Syntfeld-Kazuch, M. Szawlowski, T. Szczesniak, Measuring the scintillation decay time for different energy depositions in NaI:Tl, LSO:Ce and CeBr₃ scintillators, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 749 (2014) 68–73. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2014.02.045>.
- [136] J.Y. Lee, G. Adhikari, C. Ha, H.J. Kim, N.Y. Kim, S.K. Kim, Y.D. Kim, H.S. Lee, A Study of NaI(Tl) crystal encapsulation using organic scintillators for the dark matter search, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 953 (2020). <https://doi.org/10.1016/j.nima.2019.163141>.

- [137] Chanh Kim, Wonhi Lee, Alima Melis, Abdallah Elmughrabi, Kisung Lee, Chansun Park, A Review of Inorganic Scintillation Crystals for Extreme Environments, *Crystals*. 11 (2021) 669.
- [138] T. Asch, H. Gemmeke, M. Kleifges, A. Kopmann, A. Menshikov, D. Tcherniakhovski, Single photoelectron resolution for the calibration of photomultiplier- systems, *IEEE Nucl. Sci. Symp. Conf. Rec.* 2 (2005) 887–890. <https://doi.org/10.1109/NSSMIC.2005.1596397>.
- [139] A. BOUKERIKHA, Elaboration par voie sol-gel et caractérisation des matériaux inorganiques de type grenats (Y, Lu)₃Al₅O₁₂ activés aux ions cérium, Université de Jijel, Faculté des Sciences exactes et informatique, 2014.
- [140] A. Boukerika, L. Guerbous, Investigation of the structural and photoluminescence properties of Ce³⁺-doped LuAG nanopowders prepared via sol-gel method, *Opt. Mater. (Amst)*. 40 (2015) 14–19. <https://doi.org/10.1016/j.optmat.2014.11.039>.
- [141] A. Boukerika, L. Guerbous, M. Belamri, Effect of Y³⁺ substitution on structural and photoluminescence properties of solid solutions [(Lu_{1-x}Y_x)_{1-z}Ce_z]₃Al₅O₁₂ phosphors, *Mater. Chem. Phys.* 171 (2016) 394–399. <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2016.01.039>.
- [142] A. Boukerika, L. Guerbous, Investigation of the structural and photoluminescence properties of Ce³⁺-doped LuAG nanopowders prepared via sol-gel method, *Opt. Mater. (Amst)*. 40 (2015) 14–19. <https://doi.org/10.1016/j.optmat.2014.11.039>.
- [143] C. USA, LuAG:Ce, (2023). <https://www.crytur-usa.com/materials/luagce/>.
- [144] K.L. A. Nehari, G. Alombert-Goget, O. Benamara, H. Cabane, M. Dumortier, P. Jeandel, I. Lasloudji, F. Mokhtari, T. Baron, G. Wong, M. Allani, J. Boy, S. Alzuaga, L. Arapan, F. Gegot, T. Dufar, Czochralski crystal growth and characterization of large Langatate (La₃Ga_{5.5}Ta_{0.5}O₁₄, LGT) crystals for SAW application, *R. Soc. Chem.* 21 (2019) 1764–1771. <https://doi.org/10.1039/C8CE02157K>.
- [145] H. Li, E.A. Ghezal, A. Nehari, A. Brenier, K. Lebbou, Bubbles defects distribution in sapphire bulk crystals grown by Czochralski technique, *Opt. Mater. (Amst)*. 35 (2013) 1071–1076. <https://doi.org/10.1016/j.optmat.2012.12.022>.
- [146] P. Prusa, T. Cechak, J.A. Mares, M. Nikl, A. Beitlerova, N. Solovieva, Y. V Zorenko, V.I. Gorbenko, J. Tous, K. Blazek, The α -particle excited scintillation response of the liquid phase epitaxy grown LuAG:Ce thin films, *Appl. Phys. Lett.* 92 (2008) 7–9. <https://doi.org/10.1063/1.2835458>.
- [147] S. Gridin, A. Belsky, M. Moszynski, A. Syntfeld-Kazuch, N. Shiran, A. Gektin, Scintillation properties of CsI:In single crystals, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 761 (2014) 13–18. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2014.05.111>.
- [148] S.B.C. Debnath, C. Fauquet, A. Tallet, A. Goncalves, S. Lavandier, F. Jandard, D. Tonneau, J. Darreon, High spatial resolution inorganic scintillator detector for high-energy X-ray beam at small field irradiation, *Med. Phys.* 47 (2020) 1364–1371. <https://doi.org/10.1002/mp.14002>.
- [149] W. Drozdowski, K. Brylew, A.J. Wojtowicz, J. Kisielewski, M. Świrkowicz, T. Łukasiewicz, J.T.M. de Haas, P. Dorenbos, 33000 photons per MeV from mixed

(Lu_{0.75}Y_{0.25})₃Al₅O₁₂:Pr scintillator crystals, *Opt. Mater. Express.* 4 (2014) 1207. <https://doi.org/10.1364/ome.4.001207>.

- [150] O. Voloshyna, O. Sidletskiy, D. Spassky, I. Gerasymov, I. Romet, A. Belsky, Nonlinear behavior of structural and luminescent properties in Gd(Nb_xTa_{1-x})O₄ mixed crystals, *Opt. Mater. (Amst).* 76 (2018) 382–387. <https://doi.org/10.1016/j.optmat.2018.01.003>.
- [151] D. Kofanov, I. Gerasymov, O. Sidletskiy, S. Tkachenko, Y. Boyaryntseva, D. Kurtsev, O. Zelenskaya, O. Okrushko, T. Gorbacheva, O. Viagin, P. Maksimchuk, K. Lebbou, LuAG:Ce and LuYAG:Ce scintillation crystals grown under reducing conditions from W crucibles, *Opt. Mater. (Amst).* 134 (2022) 113176. <https://doi.org/10.1016/j.optmat.2022.113176>.
- [152] V. Gorbenko, S. Witkiewicz-Łukaszek, T. Zorenko, Y. Syrotych, J.A. Mares, R. Kucerkova, M. Nikl, O. Sidletskiy, A. Fedorov, Y. Zorenko, Development of composite scintillators based on the LuAG: Pr single crystalline films and luag:Sc single crystals, *Crystals.* 11 (2021). <https://doi.org/10.3390/cryst11080846>.
- [153] M. Nikl, Energy transfer phenomena in the luminescence of wide band-gap scintillators, *Phys. Status Solidi Appl. Mater. Sci.* 202 (2005) 201–206. <https://doi.org/10.1002/pssa.200460107>.
- [154] W. Chewpraditkul, L. Swiderski, M. Moszynski, T. Szczesniak, A. Syntfeld-Kazuch, C. Wanarak, P. Limsuwan, Scintillation properties of LuAG:Ce, YAG:Ce and LYSO:Ce crystals for gamma-ray detection, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 56 (2009) 3800–3805. <https://doi.org/10.1109/TNS.2009.2033994>.