

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 Conversion Photovoltaïque (LDCCP)



# Thèse de doctorat

En Électronique

## Investigation des Propriétés de Scintillation de nano Matériaux YAG : $Ce^{3+}$ Pour le Développement de Détecteurs de Rayonnement

Présentée par :

**ZAHRA Billel**

Sous la direction de M. : Guerbous Lakhdar, Professeur

Présenté(e) et soutenue publiquement le (19/12/2023)

### Composition du Jury :

Président	M. Cherif Larbes	Professeur	ENP
Promoteur	M. Lakhdar Guerbous	Directeur de Recherche	CRNA
Co-Promoteur	M. Hicham Bousbia-Salah	Maître de conférence A	ENP
Examineur	M. Mourad Adnane	Professeur	ENP
Examineur	M. Mourad Derbal	Professeur	USDB1
Examineur	M. Fayçal Kharfi	Professeur	UFAS1
Examineur	M. Abderrahim Guittoum	Directeur de Recherche	CRNA

ENP 2023



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 Conversion Photovoltaïque (LDCCP)

Thèse de doctorat

En Électronique



**Investigation des Propriétés de Scintillation de nano  
Matériaux YAG : Ce<sup>3+</sup> Pour le Développement de  
DéTECTEURS de Rayonnement**

Présentée par :

**ZAHRA Billel**

Sous la direction de M. : Guerbous Lakhdar, Professeur

Présenté(e) et soutenue publiquement le (19/12/2023)

**Composition du Jury :**

Président	M. Cherif Larbes	Professeur	ENP
Promoteur	M. Lakhdar Guerbous	Directeur de Recherche	CRNA
Co-Promoteur	M. Hicham Bousbia-Salah	Maître de conférence A	ENP
Examineur	M. Mourad Adnane	Professeur	ENP
Examineur	M. Mourad Derbal	Professeur	USDB1
Examineur	M. Fayçal Kharfi	Professeur	UFAS1
Examineur	M. Abderrahim Guittoum	Directeur de Recherche	CRNA

ENP 2023

## ملخص:

في هذه الدراسة، تم التحقق من تأثير تركيز  $Ce^{+3}$  ، درجة حرارة التلدين والجو المستخدم للتلدين على الخواص الوميضية لمساحيق النانو-المتألئة YAG:Ce المحضرة بطريقة سول جال، تم إجراء العديد من الدراسات حول بلورات YAG:Ce المفردة ، ولكن المواد على مستوى النانو لا تزال غير واضحة، لتقييم الخصائص الوميضية بشكل دقيق، تم تصميم المساحيق المولفة على مقياس النانو كعينات كشف عن الأشعاعات ، حيث تم تطوير عمليات التحضير ، مثل تجانس السطح والاقتران الفعال مع نافذة أنبوب المضخم الضوئي. أظهرت النتائج أنه حتى مع مساحيق الوميض النانوي ، تم الحصول على أطيف الطاقة ، مع ذروة امتصاص واضحة بدءاً من حافة كومبتون ، بالإضافة إلى منحنيات اضمحلال التلألؤ. لقد وجدنا أن العينة بتركيز 0.5 مول٪ من  $Ce^{+3}$  و الملدنة عند  $1000^{\circ}$  درجة مئوية توافق تركيز الاخماد غير الإشعاعي. بالإضافة إلى ذلك ، يُظهر كاشف العينة الذي يحتوي على 0.5 مول٪ من  $Ce^{+3}$  و المصلب عند  $1150^{\circ}$  درجة مئوية أعلى ناتج للضوء بقيمة 19800 Ph/MeV وأفضل قيمة دقة للطاقة بقيمة 10 % FWHM باستخدام مصدر مشع  $^{137}Cs$

الكلمات المفتاحية: نانوميض. درجة حرارة التلدين. تركيز  $Ce^{+3}$ . جوالتلدين. كاشف اشعاع. خصائص الوميض

## Abstract:

Herein, details on the effect of  $Ce^{3+}$  concentration, annealing temperature and annealing atmosphere on luminescence and scintillation properties of  $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$  (YAG:  $Ce^{3+}$ ) nanoscintillator powders, prepared by sol gel method, have been investigated. Many studies about YAG:  $Ce^{3+}$  single crystal have been carried out, but the material at the nanoscale remain poorly elucidated. To accurately assess the scintillation properties, the nanoscintillator sample powders have been designed as a detector, in which, preparation operations, such as surface homogenization and efficiency coupling with photomultiplier tube (PMT) window were developed. It is shown that even with nanoscintillator powders, pulse height spectra, with well-resolved photopeak from the Compton edge, as well as scintillation decay curves were obtained. It was found that 0.5 mol %  $Ce^{3+}$  sample annealed at  $1000^{\circ}C$  presents the non-radiative quenching concentration. In addition, the sample detector with 0.5 mol %  $Ce^{3+}$  annealed at  $1150^{\circ}C$  exhibits the highest light yield (LY) with value 18900 Ph/MeV and a better energy resolution value 10 % FWHM at 662KeV from  $^{137}Cs$  radioactive source.

**Keywords:** Nanoscintillator, Annealing temperature,  $Ce^{3+}$  concentration, Annealing atmosphere, Radiation detector, Scintillation properties.

**Résumé :**

Cette étude examine l'impact de la concentration de  $Ce^{3+}$ , de la température de recuit et de l'atmosphère de recuit sur les propriétés de luminescence et de scintillation des poudres nanoscintillateur  $Y_3Al_5O_{12}: Ce^{3+}$  (YAG:  $Ce^{3+}$ ) préparées par la méthode sol-gel. Bien que les monocristaux YAG:  $Ce^{3+}$  aient été largement étudiés, ces matériaux à l'échelle nanométrique demeurent mal élucidés. Des détecteurs d'échantillon ont été conçus à partir des poudres préparées afin d'investiguer et évaluer leurs propriétés de scintillation. Des opérations d'homogénéisation de surface et de couplage avec la fenêtre de tube photomultiplicateur (PMT) ont été effectuées. Les résultats obtenus ont montré que même en utilisant des détecteurs à base des poudres nanoscintillateur, des spectres d'énergie bien résolus avec des pics clairement identifiés correspondant à la photo-absorption ont été obtenus. De plus, les courbes de décroissance de scintillation des différents échantillons étudiées ont également été mesurées et analysées. L'échantillon avec 0.5 % mol de  $Ce^{3+}$  recuit à 1000 °C à l'aire atmosphérique a présenté la concentration d'extinction non radiative. De plus, le détecteur d'échantillon avec 0.5 mol % de  $Ce^{3+}$  recuit à 1150 °C a montré la plus grande valeur de rendement lumineux (LY) avec 18900 Ph/MeV et une meilleure valeur de résolution d'énergie de 10% FWHM à 662KeV.

**Mots-clés :** Nanoscintillateur, Température de recuit, Concentration en  $Ce^{3+}$ , Atmosphère de recuit, Détecteur de rayonnement, Propriétés de scintillation.

## *Remerciements*

En préambule à ce travail de Thèse, Je rends grâce à Dieu, qui nous a gratifié force et courage pour l'accomplissement de cette Thèse.

Je tiens tout d'abord à exprimer ma profonde gratitude envers le Centre de Recherche Nucléaire de Birine et le Centre de Recherche Nucléaire d'Alger, ainsi que l'École Nationale Polytechnique, pour avoir joué un rôle fondamental dans la réalisation de cette thèse. La collaboration fructueuse établie entre ces institutions a été essentielle pour mener à bien ce travail. En particulier, je souhaite exprimer ma sincère reconnaissance envers mon directeur de thèse, le Professeur *Guebous Lakhdar* du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger, pour son dévouement, son expertise et son mentorat inestimables. Sa guidance précieuse et son implication active ont grandement enrichi cette expérience de recherche.

Je tiens également à exprimer ma profonde gratitude envers le *Dr. Hicham Bousbiasalah*, mon co-directeur (École Nationale Polytechnique), pour sa contribution inestimable à la réalisation de ce travail. Son temps et son expertise investis dans la correction du manuscrit ont été très appréciés. Je suis également reconnaissant pour ses précieux conseils et ses remarques objectives.

Je tiens à exprimer mes sincères remerciements aux membres du jury pour avoir accepté d'examiner notre travail et pour l'intérêt qu'ils ont porté à notre recherche. Leur temps, leur expertise et leur contribution ont été inestimables et ont grandement enrichi notre travail.

Je tiens à exprimer mes sincères remerciements au Directeur Général du Centre de Recherche Nucléaire de Birine (CRNB), Monsieur *Idire Abdellani*, pour son soutien et ses conseils tout au long de cette recherche. Votre engagement en faveur de l'avancement de la recherche nucléaire est une source d'inspiration pour nous tous.

Je tiens également à exprimer ma gratitude envers Monsieur *Adnane Messai*, Directeur de la Division étude et développement de l'instrumentation nucléaire.

Je souhaite exprimer ma profonde gratitude envers le responsable du *laboratoire de spectroscopie d'annihilation de positron /CRNA* ainsi que tous les éléments du laboratoire pour leur soutien inestimable lors de ce travail, je leur suis infiniment reconnaissant.

Mes sincères et profonds remerciements à Monsieur *Noureddine Hebboul* (DEDIN, CRNB) et à Monsieur *Aissa Bourennane* (DTN, CRNB) pour leur contribution précieuse et leur soutien tout au long de ce travail.

Merci à tous ceux qui m'ont aidé de près ou de loin.

# Dédicace

*Cette thèse est dédiée*

*A ma chère mère, qui a toujours été mon roc, mon guide et mon inspiration. En témoignage d'affection et de reconnaissance pour tout l'amour inconditionnel, le soutien et les sacrifices qu'elle m'a offerts tout au long de ma vie.*

*A mon très cher père, qui m'a inspiré par sa force, son courage et sa sagesse. Que Dieu Tout-Puissant lui accorde sa sainte miséricorde et le guide vers son vaste paradis.*

*A ma chère épouse, qui a été mon soutien constant tout au long de cette étude. Ton amour, ta patience et ta compréhension ont été mes sources d'inspiration et de motivation pendant les moments les plus difficiles de ma thèse.*

*A mes frères et mes sœurs.*

*A mes chers enfants, Ibtihal, Basma et Mouadh, qui ont été la source de ma fierté et de mon bonheur tout au long de ma vie.*

**ZAHRA BILLEL**

# Table des Matières

## Liste des tableaux

## Liste des figures

## Liste des publications

*Introduction Générale* .....15

## Chapitre 1 : Généralités Sur Les Scintillateurs

1.1.	Introduction.....	20
1.2.	Mécanismes de scintillation des matériaux inorganiques.....	20
1.2.1.	L'interaction rayonnement-matière .....	21
1.2.2.	Transfert d'énergie .....	25
1.2.2.1.	Les pièges à électrons .....	26
1.2.2.2.	Les pièges à trous .....	26
1.2.2.3.	Les excitons.....	26
1.2.3.	La luminescence.....	27
1.3.	Les principales caractéristiques des scintillateurs.....	30
1.3.1.	Pouvoir d'absorption :.....	30
1.3.2.	Rendement lumineux.....	31
1.3.3.	Temps de décroissance de la scintillation.....	32
1.3.4.	Longueur d'onde d'émission .....	34
1.3.5.	Résolution énergétique .....	35
1.4.	Transport de photons dans les scintillateurs .....	36
1.5.	Propriétés physicochimiques des scintillateurs inorganiques .....	40
1.6.	Les nanoscintillateurs à base des ions terres rares .....	40
1.6.1.	Présentation des terres rares :.....	41
1.6.2.	Propriétés de la matrice $Y_3Al_5O_{12}$ (YAG) .....	42
1.6.2.1.	Structure cristallographique .....	42
1.6.2.2.	Propriétés physiques de la matrice YAG .....	44
1.6.2.3.	Propriétés optiques de l'ion terre rare $Ce^{3+}$ dans la matrice YAG .....	45
1.6.3.	Applications des nanoscintillateurs .....	46
1.7.	Conclusion .....	47

## **Chapitre 2 : L'instrumentation Nucléaire**

2.1.	Introduction.....	49
2.2.	Instrumentation nucléaire .....	49
2.2.1.	Les détecteurs.....	50
2.2.1.1.	Le scintillateur .....	50
2.2.1.2.	Les photomultiplicateurs.....	51
2.2.2.	Le préamplificateur de charge.....	60
2.2.2.1.	Caractéristiques du préamplificateur : .....	61
2.2.2.2.	Bilan en bruit .....	63
2.2.2.3.	Combinaison des sources de bruit .....	65
2.2.2.4.	Sorties de préamplificateur de charge.....	66
2.2.3.	L'amplificateur de mise en forme .....	69
2.2.3.1.	Introduction : .....	69
2.2.3.2.	Principales fonctions réalisés par de l'amplificateur de mise en forme .....	70
2.3.	Conclusion .....	81

## **Chapitre 3 : Mesure Des Propriétés De Scintillation De Nanoscintillateur YAG : Ce**

3.1.	Introduction.....	83
3.2.	Techniques expérimentales.....	83
3.2.1.	Préparation des échantillons.....	83
3.2.2.	Mise au point d'une chaine de mesure des spectres d'énergie de nano- scintillateur YAG :0.5% Ce .....	85
3.2.2.1.	Procédure expérimentale.....	86
3.2.2.2.	Choix des paramètres expérimentaux : .....	87
3.2.2.3.	Résultats et discussion : .....	89
3.2.3.	Mise au point d'un système de mesure de temps de montée et de temps de déclin nanoscintillateur YAG :0.5% Ce <sup>3+</sup> .....	94
3.2.3.1.	Procédure expérimentale.....	95
3.2.3.2.	Résultats et discussion .....	96
3.2.4.	Mise au point d'un système de mesure de la résolution temporelle (CTR): .....	98
3.2.4.1.	Procédure expérimentale.....	99
3.2.4.2.	Résultats et discussion .....	99
3.3.	Conclusion .....	100

## **Chapitre 4 : Effet Des Paramètres De Synthèse De YAG : Ce<sup>3+</sup> Sur Les Propriétés De Scintillation**

4.1.	Introduction .....	102
------	--------------------	-----

4.2.	Étude de l'effet de la concentration en ions cérium ( $Ce^{3+}$ ) sur les propriétés de scintillation de YAG : $Ce^{3+}$ .....	103
4.2.1.	Effet sur la résolution énergétique ( $R$ ).....	104
4.2.2.	Effet sur le rendement lumineux ( $RL$ ) .....	106
4.2.3.	Effet sur le temps de déclin.....	108
4.2.4.	Effet sur le temps de montée.....	112
4.2.5.	Effet sur la résolution temporelle .....	113
4.3.	Étude de l'effet thermique sur les propriétés de scintillation de YAG : $Ce^{3+}$ .....	116
4.3.1.	Effet sur la résolution énergétique.....	117
4.3.2.	Effet sur le rendement lumineux ( $RL$ ).....	119
4.3.3.	Effet sur le temps de déclin et temps de montée.....	120
4.3.4.	Effet sur la résolution temporelle .....	123
4.4.	Étude de l'effet de l'atmosphère sur les propriétés de scintillation de YAG : $Ce^{3+}$ ..	125
4.4.1.	Effet sur la résolution énergétique.....	126
4.4.2.	Effet sur le rendement lumineux $RL$ .....	128
4.4.3.	Effet sur la constante de déclin .....	129
4.5.	Conclusion .....	132
	<b>Conclusion Générale .....</b>	<b>134</b>
	<b>Références.....</b>	<b>137</b>

## Liste des tableaux

Tableau 1-1 : $\rho Z_{eff}^4$ , longueur d'atténuation à 511 keV et probabilité d'absorption par effet photoélectrique à 511 keV pour quelques matériaux scintillateurs.....	31
Tableau 1-2 : Temps de vie de scintillation pour quelques matériaux scintillateurs .....	33
Tableau 1-3 : Rendement lumineux et résolution énergétique à 662 Kev pour quelque matériaux scintillateur .....	36
Tableau 1-4 : Structure électronique des terres rares et des ions +III correspondants.....	42
Tableau 1-5 : Données cristallographiques concernant la matrice YAG .....	43
Tableau 1-6 : Caractéristiques physiques de la matrice grenat YAG.....	45
Tableau 3-1 : Résolution énergétique de l'échantillon YAG :0.5% , irradié par rayon $\gamma$ 662kev libéré de la source $^{137}Cs$ et par les particules $\alpha$ 5.48 Mev libéré de la source $^{241}Am$ ..	91
Tableau 3-2 : Rendement lumineux relatif et absolu de YAG :0.5% $Ce^{3+}$ sous excitation $\gamma$ - $^{137}Cs$ .....	92
Tableau 3-3 : Quelques valeurs de RL des scintillateurs YAG dopé $Ce^{3+}$ monocristal et céramique.....	93
Tableau 3-4 : Résumé des résultats de temps de montée et de déclin de YAG :0.5% $Ce^{3+}$ .....	97
Tableau 4-1 : Échantillons des luminophores YAG : $Ce^{3+}$ avec différent concentrations .....	103
Tableau 4-2 : Résolution énergétique des quatre échantillons mesurés à 662kev $\gamma$ - $^{137}Cs$ .....	105
Tableau 4-3 : Effet de la concentration sur le rendement lumineux des échantillons préparés.	107
Tableau 4-4 : Effet de la concentration sur le temps de déclin sous excitation gamma $^{137}Cs$	110
Tableau 4-5 : Temps de montée des échantillons .....	112
Tableau 4-6 : Résolution temporelle (CTR) mesurées par le YAG : Ce avec différentes concentrations .....	115
Tableau 4-7 : Effet de la température de recuit sur la résolution en énergie du YAG : 0,5 % Ce .....	118
Tableau 4-8 : Effet de la température de recuit sur le rendement lumineux de YAG : 0,5 % Ce .....	119
Tableau 4-9 : Résumé de déclins des impulsions de scintillation en fonction de la température de recuit.....	121
Tableau 4-10 : CTR des échantillons YAG : $Ce^{3+}$ calcinées aux différents températures .....	124
Tableau 4-11 : Effet de l'atmosphère de recuit sur la résolution énergétique .....	126
Tableau 4-12 : Effet de l'atmosphère de recuit sur le rendement lumineux de YAG : % Ce .	128
Tableau 4-13 : Temps de décroissance de la scintillation du YAG : $Ce^{3+}$ sous différentes atmosphères de recuit .....	130

# Liste des figures

Figure 1-1: Illustration d'un diagramme de bande générique d'un scintillateur inorganique..	21
Figure 1-2 :Principe des différentes interactions entre rayonnement et matière.....	23
Figure 1-3 : Interaction dominante entre rayonnement et matière en fonction du numéro atomique Z de l'atome et de l'énergie $h\nu$ du photon incident .....	23
Figure 1-4 : Schéma des porteurs de charge piégés dans une maille cubique à faces centrées d'halogénure alcalin. ....	27
Figure 1-5 : Transition interconfigurationnelles de l'ion $Ce^{3+}$ .....	29
Figure 1-6 : Les propriétés d'absorption ou d'excitation (orange) et d'émission (rouge) de fibre monocristal YAG:.. ..	37
Figure 1-7 : Les réflexions de Fresnel sont représentées pour un scintillateur inorganique typique en interface avec le verre (en haut) et l'air (en bas). ....	39
Figure 1-8 : Diagramme binaire du système $Y_2O_3-Al_2O_3$ .....	43
Figure 1-9: Schéma d'une maille cubique du YAG avec représentation des différents.....	44
Figure 1-10: diagramme d'énergie de l'ion $Ce^{3+}$ explicitant les différentes transitions d'excitation et de désexcitation [80].....	45
Figure 1-11 : Spectres d'émission et d'excitation caractéristiques de YAG:Ce.....	46
Figure 2-1 : Schéma de principe du détecteur et de l'électroniques associés. ....	50
Figure 2-2 : Principe de détection des rayonnements par un détecteur à scintillation .....	52
Figure 2-3 : Structure de bande près de la surface pour les semi-conducteurs conventionnels (à gauche) et les matériaux NEA (à droite).[83] .....	55
Figure 2-4 :Variation du rendement d'émission secondaire avec l'énergie primaire des électrons pour les matériaux de dynode standard et un matériau NEA [GaP(Cs)]......	56
Figure 2-5 : La sensibilité spectrale d'un certain nombre de matériaux de photocathodes d'intérêt dans les tubes PM.....	57
Figure 2-6 : La réponse d'un PM à une courte impulsion de lumière sur la photocathode. ....	59
Figure 2-7: Trajectoires générées par ordinateur d'électrons accélérées de la photocathode à la première dynode dans un tube PM. ....	60
Figure 2-8 : Représentation de préamplificateur de charge .....	61
Figure 2-9 : Schéma électrique d'un préamplificateur de charge, montrant en quelques détails l'étage d'entrée (J-FET + BJT en cascade) et le réseau de rétroaction. ....	62
Figure 2-10 : Schéma de principe de la voie temps. ....	66
Figure 2-11 : Dynamique temporelle du niveau de sortie du préamplificateur de charge lors de l'arrivée séquentielle de 30 particules de charge égale .....	68
Figure 2-12 : Applications typiques des amplificateurs dans le traitement des impulsions .....	69
Figure 2-13 :Montage Différentiateur CR .....	71
Figure 2-14 : Montage Intégrateur RC .....	72
Figure 2-15 : La réponse d'un réseau CR-RC à une entrée de tension échelon d'amplitude E.72	
Figure 2-16 :Circuit CR-RC de mise en forme des impulsions .....	73
Figure 2-17 : Mise en forme CR-RC-CR à double différentiation.....	73
Figure 2-18 : Avantage de l'annulation pôle-zéro .....	75
Figure 2-19 : Synoptique d'un Amplificateur opérationnel.....	76
Figure 2-20 : Circuit de l'amplificateur non inverseur.....	76
Figure 2-21 : Amplificateur Inverseur.....	77
Figure 2-22 : Un schéma simplifié d'un restaurateur de ligne de base. ....	77

Figure 2-23 : (a) Résolution, et (b) Stabilité de la position de pic en fonction du taux de comptage avec un restaurateur de ligne de base à déclenchement à hautes performances. ....	79
Figure 2-24 : Signaux de base dans le circuit de rejet d'empilement. ....	80
Figure 3-1: Aperçu sur l'échantillon préparé avec Y <sub>3</sub> Al <sub>5</sub> O <sub>12</sub> : Ce <sup>3+</sup> + (YAG): 0.5% Ce <sup>3+</sup> ....	85
Figure 3-2 : Schéma fonctionnel du système de mesure du rendement lumineux et des spectres énergétique.....	85
Figure 3-3 : Supports mécanique conçus.....	86
Figure 3-4 : Montage expérimental.....	87
Figure 3-5 : La résolution énergétique en fonction de temps de mise en forme $\tau$ .....	88
Figure 3-6 : L'évolution de rendement en fonction de temps de mise en forme $\tau$ .....	88
Figure 3-7 : Évolution de la résolution d'énergie en fonction de la HT.....	89
Figure 3-8 : (a) Spectre des sources radioactives <sup>137</sup> Cs, <sup>22</sup> Na and <sup>57</sup> Co collectées par le détecteur YAG : 0.5% Ce <sup>3+</sup> . (b) La courbe de calibration obtenus par YAG :0.5% Ce <sup>3+</sup> .....	90
Figure 3-9: Spectres d'énergie de la source de <sup>241</sup> Am (5.48 Mev) mesuré avec l'échantillon détecteur YAG : 0,5% Ce.....	91
Figure 3-10 : Spectres d'énergie de <sup>137</sup> Cs en utilisant le détecteur de référence et le détecteur échantillon.....	92
Figure 3-11 : Spectres des sources gamma <sup>137</sup> Cs et Alpha Am241 avec détecteur YAG :0.5%Ce <sup>3+</sup> pour mesurer le rapport $\alpha/\gamma$ .....	94
Figure 3-12 : Schéma de principe de système de mesure de temps de déclin.....	95
Figure 3-13 : Spectre de déclin de nano scintillateur YAG:0.5 %Ce.....	97
Figure 3-14 : Schéma fonctionnel d'une chaîne électronique de mesure de la résolution temporelle CTR.....	99
Figure 3-15: Spectre de la résolution temporelle mesuré pour le nano scintillateur YAG:0.5%Ce couplés au PMT XP2020Q en coïncidence avec un détecteur LYSO.....	100
Figure 4-1 : Photographie des poudres luminophores du Y <sub>3-x</sub> Al <sub>5</sub> O <sub>12</sub> : Ce <sub>x</sub> .....	104
Figure 4-2: Échantillon détecteurs préparés.....	104
Figure 4-3 : Spectres d'énergie des quatre échantillons détecteur collectés avec la source de <sup>137</sup> Cs.....	105
Figure 4-4 : Effet de la concentration sur la résolution d'énergie.....	106
Figure 4-5 : Spectres d'énergie de la source de <sup>137</sup> Cs couplé avec les détecteurs d'échantillon YAGs et le détecteur de référence NaI :Tl.....	107
Figure 4-6 : Évolution de rendement lumineux des poudres YAG :Ce <sup>3+</sup> en fonction du taux d'ions Ce <sup>3+</sup> sous excitation gamma 662kev.....	108
Figure 4-7 : Spectres de temps de déclin des quatre détecteurs d'échantillon YAGs.....	109
Figure 4-8 :Effet de la concentration sur les temps de déclin- composants rapide et lente....	111
Figure 4-9 : Évolution des intensités des composants rapide et lent de YAG : Ce <sup>3+</sup> sous excitation $\gamma$ -662KeV en fonction de la concentration de Ce <sup>3+</sup> .....	111
Figure 4-10 : Évolution de coefficient $\alpha$ en fonction de la concentration.....	112
Figure 4-11 : Effet de concertation sur le temps de monté.....	113
Figure 4-12 : Partie croissante de la distribution temporelle des photons de scintillation pour différents dopages en cérium.....	114
Figure 4-13 : Spectres de la résolution temporelle de YAG dopé avec différents concentration.....	114
Figure 4-14 : Effet de la concertation sur la Résolution temporelle CTR.....	115
Figure 4-15 : Dépendance ente CTR et $\tau_{rdLY}$ pour le nano scintillateur YAG dopé Ce <sup>3+</sup> .....	116
Figure 4-16 : Échantillons préparés pour l'étude de l'effet thermique.....	117
Figure 4-17 : Spectres des échantillons détecteurs recuite à différents température.....	117

Figure 4-18 : Effet de température de recuit sur la résolution énergétique .....	118
Figure 4-19 : Effet de température de recuit sur le rendement lumineux .....	119
Figure 4-20 : Relation entre la taille des cristallites et le RL de YAG :Ce en fonction de température de calcination .....	120
Figure 4-21 : Spectres de temps de décroissance des détecteurs d'échantillons calcinés à différents température .....	121
Figure 4-22 : Effet de traitement thermique sur la composante de décroissance rapide .....	122
Figure 4-23 : Effet de traitement thermique sur la composante de décroissance lente .....	122
Figure 4-24 : Évolution des intensités des composants rapide et lent de YAG : 0.5% Ce <sup>3+</sup> sous excitation $\gamma$ – Cs137 en fonction de température de traitement.....	123
Figure 4-25 : CTR mesurées pour différentes températures de recuit.....	124
Figure 4-26 : Échantillons préparés pour l'étude de l'effet l'atmosphère de recuit.....	125
Figure 4-27: Spectres énergétique des détecteurs d'échantillon calcinés à 1000°C sous différents atmosphères et irradiée par les rayons $\gamma$ -662 KeV .....	126
Figure 4-28 : Effet de l'atmosphère de recuit sur la résolution énergétique de YAG : Ce <sup>3+</sup> nanoscintillateur .....	127
Figure 4-29 : Spectres énergétique des détecteurs d'échantillon calcinés à 1000°C sous différents atmosphères et le détecteur de référence sous irradiation $\gamma$ -662 KeV.....	128
Figure 4-30 : Spectres de temps de déclin des échantillons calcinés sous différents atmosphères.....	129
Figure 4-31 : Variation de la composante rapide de temps de décroissance en fonction de l'atmosphère de recuit .....	130
Figure 4-32 : Variation de la composante lente de temps de déclin en fonction de l'atmosphère de recuit .....	131
Figure 4-33 : Variation de l'intensité de composant rapide de temps de déclin en fonction de l'atmosphère de recuit .....	131

# Liste des publications

Pendant ma formation doctorale qui s'est déroulée de 2019 à 2023, les travaux de recherche que j'ai menés ont été valorisés par :

## I. Publications Internationales:

**B. Zahra, L. Guerbous, H. Bousbia-salah, A. Boukerika**, Effect of annealing atmospheres on the scintillation properties of Ce<sup>3+</sup>-doped YAG nanoscintillator, Radiat. Detect. Technol. Methods. (2023). <https://doi.org/10.1007/s41605-023-00397-x>.

**B. Zahra, L. Guerbous, H. Bousbia-salah, A. Boukerika**, Effect of Ce<sup>3+</sup> content and annealing temperature on the optical and scintillation properties of Ce<sup>3+</sup> -doped Y3Al5O12 Nanoscintillator synthesized by sol gel route, Phys. Status Solidi. n/a (2023). <https://doi.org/https://doi.org/10.1002/pssa.202300022>.

## II. Communications Internationales :

**B. Zahra, L. Guerbous, H. Bousbia-salah, A. Boukerika, M. Hamza, A. Bourenane**, Effect of annealing atmospheres on the light yield and energy resolution of nanoscintillator YAG: Ce, third International Conference on Radiations and Applications (ICRA'2022)/CRNA/COMENA & USTHB university, November 21-23, 2022.

---

# *Introduction Générale*

---

## **Introduction Générale**

Un matériau scintillateur est capable de produire de la lumière après avoir absorbé un rayonnement ionisant. Il est caractérisé par une haute efficacité de conversion de l'énergie des particules incidentes en lumière visible. [1]. La lumière visible résultante peut être détectée par un tube photomultiplicateur ou une photodiode qui fournit finalement un signal électrique représentatif des quanta incidents absorbés dans le scintillateur [2]. Le scintillateur a été utilisé pour la première fois par Sir William Crooks sur des écrans des appareils en 1903 [3,4]. Les scintillations produites par un écran ZnS étaient visibles à l'œil nu si elles étaient observées au microscope dans une chambre sombre ; l'appareil était connu sous le nom de spinthariscopes. Cette technique a conduit à un certain nombre de découvertes importantes, mais était évidemment peu pratique. Les scintillateurs ont commencé à attirer une attention supplémentaire en 1944, lorsque Curran et Baker ont remplacé la mesure à l'œil nu par un photomultiplicateur (PMT) nouvellement développé. Ce fut la naissance du détecteur à scintillation moderne [5]. Les détecteurs à scintillation sont largement utilisés dans les expériences de physique des neutrons et des particules à haute énergie, l'exploration de nouvelles ressources énergétiques, la sécurité par rayons X, les caméras nucléaires et l'exploration de gaz. Les applications supplémentaires des scintillateurs comprennent les scanners de tomographie par ordinateur (CT) et la tomographie par émission de positrons (TEP) dans les diagnostics médicaux, ainsi que les écrans des anciens ordinateurs et des téléviseurs à tube cathodique (CRT) [1].

Les scintillateurs peuvent être classés en scintillateurs organiques et inorganiques. Parmi les scintillateurs inorganiques, on trouve les scintillateurs à oxyde, aux halogénures métalliques, en céramique, en verre et à gaz [1]. Un scintillateur idéal doit posséder de nombreuses propriétés désirées, telles que : une densité élevée, une vitesse de fonctionnement rapide, un faible coût, une dureté aux rayonnements, une capacité de production et une durabilité des paramètres opérationnels. Des propriétés supplémentaires sont également souhaitées pour un bon détecteur à scintillation sont [1] : 1) une sortie élevée pour les rayons gamma (c'est-à-dire une efficacité élevée pour convertir l'énergie du rayonnement incident en photons de scintillation); 2) transparent à sa propre lumière de scintillation (pour une bonne collecte de lumière); 3) un pouvoir d'arrêt élevé ; 4) bonne linéarité sur une large gamme d'énergie ; 5) un temps de montée court pour les applications temporelle rapide (par exemple, les mesures de coïncidence) ; 6) un

temps de décroissance court pour réduire le temps mort du détecteur et s'adapter à des taux d'événements élevés, 7) une plage d'émission appropriée correspondant à la sensibilité spectrale des PMTs existants ; 8) un indice de réfraction proche de celui du verre ( $\approx 1,5$ ) (pour permettre un couplage optimal avec la fenêtre PMT) ; 9) capacité de fonctionnement à température ambiante sans trempe. Le choix pratique d'un matériau scintillateur est généralement un compromis entre ces propriétés pour s'adapter au mieux à une application donnée. Généralement, les scintillateurs organiques ont un temps de décroissance rapide mais un faible rendement lumineux. Le scintillateur inorganique peut avoir un rendement lumineux élevé mais parfois un temps de réponse lent. Les scintillateurs organiques sont préférés pour la spectroscopie bêta et la détection de neutrons rapides en raison de leur grande surface de section efficace pour les neutrons, tandis que les scintillateurs inorganiques à haut numéro atomique et à haute densité sont largement utilisés pour la spectroscopie gamma [1].

La plupart des scintillateurs inorganiques sont développés en utilisant les techniques de croissance monocristallin, telle que les méthode Bridgman ou Czochralski. Ils peuvent être divisés en deux catégories : scintillateur intrinsèque et scintillateur activé ou dopé. Aujourd'hui un intérêt particulier est porté sur les nanomatériaux inorganiques luminescents qui ont plusieurs applications pratiques [6–9].

Le grenats d'aluminium et d'yttrium YAG : Ce monocristal a été largement utilisé dans les différentes applications de détection, il est aussi très utilisé comme matériau laser [10]. La croissance d'un cristal pur et mono phase est très coûteuse, demande des laboratoires très sophistiqués et une durée de croissance élevée [11–13]. De plus, les scintillateurs inorganiques monocristallins ont des inconvénients, tels que leurs fragilités, leurs flexibilité limitée et leurs taille limitée, ces raisons et autres sont les plus grands obstacles à leur utilisation.

Dans le cadre de nos activités au Réacteur Essalem du Centre de Recherche Nucléaire de Birine, l'utilisation de détecteurs compacts et flexibles s'avère essentielle. Ces dispositifs sont cruciaux pour mesurer la radioactivité dans des zones d'accès délicat. Ainsi, le développement de nanoscintillateurs à l'échelle nanométrique, associé à l'utilisation de fibres optiques pour transmettre les informations du scintillateur vers le poste de traitement, revêt une importance capitale dans notre quête de méthodes de mesure nucléaire plus adaptées et efficaces.

Récemment, des recherches ont été menées pour concevoir et développer de nouveaux matériaux scintillateurs à l'échelle nanométrique. Ces travaux utilisent différentes méthodes

chimiques telles que la combustion sol-gel [14], la co-précipitation [15], la méthode solvo-thermique [16], et la méthode sol-gel [17,18]. Ces nanoscintillateurs représentent une alternative prometteuse aux scintillateurs monocristallins (Bulk). La méthode sol-gel permet d'élaborer à l'échelle nanométrique des scintillateurs, à faible coût et avec une meilleure pureté, une faible température de traitement, la possibilité de contrôler la taille et la morphologie des grains, et de bonnes propriétés de luminescence [18]. Le nanoscintillateur YAG : Ce<sup>3+</sup> peut surmonter certains des inconvénients associés aux monocristaux et constituer une bonne alternative pour la prochaine génération des détecteurs à scintillation.

Dans le cadre de cette thèse, nous avons étudié, développé et caractérisé des détecteurs à scintillation à base de luminophore  $Y_3Al_5O_{12} : Ce^{3+}$  synthétisé à l'échelle nanométrique par la méthode de sol gel en vue d'utilisation dans les applications de détection nucléaire, la caractérisation structurale, radio-luminescence et la photoluminescence de ce matériau a été abordé dans les travaux de recherches antérieurs [10]. L'évaluation des performances de ces détecteurs s'articule sur l'identification et l'étude des différentes propriétés de scintillation. Pour un monocristal YAG : Ce, ces propriétés sont bien connues depuis de nombreuses années, mais jusqu'à présent, ce matériau à l'échelle nanométrique reste mal compris. Pour cela, plusieurs techniques basées sur des systèmes d'instrumentation nucléaire ont été mise au point au sein de laboratoire d'instrumentation nucléaire (LIN)/Centre de Recherche Nucléaire de Birine (CRNB) pour l'investigation des propriétés de scintillation de nano-cristal YAG: Ce.

Cette thèse est structurée en quatre chapitres, dans le premier chapitre de notre étude, nous avons introduit les principales classes de scintillateurs, en décrivant leurs mécanismes et leurs propriétés de scintillation. Nous avons également consacré la deuxième partie de ce chapitre à la présentation des scintillateurs inorganiques à base de grenat dopé avec des ions de terres rares, élaborés à l'échelle nanométrique, également connus sous le nom de nanoscintillateurs, en particulier, le nanoscintillateur  $Y_3Al_5O_{12} : Ce^{3+}$ .

Dans le deuxième chapitre, nous avons étudié et présenté les différents modules d'instrumentation nucléaire utilisés pour mettre au point des systèmes de caractérisation des détecteurs à base de nanoscintillateurs YAG : Ce<sup>3+</sup>. Nous avons expliqué en détail les fonctions électroniques de chaque module de la chaîne d'instrumentation dans ce chapitre.

Le troisième chapitre de cette étude a été consacré à la mise au point de systèmes d'instrumentation nucléaire pour la caractérisation des propriétés de scintillation du nanoscintillateur à base de grenat d'yttrium et d'aluminium dopé avec l'ion de terre rare cérium,

et ayant pour formule chimique :  $Y_3Al_5O_{12} : Ce^{3+}$ . Les propriétés de scintillation étudiées dans notre recherche comprennent : la résolution énergétique, le rendement lumineux, le facteur d'extinction  $\alpha/\gamma$ , le temps de montée, le temps de déclin et la résolution temporelle. Ces propriétés ont été mesurées grâce aux systèmes d'instrumentation appropriés que nous avons développés.

Dans le dernier chapitre de cette thèse, une étude de l'effet des paramètres d'élaboration et de synthèse de luminophore YAG :  $Ce^{3+}$  sur les propriétés de scintillation a été entamé. L'objectif de cette étude est de déterminer les paramètres permettant l'obtention d'un scintillateur avec des performances optimales, lors de cette thèse, nous avons étudié dans un premier temps l'impact de la concentration en ion activateur  $Ce^{3+}$  sur les différentes propriétés de scintillation. Ensuite, nous avons examiné l'effet de la température de recuit. Enfin, nous avons analysé l'influence de l'atmosphère dans lequel le matériau a été calciné. Cette étude nous a permis de mieux comprendre les propriétés de scintillation du nanoscintillateur YAG :  $Ce^{3+}$ .

# *Chapitre 1*

---

## *Généralités sur les Scintillateurs*

---

## 1.1. Introduction

Le mécanisme de scintillation implique la conversion de l'énergie d'un quantum ionisant incident, tel qu'un rayon X ou gamma, une particule haute énergie ou même un photon ultraviolet, en lumière visible. La première observation de ce phénomène remonte à 1663 lorsque Robert Boyle a fait la première description de la thermoluminescence. Cependant, le terme n'était pas utilisé à l'époque. L'avancement dans la compréhension de ce phénomène a continué au fil des ans, et en 1895, Röntgen a découvert la fluorescence visible de  $K_2Pt(CN_4)$  sur une plaque de verre après exposition aux rayons X, marquant ainsi les débuts des matériaux scintillateurs. Depuis lors, la détection visuelle s'appuie sur des matériaux tels que  $CaWO_4$  et  $ZnS$ . À partir de 1945, le développement des photomultiplicateurs a relancé l'intérêt pour les scintillateurs et a conduit à de nouvelles applications. Les halogénures alcalins, en particulier le sodium dopé thallium  $NaI: Tl$ , ont suscité beaucoup d'intérêt. [19,20].

Il existe deux catégories principales de scintillateurs, à savoir les organiques et les inorganiques, qui se différencient par leur structure chimique et, par conséquent, leur mécanisme de scintillation. En principe, les deux types de scintillateurs opèrent de manière analogue, ayant la capacité commune d'ioniser des atomes en réaction à des rayonnements incidents. Les électrons secondaires rapides, tels que ceux générés par les rayons  $\gamma$ , provoquent une avalanche d'électrons tertiaires. Ces derniers thermalisent et induisent la désexcitation des atomes excités par fluorescence et phosphorescence.[1]. Les détails de processus de scintillation dans les deux classes de scintillateurs (organique et inorganique) sont quelque peu différents et plus complexes, malgré quelques avantages des scintillateur organique (temps de décroissance rapide, faciliter de leur fabrication, leurs couts réduit)[1].

La première partie de ce chapitre est consacré à la présentation des scintillateurs inorganiques, leurs mécanismes et leurs principales propriétés de scintillation, dans la deuxième partie, les propriétés physiques et optiques de nanoscintillateur inorganique de type grenat dopé avec les ions terre rares  $Ce^{3+}$  (YAG :  $Ce^{3+}$ ) sont présentés et discutés.

## 1.2. Mécanismes de scintillation des matériaux inorganiques

Les mécanismes physiques de la scintillation dans les matériaux inorganiques sont mieux expliqués à l'aide de modèles dérivés de la physique du solide des structures de réseau cristallin. C'est-à-dire que, contrairement aux matériaux organiques, les scintillateurs inorganiques ont un large gap d'énergie entre la bande de valence et la bande de conduction qui sont caractéristiques des constituants cristallins et de leur structure de réseau. Entre ces bandes se trouve une région

interdite, dans laquelle aucun état électronique ne peut exister dans un réseau cristallin pure. Lorsqu'un rayonnement passe à travers un cristal, une partie de son énergie est généralement absorbée. Cette absorption conduit à des perturbations dans la structure électronique du cristal, produisant des électrons et des trous, qui peuvent transférer leur énergie à des centres luminescents. Ainsi, le processus de scintillation peut être divisé en trois phases distinctes :

- L'interaction entre le rayonnement et la matière, qui entraîne la création de paires d'électrons et de trous primaires, suivie de leur multiplication et de leur relaxation.
- La formation d'états excités et le transfert d'énergie de ces états vers des centres luminescents.
- La production de lumière visible, également connue sous le nom de luminescence.

Les électrons et les trous sont libres de migrer à l'intérieur du réseau[21]. En réalité, les impuretés, les activateurs et les défauts (par exemple, les atomes manquants ou mal placés) modifient la structure de la bande interdite d'énergie du cristal en formant des pièges porteurs de charge ; leur présence modifie les propriétés de luminescence du cristal. Une illustration des processus de bande interdite et de luminescence d'un cristal scintillant inorganique est présentée sur la figure I.1.

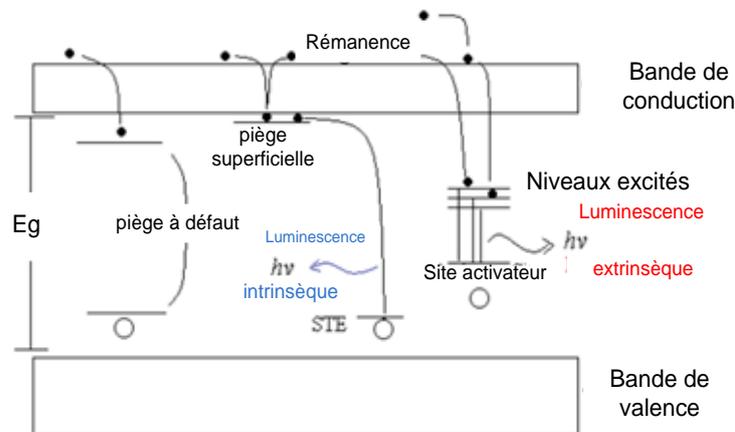


Figure 1-1: Illustration d'un diagramme de bande générique d'un scintillateur à cristal inorganique. Les électrons et les trous peuvent s'annihiler via des sites activateurs ou excitons auto-piégés (STE).

### 1.2.1. L'interaction rayonnement-matière

Pour la plage d'énergie (1 keV - 10 MeV), l'interaction d'un photon provenant du rayonnement incident avec la matière se produit principalement selon trois processus : le

phénomène photoélectrique, la diffusion Compton et la génération de paires électron-positron [1,22], comme illustré dans la figure I.2.

**L'effet photoélectrique** se produit lorsqu'un photon incident transfère toute son énergie à un électron de l'atome, généralement dans les couches K ou L. Cela provoque l'éjection de l'électron avec une énergie cinétique égale à la différence entre l'énergie du photon incident et l'énergie d'ionisation de l'électron éjecté. La lacune électronique créée peut être comblée par la capture d'un électron provenant de l'environnement ou par la réorganisation électronique des autres couches de l'atome. Dans ce dernier cas, cela peut entraîner l'émission de rayons X ou d'un électron Auger. Les rayons X émis sont généralement réabsorbés par le matériau par effet photoélectrique, avec un parcours moyen inférieur au millimètre. Si l'on néglige l'échappement de ces rayons X hors du matériau, on peut considérer que la somme des énergies cinétiques des électrons créés est égale à l'énergie du photon incident. Ce phénomène prédomine lorsque les photons ont une énergie faible (de l'ordre de quelques dizaines de keV - voir la figure I.3) et est plus prononcé pour les atomes ayant un numéro atomique élevé. En général, la probabilité d'absorption d'un photon d'énergie  $E_\gamma$  par effet photoélectrique par un atome de numéro atomique  $Z$  est approximativement proportionnelle à :

$$k_{phel} \approx \frac{Z^n}{E_\gamma^{3.5}} \quad 1-1$$

Où :  $k_{phel}$  la probabilité d'absorption d'un photon gamma d'énergie  $E_\gamma$  par effet photoélectrique,  $n$  : est compris entre 4 et 5.

Pour les photons ayant une énergie supérieure à environ 100 keV mais inférieure à quelques MeV, l'effet prédominant est **la diffusion Compton**. Cela est particulièrement vrai pour les marqueurs radioactifs utilisés en imagerie médicale.

Dans ce cas, le photon ne transfère qu'une partie de son énergie à un électron au repos. Ce transfert entraîne à la fois l'éjection de l'électron (appelé "électron de recul") et la déviation du photon d'un angle  $\theta$  par rapport à sa trajectoire initiale (d'où le terme "diffusion Compton"). Cet angle dépend de l'énergie du photon, de l'énergie transférée à l'électron et de la masse de repos de l'électron (511 keV). Le photon secondaire ainsi créé peut éventuellement être réabsorbé par le matériau selon les mêmes conditions que le photon gamma initial.

Étant donné que chaque électron de l'atome peut être éjecté, la probabilité de diffusion Compton par atome (de numéro atomique  $Z$ ) est proportionnelle à  $Z$ . De plus, cette probabilité diminue lorsque l'énergie des photons incidents augmente, et cette dépendance complexe est fonction du matériau utilisé.

En outre, à des énergies supérieures à 1,02 MeV, le processus de **création de paires électron-positron** devient énergétiquement possible (la masse au repos d'un électron et de son antiparticule étant de 0,511 MeV) et devient prédominant à des énergies très élevées (plusieurs MeV-). L'excès d'énergie est transféré sous forme d'énergie cinétique à la fois à l'électron et au positron. Le positron sera ensuite annihilé lorsqu'il rencontre un électron dans le milieu, ce qui entraîne l'émission de deux photons gamma. En pratique, la distance moyenne parcourue par le positron est suffisamment courte pour que les deux photons gamma puissent être considérés comme émis au point même de la création initiale de paires.

La section efficace d'absorption d'un photon gamma d'énergie  $E$  par un atome (de numéro atomique  $Z$ ) en raison de cet effet est proportionnelle à :

$$k_{paire} = Z^2 \ln\left(\frac{2E}{m_0c^2}\right) \quad (1-2)$$

Où  $m_0c^2$  est égal à l'énergie de masse d'un électron au repos (511 keV)

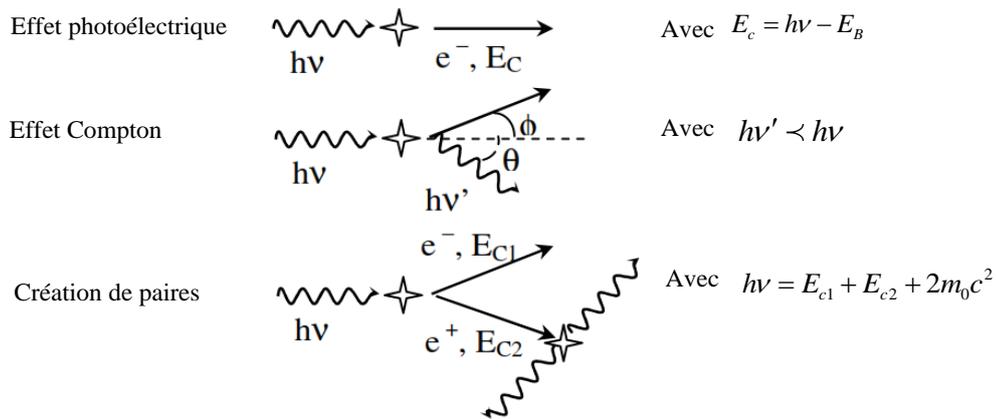


Figure 1-2 : Principe des différentes interactions entre rayonnement et matière

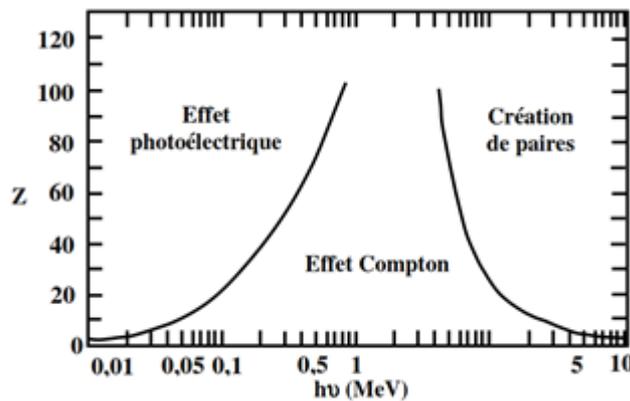


Figure 1-3 : Interaction dominante entre rayonnement et matière en fonction du numéro atomique  $Z$  de l'atome et de l'énergie  $h\nu$  du photon incident[1]

Parmi les trois effets observés, seul l'effet photoélectrique entraîne une absorption totale de l'énergie du photon incident. Cela se produit sous la forme d'une énergie cinétique transférée aux électrons primaires émis au point d'interaction ou à proximité, dans un rayon d'environ un millimètre. En revanche, les interactions par diffusion Compton ou par création de paires entraînent une perte d'une partie de l'énergie du photon incident et une dispersion de photons secondaires dans le matériau. Ces photons peuvent interagir à leur tour à une distance de plusieurs centimètres ou s'échapper du matériau. En conséquence, la capacité du détecteur à fournir des informations précises sur le lieu d'interaction et l'énergie du photon incident est compromise. C'est pourquoi il est important de maximiser la proportion de rayonnement absorbée par l'effet photoélectrique. Les dépendances des sections efficaces d'absorption atomique pour chacun des trois processus révèlent qu'un numéro atomique élevé  $Z$  (avec une dépendance en  $Z^n$ , où  $n$  se situe entre 4 et 5) est nécessaire pour atteindre cet objectif. Ainsi, l'étude du numéro atomique offre une première base de comparaison entre les scintillateurs. Dans le cas où les matériaux scintillateurs sont composés de plusieurs éléments, on utilise le concept de numéro atomique effectif  $Z_{eff}$ , défini par :

$$Z_{eff}^x = \sum_i w_i Z_i^x \quad (1-3)$$

Où  $w_i$  est la fraction massique de l'élément  $i$  avec un numéro atomique  $Z$  dans la formule chimique du matériau, et  $x$  est une valeur comprise entre 3 et 4. Cette formule est applicable pour des énergies qui favorisent l'effet photoélectrique (inférieures à 100 keV) et reste un indicateur pertinent pour comparer différents matériaux dans une plage d'énergie raisonnable.

D'autres événements peuvent altérer la fiabilité de la réponse du scintillateur aux rayonnements électromagnétiques ionisants. Parmi ceux-ci, on peut mentionner la fuite d'électrons hors du détecteur pour les matériaux de petite taille, l'échappement des rayons X secondaires produits par effet photoélectrique dans les matériaux présentant un rapport surface/volume important, ainsi que le rayonnement par bremsstrahlung dans le cas de photons d'énergie très élevée (plusieurs MeV). Les matériaux environnants peuvent également réagir aux rayonnements ionisants, en particulier si le scintillateur est encapsulé, ce qui peut entraîner la rétrodiffusion de photons gamma (d'énergie inférieure à 0,25 MeV) ou l'émission de photons X qui seront à leur tour absorbés par le scintillateur.

Après la formation des électrons et trous primaires créés par l'interaction rayonnement-matière **l'étape de multiplication** a lieu [23]. Les électrons primaires interagissent avec d'autres

électrons présents dans le milieu, leur transférant une partie de leur énergie. Cette interaction engendre la formation de paires électron-trou secondaires, où les électrons ayant une énergie suffisante peuvent à leur tour transmettre une fraction de leur énergie aux autres électrons du milieu par collision. Ce processus d'avalanche se poursuit jusqu'à ce que l'énergie des électrons ne soit plus suffisante. À ce stade, les électrons se détendent vers le bas de la bande de conduction et les trous se déplacent vers le haut de la bande de valence lors de l'étape de thermalisation. Certains éléments présents dans la bande interdite peuvent piéger une partie de ces électrons ou trous, selon leur position par rapport au niveau de Fermi. De plus, une partie de l'énergie excédentaire résultant de l'étape de multiplication peut se convertir en phonons optiques excités. Le temps caractéristique requis pour ces deux étapes est généralement de l'ordre de quelques picosecondes. Bien qu'il n'existe pas de modèle complet pour expliquer de manière satisfaisante ce processus dans l'ensemble des scintillateurs inorganiques, on peut retenir que l'énergie nécessaire pour créer une paire électron-trou après multiplication et relaxation est souvent deux à trois fois supérieure à l'énergie de la bande interdite. Dans certains matériaux tels que  $\text{CeF}_3$  ou  $\text{BaF}_2$ , cette valeur peut atteindre huit à dix fois l'énergie de la bande interdite. [24].

### 1.2.2. Transfert d'énergie

Entre l'étape de thermalisation et la formation d'une espèce susceptible de se désexciter radiativement, il peut y avoir des processus intermédiaires qui influencent les propriétés de scintillation d'un matériau spécifique.

Le processus le plus simple est le transfert direct d'énergie par transfert de charge, où un électron et un trou libres sont capturés par un centre luminescent excité, qui peut ensuite émettre de la luminescence par désexcitation radiative. Ce processus est généralement très rapide et bénéfique pour les applications nécessitant une réponse rapide du scintillateur. Le transfert d'énergie peut également se produire par résonance ou excitation radiative. De plus, des donneurs mobiles peuvent également être impliqués. L'efficacité de cette étape dépendra donc des différents processus observés.

Certains scintillateurs solides à base de monocristaux isolants ont la capacité, dans certains cas, de piéger des charges lors de l'étape de transfert d'énergie. Cette capacité de piégeage peut être inhérente au matériau lui-même (piégeage intrinsèque) ou liée à la présence d'impuretés ou d'espèces créées par irradiation (piégeage extrinsèque), et elle joue souvent un rôle crucial dans les propriétés du scintillateur. Ces différents pièges peuvent se déplacer par diffusion jusqu'à un centre luminescent, ou libérer l'énergie par activation thermique sous forme

radiative ou non radiative, tels que des porteurs de charge. On peut distinguer les pièges à électrons, les pièges à trous, ainsi que les excitons (c'est-à-dire une paire électron-trou en interaction coulombienne).

### 1.2.2.1. *Les pièges à électrons*

En 1933, Landau a proposé l'idée qu'un électron puisse se piéger spontanément dans un isolant, par la polarisation de son environnement et la déformation locale de l'arrangement ionique, ce qui est avantageux sur le plan énergétique [25]. Cette charge auto-piégée est en général très mobile. Alternativement, un électron peut être piégé par un défaut ponctuel, comme une lacune anionique dans un halogénure alcalin, qui est connue sous le nom de centre F, ou dans un halogénure de terre rare. Dans certains cas, la lacune anionique peut se trouver à proximité immédiate d'une impureté A ayant remplacé un cation, ce qui permet à l'électron piégé dans la lacune de constituer un centre F. Deux centres F voisins forment un centre M, tandis que trois centres F voisins constituent un centre R. Il existe donc une grande variété de pièges à électrons. [26].

### 1.2.2.2. *Les pièges à trous*

Tout comme les électrons, les trous peuvent être capturés soit par une polarisation du réseau, soit par un défaut ponctuel [27]. Lorsqu'un trou est auto-piégé près d'un anion d'un halogénure  $X^-$ , cela conduit à la formation d'un défaut quasi-atomique de type  $X^0$ . Généralement, ce défaut évolue vers un complexe  $X^{2-}$  par relaxation du réseau et liaison avec un halogénure voisin, ce qui est alors appelé un centre  $V_k$ . Si ce centre  $V_k$  se déplace pour occuper un site anionique, il devient un centre H. Contrairement au centre  $V_k$  qui porte une charge nette  $+e$ , un tel centre H a une charge nette égale à zéro par rapport au cristal parfait.

### 1.2.2.3. *Les excitons*

Lorsqu'un trou auto-piégé capture un électron, cela donne naissance à un exciton auto-piégé (self-trapped exciton, STE). La description la plus simple de cette espèce est donc une paire  $V_k$ -électron [26]. Cependant, l'auto-piégeage de l'exciton est le résultat de la relaxation du réseau cristallin autour de la paire électron-trou auto-piégé, et cette relaxation peut entraîner une configuration sensiblement différente de celle d'une paire  $V_k$ -électron. On distingue ainsi les excitons auto-piégés centrés et décentrés [27], en fonction du fait que l'exciton auto-piégé conserve ou non la même position que le trou auto-piégé d'origine après la relaxation du réseau cristallin. Dans certains cas, un exciton auto-piégé décentré peut adopter une configuration identique à celle d'une paire centre F-centre H. Les excitons peuvent également être piégés à proximité d'une impureté, où la présence de cette dernière est nécessaire pour provoquer une relaxation suffisante du réseau cristallin à proximité de l'exciton. Enfin, dans quelques cas,

l'exciton peut exister librement, c'est-à-dire sans auto-piégeage par interaction avec le réseau cristallin, et se déplacer ainsi librement dans le matériau jusqu'à interagir avec une autre entité.

Les excitons auto-piégés sont des entités transitoires ayant une durée de vie limitée, et leur évolution peut être radiative ou non. Cette diversité rend difficile la prédiction du comportement de ces entités lors du transfert d'énergie vers les centres luminescents, ce qui nécessite une étude expérimentale approfondie.

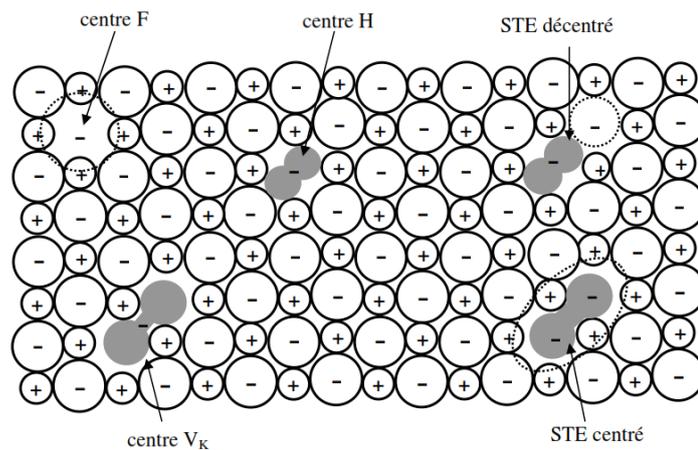


Figure 1-4 : Schéma des porteurs de charge piégés dans une maille cubique à faces centrées d'halogénure alcalin.

### 1.2.3. La luminescence

Le transfert d'énergie vers un centre luminescent entraîne son excitation, et la dernière étape de ce processus de scintillation est la désexcitation. Lorsque cette désexcitation se produit de manière radiative, on parle de luminescence. Les monocristaux isolants présentent différents types de luminescence, qui varient en termes de vitesse et d'intensité, en fonction de la nature du centre luminescent [22,28].

#### ➤ Luminescence de Cœur dans les Matériaux :

Lorsque le trou créé suite à une interaction avec un rayonnement énergétique se trouve dans un niveau de cœur, il peut recombiner avec un électron situé dans la bande de valence. Cette recombinaison radiative entraîne une émission appelée luminescence de cœur (core-valence luminescence, CVL). Cette luminescence est généralement peu intense mais très rapide, et elle est observée en particulier dans le fluorure de baryum ( $\text{BaF}_2$ ). Elle ne peut se produire que si l'écart d'énergie entre le niveau de cœur concerné et la bande de valence est inférieur à la largeur de la bande interdite. Dans le cas contraire, l'émission est réabsorbée par le matériau [29,30].

➤ *Transfert de Charge et Luminescence Coopérative :*

On observe des transitions radiatives par transfert de charge lorsqu'un électron se déplace d'un ligand vers un centre métallique (ou, plus rarement, dans l'autre sens). Ces transitions sont observées dans des complexes d'ions de transition ayant une configuration électronique  $d^0$  (comme  $\text{PbWO}_4$ ,  $\text{CdWO}_4$ ) ou  $d^{10}$  (tels que  $\text{Zn}^{2+}$ ,  $\text{Ga}^{2+}$ , etc.), ainsi que dans certains matériaux dopés par des terres rares, en particulier l' $\text{Yb}^{3+}$ . [31].

Lorsque deux ions excités interagissent et se combinent pour former une paire, la désexcitation des deux ions peut se produire simultanément, entraînant l'émission d'un photon dont l'énergie est égale à la somme des énergies des transitions radiatives de chaque ion pris individuellement. Ce phénomène de luminescence coopérative a été initialement observé dans le cas de paires d'ions  $\text{Yb}^{3+}$  dans le matériau  $\text{YbPO}_4$  [32].

➤ *Luminescence Prolongée*

Les ions ayant une configuration  $ns^2$  présentent des transitions radiatives de type  $s^1p^1-s^2$ . Cependant, la transition entre le premier niveau excité de configuration  $3P_0$  et le niveau fondamental ( $1S^0$ ) est interdite en raison de restrictions quantiques ( $\Delta J=0$  et  $\Delta S \neq 0$ ). Par conséquent, le temps de vie de cette transition est relativement long. [22].

Parmi les matériaux scintillateurs qui exhibent ce type de luminescence, il convient de mentionner notamment le BGO ( $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ ), largement utilisé en imagerie TEP (tomographie par émission de positons), ainsi que le  $\text{NaI:Tl}^+$ , qui demeure encore aujourd'hui le scintillateur le plus couramment utilisé.

➤ *Transitions Intra- et Inter-Configurationnelles dans les Lanthanides :*

Les lanthanides peuvent exhiber des transitions intra-configurationnelles  $4f^n$  lorsque le champ cristallin rompt la dégénérescence de ces niveaux d'énergie [22].

En raison de l'effet d'écran des électrons  $5s^2$  et  $5p^6$ , l'écart entre les niveaux d'énergie ainsi séparés est faible, de l'ordre de quelques centaines de  $\text{cm}^{-1}$ . Étant donné que la parité ne change pas lors de ces transitions intra-configurationnelles, elles sont interdites par symétrie et ont donc des temps de vie caractéristiques longs, de l'ordre de la milliseconde. Par conséquent, ces scintillateurs sont peu intéressants pour les applications nécessitant des transitions rapides. Cependant, certains matériaux tels que  $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S}:\text{Tb}^{3+}$  et  $\text{LaOBr:Tm}^{3+}$  sont couramment utilisés en imagerie par radiographie X [22].

On peut également observer des transitions inter-configurationnelles  $4f^{n-1}5d^1 - 4f^n$  dans les lanthanides. Ces transitions sont autorisées par symétrie et spin, ce qui entraîne des temps

de vie caractéristiques très courts. Cela constitue souvent l'intérêt des scintillateurs présentant ce type de luminescence [22].

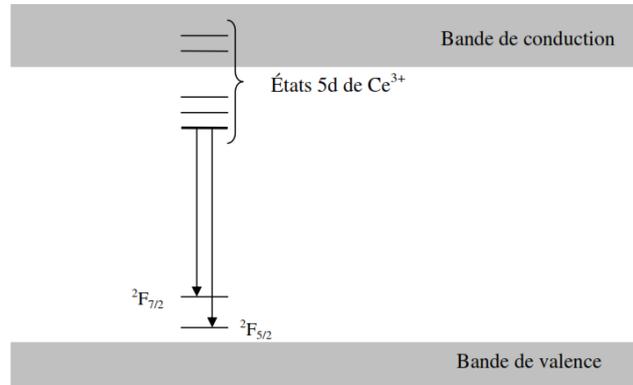


Figure 1-5 : Transition interconfigurationnelles de l'ion  $Ce^{3+}$

L'ion  $Ce^{3+}$  est l'exemple le plus simple et celui qui revêt une importance particulière dans le cadre de cette étude. Son état fondamental  $4f^1$  est constitué de deux niveaux,  $^2F_{5/2}$  et  $^2F_{7/2}$ , qui sont séparés d'environ  $2000\text{ cm}^{-1}$  en raison du couplage spin-orbite. Selon la symétrie du champ cristallin, la configuration  $5d^1$  peut donner lieu de deux à cinq niveaux, dont le niveau le plus bas en énergie sera le point de départ de la transition  $5d-4f$ . Cette transition confère à l'émission de l'ion  $Ce^{3+}$  une structure de doublet caractéristique, généralement située dans la partie ultraviolette ou violette du spectre lumineux. Le schéma représenté dans la figure I-5 illustre ces transitions dans un diagramme de bande. Le temps de vie caractéristique de cette transition se situe généralement entre 15 et 60 ns. Étant donné que la différence d'énergie entre les états 5d et 4f est supérieure à 2,5 eV [33], il est peu probable qu'une relaxation multi-phonon non radiative se produise de l'état 5d vers l'état 4f. Cependant, lorsque le niveau d'énergie le plus bas de l'état 5d se trouve au même niveau que la bande de conduction (ou à un écart énergétique faible par rapport à l'agitation thermique), l'excitation de l'électron 4f vers une orbitale 5d peut entraîner l'auto-ionisation de l'ion  $Ce^{3+}$  et la perte d'énergie d'excitation, ce qui entraîne la délocalisation de l'électron. C'est pourquoi l'on n'observe pas de luminescence dans des matériaux tels que  $Lu_2O_3 : Ce$  à température ambiante. Il est donc important, lors de l'étude de matériaux où l'ion  $Ce^{3+}$  est l'espèce luminescente, de connaître la position relative des niveaux 5d par rapport à la bande interdite de la matrice.

Enfin, il convient de mentionner la luminescence excitonique observée dans des matériaux tels que  $CsI:Tl^+$  et  $CsI:Na^+$  où les excitons auto-piégés émettent de la lumière par recombinaison, soit directement soit en présence d'un ion dopant [34].

### 1.3. Les principales caractéristiques des scintillateurs

Lors du choix d'un scintillateur, plusieurs caractéristiques sont à prendre en compte, telles que le rendement lumineux, le pouvoir d'absorption, le temps de décroissance de la fluorescence, la résolution énergétique, l'indice de réfraction, ainsi que des attributs chimiques tels que le Z effectif du matériau et sa stabilité dans l'atmosphère, et des attributs physiques tels que la densité, la taille réalisable et la stabilité mécanique. Toutes ces propriétés sont essentielles pour garantir un choix optimal du scintillateur.

#### 1.3.1. Pouvoir d'absorption :

La capacité d'absorption d'un matériau par effet photoélectrique est déterminée par la somme des sections efficaces d'absorption de chaque atome constituant le matériau :

$$\mu_{phel} = \sum_i k_{phel,i} \frac{N_A \rho w_i}{A_i} \quad (1-4)$$

Dans cette équation, l'élément  $i$  avec une masse atomique  $A_i$  et une section efficace d'absorption photoélectrique  $k_{phel,i}$  représente une fraction massique  $w_i$  du matériau qui a une densité  $\rho$  (où  $N_A$  est le nombre d'Avogadro). A une énergie donnée, le pouvoir d'absorption est donc proportionnel à :

$$\mu_{phel} \propto \rho \sum_i \frac{w_i z_i^n}{A_i} \propto \rho \sum_i w_i z_i^{n-1} \quad (1-5)$$

En prenant en compte une valeur de  $n$  se situant entre 4 et 5, et en supposant que le numéro atomique est approximativement proportionnel à la masse atomique, on peut utiliser le concept de numéro atomique effectif  $Z_{eff}$  défini précédemment pour établir la relation de proportionnalité suivante :

$$\mu_{phel} \propto \rho Z_{eff}^{n-1} \quad (1-6)$$

Pour évaluer de manière simplifiée le pouvoir d'absorption photoélectrique de différents scintillateurs, on peut comparer leur densité et leur numéro atomique effectif. Le tableau I.1 regroupe les valeurs du paramètre  $\rho Z_{eff}^4$ , de la longueur d'atténuation à 511 keV et de la probabilité d'absorption par effet photoélectrique à cette énergie pour quelques scintillateurs :

Une observation intéressante dans le tableau est que, à l'exception du YAP, les oxydes présentent un pouvoir d'absorption supérieur à celui des halogénures.

Tableau 1-1 :  $\rho Z_{eff}^4$ , longueur d'atténuation à 511 keV et probabilité d'absorption par effet photoélectrique à 511 keV pour quelques matériaux scintillateurs [35]

<i>Scintillateur</i>	$\rho Z_{eff}^4 \cdot 10^6$ (g cm <sup>-3</sup> )	<i>Longueur d'absorption à 511 keV (mm)</i>	<i>Probabilité d'absorption par effet photoélectrique (%)</i>
YAlO <sub>3</sub> : Ce <sup>3+</sup>	7	21.3	4.3
LaCl <sub>3</sub> : Ce <sup>3+</sup>	23.2	27.8	14
NaI : Tl <sup>+</sup>	24.5	29.1	17
LaBr <sub>3</sub> : Ce <sup>3+</sup>	25.6	21.3	13
CsI : Na <sup>+</sup> /CsI : Tl <sup>+</sup>	38	22.9	21
Gd <sub>2</sub> SiO <sub>5</sub> : Ce <sup>3+</sup> (GSO)	84	14.1	25
Lu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> O <sub>7</sub> : Ce <sup>3+</sup> (LPS)	103	14.1	29
CdWO <sub>4</sub>	134	11.1	29
Lu <sub>1.8</sub> Y <sub>0.2</sub> SiO <sub>5</sub> : Ce <sup>3+</sup> (LYSO)	140	11.5	34
Lu <sub>2</sub> SiO <sub>5</sub> : Ce <sup>3+</sup> (LSO)	143	11.4	32
LuAlO <sub>3</sub> : Ce <sup>3+</sup> (LuAP)	148	10.5	30
Bi <sub>4</sub> Ge <sub>3</sub> O <sub>12</sub> (BGO)	227	10.4	40

### 1.3.2. Rendement lumineux

Le rendement lumineux est l'un des paramètres clé de scintillateur, il représente l'efficacité de scintillateur à convertir l'énergie de rayonnement absorbée à des photons. Le rendement lumineux, RL, est normalement indiqué comme le nombre de photons  $N_{ph}$ , par unité d'énergie ionisante  $E_\gamma$ . Le processus de conversion des rayonnements ionisants en lumière visible est non linéaire dans les scintillateurs inorganiques en raison des variations de la production d'électrons secondaires près des couches atomiques K et L aux énergies des rayons X (c'est-à-dire inférieures à 100 keV) dans de nombreux scintillateurs inorganiques. Cette propriété a été observée et étudiée pour la première fois dans NaI: Tl dès les années 1960 [36]. Dorenbos résume la réponse non linéaire et son effet sur la résolution énergétique dans [37]. En effet, certains matériaux qui produisent des rendements lumineux exceptionnels souffrent d'une dégradation des performances en raison des fluctuations statistiques provoquées par leur réponse non linéaire inhérente (par exemple LSO: Ce, NaI: Tl, CsI: Na). D'autres matériaux scintillants inorganiques ne semblent pas souffrir de non-linéarités et peuvent avoir une résolution d'énergie intrinsèque supérieure par rapport aux scintillateurs plus brillants (par exemple BaF<sub>2</sub>, YAP: Ce) [37]. Il a été démontré que ce phénomène affecte différemment les matériaux même s'ils ont un structure chimique similaire (par exemple YAP: Ce par rapport à YAG: Ce), ce qui suggère que la proportionnalité dépend de la structure du réseau. Pourtant, des structures chimiques différents, mais réseaux similaires, ont également montré le même

comportement (par exemple LuAP: Ce vs YAP: Ce) [38,39]. La non-linéarité de la réponse du scintillateur est un domaine de recherche récent et reste en cours d'étude.

### 1.3.3. Temps de décroissance de la scintillation

Le temps de décroissance de fluorescence est une propriété importante de scintillateur, il est souvent décrit par une simple exponentielle ou une sommation de multiples désintégrations exponentielles qui correspondent généralement aux temps de transition radiative de l'activateur. Un scintillateur typique avec un seul profil de flux d'émission dominant,  $\phi(t)$ , peut être décrit par:

$$\phi(t) = \phi(0) \exp\left(\frac{-t}{\tau}\right) \quad (1-7)$$

Où  $\tau$  est la constante de temps de décroissance du centre de luminescence. Cependant, la cinétique de désintégration est souvent plus compliquée et dépend de paramètres tels que la température et le type de rayonnement incident [40]. Dans la plupart des applications, des temps de décroissance rapides sont souhaités pour permettre des taux de comptage élevés et augmenter le rapport signal sur bruit. La théorie de la luminescence stipule que les transitions dipolaires électriques sont le mode de désexcitation le plus probable avec un taux radiatif

$$R = \frac{1}{\tau} = \frac{8\pi^2}{cm_e} \frac{f.n}{\lambda^2} \left(\frac{n^2 + 2}{3}\right)^2 \quad (1-8)$$

Où  $c$  : est la vitesse de la lumière dans le vide,  $m_e$  et  $e$  sont la masse et la charge d'un électron,  $\lambda$  : est la longueur d'onde de la transition,  $n$  : est l'indice de réfraction du matériau et  $f$  : est la force de l'oscillateur de la transition [21]. D'après (I.8), on peut voir que la constante de temps de décroissance,  $\tau$ , est proportionnelle au carré de la longueur d'onde d'émission. Cela indique que les photons d'énergie plus élevée sont émis plus logement par les transitions dipolaires électriques, ce qui explique la désintégration extrêmement rapide associée à la luminescence intrinsèque des cristaux dans les UV.

Puisque la longueur d'onde d'émission peut être supposée inversement proportionnelle à l'énergie de la bande interdite,  $E_g$ , on peut montrer que le rendement lumineux  $L \propto 1/E_g$  Et  $\tau \propto 1/E_g^2$  [21].

Puisque  $L$  est souhaité d'être grand et  $\tau$  petit, il est évident que ces propriétés sont en concurrence. Afin d'obtenir un équilibre optimal entre le rendement et le temps de décroissance, Birks a proposé un chiffre du mérite,

$$M = \frac{L_s}{\tau} = \frac{\frac{1}{E_\gamma} \int_0^\infty \phi(t) dt}{\tau} = \frac{\phi(0)}{E_\gamma} \quad (1-9)$$

Le mérite de Birks est le rapport entre la puissance lumineuse totale de scintillation  $L_s$ , et  $\tau$ . Par définition,  $M$  est équivalent au rapport de l'intensité maximale de scintillation (c'est-à-dire le nombre maximal de photons de scintillation par seconde) à l'énergie ionisante incidente pour des profils de désintégration simples. Ce chiffre de mérite est essentiellement une mesure du rapport signal sur bruit.

Si un scintillateur a plusieurs composants de désintégration, il peut être décrit par une série de sommes pondérées de désintégrations exponentielles. Cependant, il est important de noter que comme la cinématique de désintégration d'ordre supérieur influence les profils de temps de scintillation, ces descriptions mathématiques peuvent être plus un ajustement de données empiriques qu'une description des mécanismes de luminescence. Par conséquent, peuvent perdre leur signification physique. C'est-à-dire que les conclusions physiques ne doivent pas être tirées uniquement des ajustements de profil de désintégration puisque les mécanismes physiques de la luminescence peuvent être obscurcis par une physique plus complexe. Par exemple, le profil de désintégration d'un scintillateur dépend fortement au rôle des pièges thermiques et de la température [40]. À une température ambiante, la rémanence est causée par des porteurs de charge qui sont libérés par excitation thermique à partir de pièges peu profonds et ils ne pourraient pas s'échapper à des températures plus basses. De même, à des températures élevées, la trempe thermique (c'est-à-dire la désintégration non radiative) augmente et modifie considérablement le profil temporel de la scintillation et réduit le rendement lumineux global, dans le tableaux I-2, on présente le temps de vie de quelque matériaux scintillateurs.

Tableau I-2 : Temps de vie de scintillation pour quelques matériaux scintillateurs [35,41–43]

Scintillateur	Temps de vie De scintillation (ns)	Remarques
YAlO <sub>3</sub> : Ce <sup>3+</sup>	30	
LaCl <sub>3</sub> : Ce <sup>3+</sup>	28	Composante lente 213 ns (30%)
NaI : Tl <sup>+</sup>	250	
LaBr <sub>3</sub> : Ce <sup>3+</sup>	16	Résolution temporelle ≈200 ps
CsI : Na <sup>+</sup>	630	

CsI :Tl <sup>+</sup>	1000	Luminescence persistante à 3 ms : 10 %
Gd <sub>2</sub> SiO <sub>5</sub> :Ce <sup>3+</sup> (GSO)	30	
Lu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> O <sub>7</sub> : Ce <sup>3+</sup> (LPS)	30	
CdWO <sub>4</sub>	5000	Luminescence persistante à 3 ms < 0.1 %
Lu <sub>1.8</sub> Y <sub>0.2</sub> SiO <sub>5</sub> :Ce <sup>3+</sup> (LYSO)	48	Résolution temporelle ≈200 ps
Lu <sub>2</sub> SiO <sub>5</sub> : Ce <sup>3+</sup> (LSO)	40	Forte luminescence persistante
LuAlO <sub>3</sub> : Ce <sup>3+</sup> (LuAP)	18	Forte luminescence persistante
Bi <sub>4</sub> Ge <sub>3</sub> O <sub>12</sub> (BGO)	300	Luminescence persistante à 3 ms < 0.005 %

### 1.3.4. Longueur d'onde d'émission

En plus de l'efficacité lumineuse du processus de scintillation d'un matériau, un rendement lumineux élevé requiert une réabsorption minimale du rayonnement émis et une bonne sensibilité du détecteur associé au scintillateur.

Afin d'éviter toute réabsorption du rayonnement par le matériau, deux conditions doivent être remplies. Tout d'abord, il est nécessaire d'avoir un décalage de Stokes suffisant pour le centre luminescent. Ensuite, la matrice doit être transparente dans la plage spectrale d'émission. [2]. Pour satisfaire cette condition, il est nécessaire que la largeur de la bande interdite du matériau soit supérieure à l'énergie du photon émis. C'est pourquoi les dopants dont les niveaux d'énergie impliqués dans la transition radiative se trouvent dans la bande interdite sont largement utilisés dans les scintillateurs. Cette caractéristique explique la prévalence des matériaux dopés dans les scintillateurs utilisés actuellement.

Les types de photo-détecteurs les plus couramment utilisés de nos jours sont les photomultiplicateurs et les photodiodes. Dans un photomultiplicateur, la sensibilité du détecteur est principalement déterminée par la photocathode. L'efficacité quantique (*quantum efficiency*, *QE*) est utilisée pour mesurer le nombre de photoélectrons émis par photon détecté. Les photocathodes les plus répandues sont composées de K<sub>2</sub> CsSb (souvent appelées photocathodes bi-alcalines) et elles peuvent atteindre une efficacité quantique allant jusqu'à 30%. Elles présentent une sensibilité spectrale allant de 160 nm à 650 nm, avec un pic maximal autour de 390 nm [44]. La plage de sensibilité des photo-détecteurs peut être restreinte par le type de fenêtre d'entrée utilisé dans les photomultiplicateurs. En revanche, les photodiodes présentent une efficacité quantique pouvant atteindre 80% pour les photodiodes à avalanche, avec une sensibilité maximale généralement dans la plage de 600 à 800 nm. [45].

Les scanners modernes, notamment pour les modalités TEP et SPECT, utilisent généralement des photomultiplicateurs. Par conséquent, les scintillateurs privilégiés sont ceux

qui émettent principalement autour de 390 nm. Ainsi, à l'exception de CsI: Tl<sup>+</sup> et CdWO<sub>4</sub>, tous les scintillateurs présentés dans le tableau précédent ont une émission maximale située entre 330 et 450 nm.

### 1.3.5. Résolution énergétique

La résolution énergétique  $R$  d'un scintillateur se réfère à sa capacité à différencier de manière distincte les sources de rayonnement en fonction de l'énergie des photons incidents. Elle est généralement déterminée par quatre facteurs contributifs. [37] :

$$R^2 = R_{np}^2 + R_{inh}^2 + R_p^2 + R_M^2 \quad (1-10)$$

La contribution  $R_{np}$  concerne la non-proportionnalité de la réponse du matériau vis-à-vis d'un photon d'énergie spécifique. Dans un matériau dit "non-linéaire", le rendement lumineux dépendra de l'énergie du photon incident. Il s'agit d'une contribution intrinsèque du matériau, qui ne peut être réduite par les conditions de synthèse ou d'utilisation. La non-proportionnalité d'un matériau est attribuable à trois effets distincts. [46,47]. Ces effets comprennent la formation en cascade de rayons X secondaires et d'électrons Auger après l'absorption photoélectrique, l'absorption de rayons  $\gamma$  de différentes énergies par effet Compton, ainsi que l'absorption de rayons  $\gamma$  provenant des électrons secondaires à faible énergie diffusés dans le matériau.

Le terme  $R_{inh}$  désigne les variations locales du rendement lumineux causées par les inhomogénéités du matériau. La géométrie du matériau joue également un rôle dans ce paramètre. [48].

Les termes  $R_p$  et  $R_M$  sont associés au détecteur et représentent respectivement la résolution de transfert et la résolution de multiplication. La résolution de transfert évalue l'efficacité du trajet du photon depuis le centre luminescent jusqu'au premier dispositif de collecte de photons à l'intérieur du photo-détecteur, tandis que la résolution de multiplication concerne le processus de multiplication des photoélectrons dans le dispositif de photo-multiplication du détecteur. En général, la contribution de  $R_p$  est négligeable, tandis que  $R_M$  suit une loi de Poisson. [49]:

$$R_M = 2.35 \sqrt{\frac{1+\nu(M)}{N_{ph}P}} \quad (1-11)$$

Le nombre moyen de photons créés dans le matériau scintillateur lors de l'absorption du photon incident, noté  $\overline{N_{ph}}$ , et la probabilité  $\bar{p}$  qu'un photon émis par un centre luminescent se transforme en un photoélectron dans un photo-détecteur sont des éléments importants. Le nombre moyen de photons créés par photon incident d'énergie  $E$  absorbé est directement lié au

rendement lumineux (LY), exprimé par la relation simple  $N_{ph} = LY \times E$ . Par conséquent, un matériau avec un rendement lumineux plus élevé présentera une résolution énergétique meilleure (c'est-à-dire plus faible en valeur), et la résolution énergétique s'améliorera aux énergies de rayonnement incident plus élevées. Ainsi, la résolution énergétique d'un scintillateur est toujours précisée en fonction de l'énergie du rayonnement incident considéré. Une référence couramment utilisée est le rayonnement  $\gamma$  de  $^{137}\text{Cs}$ , ayant une énergie de 662 keV. Le tableau I.3 présente le rendement lumineux et la résolution en énergie de quelques scintillateurs. On observe que, malgré leur meilleur pouvoir d'absorption, les oxydes présentent des performances inférieures en termes de réponse énergétique. De plus, il est remarqué que  $\text{LaCl}_3 : \text{Ce}^{3+}$  et  $\text{LaBr}_3 : \text{Ce}^{3+}$  affichent une excellente résolution énergétique, avec ce dernier ayant également un rendement lumineux très élevé.

Tableau I-3 : Rendement lumineux et résolution énergétique à 662 Kev pour quelque matériaux scintillateur

Scintillateur	Rendement lumineux ( $10^3$ ph/MeV)	Résolution énergétique à 662 keV (%)
$\text{YAlO}_3 : \text{Ce}^{3+}$	21	4.3
$\text{LaCl}_3 : \text{Ce}^{3+}$	46	3.3
$\text{NaI} : \text{Tl}^+$	41	5.6
$\text{LaBr}_3 : \text{Ce}^{3+}$	61	2.7
$\text{CsI} : \text{Na}^+$	40	7.4
$\text{CsI} : \text{Tl}^+$	66	6.6
$\text{Gd}_2\text{SiO}_5 : \text{Ce}^{3+}$ (GSO)	8	7.8
$\text{Lu}_2\text{Si}_2\text{O}_7 : \text{Ce}^{3+}$ (LPS)	30	$\approx 10$
$\text{CdWO}_4$	20	6.8
$\text{Lu}_{1.8}\text{Y}_{0.2}\text{SiO}_5 : \text{Ce}^{3+}$ (LYSO)	34	8.1
$\text{Lu}_2\text{SiO}_5 : \text{Ce}^{3+}$ (LSO)	26	7.9
$\text{LuAlO}_3 : \text{Ce}^{3+}$ (LuAP)	12	$\approx 15$
$\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (BGO)	9	9

#### 1.4. Transport de photons dans les scintillateurs

À ce stade, la discussion se tourne de mécanismes de production de photons vers le transport. Comme mentionné, la présence des activateurs sert à augmenter le rendement de scintillation mais également à décaler le spectre d'émission vers des énergies inférieures à la bande interdite où le cristal est essentiellement transparent. Bien sûr, il y a une certaine absorption optique, principalement due au chevauchement entre les spectres d'émission et d'absorption de l'activateur, voir Fig. I.6 [50]. Cependant, dans les matériaux avec des concentrations d'activateur bien conçues, l'auto-absorption de l'activateur est limitée et l'absorption résulte principalement de l'opacité optique due aux impuretés et aux défauts

ponctuels du réseau qui forment des centres de couleur. D'autres défauts optiques comprennent des fissures des espaces, (par exemple des bulles d'air) et des surfaces rugueuses qui provoquent des réflexions et des réfractions inutiles. Ces facteurs qui affectent la clarté optique sont les conséquences des techniques de croissance de cristal.

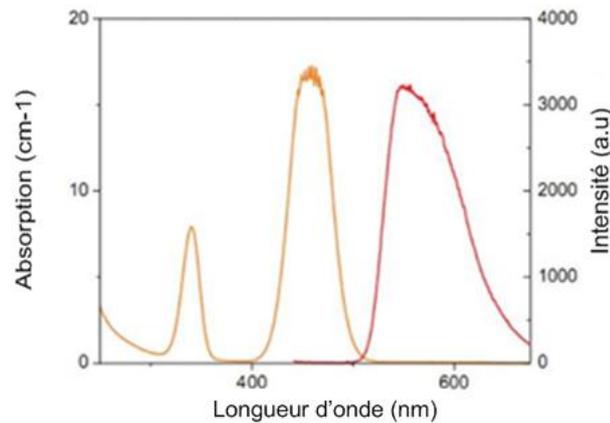


Figure 1-6 : Les propriétés d'absorption ou d'excitation (orange) et d'émission (rouge) de fibre monocristal YAG:.

D'autres facteurs sont indépendants de la volonté de développeur de cristal. Comme mentionné, l'émission d'activateur peut être absorbée par les sites activateurs eux-mêmes, « en particulier pour les cristaux à base de dopants *Ce* et *Eu* en raison du chevauchement des bandes  $f - d$  et  $d - f$  » [21]. Les efforts visant à contrôler l'atténuation de la lumière dans les scintillateurs inorganiques en variant les types et les quantités de dopants, ainsi que les traitements de surface, se sont avérés fructueux. [51].

Le transport de photons par scintillation peut être traité en utilisant la théorie de l'optique géométrique classique; c'est-à-dire que les photons de scintillation sont traités comme distribués de manière isotrope et polarisés de manière aléatoire et sont soumis à des réfractions et des réflexions. Loi de Snell,

$$n_1 \sin \theta_1 = n_0 \sin \theta_0 \quad (1-12)$$

Décrit la réfraction de la lumière aux interfaces entre deux matériaux, indiquée par des indices de réfraction différents  $n_i$ , où  $\theta$  est l'angle de la normale à l'interface des matériaux. Par définition, l'indice de réfraction d'un matériau est le rapport entre la vitesse de la lumière dans le vide et la vitesse de la lumière dans ce matériau. Étant donné que la plupart des scintillateurs

inorganiques activés ont des indices de réfraction relativement élevés, généralement supérieurs à 1,8, le traitement de surface est essentiel pour un transport efficace des photons de scintillation vers un photodétecteur [1]. Des indices de réfraction élevés posent plusieurs problèmes pour la collecte de la lumière. Premièrement, la plupart des photodétecteur ont une sorte de revêtement optique (par exemple du verre,  $n \approx 1,5$ ) Pour la protection. Ce passage d'un indice de réfraction supérieur à un indice de réfraction inférieur permet le phénomène de réflexion interne totale. L'angle critique est l'angle auquel les rayons optiques incidents sont totalement réfléchis dans le matériau et est défini par :

$$\theta_c = \arcsin \frac{n_1}{n_0} \quad (1-13)$$

Notez que la lumière doit voyager du matériau 0 au matériau 1, et  $n_0$  doit avoir un indice de réfraction plus grand pour qu'une réflexion interne totale se produise.

Les pertes de réflexion interne peuvent être importantes si elles ne sont pas atténuées. A titre d'exemple, l'angle critique pour un matériau scintillant avec  $n_0 = 1.8$  est d'environ  $56^\circ$  lors de l'interfaçage avec le verre et de  $33^\circ$  lors de l'interfaçage avec l'air. En supposant une répartition angulaire uniforme de la lumière sur l'interface, la perte due à la réflexion interne totale est  $\cos \theta_c$ , soit environ 56% et 83% respectivement. Par conséquent, un fluide d'adaptation d'indice tel que l'huile de silicium transparente hautement visqueuse ou des époxy optiques sont utilisés pour atténuer ces pertes de réflexion interne totales.

En plus de la réfraction, les photons optiques subissent des réflexions de Fresnel qui se produisent aux interfaces entre des matériaux d'indices de réfraction différents. Dans la théorie électromagnétique classique, les équations de Fresnel décrivent la fraction relative des ondes électromagnétiques polarisées  $s$  et polarisées  $p$  transmises et réfléchies aux interfaces diélectriques. L'intensité de réflexion globale,  $R$ , est donnée par la somme en quadrature des coefficients de réflexion,  $r_s$  et  $r_p$

$$R = r_s^2 + r_p^2 = \left( \frac{\sin(\theta_i - \theta_t)}{\sin(\theta_i + \theta_t)} \right)^2 + \left( \frac{\tan(\theta_i - \theta_t)}{\tan(\theta_i + \theta_t)} \right)^2 \quad (1-14)$$

Où  $\theta_i$  est l'angle d'incidence de l'onde électromagnétique, et  $\theta_t$  est l'angle de transmission qui suit la loi de Snell. Dans les matériaux à indice de réfraction élevé et en particulier à des angles d'incidence importants, mais inférieurs aux angles d'incidence critiques, les réflexions de Fresnel peuvent être importantes, comme le montre la figure.

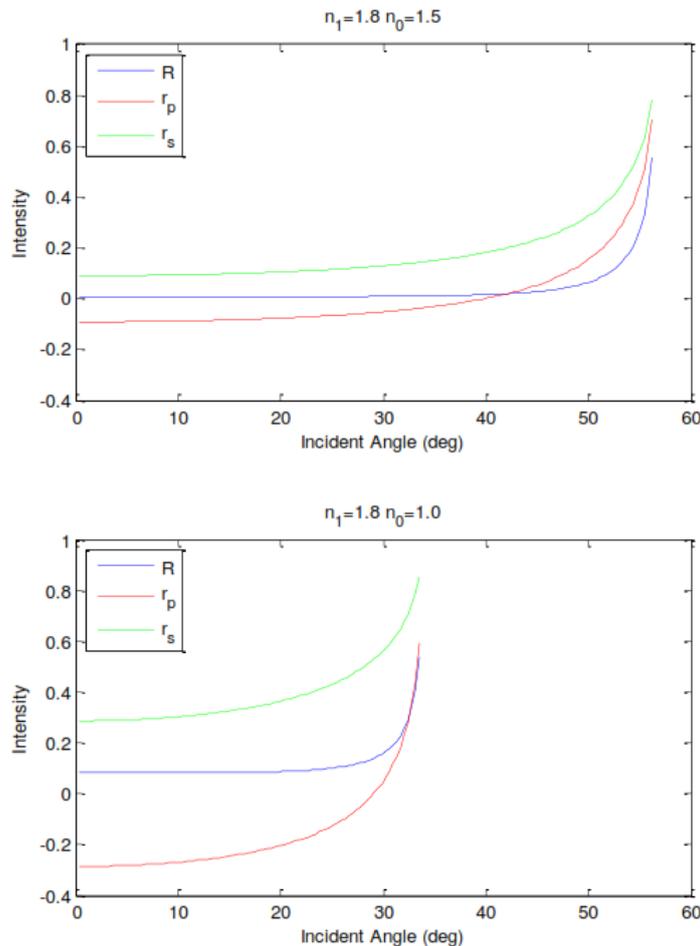


Figure 1-7 : Les réflexions de Fresnel sont représentées pour un scintillateur inorganique typique en interface avec le verre (en haut) et l'air (en bas).

Pour aider à la collecte efficace des photons qui subissent de nombreuses réflexions dans le scintillateur, les scintillateurs inorganiques commerciaux sont généralement revêtus (sur toutes les surfaces sauf une) avec un réflecteur diffus tel que Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ou MgO en poudre qui offrent des coefficients de réflectivité allant jusqu'à 0,99 [21]. Les réflecteurs diffus suivent la loi du cosinus de Lambert qui stipule que l'intensité de la réflexion radiante observée est directement proportionnelle au cosinus de l'angle entre l'observateur et la normale de la surface. Ceci est en contraste avec les réflexions spéculaires qui suivent la loi familière de la réflexion. Un peu

contre l'intuition, la réflexion diffuse permet une meilleure collection de photons de scintillation car elle rompt la symétrie qui pourrait autrement piéger les rayons optiques dans des trajectoires qui ne seraient jamais détectées (par exemple, rayons réfléchis en interne).

Une dernière considération doit être accordée aux scintillateurs à indice de réfraction élevé avec longues chemin optique. Rappelant que l'indice de réfraction est par définition une mesure de la vitesse des photons, de la lumière dans un matériau de  $n_0 = 1.8$  se déplace presque deux fois plus lentement comme dans le vide. Par conséquent, il faut près d'une nanoseconde pour que les photons parcourent 15 cm. Compte tenu du grand nombre de réflexions que rencontrent les photons de scintillation avant la collecte, il peut y avoir un retard non négligeable qui dépend de la position de création des photons.

### 1.5. Propriétés physicochimiques des scintillateurs inorganiques

Les propriétés finales du scintillateur à discuter sont sans doute, les plus importantes du point de vue de l'ingénierie et de l'application : les propriétés physiques et chimiques. Idéalement, les cristaux de scintillateur doivent être robustes (c'est-à-dire résistants aux chocs mécaniques et thermiques), durs et chimiquement inertes. Certains cristaux sont hygroscopiques et doivent être « mis en conserve » pour éviter tout contact avec l'eau de l'atmosphère. Les cristaux doivent pouvoir être cultivés dans de grandes dimensions et façonnés, broyés et polis avec des outils conventionnels sans clivage. Surtout, les cristaux doivent être denses et contenir des matériaux avec un  $Z$  élevé pour augmenter le pouvoir d'arrêt du rayonnement.

### 1.6. Les nanoscintillateurs à base des ions terres rares

La disponibilité de matériaux nanométriques a élargi les possibilités d'utilisation des scintillateurs au-delà des applications traditionnelles. Les nanomatériaux scintillateurs tels que  $Y_2O_3$ ,  $Y_3Al_5O_{12}$  (YAG),  $X_2-Y_2SiO_5$  ( $X_2$ -YSO) et  $YPO_4$  ont été dopés avec des ions terre rares (tels que  $Ce^{3+}$ ,  $Eu^{3+}$ ,  $Pr^{3+}$ ...etc.) et étudiés sous forme de mono et de poly-cristaux depuis plusieurs décennies[52,53]. Ces matériaux ont été l'objet de recherches intensives sur leurs propriétés structurales, optiques et de scintillation pour mieux comprendre les différents processus liés à leur luminescence, en raison de leur utilisation dans différents domaines tels que la détection nucléaire et l'imagerie et l'affichage. De plus, ces dernières années, de nouvelles méthodes de synthèse ont permis la production de ces matériaux à l'échelle nanométrique et à coût réduit [54,55].

Bien que les scintillateurs inorganiques monocristallins aient une efficacité de sortie élevée, ils présentent certains inconvénients tels que leur coût élevé, leur long temps de traitement, leur fragilité et la taille limitée des cristaux de haute qualité [56].

Pour pallier tous ces inconvénients, le développement de nanocristaux scintillateurs (NCs) moins coûteux peut constituer une alternative potentielle. En fait, le développement des nanoscintillateurs a été stimulé par leur forte amélioration des émissions lumineuses, qui peut être contrôlée grâce à l'optimisation de paramètres de synthèse [57]. Malgré l'abondance de la littérature sur les scintillateurs monocristallins, il existe relativement peu de rapports sur la réponse aux rayonnements des nanocristaux. Ce manque de connaissances souligne l'importance de notre étude, car nous visons à fournir des informations précieuses sur les performances des scintillateurs à base de NC. Les résultats ont le potentiel d'apporter une contribution significative au développement de détecteurs de rayonnement de nouvelle génération.

### 1.6.1. Présentation des terres rares :

Les ions de terres rares (TR) furent identifiés à la fin du 18<sup>e</sup> siècle par C.A. Arrhenius. L'Union internationale de chimie pure et appliquée (IUPAC) les classe comme comprenant les quinze éléments lanthanides situés dans le tableau périodique (allant du lanthane au lutécium, avec des numéros atomiques  $Z$  allant de 57 à 71), ainsi que le scandium ( $Z = 21$ ) et l'yttrium ( $Z = 39$ ). Ces métaux se trouvent en abondance dans la croûte terrestre, chacun en quantités variables. Cependant, leur présence diminue progressivement à mesure que leur numéro atomique augmente. [58].

Les lanthanides se distinguent par le remplissage progressif de leur couche interne 4f, qui suit le remplissage des couches externes 5s, 5p et 6s, contrairement aux autres atomes répertoriés. Ces atomes ont une configuration électronique identique pour leurs couches externes 5s<sup>2</sup> 5p<sup>6</sup> 6s<sup>2</sup>, qui sont complètes, ce qui leur confère des propriétés chimiques similaires. Leurs propriétés optiques dépendent du nombre d'électrons occupant la couche interne 4f, allant de 0 pour le lanthane à 14 pour le lutécium, ainsi que de la couche 5d pour le gadolinium et le lutécium. En règle générale, les lanthanides s'ionisent sous forme trivalente en perdant les deux électrons de leur couche 6s ainsi qu'un électron de leur couche 5d (ou un électron de leur couche 4f s'ils ne possèdent pas d'électron 5d). La configuration électronique à l'état trivalent correspond à celle du xénon à l'état fondamental. Ensuite, de 0 à 14 électrons peuvent s'ajouter à leur couche 4f.[10].

Tableau 1-4 : Structure électronique des terres rares et des ions +III correspondants[10]

Numéro atomique	Élément	Symbole	Atome	ion (+3)	r (A°) Ln <sup>3+</sup>	Électroné- gativité
57	Lanthane	La	[Xe] 5d <sup>1</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe]	1,061	1,10
58	Cérium	Ce	[Xe] 4f <sup>2</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe] 4f <sup>1</sup>	1,034	1,12
59	Praséodyme	Pr	[Xe] 4f <sup>3</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe] 4f <sup>2</sup>	1,013	1,13
60	Néodyme	Nd	[Xe] 4f <sup>4</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe] 4f <sup>3</sup>	0,998	1,14
61	Prométhium	Pm	[Xe] 4f <sup>5</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe] 4f <sup>4</sup>	0,979	1,13
62	Samarium	Sm	[Xe] 4f <sup>6</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe] 4f <sup>5</sup>	0,964	1,17
63	Europium	Eu	[Xe] 4f <sup>7</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe] 4f <sup>6</sup>	0,95	1,2
64	Gadolinium	Gd	[Xe] 4f <sup>7</sup> 5d <sup>1</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe] 4f <sup>7</sup>	0,938	1,20
65	Terbium	Tb	[Xe] 4f <sup>9</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe] 4f <sup>8</sup>	0,923	1,2
66	Dysprosium	Dy	[Xe] 4f <sup>10</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe] 4f <sup>9</sup>	0,906	1,22
67	Holmium	Ho	[Xe] 4f <sup>11</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe] 4f <sup>10</sup>	0,894	1,23
68	Erbium	Er	[Xe] 4f <sup>12</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe] 4f <sup>11</sup>	0,881	1,24
69	Thulium	Th	[Xe] 4f <sup>13</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe] 4f <sup>12</sup>	0,869	1,25
70	Ytterbium	Yb	[Xe] 4f <sup>14</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe] 4f <sup>13</sup>	0,858	1,1
71	Lutécium	Lu	[Xe] 4f <sup>14</sup> 5d <sup>1</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe] 4f <sup>14</sup>	0,848	1,27

## 1.6.2. Propriétés de la matrice Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (YAG)

### 1.6.2.1. Structure cristallographique

La matrice Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> est l'une des trois phases cristallines issues du système pseudo-binaire Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>- Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [17,59], les deux autres phases étant YAlO<sub>3</sub> et Y<sub>4</sub>Al<sub>2</sub>O<sub>9</sub> (voir diagramme binaire établi par Abell et al. [59] représenté à la figure I.8).

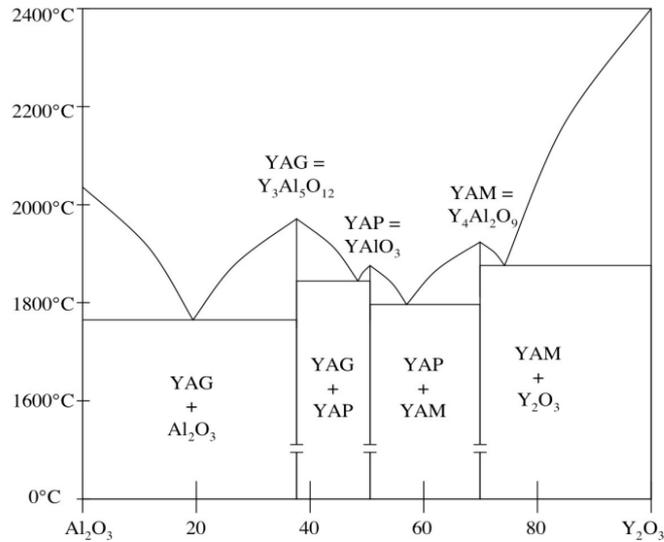


Figure 1-8 : Diagramme binaire du système  $Y_2O_3$ - $Al_2O_3$

Ces trois phases sont respectivement appelées YAG, YAP et YAM du fait de leurs structures grenat cubique (ou garent en anglais), perovskite orthorhombique et monoclinique. Les études portant sur les conditions de stabilité de ces phases dans le système  $Y_2O_3$ - $Al_2O_3$ , rapportées par Cockayne [60] et par Warshaw et Roy [61], ont montré que les phases YAG et YAM sont stables tandis que la phase YAP est métastable.

Les nombreuses études menées sur la structure du YAG, dopé [62] ou non [63–65], ou sur la famille des grenats [66–70] ont montré que cette matrice appartient au groupe d'espace  $Ia\bar{3}d O_h^{10}$  et cristallise dans un système cubique avec une maille de 12 Å de paramètre (voir tableau I.5).

Tableau I-5 : Données cristallographiques concernant la matrice YAG [10]

Formule	$Y_3Al_5O_{12}$ (YAG)
Groupe d'espace	$Ia\bar{3}d$
paramètre de maille (a)	12.0017 Å
Motif formulaire (Z)	8
Volume unitaire de la mail (V)	1732 Å <sup>3</sup>
d(Y-Y)	1.67 Å

Chaque maille cubique élémentaire contient huit motifs formulaires [65,67,71] comme schématisé à la figure I.9.

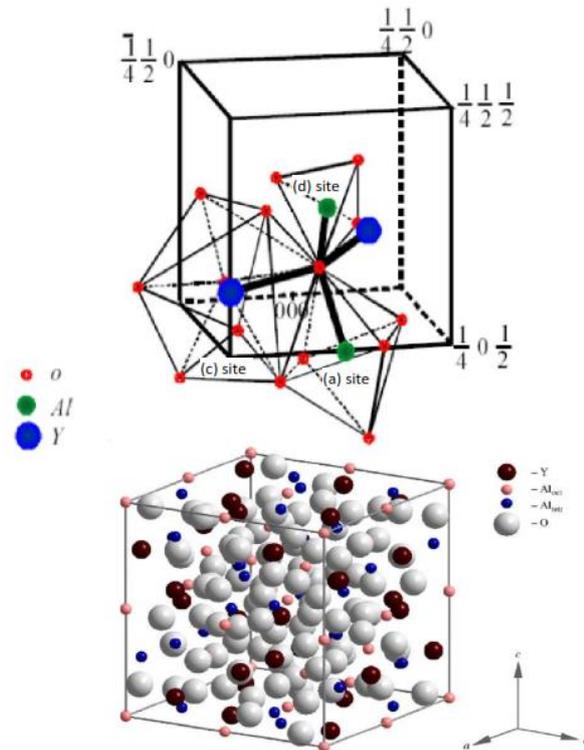


Figure 1-9: Schéma d'une maille cubique du YAG avec représentation des différents polyèdres de coordination : (a) site octaédrique, (c) site dodécaédrique et (d) site tétraédrique.

### 1.6.2.2. Propriétés physiques de la matrice YAG

La matrice grenat YAG suscite un vif intérêt en raison de ses propriétés physiques polyvalentes, ce qui la rend utilisable dans de nombreuses applications [10]. Cette matrice présente notamment une résistance mécanique considérable et conserve sa stabilité même à des températures élevées, atteignant environ 1970°C [72]. Même dans des conditions extrêmes d'irradiation, telles qu'une excitation par des sources très énergétiques, elle maintient ses caractéristiques intactes. De plus, il est possible d'incorporer des concentrations relativement élevées d'ions lanthanides dans cette matrice sans altérer sa structure ni causer une extinction de la luminescence due à l'auto-concentration [73]. Les concentrations maximales dépendent principalement de la différence de rayons ioniques entre l'ion de terre rare (dans notre cas, l'yttrium) et l'ion dopant substitué (le dopant  $\text{Ce}^{3+}$ ). L'incorporation de ces ions entraîne l'émission d'une fluorescence dont la longueur d'onde varie du domaine des ultraviolets à celui de l'infrarouge, en fonction du lanthanide utilisé [22]. Le tableau I.6 récapitule les principales caractéristiques physico-chimiques de la matrice grenat YAG.

Tableau 1-6 : Caractéristiques physiques de la matrice grenat YAG

Caractéristiques physiques	YAG	Références
Formule chimique	$Y_3Al_5O_{12}$	
Structure cristalline- groupe d'espace	Cubique-Ia3d O10h)	[74]
Paramètre de maille (Å)	12.0017	[75]
Indice de réfraction à 1µm	1.823	[76]
Densité (g/cm <sup>3</sup> )	4.56	[77]
Point de fusion (°C)	1970	[78]
Conductivité thermique (W/m/K)	14	[79]
Chaleur spécifique J/(kg · K)	590	[79]
Dilatation thermique (K <sup>-1</sup> )	7.3 10 <sup>-6</sup>	[79]

### 1.6.2.3. Propriétés optiques de l'ion terre rare $Ce^{3+}$ dans la matrice YAG

Le cérium est un élément faisant partie de la famille des lanthanides. Sa configuration électronique est la suivante :  $[Xe] 4f^1 5d^1 6s^2$ . Il convient de noter une exception à la règle de remplissage des orbitales électroniques, connue sous le nom de règle de Klechkowski. Cet élément présente des états d'oxydation de 3+ et 4+. Parmi ces deux états de valence, seuls les ions  $Ce^{3+}$  sont luminescents, grâce à leur configuration électronique  $[Xe] 4f^1$ , qui permet des transitions de 5d vers 4f. Les différentes transitions énergétiques qui se produisent dans le cas du cérium trivalent sont présentées dans la Figure I.10.

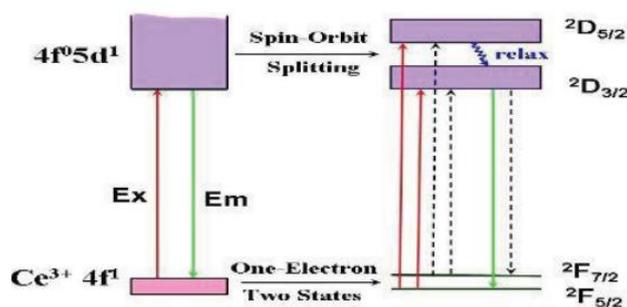


Figure 1-10: diagramme d'énergie de l'ion  $Ce^{3+}$  explicitant les différentes transitions d'excitation et de désexcitation [80]

Les deux bandes d'absorption, qui résultent de l'excitation de l'ion cérium, sont associées aux transitions du niveau fondamental vers un niveau excité, qui est lui-même divisé en deux sous-niveaux. Après des mécanismes de transitions non radiatives vers le niveau excité de plus

basse énergie, les transitions radiatives ramènent les ions vers les deux états fondamentaux. Les énergies de ces deux états fondamentaux étant très proches, les contributions liées à ces deux transitions sont également très similaires dans le spectre d'émission/excitation tel qu'indiqué par Zhao et al. [81] dans la Figure I.11. Ce spectre permet d'observer à la fois les domaines d'excitation et les domaines d'émission. Les auteurs ont identifié la bande d'émission comme étant composée de deux bandes distinctes, correspondant aux deux désexcitations radiatives vers les sous-niveaux  $2 F_{5/2}$  et  $2 F_{7/2}$ .

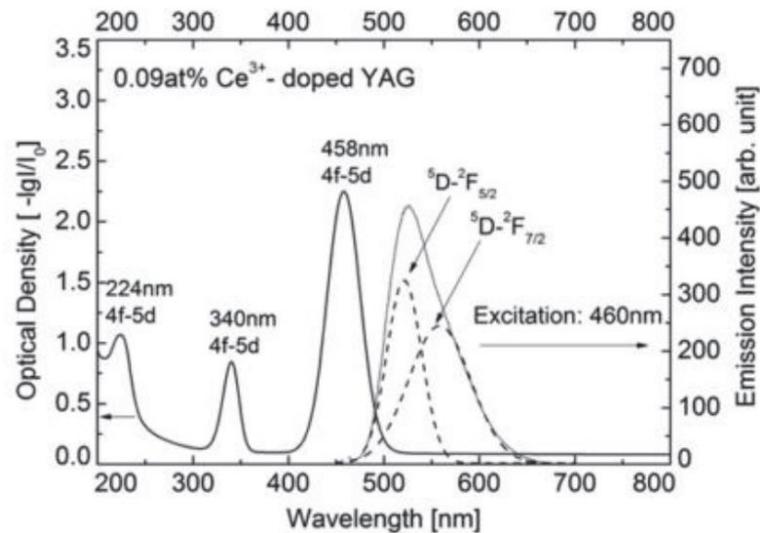


Figure 1-11 : Spectres d'émission et d'excitation caractéristiques de YAG:Ce d'après Zhao et al [81]

Les bandes d'excitation et d'émission du cérium présentent deux caractéristiques spécifiques. Tout d'abord, du point de vue de la perception humaine, les deux bandes spectrales se situent dans la gamme du visible. Le matériau absorbe la lumière au maximum d'environ 450 nm, ce qui correspond à une lumière bleue, et réémet une large bande de lumière dans la plage du vert/orange, s'étendant de 480 à 630 nm. Ensuite, on peut observer un chevauchement des domaines d'absorption et d'émission autour de 490 nm. Sur le plan technique, cette configuration entraîne une forte continuité spectrale dans l'émission de luminescence. En effet, bien que le spectre soit inhomogène, il s'étend sur une grande partie du spectre visible.

### 1.6.3. Applications des nanoscintillateurs

Les applications des nano scintillateurs en tant qu'agents thérapeutiques sont prometteuses dans le domaine de la lutte contre le cancer. En effet, l'utilisation de nano scintillateurs permet de combiner deux thérapies, la thérapie photo-dynamique et la radiothérapie, pour délivrer des doses plus élevées de rayonnements ionisants directement aux cellules cancéreuses tout en

minimisant les dommages aux tissus sains environnants. Cette approche thérapeutique peut être particulièrement bénéfique pour les cancers difficilement accessibles, tels que les cancers de la tête et du cou ou les cancers du cerveau. Les nano scintillateurs peuvent également être utilisés pour améliorer l'imagerie médicale, car leur émission de lumière peut être détectée à des niveaux très faibles, ce qui permet une détection plus précise des tissus cancéreux ou des lésions. En outre, les nano scintillateurs peuvent également être utilisés dans la détection de radionucléides pour la surveillance de la contamination radioactive ou pour la mesure de la dose de rayonnement reçue par les travailleurs exposés aux rayonnements ionisants [82].

### **1.7.Conclusion**

En conclusion, dans ce chapitre nous avons évoqué les principales propriétés des scintillateurs, leurs mécanismes de scintillation, ainsi que leurs importances dans les applications de détection de rayonnements ionisants. En ce qui concerne les nanoscintillateurs, en particulier les grenats d'yttrium et d'aluminium YAG dopés avec l'ion terre rare cérium  $Ce^{3+}$ , bien que leur découverte soit relativement récente, on suppose qu'ils pourraient offrir une alternative intéressante pour remplacer les monocristaux dans certaines applications. Nous avons examiné leurs avantages potentiels et leurs applications, et il est clair qu'ils pourraient offrir une meilleure performance et une plus grande efficacité de détection que les scintillateurs conventionnels, tout en étant plus économiques et plus faciles à produire.

## *Chapitre 2*

---

### *L'Instrumentation Nucléaire*

---

## 2.1.Introduction

Il existe de nombreux domaines de recherche en physique nucléaire qui visent principalement à mieux comprendre les lois régissant la matière nucléaire. Dans cette quête, la recherche expérimentale joue un rôle crucial. Elle implique la provocation de collisions violentes entre des noyaux pour créer une excitation et produire de nombreuses particules et fragments. L'analyse des résultats obtenus permet d'obtenir une compréhension approfondie des mécanismes des réactions nucléaires.

Afin de déterminer la nature (masse, charge) des particules produites et mesurer leurs énergies il est nécessaire d'utiliser les détecteurs appropriés, Les détecteurs qui délivrent des signaux électriques sont associées des dispositifs électroniques qui permettent la caractérisation de l'interaction rayonnement – matière et par conséquent la détermination des paramètres caractéristiques de matériau étudié.

Dans ce chapitre, nous avons présenté et étudié les différents instruments et modules électronique utilisés dans les systèmes d'instrumentation développés pour la caractérisation des nanoscintillateurs YAG : Ce<sup>3+</sup>. Les fonctions réalisées par chaque module ont été décrit dont le but de bien comprendre le fonctionnement de ces dispositifs dédiés pour le traitement du signal issu de détecteur nucléaire.

## 2.2.Instrumentation nucléaire

L'instrumentation nucléaire rassemble les techniques et méthodes mettant en œuvre des systèmes de détection de rayonnements (rayon X, Gamma, neutron, électrons, particules alpha...etc.) afin d'effectuer des mesures nucléaires (radioactivité, flux neutronique, énergie...etc.). Les composants de base d'une chaîne d'instrumentation typique sont illustrés à la Figure II.1. Les composants montrés seront discutés en détail au cours de ce chapitre, mais sont esquissés ici initialement pour montrer leurs fonctions globales. Un quantum incident interagit dans le détecteur et dépose de l'énergie qui est convertie en une impulsion de courant. La charge totale est généralement trop faible pour être détectée directement. Le courant est envoyé à un préamplificateur, interface entre le détecteur et l'électronique de traitement ultérieure. Le préamplificateur a généralement une configuration sensible à la charge, intégrant l'impulsion de courant transitoire pour produire un échelon de tension  $\Delta V$  proportionnel à  $Q$ . L'amplificateur de mise en forme convertit le signal de sortie du préamplificateur en une forme adaptée aux mesures, produisant une impulsion de tension de sortie avec une hauteur

d'impulsion  $V_{peak}$  proportionnelle à la charge déposée  $Q$ . Puisque la quantité de  $Q$  reflète l'énergie déposée par le quantum incident dans le détecteur, l'enregistrement de la distribution de hauteur d'impulsion est une méthode puissante pour fournir des informations sur la distribution d'énergie du rayonnement incident.

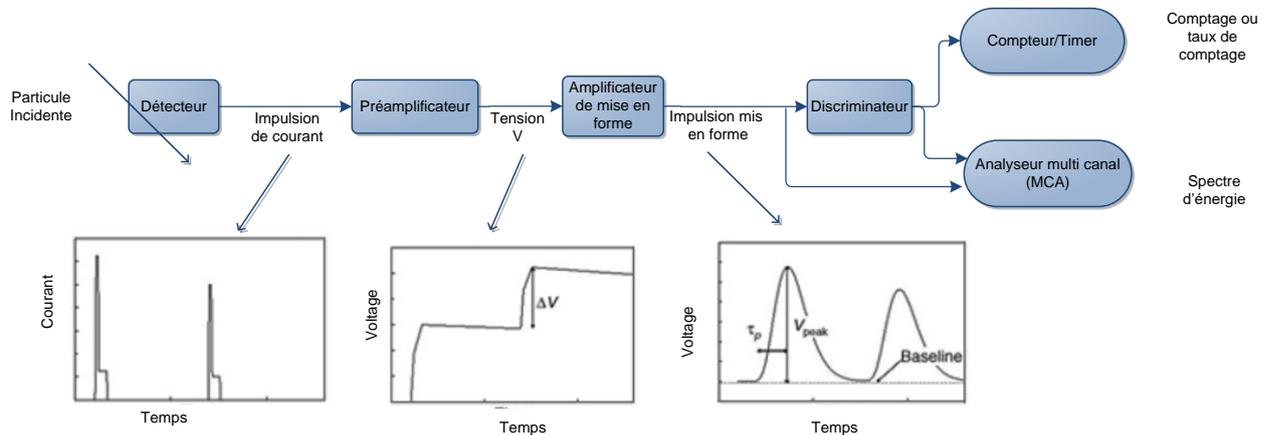


Figure 2-1 : Schéma de principe du détecteur et de l'électroniques associées.

### 2.2.1. Les détecteurs

Les détecteurs nucléaires jouent un rôle crucial dans la chaîne de détection nucléaire. Le signal généré par le détecteur est traité par deux grandes catégories de modules. La première catégorie est composée de modules logiques qui permettent de déterminer le moment d'arrivée d'une particule. En analysant les coïncidences ou les anti-coïncidences avec d'autres particules détectées, ces modules logiques contribuent à l'acceptation ou au rejet d'un événement. Ils décident si la mesure effectuée doit être archivée ou éliminée. La deuxième catégorie regroupe les modules analogiques qui permettent de mesurer l'énergie déposée par la particule dans le détecteur. Les détecteurs nucléaires se divisent principalement en trois types : les détecteurs à semi-conducteurs, les détecteurs à gaz et les détecteurs à scintillation. Un détecteur à scintillation est composé d'un matériau scintillant (cristal) couplé à un photo-détecteur.

#### 2.2.1.1. Le scintillateur

Un scintillateur est un matériau qui produit des photons suite à l'absorption d'un rayonnement ionisant. Il existe des scintillateurs organiques tels que l'anthracène, le naphthalène, le stilbène et le terphényl, qui se présentent sous forme de monocristaux ou en solution. Les scintillateurs minéraux sont utilisés sous forme de poudre, tandis que les scintillateurs

inorganiques sont utilisés sous forme de monocristaux, comme par exemple l'iodure de sodium (NaI). Les scintillateurs peuvent être utilisés à des fins d'affichage, permettant la visualisation à l'œil nu, ou à des fins de détection, où les photons émis par le matériau sont couplés à un tube photomultiplicateur (PMT) puis comptés pour estimer le flux de photons dans le scintillateur.

### 2.2.1.2. Les photomultiplicateurs

Un capteur de lumière sensible (généralement un tube photomultiplicateur (PMT), un capteur à charge couplée (CCD) ou une photodiode) est utilisé pour convertir la lumière en un signal électrique. Dans notre étude, nous avons employé des tubes photomultiplicateurs.

Les tubes photomultiplicateurs (PMT) sont des dispositifs de détection de photons qui exploitent l'effet photoélectrique et l'émission secondaire pour convertir la lumière en un signal électrique mesurable. Un PMT se compose d'une photocathode qui absorbe la lumière émise par le scintillateur et la convertit en électrons grâce à l'effet photoélectrique. Il est également doté d'une série de dynodes qui amplifient le courant électrique produit en utilisant le phénomène d'émission secondaire, ce qui permet d'obtenir un gain élevé. Les tubes photomultiplicateurs sont indispensables pour la détection des photons en raison de leur efficacité quantique élevée et de leur gain élevé.

#### ➤ Composants du tube photomultiplicateur

Le tube PMT se compose de plusieurs composants comme il est montré dans la figure II.2

- **Photocathode** : Juste après une fenêtre d'entrée mince, se trouve une photocathode, qui est fabriqué d'un matériau dans lequel les électrons de valence sont faiblement liés et ont une section efficace élevée pour convertir les photons en électrons via l'effet photoélectrique. Par exemple, du  $\text{Cs}_3\text{Sb}$  (césium-antimoine) peut être utilisé. En conséquence, la lumière créée dans le scintillateur frappe la photocathode d'un tube photomultiplicateur, libérant au plus un photoélectron par photon.
- **Dynodes** : En utilisant un potentiel de tension, ce groupe d'électrons primaires est accéléré et concentré électrostatiquement de sorte que les électrons frappent la première dynode avec suffisamment d'énergie pour libérer des électrons supplémentaires. Il existe une série (étages) de dynodes, Si le matériau de la dynode est bien choisi, l'énergie déposée par l'électron incident peut entraîner la réémission de plus d'un électron à partir de la même surface[1]. Ces électrodes fonctionnent à un potentiel toujours croissant (par exemple  $\sim 100\text{-}200$  V entre les dynodes). Au niveau de la dynode, les électrons sont

multipliés par émission secondaire. La prochaine dynode a une tension plus élevée de fait que les électrons libérés du premier accélèrent vers la suivante dynode. A chaque dynode 3-4 électrons sont libérés pour chaque électron incident, et avec 6 à 14 dynodes le gain global, ou le facteur d'amplification d'électrons, seront dans la plage d'environ  $10^4 - 10^7$  lorsqu'ils atteignent l'anode. Les tensions de fonctionnement typiques se situent dans la plage de 500 à 3000 V. Au niveau de la dynode finale, suffisamment d'électrons sont disponibles pour produire une impulsion avec une amplitude suffisante pour une amplification supplémentaire. Cette impulsion transporte des informations sur l'énergie du rayonnement incident d'origine. Le nombre de ces impulsions par unité de temps donne également des informations sur l'intensité du rayonnement.

- **Anode** : L'anode d'un tube photomultiplicateur est une électrode qui collecte les électrons secondaires multipliés dans le processus en cascade à travers des dynodes à plusieurs étages et délivre le courant d'électrons à un circuit externe. Les anodes sont soigneusement conçues pour avoir une structure optimisée pour les trajectoires d'électrons décrites précédemment. Généralement, une anode est fabriquée sous la forme d'une tige, d'une plaque ou d'une électrode à mailles. L'un des facteurs les plus importants dans la conception d'une anode est qu'une différence de potentiel adéquate peut être établie entre la dernière dynode et l'anode afin d'éviter les effets de charge d'espace et d'obtenir un courant de sortie important.

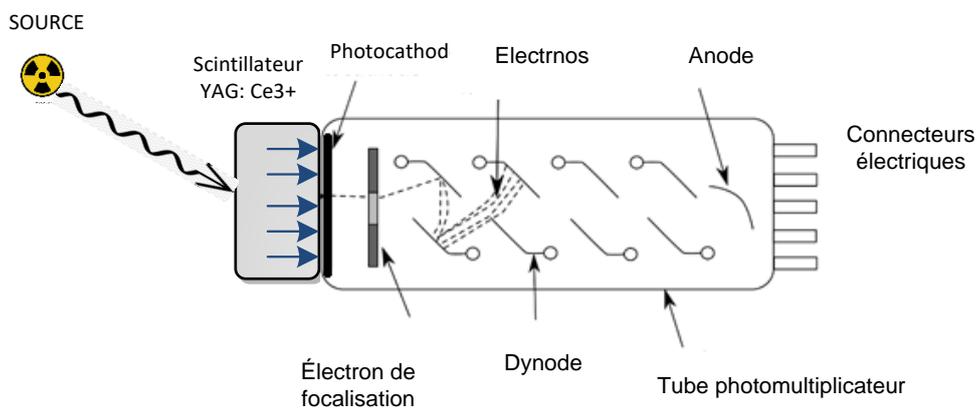


Figure 2-2 : Principe de détection des rayonnements par un détecteur à scintillation

➤ *Principe de fonctionnement*

Le rayonnement ionisant pénètre dans le scintillateur et interagit avec le matériau scintillateur, cela provoque la montée des électrons à un état excité. Pour les rayons gamma (non chargés), leur énergie est convertie en un électron énergétique via l'effet photoélectrique, la diffusion Compton ou la production de paires, pour les particules chargées, l'ionisation et l'excitation coulombienne d'atomes sont les processus dominants[1]. Les atomes excités du matériau scintillateur se désexcitent et émettent rapidement un photon dans la gamme de lumière visible (ou presque visible). La quantité est proportionnelle à l'énergie déposée par la particule ionisante. Le matériau serait fluorescent. La lumière créée dans le scintillateur frappe la photocathode d'un tube photomultiplicateur, libérant au plus un photoélectron par photon. En utilisant un potentiel de tension, ce groupe d'électrons primaires est accéléré et concentré électro-statiquement de sorte qu'ils frappent la première dynode avec suffisamment d'énergie pour libérer des électrons supplémentaires. Ces électrons secondaires sont attirés et frappent une seconde dynode libérant plus d'électrons. Ce processus se produit dans le tube photomultiplicateur. Chaque impact de dynode suivant libère d'autres électrons, et il y a donc un effet d'amplification de courant à chaque étage de dynode. Chaque étage a un potentiel plus élevé que le précédent pour fournir le champ d'accélération. Le signal primaire est multiplié et cette amplification se poursuit sur 10 à 12 étages. À la dynode finale, suffisamment d'électrons sont disponibles pour produire une impulsion mesurable par l'instrumentation.

➤ *Fabrication des photocathodes*

Les photocathodes peuvent être construites sous forme de couches opaques ou semi-transparentes. Chaque type est utilisé dans un arrangement géométrique peu différent. Une photocathode opaque est fabriquée avec une épaisseur légèrement supérieure à la profondeur de d'échappement maximale et est prise en charge par un matériau de support épais. Les photoélectrons sont collectés de la même surface où la lumière est incidente. Les photocathodes semi-transparentes ne sont généralement pas plus épaisses que la profondeur d'échappement et sont déposées sur un support transparent (souvent la fenêtre d'extrémité en verre du tube PM). La lumière passe d'abord à travers le support transparent et ensuite dans la couche de photocathode, et les photoélectrons sont collectés à partir de la surface opposée. Parce qu'ils sont plus facilement adaptables aux conceptions de tubes qui utilisent une fenêtre à extrémité

plate, les photocathodes semi-transparentes sont plus courantes dans les tubes PM conçus pour les compteurs à scintillation.

Une propriété pratique importante des photocathodes est l'uniformité, leurs épaisseurs peut être maintenue sur toute la surface de la photocathode. Les variations d'épaisseur donnent lieu à des changements correspondants dans la sensibilité de la photocathode et peuvent être une source de perte de résolution dans les compteurs à scintillation. Ce problème est particulièrement grave pour les tubes PM de grand diamètre[1].

➤ *Fabrication des dynodes*

Le rendement d'émission secondaire des dynodes peut être augmenté de manière significative grâce à l'utilisation de matériaux à affinité électronique négative (AEN) [83–87]. Le plus fructueux de ces matériaux a été le phosphure de gallium (GaP), fortement dopé à une concentration d'environ  $10^{19}$  atomes/cm<sup>3</sup> avec un matériau de type-p tel que le zinc. Le zinc crée des sites accepteurs dans le GaP. Une couche fine presque monoatomique d'un matériau électropositif tel que le césium est ensuite appliquée sur une surface. Les accepteurs à la surface attirent un électron du césium électropositif, et chaque atome de césium devient ionisé et est maintenu à la surface par des forces électrostatiques. L'effet de ce traitement de surface peut être mieux illustré par le diagramme de structure de bande illustré à la Figure II.3. A gauche est montré un diagramme de bande conventionnel pour le phosphure de gallium non dopé, qui est également représentatif des matériaux de dynode conventionnels. La série de flèches sur la gauche montre une histoire typique d'un électron qui ne s'échappe pas. L'excitation d'origine provoque l'élévation d'un certain nombre d'électrons de la bande de valence à un certain point jusqu'à la bande de conduction. Au fur et à mesure que ces électrons diffusent, ils perdent de l'énergie principalement par le biais d'interactions de phonons, de sorte qu'en une picoseconde environ, ces électrons « chauds » sont entrés en équilibre thermique avec leur environnement local et leur énergie s'est relâchée près du bas de la bande de conduction. Si cet électron va s'échapper, il doit atteindre la surface avec une énergie supérieure au potentiel qui existe du côté du vide de la surface. Une fois que l'électron tombe au bas de la bande de conduction, son énergie est normalement inférieure au potentiel de vide et est trop faible pour permettre de s'échapper. Dans ce cas, l'électron ne dispose que d'un court laps de temps pour s'échapper et il ne peut pas parcourir de grandes distances depuis son point d'origine. Par conséquent, des profondeurs d'échappement relativement faibles (seulement quelques nanomètres) sont

possibles. Cependant, l'électron aura tendance à diffuser pendant un temps sensiblement plus long (typiquement 100 ps) avant de traverser l'espace pour rejoindre la bande de valence.

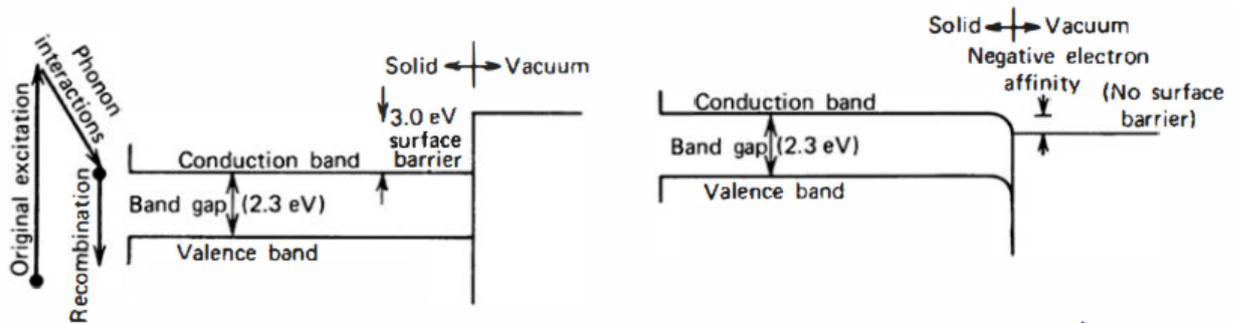


Figure 2-3 : Structure de bande près de la surface pour les semi-conducteurs conventionnels (à gauche) et les matériaux NEA (à droite).[83]

A droite est représentée la courbure de la bande créée par le remplissage des sites accepteurs en surface par la fine couche de césium. La courbure a pour effet d'amener le potentiel de vide en dessous de celui du bas de la bande de conduction à l'intérieur du matériau. Par conséquent, les électrons qui sont déjà tombés au fond de la bande de conduction ont encore suffisamment d'énergie pour s'échapper s'ils se diffusent à la surface. Étant donné que l'épaisseur de la région de bande courbée est très faible, elle peut être inférieure à un libre parcours moyen et l'électron peut s'échapper sans autre perte d'énergie dans la région de surface. L'effet net est que les électrons qui ont déjà atteint le bas de la bande de conduction sont toujours candidats à la fuite et le restent pendant une période de temps environ 100 fois plus longue que dans le cas précédent. La profondeur moyenne d'échappement aura donc tendance à être beaucoup plus importante et pourra atteindre des dizaines ou des centaines de nanomètres.

L'effet de ce changement sur le rendement électronique secondaire est profond. Le temps accru pendant lequel les électrons peuvent s'échapper augmente la probabilité d'échappement pour tout électron typique. De plus, les électrons excités créés au profond de matériau de la dynode restent des candidats pour s'échapper. Par conséquent, le rendement en électrons secondaires continuera d'augmenter avec l'augmentation de l'énergie des électrons primaires jusqu'à ce que la distance de pénétration du primaire soit très grande. Ces effets se reflètent dans la courbe de rendement d'une dynode GaP(Cs) illustrée à la figure II.4. Des rendements en électrons secondaires de 50 ou 60 sont facilement atteints avec une tension intermédiaire de 1000 V, et des valeurs beaucoup plus élevées sont en principe possibles si des tensions encore plus élevées sont autorisées par la conception du tube PM.

Un autre avantage des matériaux NEA est dans les tubes PM utilisés pour les applications demandant un temps ultrarapide. Étant donné que presque tous les électrons qui s'échappent sont déjà tombés au bas de la bande de conduction, leur énergie moyenne est inférieure et beaucoup plus uniforme que les énergies des électrons secondaires des matériaux conventionnels. Comme les variations de l'énergie initiale contribuent à l'étalement du temps dans la section du multiplicateur, une distribution plus étroite conduit à un temps moindre. De plus, le gain plus élevé par étage permet de réduire le nombre d'étages nécessaires pour un gain total donné, réduisant également l'étalement temporel global.

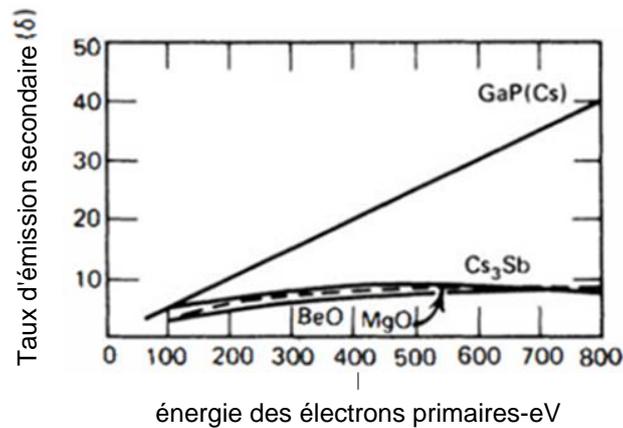


Figure 2-4 : Variation du rendement d'émission secondaire avec l'énergie primaire des électrons pour les matériaux de dynode standard (trois courbes en bas) et un matériau NEA [GaP(Cs)].[83]

➤ *Efficacité quantique*

La sensibilité des photocathodes peut être citée de plusieurs manières. Lorsqu'il est appliqué aux mesures de lumière, il est traditionnel de citer un rendement global de la photocathode en termes de courant produit par unité de flux lumineux sur sa surface (ampères par lumen).

Une unité de plus grande importance dans le comptage à scintillation est l'efficacité quantique (QE) de la photocathode. L'efficacité quantique est simplement définie comme :

$$QE = \frac{\text{nombre de photoélectrons émis}}{\text{nombre de photons incidents}} \quad 2-1$$

Le rendement quantique serait de 100 % pour une photocathode idéale, les photocathodes courantes présentent une efficacité quantique maximale de 20 à 30 %. L'efficacité quantique de n'importe quelle photocathode est une fonction de la longueur d'onde ou de l'énergie quantique de la lumière incidente, comme le montre la figure II.5. Pour estimer l'efficacité quantique effective lorsqu'elle est utilisée avec un scintillateur particulier, ces courbes doivent être moyennées sur le spectre d'émission du scintillateur. Une considération dans le choix d'une photocathode est de rechercher une efficacité quantique élevée sur la gamme de longueurs d'onde dans laquelle le spectre d'émission du scintillateur est concentré.

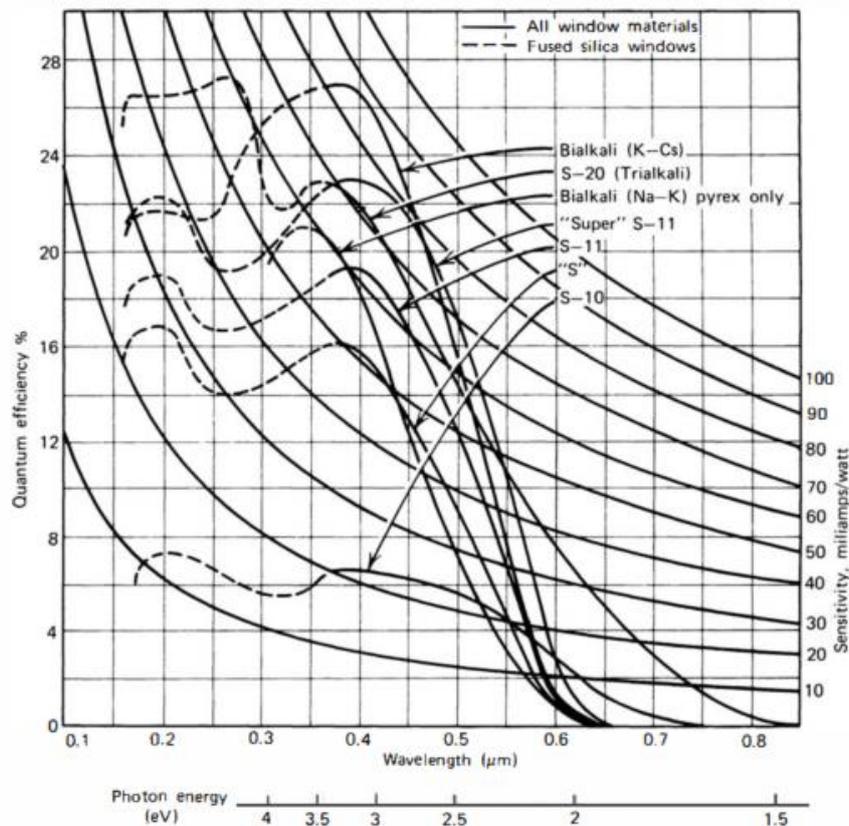


Figure 2-5 : La sensibilité spectrale d'un certain nombre de matériaux de photocathodes d'intérêt dans les tubes PM.

La sensibilité pour une longue longueur d'onde ou à faible énergie photonique est largement limitée par l'absorption réduite de la lumière par la photocathode et la faible énergie conférée au photoélectron. Pour une longueur d'onde suffisamment élevée l'électron n'a plus suffisamment d'énergie pour s'échapper de la surface de la photocathode et la réponse tombe à zéro. La réponse à l'autre extrémité d'échelle n'est normalement pas fonction de la photocathode elle-même mais plutôt de la fenêtre par laquelle la lumière doit entrer pour atteindre la couche

photoémissive. Pour le verre normal, la coupure sera à une longueur d'onde de l'ordre de 350 nm, ce qui est généralement suffisant pour la plupart des matériaux scintillateur. Pour certains scintillateurs (par exemple, les gaz rares), cependant, une partie importante du spectre d'émission peut être dans la région ultraviolette avec une longueur d'onde plus courte. Pour une telles applications, des tubes PM spéciaux avec des fenêtres d'entrée en silice fondue ou en quartz peuvent être utilisés pour étendre la sensibilité à des longueurs d'onde aussi courtes (environ 160 nm).

Une mesure alternative de l'efficacité quantique est parfois citée pour les tubes PM utilisés dans le comptage à scintillation. Le nombre de photoélectrons produits par unité d'énergie perdue dans un scintillateur monté en couplage optique étroit avec la photocathode est proportionnel au rendement quantique moyenné sur le spectre d'émission du scintillateur. En raison de l'utilisation répandue de l'iodure de sodium activé par le thallium comme cristal de scintillation, la norme de notation est le nombre de photoélectrons produits à partir d'une photocathode donnée par keV de perte d'énergie par les électrons rapides dans un cristal NaI (Tl) à partir duquel presque toute la lumière est captée. Pour les photocathodes avec une efficacité quantique maximale de 25 à 30 %, les mesures donnent environ 8 à 10 photoélectrons par keV de perte d'énergie[88,89].

Les matériaux actuellement disponibles pour les photocathodes comprennent un matériau multi-alkalin basé sur le composé  $\text{Na}_2\text{KSb}$ . Préparé par activation avec une petite quantité de césium, ce matériau a été le premier qui montre une efficacité quantique relativement élevée allant jusqu'à 30% dans la région bleue de spectre. Une formulation ultérieure à base de  $\text{K}_2\text{CsSb}$  activé avec l'oxygène et du césium porte le nom de bi-alkali et peut montrer une efficacité encore plus élevée dans le bleu. De plus, l'émission thermo-ionique des photocathodes bi-alkalis a tendance d'être nettement inférieure à celle des matériaux multi-alkalis, ce qui entraîne des taux de bruit spontané plus faibles des tubes avec cette photocathode.

Des développements récents ont produit des photocathodes bi-alkalis avec des efficacités quantiques améliorées. Les valeurs citées sont aussi élevées de 45 % à la longueur d'onde de 350 nm de réponse maximale. Certaines techniques qui ont été testées pour améliorer l'efficacité quantique incluent l'utilisation de matériaux ultra-purs[90].

➤ *Propriétés temporelle de l'impulsion*

Étant donné que le temps requis pour la photoémission dans la photocathode ou l'émission secondaire des dynodes est très court (0,1 ns ou moins), les caractéristiques temporelles du tube PM sont déterminées exclusivement par les trajectoires des électrons. Le temps de transit des électrons d'un tube PM est défini comme la différence de temps moyenne entre l'arrivée d'un photon à la photocathode et la collecte de l'électron suivant à l'anode. Dans les tubes PM de différentes conceptions, les temps de transit des électrons vont de 20 à 80 ns. Dans la plupart des applications temporelle, le temps de transit lui-même n'est pas d'une importance primordiale car s'il était toujours une constante, il n'introduirait qu'un retard fixe dans le signal dérivé. Plutôt, l'évolution dans le temps de transit est une quantité plus importante car il détermine la largeur temporelle de l'impulsion d'électrons arrivant à l'anode. La réponse temporelle d'un tube PM typique est illustrée à la Figure II.6.

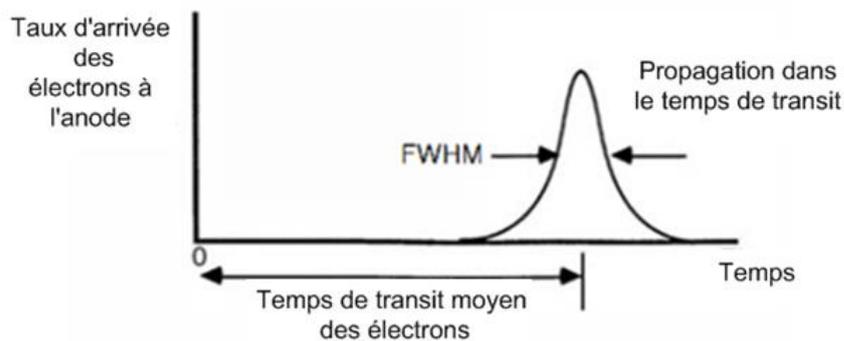


Figure 2-6 : La réponse d'un tube PM à une courte impulsion de lumière sur la photocathode.

La région entre la photocathode et la première dynode est critique pour déterminer les propriétés temporelles. Pour permettre une collecte uniforme, cette distance est maintenue assez grande par rapport aux distances inter-dynodes (voir Figure II.7). La différence de chemins entre un photoélectron quittant le centre de la photocathode et un photoélectron au bord de la photocathode est souvent un facteur dominant dans l'écart observé dans le temps de transit. La photocathode est souvent incurvée pour minimiser le temps de transit étalé sur son diamètre. Il est pratique d'avoir une surface extérieure plate pour le montage du scintillateur, de sorte qu'une fenêtre d'extrémité avec une forme piano-concave est fréquemment utilisée avec la photocathode déposée sur la surface incurvée intérieure. Une deuxième source d'étalement du temps de transit provient de la répartition en vitesses initiales des photoélectrons sortant de la

photocathode. Cet effet peut être minimisé en utilisant une grande différence de tension entre la photocathode et la première dynode.

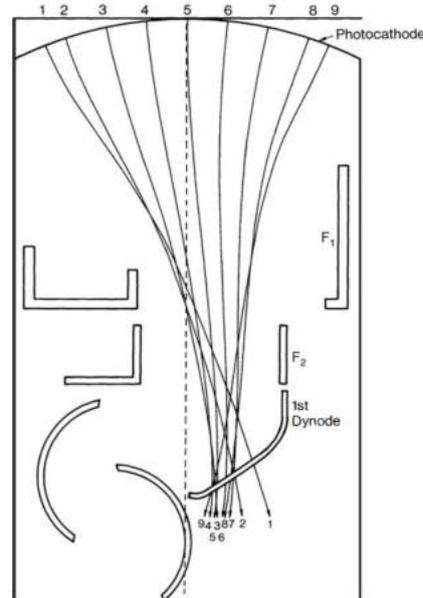
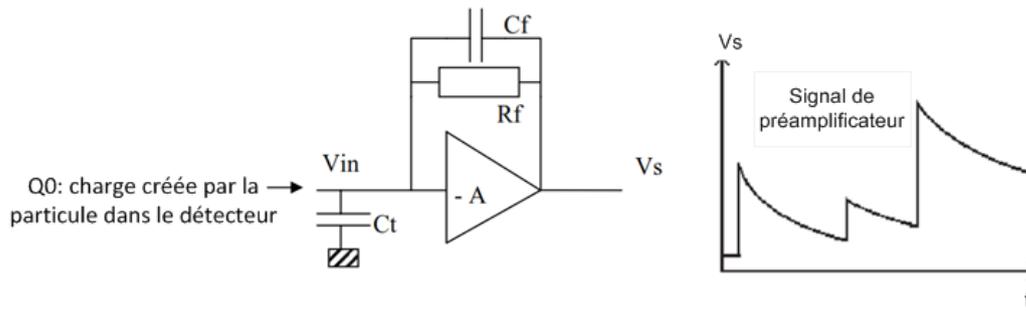


Figure 2-7: Trajectoires générées par ordinateur d'électrons accélérés de la photocathode à la première dynode dans un tube PM.

### 2.2.2. Le préamplificateur de charge

Le préamplificateur de charge joue un rôle essentiel dans la conversion de la grandeur mesurée, qui correspond à la charge générée par l'ionisation dans le détecteur, en un signal électrique. Les performances du premier étage de la chaîne (qui comprend plusieurs étages en cascade) revêtent une importance cruciale pour déterminer les performances globales de la chaîne de mesure. Le préamplificateur de charge utilisé dans la chaîne de mesure spectroscopique se distingue par sa capacité à convertir les faibles signaux de charge en signaux de tension amplifiés, tout en minimisant les pertes de charge et en offrant des performances optimales en termes de linéarité, de bande passante et de rapport signal/bruit. Il est donc indispensable d'étudier le bruit intrinsèque du préamplificateur. On représente généralement le préamplificateur de charge tel qu'illustré dans la figure II.8.



- Avec:
- \*la capacité Cf de contre réaction
  - \*Ct regroupe la capacité de détecteur et celle des connexions
  - \*La résistance de contre réaction Rf

Figure 2-8 : Représentation de préamplificateur de charge

Dans le préamplificateur de charge, la charge du détecteur est collectée sur le condensateur de rétroaction  $C_f$  sur une période de temps, intégrant efficacement l'impulsion de courant du détecteur. Au fur et à mesure que la charge est collectée, la tension sur le condensateur de rétroaction augmente, produisant un changement progressif de tension. La tension de sortie est alors proportionnelle à la charge totale intégrée tant que la constante de temps  $R_f C_f$  est suffisamment supérieure à la durée de l'impulsion d'entrée. Autrement dit, la hauteur d'impulsion de sortie est proportionnelle à l'énergie déposée par une interaction de rayonnement. Comme le montre la figure II.8, la forme de l'impulsion de sortie est caractérisée par un temps de montée court déterminé par les caractéristiques de collecte de charge du détecteur et un temps de décroissance long ( $\sim 100\mu s$ ).

### 2.2.1.1. Caractéristiques du préamplificateur :

- Calcul de la réponse temporelle :

$$V_s(t) = \frac{Q_0}{C_f + \frac{C_t}{A}} \quad 2-2$$

Avec A, gain de l'amplificateur en boucle ouverte. Dans le cas où le gain de la chaîne directe est très grand, on peut estimer  $V_s$  ainsi :

$$V_s(t) \cong -\frac{Q_0}{C_f} \quad 2-3$$

- Impédance d'entrée :

$$Z_{in} = \frac{V_{in}}{I_{in}} \cong \frac{Z_f}{A} \quad 2-4$$

Avec  $Z_f(w) = \frac{1}{jC_f.w}$ , ou  $w$  est la pulsation (en  $\text{rad}^{-1}$ )

La contre-réaction réalisée par le préamplificateur présente plusieurs avantages, notamment :

- 1) Réduction de l'impédance d'entrée ( $Z_{in}$ ) aux hautes fréquences.
- 2) Stabilisation du gain, en le rendant indépendant de la capacité du détecteur et des capacités des câbles de connexion.

Cela est réalisé en ajoutant une résistance  $R_f$ , qui assure le retour à l'équilibre du signal de sortie du préamplificateur de charge (P.A.C).

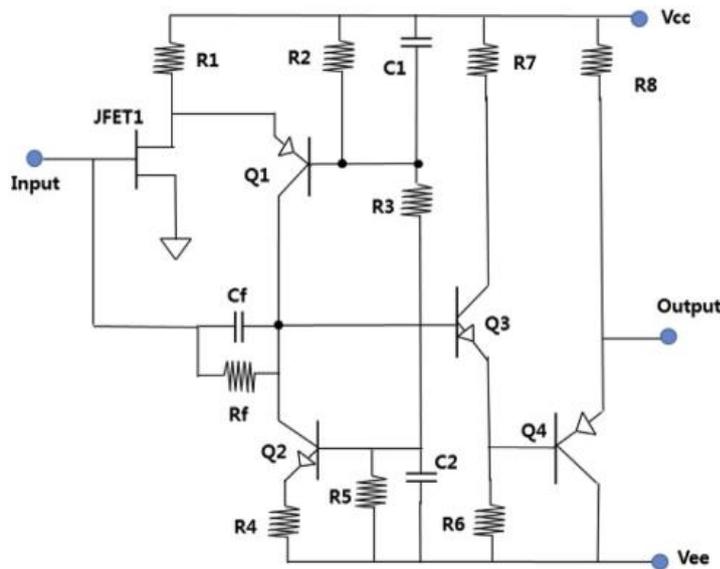


Figure 2-9 : Schéma électrique d'un préamplificateur de charge, montrant en quelques détails l'étage d'entrée (J-FET + BJT en cascode) et le réseau de rétroaction.

➤ Expression du signal, en sortie du préamplificateur (domaine des fréquences)

$$V_s(p) = -\frac{Q_0}{p} * \frac{R_f}{1+R_f.C_f.p} \quad 2-5$$

$Q_0$  : Charge créée par la particule dans le détecteur.

$$P = J.w$$

L'expression de la tension de sortie du préamplificateur, en fonction du temps devient :

$$V_s(t) = -\frac{Q_0}{C_f} * e^{-\frac{t}{\tau}} \quad 2-6$$

Avec  $\tau = R_f.C_f$

### 2.2.1.2. Bilan en bruit

➤ *Les différentes sources de bruit*

Les sources de bruit sont variées, mais trois d'entre elles méritent une attention particulière :

- **Le bruit en 1/f.**
- **Le bruit de grenaille**, également connu sous le nom de bruit Johnson ou bruit Schottky.
- **Le bruit thermique.**

#### A. Le bruit en 1/f :

L'origine de ce bruit est peu connue, mais il est présent dans tous les dispositifs actifs à semi-conducteurs ainsi que dans les résistances à couche carbone. Dans le cas des transistors, ce bruit est attribué aux phénomènes de génération et de recombinaison de charges de surface.

Deux points essentiels sont à retenir :

-Sa densité spectrale de puissance est d'autant plus importante que la fréquence est faible (d'où son appellation en 1/f).

-La distribution des amplitudes n'est pas gaussienne.

Son expression :

$$\bar{V}^2 = Af \cdot \frac{df}{f} \quad 2-7$$

Avec  $Af$  : Constante de bruit en fonction 1/f, et  $df$  :intervalle de fréquence considéré

#### B. Le bruit de grenaille :

Les fluctuations statistiques du nombre de porteurs qui traversent une barrière de potentiel sont responsables de ce bruit. On peut représenter ces variations du nombre de charges dans le temps de la manière suivante :

$$\bar{i}^2 = 2e\bar{I}df \quad 2-8$$

Avec  $\bar{I}$  courant moyen circulant dans le circuit.

#### C. Le bruit thermique

Le bruit thermique trouve son origine dans l'agitation thermique des électrons libres présents dans un milieu dissipatif. Cette agitation conduit à la formation d'agrégats de porteurs de charge aux extrémités de ce milieu dissipatif. La valeur moyenne de la différence de potentiel aux bornes du milieu dissipatif est nulle. En revanche, le carré de cette différence de potentiel ne l'est pas.

On l'exprime sous la forme :

$$\bar{v}^2 = 4 \cdot k \cdot T \cdot R \cdot df \quad 2-9$$

Avec  $T$  : Température absolue en Kelvin

$K$  : Constante de Boltzman

$df$  : Intervalle de fréquence considéré

Une fois que les sources du bruit ont été identifiées, il est important de caractériser le bruit généré par les différents composants du montage.

✓ Les courants de fuite et le bruit de grenaille associés

Même si la grille d'un transistor MOS (Metal Oxyde Semiconductor) est isolée du substrat par une couche d'oxyde mince, il existe néanmoins des courants de fuite. De même, le détecteur Silicium est une jonction P-N polarisée en inverse, dans laquelle passe tout de même un courant de fuite.

Soit  $I_{sf}$  ( $s_f$  pour somme des fuites) la somme de ces deux courants, on a donc :

$$\overline{isf}^2 = 2eI_{sf}df \quad 2-10$$

Puisque l'impédance de la capacité de contre-réaction  $cf$  est  $Z_{cf} = 1/(jcf \cdot \omega)$ , on a donc :

$$v\bar{s} f^2 = \frac{2eI_{sdf}}{\omega^2 c f^2} \quad , \text{ soit} \quad v\bar{s} f^2 = \frac{eI_{sdf}}{\pi \omega^2 c f^2} \quad 2-11$$

✓ Le transistor FET, sa résistance de polarisation  $R_d$  et le bruit thermique

Le transistor F.E.T, premier élément du préamplificateur de charges, présente une conductance notée  $G_{FET}$ .

La densité spectrale de courant de bruit est :

$$\bar{i}^2 = \frac{4 \cdot k \cdot T}{R_{FET}} \cdot df \quad 2-12$$

avec  $R_{FET} = 1/G_{FET}$

On a donc la densité spectrale de tension de bruit :

$$\bar{v}^2 = \frac{4 \cdot k \cdot T}{R_{FET} \cdot gm^2} \cdot df \quad 2-13$$

Avec  $gm$  : transconductance du transistor FET

La résistance RFET vaut environ  $3/(2.gm)$ , on a par conséquent :

$$\bar{v}^2 = \frac{2}{3} \frac{4.k.T}{gm} . df \quad , \text{ soit } \quad \bar{v}^2 = \frac{2}{3} \frac{2.k.T}{\pi gm} . d\omega \quad 2-14$$

La densité spectrale de tension du bruit thermique liée à la résistance (désignée par  $R_d$ ) connectée au drain du transistor F.E.T peut être calculée. Il convient de noter qu'il ne s'agit pas de la résistance drain-source du canal (qui a été considérée précédemment), mais de la résistance de polarisation du FET.

$$\bar{v}^2 = \frac{2.k.T}{\pi.R_d gm^2} . d\omega \quad 2-15$$

Avec  $R_d$  : Résistance de drain

✓ La résistance de contre réaction et le bruit thermique

On peut exprimer le bruit thermique qui se produit dans la résistance de contre-réaction lorsque le préamplificateur revient à l'équilibre de la manière suivante :

$$\bar{v}^2 = \frac{2.k.T}{\pi R_f} . df \quad 2-16$$

✓ Le canal du transistor FET et le bruit en 1/f

On exprime le bruit en 1/f, qui est associé aux processus de création et de recombinaison de charges de surface dans le canal du FET, de la manière suivante :

$$\bar{V}^2 = \frac{A_f}{\omega} d\omega \quad 2-17$$

Avec  $A_f$ : Coefficient de bruit en 1/f

### 2.2.1.3. Combinaison des sources de bruit

Une fois que les différentes sources de bruit ont été identifiées et que leur contribution a été exprimée, il est important de comprendre leur impact global à la sortie du préamplificateur de charge. En raison de la nature des sources de bruit, elles peuvent être considérées comme indépendantes. Ainsi, pour calculer le bruit total à la sortie du préamplificateur, il est nécessaire d'effectuer une somme quadratique des contributions en bruit (notées  $b_i$ ) de chacune de ces sources.

$$B_{total} = \sqrt{\sum_i b_i^2} \quad 2-18$$

Pour optimiser les performances en termes de bruit du préamplificateur de charge, il est essentiel de minimiser ce terme. En effet, le rôle du préamplificateur est de convertir la grandeur à mesurer (la charge) en un signal électrique qui présente un rapport "signal sur bruit" aussi élevé que possible.

**2.2.1.4. Sorties de préamplificateur de charge**

➤ *La voie temps*

Elle devrait faciliter l'identification d'une particule. Il est envisageable de décrire ses capacités en précisant deux critères :

- Le seuil de détection indique la plus petite interaction particule-détecteur discernable,
- Le délai mort est la durée minimale entre les occurrences de deux particules successives pour que la deuxième soit repérée.

Une voie temporelle performante présente un seuil de détection et un temp mort les plus bas envisageables. Le signal binaire (détection oui/non), engendré par la voie temporelle, est transmis à un système de décision appelé déclencheur. Ce dernier, en prenant en compte la concordance de cette détection avec d'autres provenant d'autres voies temporelles associées à d'autres détecteurs, décide de la conservation ou non de cet événement.

Le schéma II.10 illustre les divers éléments composant la voie temporelle. Chaque détecteur est lié à une voie temporelle. En revanche, l'unité locale de déclenchement combine la sortie logique du discriminateur de plusieurs voies temporelles pour décider d'accepter ou de rejeter cet événement. Le signal du préamplificateur de charge est simultanément transmis à la voie temporelle et à la voie d'énergie.

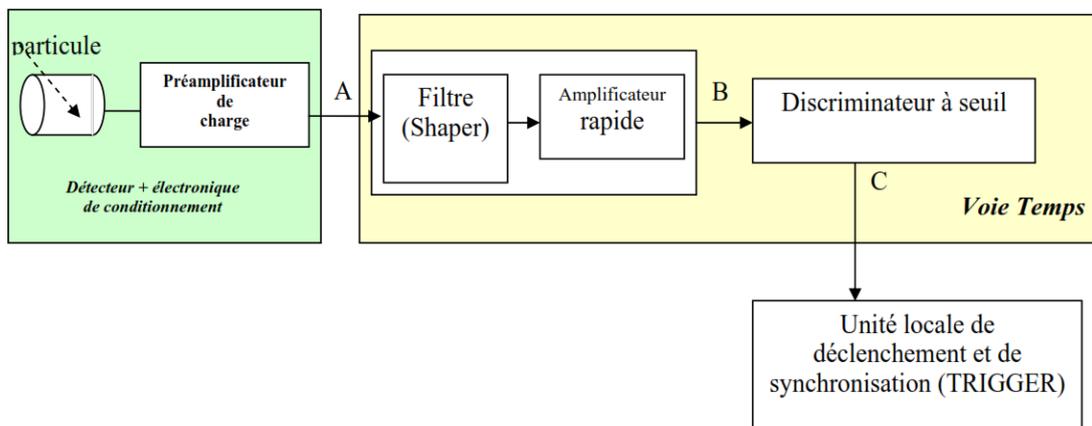


Figure 2-10 : Schéma de principe de la voie temps.

➤ *La voie Énergie*

Sa fonction consiste à mesurer avec la plus grande précision possible la charge engendrée par la particule dans le détecteur. Le signal fourni par le préamplificateur renferme cette information, mais il est également soumis à des perturbations dues au bruit. De plus, il est établi que le système de réinitialisation du préamplificateur décroît de manière exponentielle ( $e^{-t/\tau}$ , Avec  $\tau = RC$ ) en fonction du temps.

Le bilan de bruit du préamplificateur révèle que le courant de bruit de la résistance  $R_f$  de contre-réaction augmente lorsque sa valeur diminue. Afin d'obtenir des performances satisfaisantes en termes de bruit, une valeur élevée de résistance (plusieurs Mohms) pour  $R_f$  est préférable. Cependant, cela entraîne une longue constante de temps  $\tau_f$ , généralement autour de 100  $\mu$ s, pour une résistance  $R_f$  de 20 Mohms et une capacité  $C_f$  de 4.7 pF (pico Farad).

Cependant, une constante de temps élevée ( $\tau_f$ ) entraîne une occupation temporelle prolongée du signal associée à une particule. Si le signal provenant du préamplificateur était amplifié sans être limité dans le temps, le taux de comptage admissible serait très faible. Dans le cas d'un taux de comptage de  $N$  impulsions par seconde, la durée moyenne entre deux occurrences d'arrivée de particules est notée  $T = 1/N$ .

Le signal de sortie du préamplificateur peut être exprimé de la manière suivante :

$$V_s(NT) = \frac{Q}{C_f} + \frac{Q}{C_f} e^{-T/\tau_f} + \frac{Q}{C_f} e^{-2T/\tau_f} + \dots + \frac{Q}{C_f} e^{-NT/\tau_f} \quad 2-19$$

L'expression utilisée correspond d'une suite géométrique, ce qui permet d'écrire :

$$V_s(NT) = \frac{Q}{C_f} \times \frac{1 - \left( e^{-\frac{T}{\tau_f}} \right)^{N+1}}{1 - e^{-\frac{T}{\tau_f}}} \quad 2-20$$

La figure II.11 illustre le niveau de sortie du préamplificateur de charge (à un facteur près de  $Q/C_f$ ). Ce niveau varie en fonction du nombre de particules arrivant successivement. Initialement, le préamplificateur est inactif, puis une à une, les particules arrivent, allant de 1 à N. Chaque arrivée de particule est séparée par une durée moyenne notée T. Pour les premières particules arrivées, on observe une période de transition au niveau de sortie du préamplificateur, suivie d'une période stable.

La figure II.11 dépeint également l'impact du rapport  $T/\tau_f$  sur le signal de sortie du préamplificateur. Plus la constante de temps de rétablissement à l'équilibre ( $\tau_f$ ) est significativement supérieure à T, plus la période de transition au niveau de sortie du préamplificateur est prolongée.

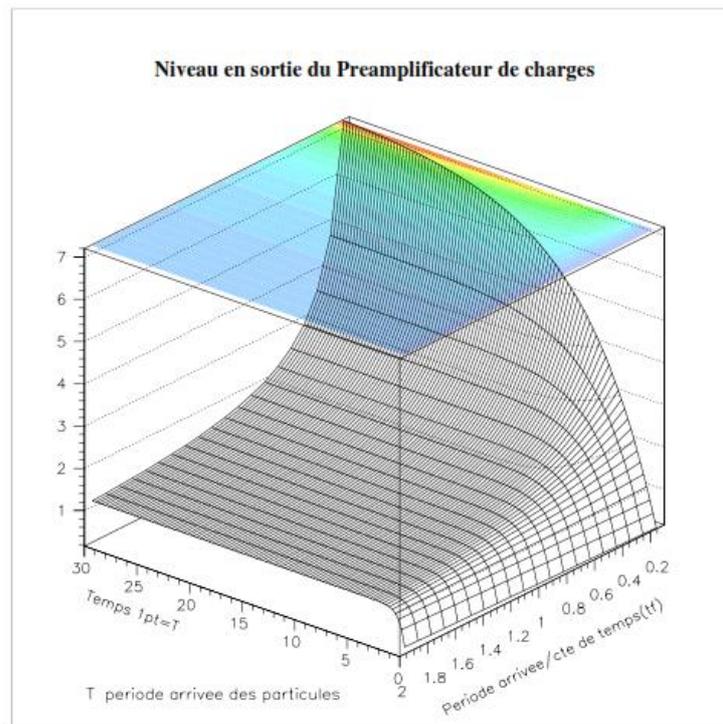


Figure 2-11 : Dynamique temporelle du niveau de sortie du préamplificateur de charge lors de l'arrivée séquentielle de 30 particules de charge égale

Nous avons précédemment constaté que l'expression de la tension de sortie du préamplificateur de charge en réponse à une charge  $Q_0$  est équivalente à  $(-Q_0/C_f)$ . Le choix de la valeur de  $C_f$  est donc déterminé par la dynamique de tension en sortie du préamplificateur et par la charge maximale à détecter. Il a été démontré que plus la résistance  $R_f$  de contre-réaction est élevée, moins son courant de bruit est significatif. Par conséquent, la constante de

temps  $\tau_f$  est généralement déterminée par les spécifications relatives au bruit et à la charge maximale à détecter.

Il n'est pas possible d'amplifier directement la tension de sortie du préamplificateur de charge. En effet, à une fréquence moyenne d'arrivée des particules et une constante de temps données, une composante continue (régime permanent) est observée en sortie du préamplificateur. Ainsi, la voie énergie doit réduire la durée d'occupation temporelle du signal lié à une particule avant de procéder à l'amplification. C'est le rôle du filtre de mise en forme (également appelé "shaper") qui élimine la composante continue de la sortie du préamplificateur de charge.

### 2.2.3. L'amplificateur de mise en forme

#### 2.2.3.1. Introduction :

L'amplificateur est l'un des composants les plus importants dans le système de traitement d'impulsions pour les applications de comptage, de timing ou de spectroscopie (énergie). Normalement, c'est l'amplificateur qui fournit les commandes de mise en forme d'impulsion nécessaires pour optimiser les performances de la chaîne d'instrumentation. La figure II.12 montre l'utilisation typique de l'amplificateur dans les différentes catégories de traitement d'impulsions.

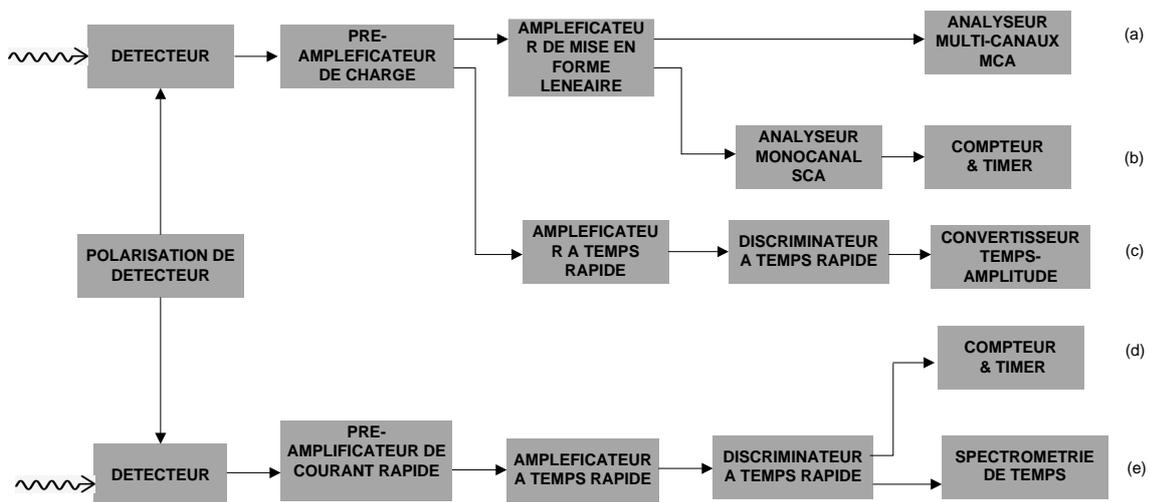


Figure 2-12 : Applications typiques des amplificateurs dans le traitement des impulsions

Lorsqu' une bonne résolution énergétique est demandé en spectroscopie, un amplificateur linéaire de mise en forme d'impulsion est la bonne solution, comme illustré sur la figure II.12 (a). Un tels systèmes peuvent acquérir des spectres à des débits de données allant

jusqu'à 7 000 comptes/s sans perte de résolution, ou jusqu'à 86 000 comptes/s avec un certain compromis sur la résolution.

L'amplificateur de mise en forme d'impulsions linéaire peut également être utilisé dans des applications de comptage d'impulsions simples, comme illustré sur figure II.12 (b). Les largeurs d'impulsion de sortie de l'amplificateur vont de 3 à 70  $\mu$ s, en fonction de la constante de temps de mise en forme sélectionnée. Cette largeur définit le temps mort pour le comptage des événements lors de l'utilisation : d'un SCA (Single Channel Analysis), d'un compteur et d'un timer. Pour maintenir les pertes de temps mort  $< 10\%$ , le taux de comptage est généralement limité à  $< 33\ 000$  comptes/s pour les largeurs d'impulsion de 3  $\mu$ s et proportionnellement inférieur si des largeurs d'impulsion plus longues ont été sélectionnées.

Certains détecteurs, tels que les tubes photomultiplicateurs, produisent un signal de sortie suffisamment important pour que le système illustré sur la figure 12 (d) puisse être utilisé pour compter à une vitesse beaucoup plus élevée. L'impulsion à la sortie de l'amplificateur à temps rapide (fast timing amplifier) a généralement une largeur inférieure à 20 ns. Par conséquent, des taux de comptage maximum dépassant quelques MHz sont réalisables sans subir plus de 10 % de pertes de temps mort.

Les deux schémas courants de dérivation des signaux pour obtenir une résolution temporelle à l'ordre de nanoseconde et inférieure à la nanoseconde sont décrits sur les figures II.12 (c) et (e). Les deux applications utilisent un amplificateur à temps rapide (Fast timing Amplifier). La figure II.12 (e) illustre la solution préférée pour la détection d'un photon unique ou d'un ion unique avec des tubes photomultiplicateurs, des multiplicateurs d'électrons, des plaques à microcanaux (MPC), des PMT à plaques à microcanaux et des channeltrons. Bien que le schéma présenté sur la figure II.12 (c) puisse également être utilisé avec ces mêmes types de détecteurs, il est plus couramment utilisé avec des détecteurs à semi-conducteurs haute résolution, car de tels détecteurs nécessitent un préamplificateur à faible bruit et sensible à la charge.

### 2.2.3.2. Principales fonctions réalisés par de l'amplificateur de mise en forme

L'amplificateur linéaire de mise en forme de l'impulsion remplit plusieurs fonctions clés. Son premier objectif est d'amplifier l'amplitude de l'impulsion de sortie du préamplificateur de la plage des millivolts à la plage de 0,1 à 10 V. Cela permet de réaliser des mesures précises de l'amplitude de l'impulsion par le convertisseur analogique-numérique. De plus, l'amplificateur

réalise la fonction de mise en forme des impulsions pour optimiser la résolution en énergie, et minimiser le risque de chevauchement entre les impulsions successives. La plupart des amplificateurs intègrent également un restaurateur de ligne de base pour garantir que la ligne de base entre les impulsions est maintenue de potentiel de terre malgré les changements de taux de comptage ou de température.

### ➤ Mise en forme d'impulsion CR-RC

En générale, dans les circuits électriques, le terme mise en forme RC fait référence à l'utilisation de réseaux passifs résistance-condensateur pour effectuer une modification souhaitée de la forme d'impulsion. Lorsqu'on parle de mise en forme des impulsions nucléaires, il est classique de faire une distinction sémantique entre les réseaux différenciateurs ou CR d'une part, et les réseaux intégrateurs ou RC d'autre part. Les deux opérations peuvent également être considérées comme un filtrage dans le domaine fréquentiel, et l'un des objectifs de la mise en forme des impulsions est d'améliorer le rapport signal/bruit en limitant la réponse de l'instrumentation aux plages de fréquences dans lesquelles le signal a des composants utiles, tandis que réduire autant que possible la transmission des composantes fréquentielles des différentes sources de bruit. Dans les deux types de réseau, la constante de temps donnée par le produit de la résistance et de la capacité joue un rôle critique. Dans l'analyse qui suit, nous représentons cette constante de temps par  $\tau$  où  $\tau = RC$

Le concept le plus simple pour la mise en forme d'impulsions est l'utilisation d'un filtre passe-haut CR suivi d'un filtre passe-bas RC. Bien que ce filtre rudimentaire est rarement utilisé, il englobe les concepts de base essentiels pour comprendre les réseaux de filtres actifs qui sont plus performants.

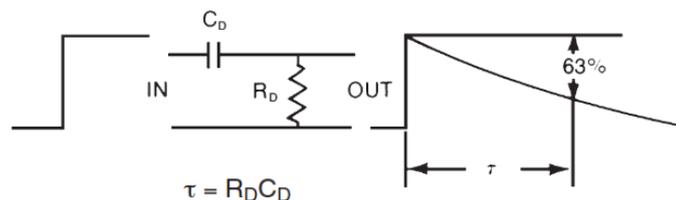


Figure 2-13 :Montage Différentiateur CR

Dans l'amplificateur, le signal issu du préamplificateur passe d'abord à travers un filtre passe-haut CR (Figure II.13). Cela améliore le rapport signal/bruit en atténuant les basses fréquences, qui contiennent beaucoup de bruit et très peu de signal utile. Le temps de décroissance de l'impulsion est également réduit par ce filtre. Après le signal passe à travers un

filtre passe-bas RC (Figure II.14). Cela améliore le rapport signal sur bruit en atténuant les hautes fréquences, qui contiennent un bruit excessif. Le temps de montée de l'impulsion est étendu par ce filtre.

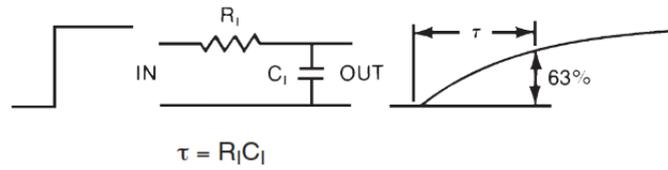


Figure 2-14 : Montage Intégrateur RC

Un amplificateur opérationnel à gain unitaire idéal (avec une impédance d'entrée infinie et une impédance de sortie nulle) sépare les deux réseaux individuels pour l'isolation d'impédance de sorte qu'aucun réseau n'influence le fonctionnement de l'autre. La solution générale de la réponse du réseau combiné à un échelon de tension d'amplitude  $E$  à  $t = 0$  est :

$$E_{out} = \frac{E\tau_d}{\tau_d - \tau_i} (e^{-t/\tau_d} - e^{-t/\tau_i}) \tag{2-21}$$

Où  $\tau_i$  et  $\tau_d$  sont des constantes de temps des réseaux de différenciation et d'intégration, respectivement. Les graphes de cette réponse pour plusieurs combinaisons différentes de  $\tau_i$  et  $\tau_d$  sont illustrés à la figure II.15.

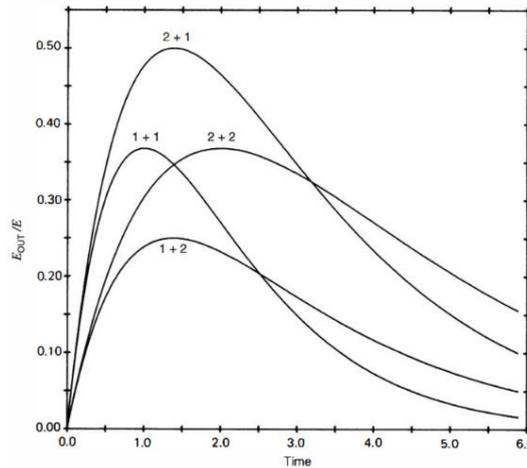


Figure 2-15 : La réponse d'un réseau CR-RC à une entrée de tension échelon d'amplitude  $E$

Dans les amplificateurs d'impulsions nucléaires, la mise en forme CR-RC est le plus souvent effectuée en utilisant des constantes de temps de différenciation et d'intégration égales. Dans ce cas, l'équation 2.21 devient indéterminée, et une solution particulière pour ce cas est :

$$E_{out} = E \frac{t}{\tau} e^{-t/\tau} \tag{2-22}$$

La figure II.16 montre l'effet de la combinaison des filtres passe-haut et passe-bas dans un amplificateur pour produire une impulsion de sortie unipolaire. Typiquement, la constante de temps de différenciation  $\tau_d = C_d R_d$ , est égale à la constante de temps d'intégration  $\tau_i = C_i R_i$ , c'est-à-dire  $\tau_d = \tau_i = \tau$ .

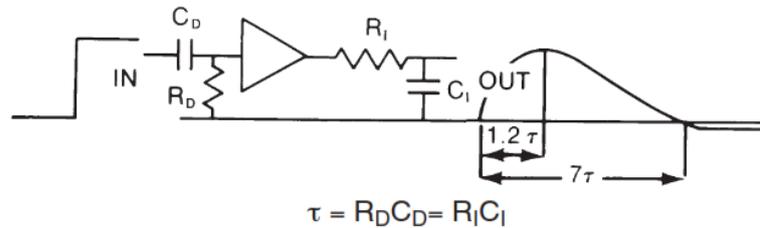


Figure 2-16 : Circuit CR-RC de mise en forme des impulsions

Dans ce cas, l'impulsion de sortie augmente lentement et atteint son amplitude maximale à  $1,2\tau$ . Le retour à la ligne de base est principalement contrôlé par la constante de temps du différenciateur  $C_d R_d$ . Dans ce circuit simple, il n'y a pas de compensation pour le long temps de décroissance du préamplificateur. Par conséquent, il y a un petit sous-dépassement d'amplitude commençant à environ  $7\tau$ . Ce sous-dépassement revient à la ligne de base avec la constante de temps longue fournie par l'impulsion de sortie du préamplificateur.

Cette technique de mise en forme d'impulsions peut être utilisée avec des détecteurs à scintillation. Pour cette application, la constante de temps de mise en forme doit être choisie au moins égale à trois fois la constante de temps de décroissance du scintillateur pour assurer une intégration complète du signal du scintillateur. L'inconvénient de l'utilisation de la mise en forme CR-RC avec des détecteurs à scintillation est la durée d'impulsion qui est plus longue par rapport à celle de la mise en forme par ligne à retard unique. La figure II.17 montre l'impulsion de sortie bipolaire obtenue lorsqu'un deuxième différenciateur est inséré juste avant la sortie de l'amplificateur. La double différenciation produit une impulsion bipolaire avec une surface égale dans ses lobes positifs et négatifs.

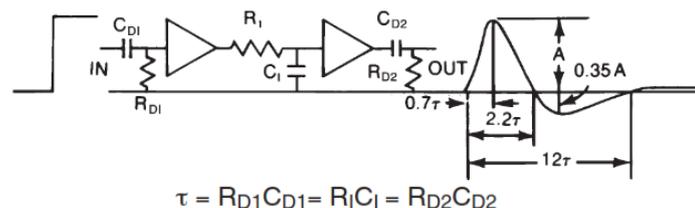


Figure 2-17 : Mise en forme CR-RC-CR à double différenciation.

➤ **Annulation Pole-Zéro**

Jusqu'à présent, nos études sur la mise en forme des impulsions ont supposé que l'impulsion d'entrée du préamplificateur consiste en une fonction échelon de tension  $E$ . Bien que la décroissance de l'impulsion du préamplificateur soit généralement longue, elle n'est pas infinie et la décroissance finie aura un effet mesurable sur la réponse des réseaux discutés ci-dessus. Par exemple, un différenciateur-intégrateur CR-RC de base ne produit pas une réponse strictement unipolaire si l'impulsion d'entrée a une décroissance finie comme illustrée à la figure II.18. Au lieu de cela, il y aura un léger passage à zéro ou sous-dépassement de l'impulsion, qui revient ensuite à zéro avec un temps caractéristique du temps de décroissance du préamplificateur. Comme les préamplificateurs ont des décroissances longues (de l'ordre de 50  $\mu$ s), le sous-dépassement persiste pendant une période relativement longue. Si une autre impulsion arrive pendant ce laps de temps, elle se superposera au sous-dépassement et une erreur sera induite dans son amplitude. Le problème est particulièrement grave pour les signaux qui ont une large impulsion qui surcharge l'amplificateur et conduisent par conséquent à des sous-dépassements consécutifs assez importants.

La réponse de circuit différenciateur CR pour une entrée échelon d'amplitude  $E$  est donnée par :

$$E_{out} = E e^{-t/\tau} \quad 2-23$$

Cela montre que la sortie était une simple décroissance exponentielle sans sous-dépassement. La fonction de transfert de ce réseau est :

$$H_1(S) = \frac{\tau_1 s}{1 + \tau_1 s} \quad 2-24$$

où  $\tau_1$  est la constante de temps et  $s$  est la variable de Laplace. Supposons que cette sortie soit maintenant passé par un deuxième différenciateur CR avec une constante de temps  $\tau_2$  et une fonction de transfert

$$H_2(S) = \frac{\tau_2 s}{1 + \tau_2 s} \quad 2-25$$

La fonction de transfert globale est alors :

$$H(s) = \frac{\tau_1 \tau_2 s^2}{(1 + s\tau_1)(1 + s\tau_2)} \quad 2-26$$

Donc il convertit une entrée échelon en une impulsion de sortie avec sous-dépassement. Les pôles du dénominateur de la fonction de transfert garantissent qu'une simple décroissance exponentielle ne sera pas possible.

L'analyse ci-dessus représente l'origine du sous-dépassement si une impulsion de préamplificateur avec une décroissance finie est présentée à un différenciateur CR dans un réseau de mise en forme.

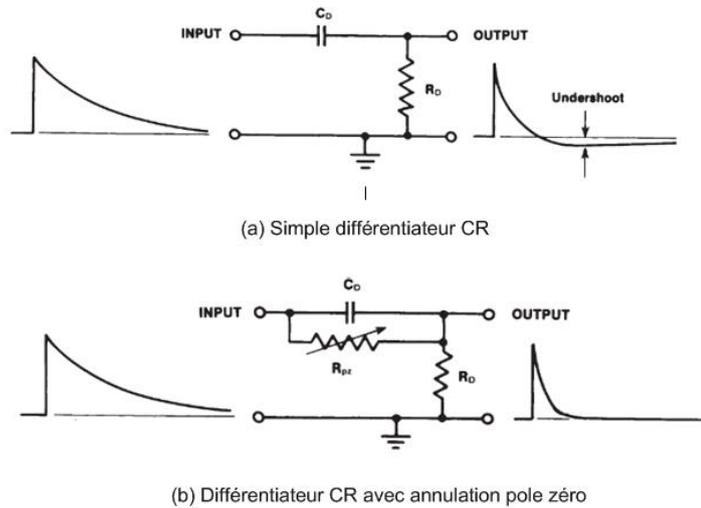


Figure 2-18 : Avantage de l'annulation pôle-zéro

Le terme annulation pôle zéro [91] décrit une technique dans laquelle le réseau est modifié comme sur la figure II.18 pour restaurer à nouveau la sortie exponentielle simple sans sous-dépassement. Une résistance  $R_{pz}$  est ajoutée en parallèle avec le condensateur du réseau CR, ce qui entraîne une fonction de transfert modifiée de la forme :

$$H(s) = \frac{\tau_1(1+sR_{pz}C_1)s\tau_2}{(1+s\tau_2)(R_{pz}C_1s\tau_1+R_{pz}C_1+\tau_1)} \tag{2-27}$$

Si la valeur de  $R_{pz}$  est maintenant choisie de telle sorte que :

$$R_{pz} = \frac{\tau_2}{C_1}$$

La fonction de transfert se réduit à :

$$H(S) = \frac{s}{s+k} \tag{2-28}$$

Avec :  $k = \frac{\tau_1+\tau_2}{\tau_1\tau_2}$

Ce résultat, avec un pôle unique au dénominateur, garantit que le réseau produit à nouveau une décroissance exponentielle simple pour une entrée échelon.

➤ **Amplificateur de gain**

L'amplificateur opérationnel (ampli op) est l'un des circuits les plus utilisés, on le trouve sous la forme d'un circuit intégré contenant l'équivalent d'une centaine de composants. Un simple symbole de circuit illustré à la Figure II.19 représente ce circuit complexe. Le circuit est traité comme une boîte dans laquelle on peut mettre des signaux et à partir de laquelle le signal souhaité est extrait.

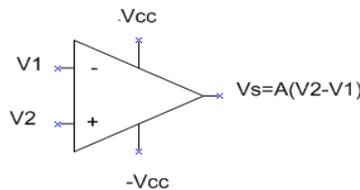


Figure 2-19 : Synoptique d'un Amplificateur opérationnel

L'amplificateur idéal a un gain infini, une impédance d'entrée infinie et une bande passante infinie. La polarisation est généralement fournie par une alimentation symétrique bipolaire, souvent à +15/-15V. Toutes les tensions et tous les signaux sont mesurés par rapport à la masse de circuit. Le gain en circuit ouvert de nombreux types dépasse facilement 100 000. L'impédances d'entrée de l'ampli op d'entrée FET dépasser  $10^{13}$  ohms. Les courants d'entrée varient d'environ 250 nA pour le type LM318 à 70 pA pour le LM356. Un courant d'entrée d'environ 10 pA se trouve au CA3040. Aujourd'hui, la limite est d'environ 5 fA ( $10^{-15}$ ) pour le LMC 6041 (National Semiconductor).

**Amplificateur non inverseur.** : L'amplificateur non inverseur est représenté sur la figure II.20

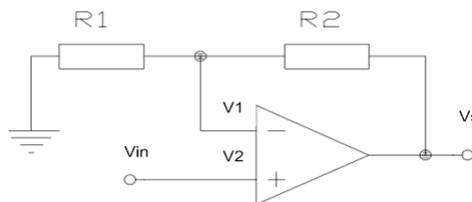


Figure 2-20 : Circuit de l'amplificateur non inverseur

Le gain est donné par :  $G = 1 + \frac{R_2}{R_1}$

**Amplificateur inverseur** : L'amplificateur inverseur dont le gain est  $-R_f/R_i$  est représenté sur la Figure II.21.

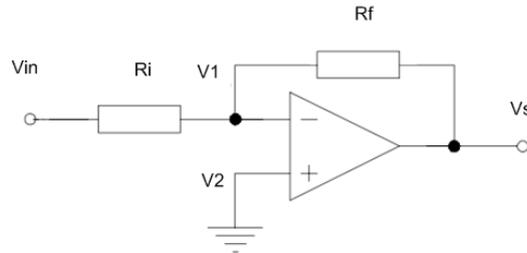


Figure 2-21 : Amplificateur Inverseur

La rétroaction négative rend les propriétés du circuit indépendantes des paramètres de l'amplificateur. Le gain dépend entièrement des propriétés des résistances.

➤ **Restaurateur de la ligne de base**

Pour assurer une bonne résolution en énergie et une stabilité de la position des pics à des taux de comptage élevés, les amplificateurs de spectroscopie les plus performants sont entièrement couplés en courant continu (à l'exception du réseau de différenciation CR situé à proximité de l'entrée de l'amplificateur). En conséquence, les décalages continus des premiers étages de l'amplificateur sont amplifiés par le gain d'amplification pour provoquer un décalage continu important et instable à la sortie de l'amplificateur. Un restaurateur de ligne de base est nécessaire pour supprimer ce décalage en courant continu et pour garantir que l'impulsion de sortie de l'amplificateur se déplace sur une ligne de base liée au potentiel de terre. La figure II.22 illustre le principe de base d'un restaurateur de base.

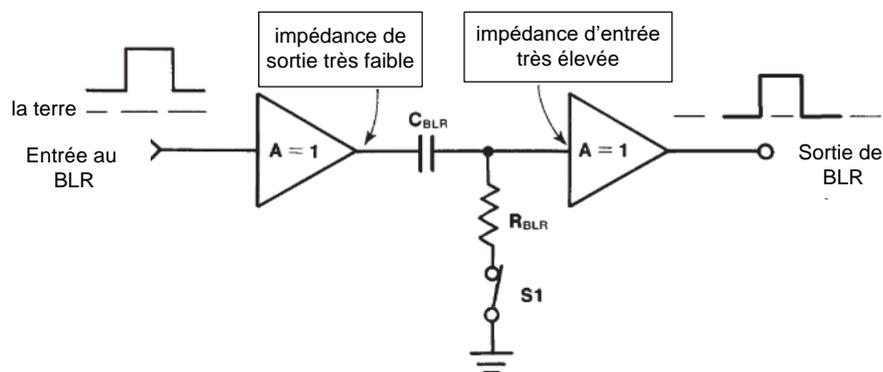


Figure 2-22 : Un schéma simplifié d'un restaurateur de ligne de base.

Dans le cas des restaurateurs de ligne de base plus simples et invariants dans le temps, le commutateur S1 est toujours fermé. Le restaurateur de ligne de base invariant dans le temps se comporte exactement comme un différenciateur CR. La ligne de base entre les impulsions est ramenée au potentiel de masse par la résistance R BLR. Afin de ne pas dégrader le rapport signal sur bruit de l'amplificateur de mise en forme d'impulsions, la constante C doit être au moins 50 fois la constante de temps de mise en forme employée dans l'amplificateur.

Le restaurateur de ligne de base simple et invariant dans le temps ne maintient pas adéquatement la ligne de base au potentiel du sol à des taux de comptage élevés. Étant donné que le restaurateur de ligne de base invariant dans le temps est en réalité un différenciateur CR, la zone de signal moyenne au-dessus du sol doit être égale à la zone de signal moyenne sous le sol à la sortie du restaurateur de ligne de base. Aux faibles taux de comptage, l'espacement entre les impulsions est extrêmement long par rapport à la largeur d'impulsion. Par conséquent, la ligne de base entre les impulsions reste très proche du potentiel de terre. Au fur et à mesure que le taux de comptage augmente, la ligne de base doit se déplacer vers le bas, de sorte que la zone du signal restant au-dessus du potentiel de terre soit égale à la zone entre le potentiel de terre et la ligne de base décalée. La quantité de décalage de la ligne de base augmente à mesure que le taux de comptage augmente. Les réseaux de diodes sont généralement incorporés pour réduire ce décalage, mais de telles solutions ne peuvent pas rendre le décalage négligeable.

Le restaurateur de ligne de base à déclenchement élimine pratiquement le décalage de ligne de base causé par les taux de comptage variable. Sur la figure II.22, le commutateur S1 est ouvert pendant la durée de l'impulsion de l'amplificateur et fermé dans le cas contraire. Par conséquent, la fonction de différenciation CR n'est active que sur la ligne de base entre les impulsions. L'effet de l'impulsion de signal est essentiellement éliminé. Le restaurateur de ligne de base bloqué perçoit qu'il fonctionne à un taux de comptage nul et maintient fermement la ligne de base au potentiel de terre, indépendamment du taux de comptage réel.

La stabilité de la restauration de la ligne de base à des taux de comptage très élevés avec le restaurateur de ligne de base à déclenchement dépend de la capacité des circuits de commande de déclenchement à faire la distinction entre les impulsions et la ligne de base. Dans les circuits les plus simples, cela est accompli avec un discriminateur dont le seuil est ajusté manuellement pour se situer juste au-dessus du bruit qui entoure la ligne de base. Les amplificateurs les plus sophistiqués comprennent des discriminateurs de bruit automatiques et des méthodes de

détection d'impulsions plus complexes pour effectuer cette tâche plus efficacement. La figure II.23 est un exemple des résultats obtenus sur un restaurateur de ligne de base hautes performances. Le décalage de crête et l'élargissement de la résolution sont tous deux négligeables sur une très large gamme de taux de comptage. À une certaine limite supérieure du taux de comptage, la ligne de base entre les impulsions est inadéquate pour que le restaurateur de la ligne de base puisse contrôler. Au-dessus de ce taux de comptage, la ligne de base se déplacera fortement avec l'augmentation du taux de comptage. Si des taux de comptage doivent être traités au-dessus de cette limite, une constante de temps de mise en forme d'amplificateur plus courte doit être sélectionnée.

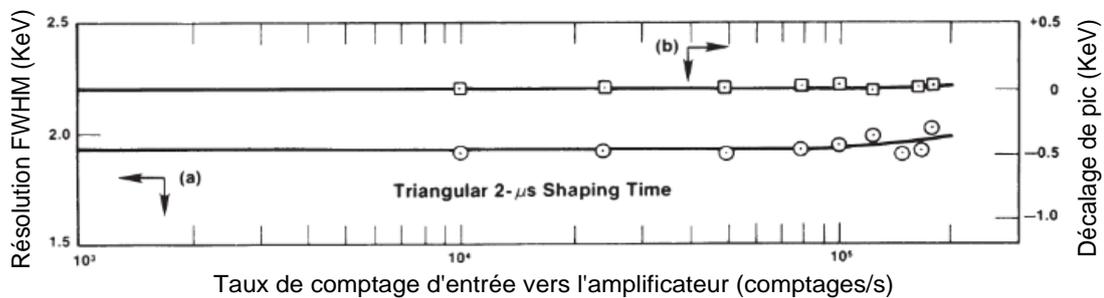


Figure 2-23 : (a) Résolution, et (b) Stabilité de la position de pic en fonction du taux de comptage avec un restaurateur de ligne de base à déclenchement à hautes performances.

### ➤ Rejet d'empilement

Le circuit de rejet d'empilement joue un rôle essentiel à double fonction. Tout d'abord, il permet, à l'aide d'un circuit d'amplification rapide, de détecter toutes les impulsions se présentant à l'entrée de l'amplificateur. Lorsqu'une impulsion est mise en forme par la voie lente (utilisée pour construire le spectre), si l'amplificateur rapide détecte une nouvelle impulsion en entrée, le système est informé qu'un empilement va se produire entre les deux impulsions. Par conséquent, un signal d'inhibition de codage est émis vers le convertisseur analogique-numérique (ADC), l'empêchant ainsi de traiter l'impulsion empilée. Ce blocage génère un temps mort qui est calculé par l'amplificateur (deuxième fonction) et transmis au codeur, afin qu'il puisse être pris en compte lors du calcul du temps réel de mesure. Étant donné que l'utilisateur travaille généralement en mode de mesure actif, le système prend en considération le temps mort et ajoute du temps de comptage pour compenser les durées de blocage résultant du rejet des empilements électroniques.

La probabilité d'empilement de deux signaux successifs dépend fortement de leur durée. Plus un signal est long dans le temps, plus la probabilité d'empilement sur le signal suivant est élevée. Pour réduire cette probabilité, la solution simple et rapide consiste à diminuer la durée du signal. Cela est réalisé en ajustant le temps de mise en forme, généralement fixé entre 2 et 10  $\mu\text{s}$ . Cependant, ce réglage ne permet pas un fonctionnement optimisé pour les taux de comptage élevés. Il est donc nécessaire de réduire considérablement cette durée de mise en forme, pouvant être ramenée à 0,25  $\mu\text{s}$  dans certains systèmes. Dans un tel cas, la durée totale de chaque impulsion est réduite à 1,25  $\mu\text{s}$ , ce qui permet de réduire la durée totale de chaque signal d'un facteur 20.

Le résultat de ce type de réglage est une dégradation significative de la résolution du spectre en raison de la diminution du rapport signal sur bruit. En général, un changement de la constante de mise en forme de 6  $\mu\text{s}$  à 0,25  $\mu\text{s}$  dans une chaîne électronique entraîne une dégradation de la résolution d'un facteur d'environ 4. Cela signifie que la résolution passe de 1,8 keV (à 1,3 MeV) à 7 keV. C'est dans ce contexte spécifique que le circuit d'intégration est utilisé. Il permet de restaurer une résolution "normale" au spectre tout en maintenant une faible constante de mise en forme. L'originalité de cette approche électronique réside dans l'utilisation de l'intégralité du signal (sa surface) plutôt que son amplitude pour améliorer le rapport signal sur bruit. Dans une telle configuration, la résolution obtenue se situe généralement entre 2,4 et 2,6 keV.

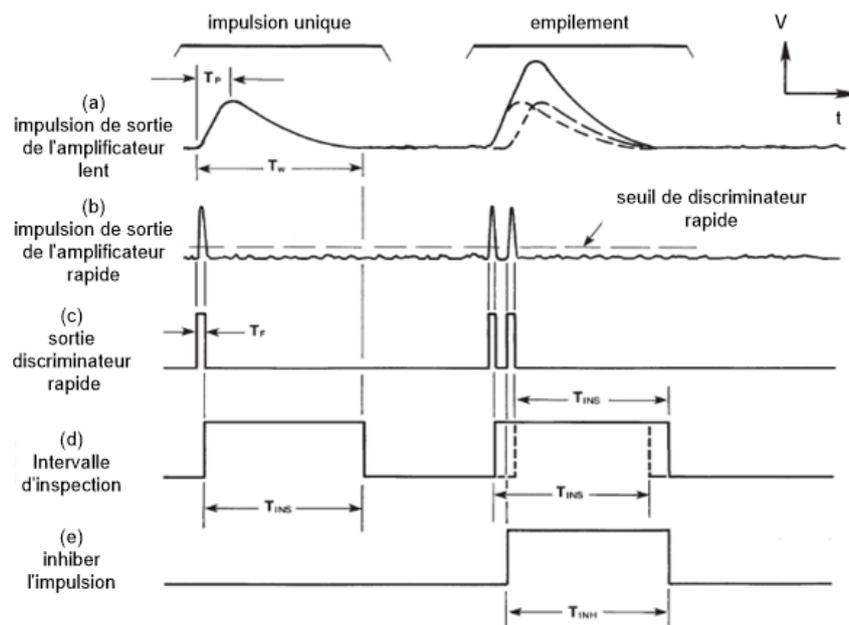


Figure 2-24 : Signaux de base dans le circuit de rejet d'empilement.

### **2.3.Conclusion**

En conclusion, ce chapitre a permis de comprendre l'importance de la chaîne d'instrumentation dans l'étude des propriétés de scintillation des nanoscintillateurs YAG : Ce<sup>3+</sup>. En effet, cette chaîne d'instrumentation permet de mesurer avec précision les différents paramètres de scintillation tels le rendement optique, la résolution en énergie le temps de montée, le temps de descente et la résolution temporelle.

L'utilisation d'une instrumentation de qualité est essentielle dans la conception des détecteurs de rayonnement. En effet, ces détecteurs doivent être capables de détecter et mesurer les rayonnements ionisants avec précision et fiabilité. La qualité de la chaîne d'instrumentation utilisée pour étudier les propriétés de scintillation des matériaux constitutifs des détecteurs est donc un élément clé dans la conception de ces derniers.

En outre, la compréhension des propriétés de scintillation des matériaux tels que les nanoscintillateurs YAG : Ce<sup>3+</sup> est importante pour le développement de nouveaux matériaux plus performants pour les détecteurs de rayonnement. La connaissance des paramètres de scintillation permet de mieux comprendre le comportement de ces matériaux, ce qui peut conduire à l'amélioration de leurs performances et à une meilleure efficacité de détection nucléaire.

Globalement, ce chapitre met en évidence l'importance de la chaîne d'instrumentation dans l'étude des propriétés de scintillation des matériaux constitutifs des détecteurs de rayonnement, et souligne l'importance de la compréhension de ces propriétés pour le développement de nouveaux détecteurs plus performants.

## *Chapitre 3*

---

### *Mesure des Propriétés de Scintillation de Nanoscintillateur YAG : Ce*

---

### 3.1. Introduction

Les scintillateurs jouent un rôle important dans beaucoup d'applications : l'imagerie médicale nucléaire, la physique de hautes énergies et l'exploration pétrolière. Il existe un besoin continu de scintillateurs ayant des propriétés supérieures. Un scintillateur idéal aurait une décroissance rapide de la scintillation, une bonne résolution énergétique, un rendement lumineux élevé, un numéro atomique effectif élevé et une longueur d'onde d'émission favorable. Bien qu'aucun scintillateur répondant à tous les critères n'ait encore été trouvé, les composés trivalents activés par l'ion de Cérium (Ce) avec des transitions radiatives  $5d - 4f$  hautement efficaces présentent un grand potentiel. Plusieurs nouveaux scintillateurs activés par (Ce) ont récemment été rapportés. Par exemple, LaBr<sub>3</sub>:Ce est un excellent scintillateur avec un rendement lumineux de plus de 70 000 photons/MeV [92–94]. Des scintillateurs tels que K<sub>2</sub>LaI<sub>5</sub>:Ce [95], Cs<sub>3</sub>Lu<sub>2</sub>I<sub>9</sub>:Ce [96] Cs<sub>2</sub>LiLaBr<sub>6</sub>:Ce [97,98] Cs<sub>3</sub>CeCl<sub>6</sub>, Cs<sub>3</sub>CeCl<sub>6</sub>:Ce, CsCeCl<sub>7</sub>:Ce [99] ont également été rapportés comme ayant de bonnes propriétés de scintillation. Les propriétés des scintillateurs activés par Eu (Europium) dépendent souvent fortement de la concentration en Eu [100,101], et la concentration en ion de cérium est également connue pour affecter les scintillateurs activés par Ce [102,103]. Il est important de comprendre la relation entre la concentration en Ce et les propriétés de scintillation afin de concevoir et d'optimiser ces propriétés.

Dans ce chapitre nous avons étudié les propriétés de scintillation de nanoscintillateur Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> : 0.5% Ce<sup>3+</sup>, ce dernier a été synthétisé à l'échelle nanométrique sous forme d'une poudre par la méthode sol gel, la poudre a été obtenue sous recuit à l'air à 1000 ° C pendant 4 heures. La caractérisation structurale, radio-luminescence et la photoluminescence de ce matériau a été abordé dans les travaux de recherches antérieurs [10]. Les principales propriétés de scintillation que nous avons abordées lors de cette étude sont : la résolution énergétique, le rendement lumineux, le temps de déclin, le temps de montée et la résolution temporelle.

### 3.2. Techniques expérimentales

#### 3.2.1. Préparation des échantillons

Des échantillons détecteurs ont été préparés à partir des nanomatériau scintillateur YAG : Ce<sup>3+</sup> pour la collection des spectres d'énergie et la mesure de temps de décroissance (Figure III.1), ce matériau a été synthétisé et élaboré par la méthode de sol gel dans le laboratoire de Laser de centre de recherche nucléaire d'Alger (CRNA). Ces matériaux sont bien connus d'être

de bonnes matrices réceptrices des ions de terres rares pour les applications de détection, le spectre d'émission est constitué d'une bande d'émission large et asymétrique centrée à environ de 530 nm. Cette bande est caractéristique des transitions entre le niveau excité le plus bas  $5d^1$  vers les deux niveaux  $2F^{5/2}$ ,  $2F^{7/2}$  de la configuration fondamentale  $4f$  du Ce<sup>3+</sup> dans la matrice YAG [104,105].

Pour concevoir des détecteurs d'échantillon, nous avons utilisé les poudres préparées et employé une méthode qui impliquait l'utilisation de deux types de feuilles de Mylar. Le premier était du Mylar transparent, qui servait comme substrat sur lequel la poudre était distribuée. Le substrat a été précisément coupé aux dimensions de 20 x 15 mm<sup>2</sup> puis soigneusement placé dans un moule adapté qui a permis de mettre en forme la poudre et d'obtenir un échantillon détecteur d'une épaisseur de 1 mm.

Afin d'assurer une répartition homogène et une fixation adéquate de la poudre, une solution d'éthanol a été saupoudrée sur le substrat Mylar avant de déposer les particules de YAG : Ce<sup>3+</sup>. Une fois la poudre appliquée, un léger mouvement de pression a été utilisé pour répartir et compacter davantage les nanocristaux de YAG sur le substrat. Après que la poudre a été fermement fixée au substrat, l'échantillon a été retiré du moule avec beaucoup de soin pour éviter toute perturbation de l'échantillon. La face opposée était ensuite recouverte de Mylar aluminisé, qui servait comme réflecteur et empêchait la perte de lumière. Pour protéger l'échantillon des interférences externes, les côtés ont été enveloppés en utilisant papier d'aluminium.

La face couverte par le Mylar transparent est couplée avec la fenêtre du tube photomultiplicateur lors des mesures expérimentales. Une photographie de l'échantillon conçu est illustrée à la figure III.1, qui présente le produit final obtenu. Tous les détecteurs d'échantillons étudiés dans ce travail ont été conçus selon la même procédure et conformes à des dimensions identiques de 20 × 15 × 1 mm<sup>3</sup>.

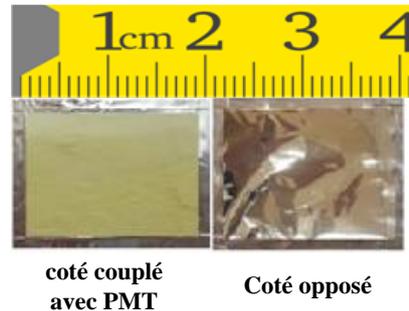


Figure 3-1: Aperçu sur l'échantillon préparé avec  $Y_3Al_5O_{12} : Ce^{3+}$  (YAG): 0.5%  $Ce^{3+}$

Afin de mesurer et évaluer la réponse de l'échantillon préparé aux rayonnements ionisants, une chaîne spectrométrique a été mise en place, les sources radioactives  $^{241}Am$  (alpha) et  $^{137}Cs$  (gamma) ont été utilisées comme sources d'excitation lors de cette étude.

Pour la mesure de temps de décroissance et la résolution temporelle de nanoscintillateur YAG :  $Ce^{3+}$ , un système de mesure en coïncidence a été mis en place, la technique de comptage de photons uniques corrélée dans le temps a été utilisée dans ce travail [106].

### 3.2.2. Mise au point d'une chaîne de mesure des spectres d'énergie de nanoscintillateur YAG :0.5% Ce

La figure III.2 présente le schéma de principe de système d'instrumentation mis en place pour la collection des spectres d'énergie résultants suite à l'irradiation de l'échantillon détecteur par les sources  $\gamma$  - $^{137}Cs$  et  $\alpha$ - $^{241}Am$  [107].

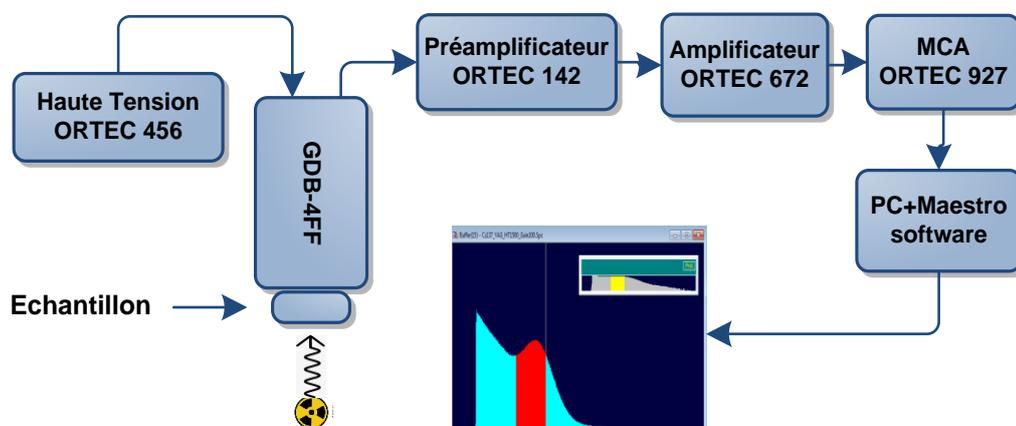


Figure 3-2 : Schéma fonctionnel du système de mesure du rendement lumineux et des spectres énergétiques

Le système d'instrumentation installé contient : un tube photomultiplicateur de type bi-alkali GDB-4FF [108], alimentation haute tension ORTEC 456, Préamplificateur ORTEC 142-pc, un amplificateur de mise en forme ORTEC 575A, analyseur multicanal MCA ORTEC 927-ASPEC et un PC doté avec logiciel maestro pour l'acquisition des spectres.

### 3.2.2.1. Procédure expérimentale

L'objectif de cette expérience est d'évaluer la réponse de l'échantillon préparé à base de luminophore YAG :  $Ce^{3+}$  en déterminant leur propriétés de scintillation, dans cette première expérience nous avons calculé la résolution énergétique, le rapport  $\alpha/\gamma$  (facteur d'extinction) et les rendements lumineux sous excitation des sources radioactives  $\gamma$  libéré de  $^{137}Cs$  et  $\alpha$  libéré de  $^{241}Am$ , pour cela, l'ensemble PMT + source + Détecteur sont fixés en utilisant des supports mécaniques adéquats comme il est montré dans la figure III.3.

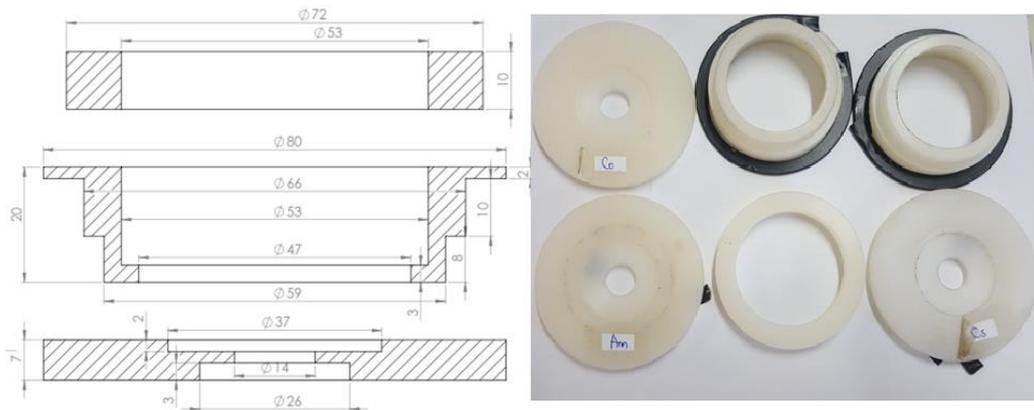


Figure 3-3 : Supports mécanique conçus

Pour un bon confinement de l'ensemble PMT+ Scintillateur contre la lumière extérieure, nous avons mis l'ensemble dans une boîte fermée. La Figure III.4 donne un aperçu sur la partie expérimentale.



Figure 3-4 : Montage expérimental

### 3.2.2.2. Choix des paramètres expérimentaux :

#### ➤ Choix de temps de mise en forme

La valeur de temps de mise en forme  $\tau$  doit être optimale, ce qui permet de minimiser les bruits parallèle et série d'un cote et le comptage avec un taux élevé (comme nous avons expliqué dans le chapitre II paragraphe II.2.3.2), dans cette expérience, l'amplificateur de mise en forme utilisé est de type ORTEC 575A avec forme d'impulsion Semi-gaussienne sur toutes les plages, un temps de crête égal à  $2,2 \tau$ , une largeur d'impulsion à 50 % égale à  $3,3 \tau$  et une largeur d'impulsion à un niveau de 10 % égal à 4 fois le temps de crête. Pour le bruit il est  $< 5 \mu V$  rms rapporté à l'entrée en utilisant une mise en forme unipolaire à  $3 \mu s$  ;  $< 7 \mu V$  en utilisant un temps de mise en forme  $1.5 \mu s$  ; les deux pour un gain 100. La source radioactive de  $^{137}Cs$  a été utilisée, La figure III.5 présente la variation de la résolution énergétique en fonction de temps de mise en forme  $\tau$ , on a constaté que la résolution énergétique s'améliore par l'augmentation de  $\tau$  jusqu'à la valeur  $3 \mu s$ . À partir de cette valeur la résolution devient presque constante. Pour bien fixer le temps de mise en forme  $\tau$ , il faut aussi prendre en considération le problème de déficit balistique qui est la perte dans l'amplitude du signal de sortie à cause de l'interaction entre les temps finis de collecte de charges dans le détecteur et les constantes de temps caractéristiques de l'amplificateur de mise en forme. Pour cela, nous avons tracé la courbe de rendement lumineux en fonction de  $\tau$ , la Figure III.6 montre l'évolution de rendement pour 6 valeurs de  $\tau$ , on a remarqué que lorsque  $1 \mu s \leq \tau \leq 3 \mu s$  rendement augmente, ceci est dû à l'augmentation de temps d'intégration. À partir de  $\tau = 3 \mu s$  le rendement devient pratiquement constant jusqu'à la valeur maximale de  $\tau$  (ici  $\tau = 10 \mu s$ ). Il est préférable d'utiliser la valeur maximale de  $\tau$ , cela permet de collecter le maximum des photons et d'améliorer la résolution énergétique, mais il est aussi nécessaire de rappeler que  $\tau$  doit être le minimum que possible pour minimiser le risque de chevauchement entre les impulsions successives (overlap).

Fréquemment, l'exigence de gérer des taux de comptage élevés est en conflit avec le besoin d'une résolution d'énergie optimale. Pour la plupart des détecteurs de rayonnement, l'obtention de la résolution énergétique optimale nécessite un long temps de mise en forme. D'autre part, des largeurs d'impulsion courtes (faibles valeurs de  $\tau$ ) sont essentielles pour des taux de comptage élevés. Dans de tels cas, un temps de mise en forme de compromis doit être sélectionné afin que le système de spectroscopie puisse être optimisé. Donc d'après cette étude, un temps de mise en forme  $\tau=3 \mu s$  a été sélectionné.

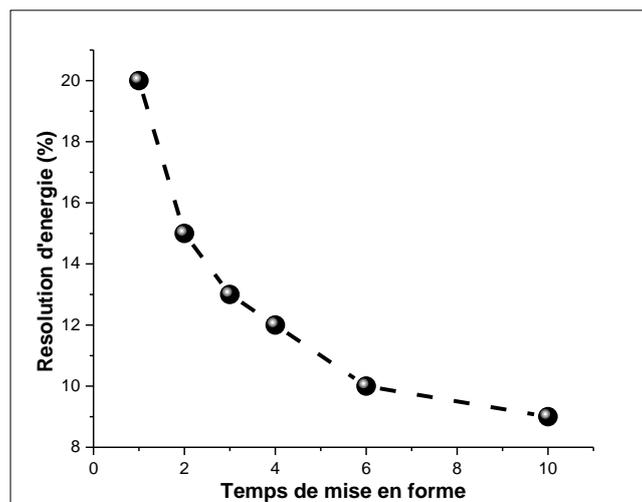


Figure 3-5 : La résolution énergétique en fonction de temps de mise en forme  $\tau$

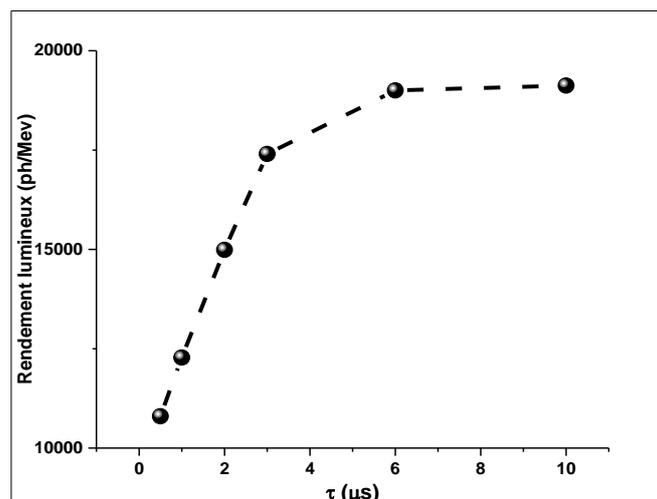


Figure 3-6 : L'évolution de rendement en fonction de temps de mise en forme  $\tau$

➤ *Identification de la Haute tension (HT) :*

Afin de déterminer la valeur optimale de polarisation de notre détecteur, on s'est basé sur la minimisation de bruit dans la chaîne de mesure, pour cela nous avons tracé la courbe de la résolution d'énergie en fonction de la HT, nous avons constaté qu'à partir de la valeur 1600 V la résolution R commence à se dégrader. Donc, une haute tension HT=1600V a été sélectionnée.

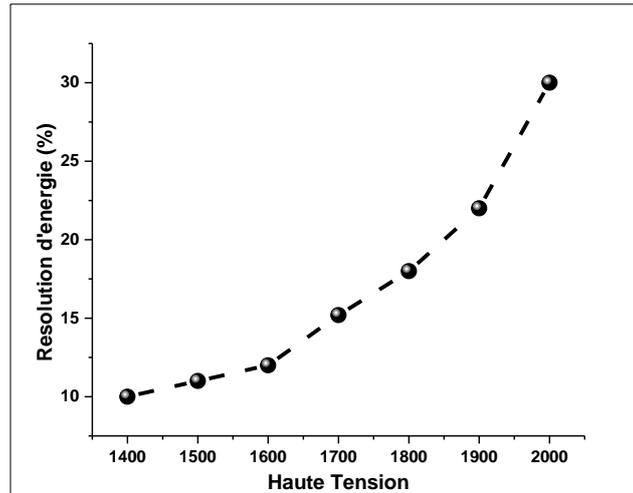


Figure 3-7 : Évolution de la résolution d'énergie en fonction de la HT

### 3.2.2.3. Résultats et discussion :

Afin d'évaluer la réponse de détecteur d'échantillon conçu aux différents énergies, les spectres d'énergie gamma des sources radioactives  $^{137}Cs$  -662 keV,  $^{22}Na$  -511 keV et  $^{57}Co$  -122 keV ont été collectées et présentés sur la Figure III.8a. La courbe d'étalonnage canal-énergie a été tracée sur la figure III.8b. À partir de là, on peut observer que les valeurs d'énergie par rapport au canal ont été bien ajustées avec une fonction linéaire.

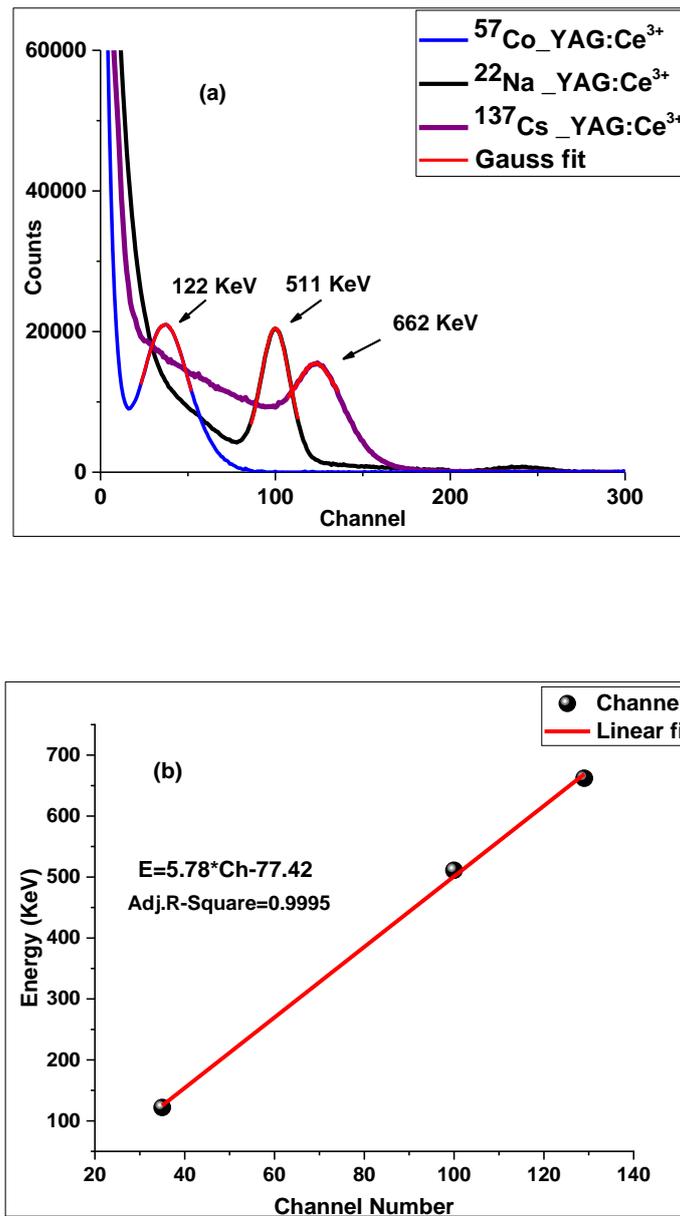


Figure 3-8 : (a) Spectre d'énergie des sources radioactives  $^{137}Cs$ ,  $^{22}Na$  and  $^{57}Co$  collectées par le détecteur YAG : 0.5%  $Ce^{3+}$ . (b) La courbe de calibration obtenus par YAG :0.5%  $Ce^{3+}$

De plus, pour évaluer la réponse de détecteur YAG : 0.5%  $Ce^{3+}$  à l'excitation par les particules alpha, le spectre d'énergie de la source  $^{241}Am$  a été mesuré et présenté sur la figure III.9

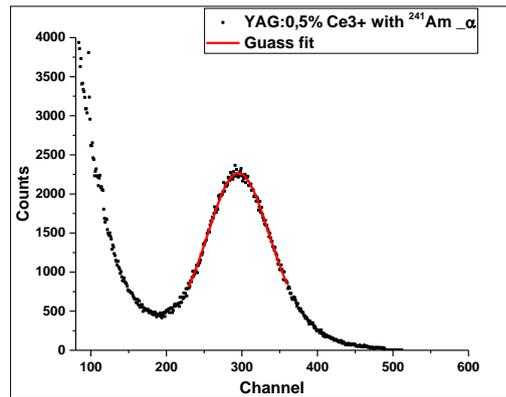


Figure 3-9: Spectres d'énergie de la source de <sup>241</sup>Am (5.48 Mev) mesuré avec l'échantillon détecteur YAG : 0,5% Ce

❖ **Résolution d'énergie (R) et Rendement lumineux (RL)**

La résolution en énergie des échantillons YAG : Ce<sup>3+</sup> a été déterminée à partir de spectres d'énergie obtenus en utilisant la relation :

$$\Delta E = R / E \tag{3-1}$$

Le traitement des données présentées sur les figures III.8a et III.9 nous a permis de déterminer les positions et le FWHM (Largeur à mi-hauteur) des pics, Le tableau III.1 résume les résultats obtenus

Tableau 3-1 : Résolution énergétique de l'échantillon YAG :0.5% , irradié par rayon  $\gamma$  662kev libéré de la source <sup>137</sup>Cs et par les particules  $\alpha$  5.48 Mev libéré de la source <sup>241</sup>Am

YAG :0.5 % Ce <sup>3+</sup>	FWHM	position du pic	Résolution (%)
Source $\gamma$ ( <sup>137</sup> Cs)	18.24	139.59	13
Source $\alpha$ ( <sup>241</sup> Am)	95.12	295.32	32

En Outre, le rendement lumineux relatif *RLY* (%) de l'échantillon YAG :0.5% Ce<sup>3+</sup> a été calculé en utilisant la méthode de comparaison [109–111]. Le scintillateur monocristallin NaI : Tl a été utilisé comme détecteur de référence, la formule est donnée par l'équation 3.2 :

$$RLY(\%) = \frac{PP_S}{PP_R} * \frac{G_R}{G_S} * \frac{Q_R}{Q_S} \tag{3-2}$$

Où : *PP<sub>S</sub>* est la Position de Pic de l'échantillon détecteur,

*PP<sub>R</sub>*: est la position de Pic de détecteur de référence, *G<sub>R</sub>* : Gain appliqué dans le détecteur de référence, *G<sub>S</sub>*: Gain appliqué dans l'échantillon détecteur, *Q<sub>R</sub>* = 27.6% et *Q<sub>S</sub>* =

26.7% sont respectivement l'efficacité quantique du PMT GDB-4FF sur l'émission spectrale du détecteur de référence et le détecteur d'échantillon étudié.

Dans La figure III.10, nous avons présenté les spectres d'énergie obtenus par le détecteur de référence et le détecteur échantillon sous excitation  $\gamma$  émis par la source radioactive <sup>137</sup>Cs, les spectres ont été collectés dans les mêmes conditions expérimentales, le temps de mise en forme a été réglé sur 3  $\mu$ s et la haute tension (HT) a été fixé à 1600 v. Les positions des pics pour le détecteur d'échantillon et du détecteur de référence ont été calculées à partir des spectres enregistrées (figure III.10). Le gain de l'amplificateur dans le détecteur de référence (NaI: Tl) a été réglé sur 100 et pour le détecteur d'échantillons était 200.

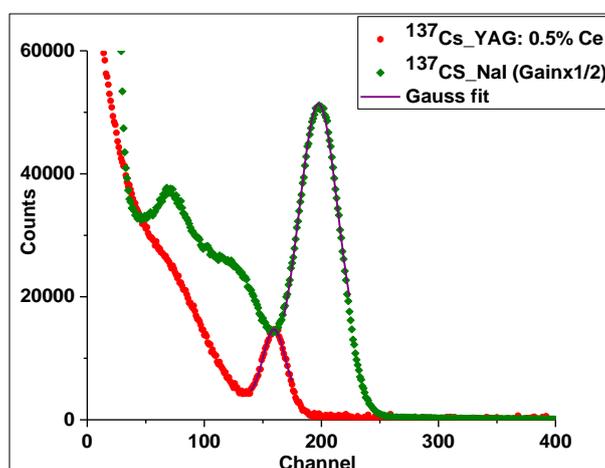


Figure 3-10 : Spectres d'énergie de <sup>137</sup>Cs en utilisant le détecteur de référence et le détecteur échantillon

Le rendement lumineux de NaI: Tl a été estimé à 40000 $\pm$ 8000 ph/MeV [112], d'où le rendement lumineux absolue (ALY) de l'échantillon a été estimé d'être environ 17400 ph/MeV, le tableau III.2 résume les résultats obtenus.

Tableau 3-2 : Rendement lumineux relatif et absolu de YAG :0.5%Ce<sup>3+</sup> sous excitation  $\gamma$ -<sup>137</sup>Cs

Position du pic NaI:Tl	Position du pic YAG:0.5%Ce	RLY (%)	ALY (Ph/MeV)
185.2	160.95	0.435	17400 $\pm$ 3600

Pour comparaison, dans le tableau III.3, on présente quelques valeurs rendement lumineux des scintillateurs YAG dopé Ce<sup>3+</sup> monocristal et céramique [113–117].

Tableau 3-3 : Quelques valeurs de RL des scintillateurs YAG dopé Ce<sup>3+</sup> monocristal et céramique.

YAG: Ce <sup>3+</sup>	Concentration de Ce <sup>3+</sup> mol %	Rendement Lumineux [10 <sup>3</sup> Ph/ MeV ]	Résolution (%) @662KeV	Références
nanoscintillateur	0.5	18.9 (T= 1150 °C)	10	Ce travail
monocristal	1	20.8	14	[113]
monocristal	0.4	20.3	11	[114]
monocristal	-----	21–25	10.2	[115]
Céramique	0.3	62	14.9	[116]
monocristal	0.2	28-30.	6-7	[117]

On note que le YAG : 0.5 mol % Ce<sup>3+</sup> nanopoudre présente un RL faible par rapport à celle de YAG : Ce monocristal, ceci peut être lié à plusieurs facteurs. En effet, la détermination de de RL des nanoscintillateurs constitue un enjeu. Il existe plusieurs limitations sur la quantité d'énergie qui peut être déposée dans le nano cristal, ces limitations sont imposées par les caractéristiques géométriques intrinsèques de ce dernier, cela conduit à la réduction de nombre de photons mesurés [118]. En outre, la difficulté de couplage des nanopoudres avec la fenêtre du PMT par rapport aux scintillateurs de type monocristaux et céramiques.

#### ❖ Rendement lumineux relatif des particules $\alpha$ (Facteur d'extinction)

Le facteur d'extinction  $\alpha/\gamma$  montre le rapport entre l'énergie libérée par les particules chargées et les rayons  $\gamma$ . Il est défini comme le rapport entre la position du pic des particules  $\alpha$  divisées par l'énergie des particules  $\alpha$  et la position du pic du rayon  $\gamma$  divisé par l'énergie  $\gamma$ . Lorsque les particules chargées interagissent avec l'échantillon, une quantité considérable d'énergie est convertie par d'autres moyens au lieu de lumière de scintillation. L'échantillon YAG : 0.5% Ce a été irradié par des particules  $\alpha$  avec énergie de 5,48 MeV libéré de la source <sup>241</sup>Am et par des rayon  $\gamma$  - 662 keV de <sup>137</sup>Cs . La figure III.11 présente les spectres d'énergie pour les deux sources mesurées dans les mêmes conditions expérimentales, un rapport  $\alpha/\gamma$  égal à  $0,17 \pm 0,04$  a été calculé, ce qui signifie que 83 % de la lumière des particules  $\alpha$  a été éteinte (quenching). Un rapport  $\alpha/\gamma$  égal à 0,22 a été trouvé récemment pour le cristal LuAP [119] et 0,21 a été mesuré pour le cristal GSO: Ce [120] et 0,24 pour le cristal GSAG [121].

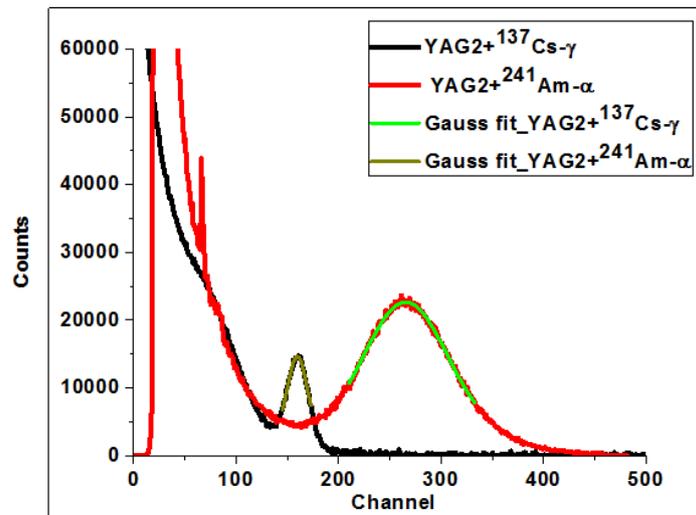


Figure 3-11 : Spectres des sources gamma  $^{137}Cs$  et Alpha  $Am^{241}$  avec détecteur YAG :0.5% $Ce^{3+}$  pour mesurer le rapport  $\alpha/\gamma$

### 3.2.3. Mise au point d'un système de mesure de temps de montée et de temps de déclin nanoscintillateur YAG :0.5% $Ce^{3+}$

Le temps de déclin ou de décroissance de la scintillation est une mesure qui permet de déterminer la vitesse à laquelle la lumière de scintillation est émise par un matériau (scintillateur) après une interaction de rayonnement. [21]. Autrement dit, c'est le temps qu'il faut à la lumière de scintillation pour retourner à sa luminosité d'origine après une impulsion d'excitation. La figure III.12 montre un schéma de principe de l'expérience que nous avons mis en place pour la mesure de temps de déclin de nanoscintillateur YAG :0.5%  $Ce^{3+}$  en utilisant la source de  $^{137}Cs - \gamma$  [107].

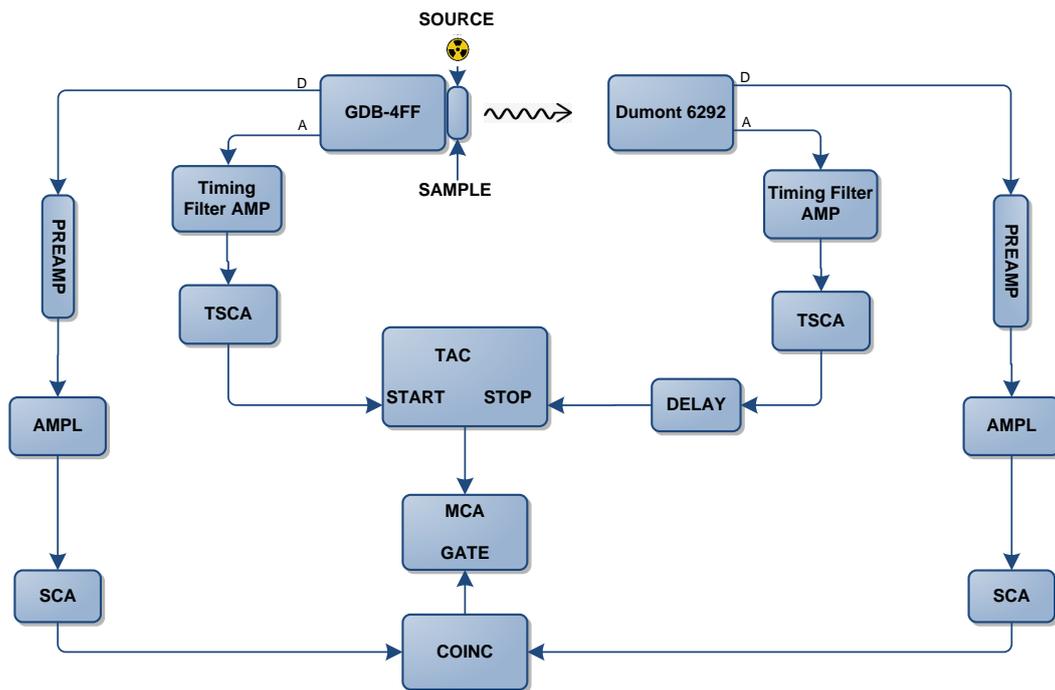


Figure 3-12 : Schéma de principe de système de mesure de temps de déclin

### 3.2.3.1. Procédure expérimentale

Pour le calcul de temps de déclin de nano scintillateur YAG : Ce<sup>3+</sup>, nous avons préparé un nouvel échantillon, cette fois-ci les deux côtés de l'échantillon doivent être transparent pour que les photons générées dans l'échantillon (YAG : Ce<sup>3+</sup>) peuvent être détectés par les deux PMTs, pour cela, nous avons utilisé le Mylar transparent pour couvrir les côtés de l'échantillon. Le temps de décroissance a été mesuré par la méthode de comptage de photons uniques corrélés dans le temps [122],[123] en utilisant une configuration de coïncidence rapide-lente. Dans cette expérience, nous avons utilisé deux photomultiplicateurs, le premier est le GDB-4FF utilisé pour la chaîne rapide, le détecteur d'échantillon est fixé sur ce PMT, le deuxième PMT est DUMONT 6292, il est placé à l'opposé du GDB-4FF à une distance de 5 cm. La différence de temps entre le signal généré dans le GDB-4FF et le signal généré par le photon unique détecté par DUMONT 6292 a été mesurée à l'aide du convertisseur CANBERRA Time-to-Amplitude modèle 2145 (TAC). Les événements ont été collectés par un analyseur multicanal ORTEC 927, les paramètres expérimentaux ont été fixés à : HT=1600v, gain =100, le temps de mise en forme égale à 10 ns pour les deux bras, la fenêtre de coïncidence dans le module de coïncidence 2040 égale à 100 ns. Pour le module de TAC, l'intervalle de temps est réglé à 2000 ns, le temps

de collection de spectres égale à 4h, l'échantillon a été irradié par les rayons  $\gamma$  émis de la source de  $^{137}Cs$ . Dans cette expérience, les modules d'instrumentation suivants ont été utilisés :

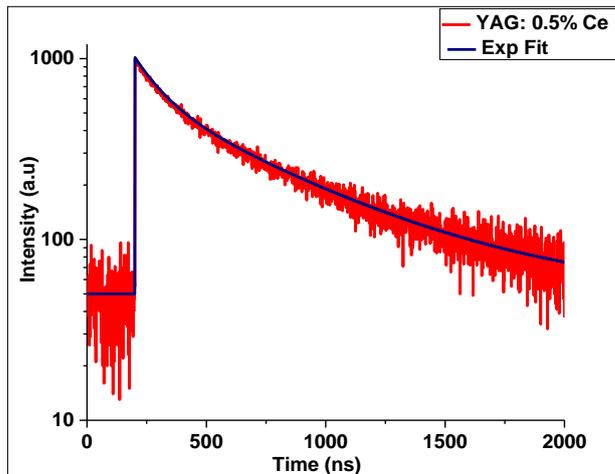
- Deux tubes photomultiplicateurs le premier est le GDB-4FF et le deuxième est le Dumont 6292.
- Deux alimentation haute tension ORTEC 456,
- Deux amplificateurs de mise en forme ORTEC 575A,
- Deux modules 550 SCA, utiliser pour la discrimination ou la sélection d'énergie.
- Les modules de retard model DB463.
- Deux modules timing Filter Amplifier 2111
- Deux modules time Single Channel Analyser TSCA 2015 A
- Un module Time to Amplitude Converter (TAC), CANBERRA 2145
- Un module de Coïncidence CANBERRA 2040
- Analyseur multicanal MCA ORTEC 927-ASPEC et un PC doté avec logiciel maestro pour l'acquisition des spectres.

### 3.2.3.2. Résultats et discussion

Le temps de déclin de nanoscintillateur YAG :  $Ce^{3+}$  a été mesuré en utilisant le système d'instrumentation décrit ci-dessus, La figure III.13 présente la courbe de déclin mesuré, cette dernière semble d'être décomposé en deux exponentiels, d'où les données expérimentales sont ajustées par la fonction  $I(t)$  présenté par l'équation 3.3.

$$I(t) = A_f e^{-t/\tau_f} - A_r e^{-t/\tau_r} + A_s e^{-t/\tau_s} + y_0 \quad 3-3$$

Où  $\tau_f$  et  $\tau_s$  sont respectivement les constantes de temps de décroissance des composantes rapide et lente,  $\tau_r$  est la constante de temps de montée,  $A_f, A_s$  et  $A_r$  sont les intensités correspondantes.



Model	ExpDec2		
Equation	y = A1*exp(-x/t1) + A2*exp(-x/t2) + y0		
Reduced Chi-Sqr	279,75731		
Adj. R-Square	0,992		
		Value	Standard Error
B	y0	49,22253	2,71657
B	A 1	735,24564	1,02546E-6
B	t1	112,0354	4,2584E-6
B	A2	2245,6585	1,54762
B	t2	586,3255	4,55257E-4
B	k1	0,00857	3,34034E-4
B	k2	0,0017	5,15483E-5
B	tau1	80,90994	3,15478
B	tau2	408,16565	12,38974

Figure 3-13 : Spectre de déclin de nano scintillateur YAG:0.5 %Ce

La décomposition de la courbe de déclin présenté sur la figure III-13 en utilisant l'équation 3.3, nous a permet de déterminer les composantes de temps de déclin de nanoscintillateur YAG : 0.5 % Ce<sup>3+</sup>. Deux composantes de décroissance ont été identifiés, la première corresponde à une composante rapide avec une intensité de 39%, et la deuxième corresponde à une composante lente avec une intensité de 61%. De plus, la décomposition de la courbe de déclin nous a permet aussi de déterminer le temps de monté de l'échantillon étudié, le tableau III-4 résume les résultats obtenus.

Tableau 3-4 : Résumé des résultats de temps de monté et de déclin de YAG :0.5%Ce<sup>3+</sup>

Échantillon	Composantes de déclin				Temps de Monté $\tau_r$ (ns)
	Rapide		Lente		
	$\tau_f$ (ns)	Intensité (%)	$\tau_s$ (ns)	Intensité (%)	
YAG :0.5 % Ce	112±0.7	39	586±2.2	61	2.3±0.22

Pour comparaison, Mihokova et al. [124] ont trouvé que le YAG : 0,5 mol % Ce<sup>3+</sup> sous forme céramique et le YAG : 0,32 mol % Ce<sup>3+</sup> monocristal présentent deux composantes de scintillation rapide et lent. Pour le céramique :  $\tau_1 = 85$  ns,  $\tau_2 = 1050$  ns, et pour le monocristal :  $\tau_1 = 119$  ns,  $\tau_2 = 1004$  ns. En outre, Chewpraditkul et al. [125] ont également trouvé deux autres composantes de désintégration différentes dans le monocristal de YAG dopé Ce<sup>3+</sup>, à savoir  $\tau_1 = 96$  ns,  $\tau_2 = 244$  ns.

### 3.2.4. Mise au point d'un système de mesure de la résolution temporelle (CTR):

La CTR fait référence à la plus petite durée pouvant être mesurée entre deux événements. La précision temporelle est un paramètre essentiel pour les applications médicales telles que la tomographie par émission de positons (TEP) et la tomodensitométrie (CT) [126]. La TEP est une technique d'imagerie tridimensionnelle qui repose sur la détection de paires de photons  $\gamma$  de 511 keV résultant de l'annihilation d'un positron ( $e^+$ ) et d'un électron ( $e^-$ ).



Les deux photons sont émis simultanément et de manière quasi colinéaire dans des sens opposés. Ainsi, chaque paire de photons détectés en coïncidence donne une information sur la distribution des points d'annihilation  $e^+ e^-$ , le long d'une ligne (dite ligne de réponse). L'enregistrement d'un grand nombre d'évènements permet la reconstruction d'une distribution d'activité.

Pour la mesure de ce paramètre (CTR), nous avons mis au point un système d'instrumentation pour la détection en coïncidence de paires de photons  $\gamma$ , le but est de déterminer la résolution du temps de coïncidence (Coïncidence Time Resolution CTR) de nanoscintillateur YAG :0.5%  $Ce^{3+}$  et d'évaluer leur efficacité dans les applications de détection.

La configuration de système de mesure en coïncidence mis en place pour la mesure de CTR est illustrée sur la figure III.14.

### 3.2.4.1. Procédure expérimentale

Les mesures ont été effectuées à l'aide de paires de photons  $\gamma$  511 keV résultant de l'annihilation  $e^+ e^-$  et provenant de la source  $^{22}\text{Na}$ , l'échantillon (YAG) a été couplé avec un PMT photonique XP2020Q pour générer le signal « Stop » (Bras lent). Un détecteur de référence à scintillation rapide LYSO dont la résolution temporelle 269 ps pour 511 keV [127] a été couplé au PMT Hamamatsu R5320 pour générer le signal « Star » (Bras rapide), la distance entre les deux PMTs et la source est égale à 1cm, le signal de chaque PMT a été traité avec un ORTEC « Edge crossover » TSCA 2037A. Le spectre temporel a été mesuré avec un CANBERRA TAC modèle 2145 et enregistrés par ORTEC MCA sur PC.

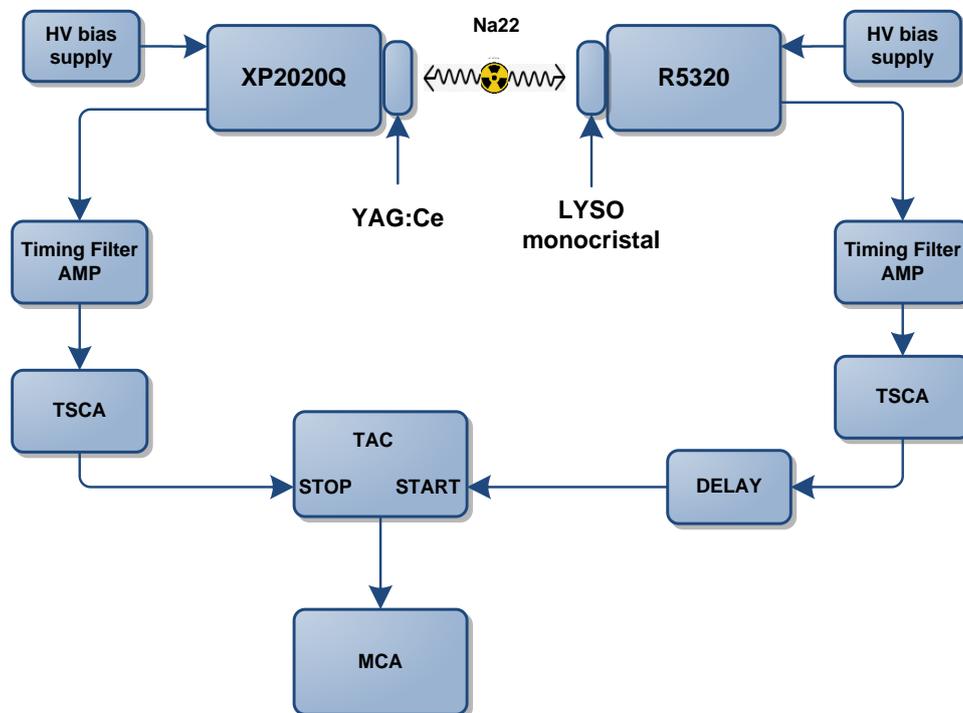


Figure 3-14 : Schéma fonctionnel d'une chaîne électronique de mesure de la résolution temporelle CTR

### 3.2.4.2. Résultats et discussion

Le spectre mesuré par l'expérience décrite ci-dessus est présenté sur la figure III.15. Le MCA est configuré sur un nombre de canal égale à 1024, et la plage de temps sur le TAC est réglé de 0-100ns. Nous avons calculé une résolution temporelle de 4.27 ns, dans la référence [128] une résolution temporelle égale à 660 ps était calculer pour le YAG monocristal dopé par l'ion de cérium. D'après ces résultats, on constate que le YAG : 0.5% Ce élaboré à l'échelle nanométrique sous forme d'une poudre présente une CTR faible en comparant avec la CTR

calculés pour le YAG : Ce monocristal. En effet, il est connu que  $CTR \propto \sqrt{\tau_r \tau_d / LY}$  [129], donc la dégradation de la CTR peut être expliquée par le faible rendement lumineux estimé pour le nanoscintillateur sous forme de poudre (17400 Ph/MeV) par rapport à celui de YAG :Ce monocristal qui a été estimé à 20300 Ph/MeV [120].

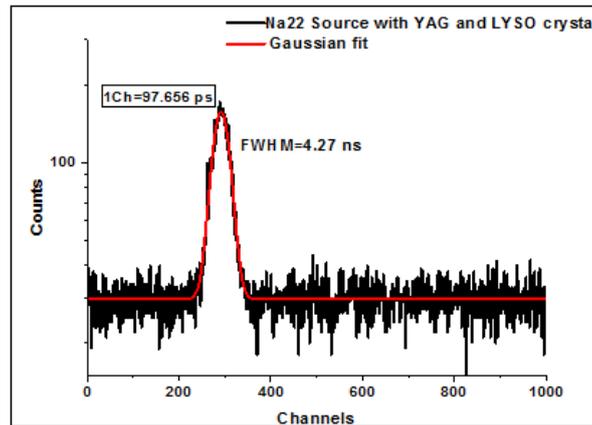


Figure 3-15: Spectre de la résolution temporelle mesuré pour le nano scintillateur YAG:0.5%Ce couplés au PMT XP2020Q en coïncidence avec un détecteur LYSO

### 3.3. Conclusion

Dans ce chapitre, les propriétés de scintillation pour le nano scintillateur YAG :0.5% Ce<sup>3+</sup> ont été déterminées, trois chaînes d'instrumentation nucléaire ont été mis au point pour cette objective, le rendement lumineux a été estimé à 17200 Ph/MeV, cette valeur est un peu loin de celle mesuré pour le YAG : Ce monocristal, cela est connecté par plusieurs causes à savoir la difficulté de couplage des poudres avec la fenêtre de PMT, et les défauts de surface qui sont très dominant à l'échelle nanométrique. Pour les caractéristiques temporelles le YAG : 0.5% Ce étudié présente deux composantes rapide et lent, les valeurs sont dans la gamme de temps de désintégration de la luminosité de l'ion de cérium. En outre, la résolution temporelle calculé pour l'échantillon est loin de celle de monocristal. En effet, la valeur de CTR dépend de rendement lumineux, de temps de montée ainsi que le temps décroissance, d'où l'amélioration de CTR nécessite l'amélioration des ces propriétés. Dans le chapitre qui suit, une étude approfondie sur l'effet des paramètres de synthèse de YAG : Ce<sup>3+</sup> sur les caractéristiques de scintillation sera abordé, L'objective de cette étude est de déterminer les paramètres optimaux permettant de réaliser des détecteurs à l'échelle nanométrique avec les propriétés de scintillation les plus efficace.

## *Chapitre 4*

---

# *Effet des Paramètres de Synthèse de YAG : Ce<sup>3+</sup> sur les Propriétés de Scintillation*

---

#### 4.1.Introduction

Le grenat d'aluminium et d'yttrium  $Y_3Al_5O_{12}$  (YAG) existe dans la structure de grenat cubique a tiré une grande attention dans divers domaines d'applications avancées en raison de son excellente stabilité chimique, de ses bonnes propriétés optiques et de sa résistance à haute température [7,130]. Il est possible d'ajouter facilement des ions de terres rares dans la structure du YAG, ce qui permet de produire des émissions allant du proche infrarouge jusqu'à l'ultraviolet. Le YAG dopé au cérium trivalent (YAG:  $Ce^{3+}$ ) est utilisé dans nombreuses applications, dont l'une des plus importantes est la conversion des rayonnements des diodes électroluminescentes bleues (DEL) en une émission jaune à large bande, constituant l'une des méthodes les plus courantes pour obtenir de la lumière blanche à partir de LED bleues à base de nitrure de gallium. [105,131]. De nombreuses études ont été menées sur l'élaboration de poudres de YAG: Ce, et de nombreux articles ont été publiés à ce sujet. En général, les poudres de YAG sont produites par réaction à l'état solide, qui implique le mélange de poudres de  $Y_2O_3$  et d' $Al_2O_3$ . Cependant, cette méthode présente plusieurs inconvénients, notamment une température de réaction élevée (environ 1600 °C), un temps de chauffage prolongé, un processus de fraisage nécessaire pour obtenir un produit homogène, et des difficultés à contrôler la taille des grains. [132]. Récemment, de nombreuses méthodes chimiques ont été utilisées avec succès pour synthétiser des nano-poudres de YAG, telles que la précipitation [133], la Co-précipitation [134,135], la combustion [113], Pechini [104], solvothermal [136], la méthode du gel de polyacrylamide [137], et méthode sol-gel [138,139]. La méthode sol-gel est largement utilisée en raison de sa polyvalence, de sa grande pureté, de sa faible température de traitement et de la possibilité de contrôler la taille et la morphologie des grains. De plus, l'un des avantages les plus importants des matériaux sol-gel dopés est leur capacité à assurer une distribution homogène du dopant dans la phase hôte liquide.

Ce chapitre de thèse se concentre sur la présentation des résultats expérimentaux et les discussions concernant les caractéristiques de scintillation des nano-poudres luminophores de YAG:  $Ce^{3+}$  synthétisées par la méthode sol-gel. En effet, nous avons étudié et discuté l'influence de plusieurs paramètres de synthèse (la concentration en ions cérium  $Ce^{3+}$ , la température de traitement et l'atmosphère de recuit) sur les différentes propriétés de scintillation. À l'optique de cette étude, nous avons déterminé les paramètres de synthèse optimales qui permettent de réaliser des scintillateurs avec des propriétés de scintillation très performantes.

#### 4.2. Étude de l'effet de la concentration en ions cérium (Ce<sup>3+</sup>) sur les propriétés de scintillation de YAG : Ce<sup>3+</sup>

En général, il a été constaté que les propriétés optiques et de scintillation d'un scintillateur dépendent non seulement de type de l'ion dopant, mais aussi de sa concentration ainsi que du procédé utilisé pour sa fabrication. La limite de solubilité et de la concentration de l'ion activateur, pour une matrice particulière, affectent fortement les propriétés optiques et de scintillation [140]. La solubilité effective du cérium dans la matrice YAG a été étudiée dans le passé [141–143], elle dépend du procédé utilisé pour la synthèse des poudres de YAG : Ce. Saladino et al [141] ont préparé des poudres de YAG : Ce à partir de nitrates métalliques en utilisant de l'ammoniac comme précipitant. Ils ont observé la ségrégation de CeO<sub>2</sub> pour un niveau de dopage de 2 atm%. Kang et al [143] ont observé la présence d'oxyde de cérium même à un niveau de dopage de 1 atm% pour la poudre préparée par la méthode de pyrolyse par pulvérisation. D'autre part, une limite de solubilité du cérium, aussi élevée que 7,5 atm% a été rapportée par Si-Jia et al [142] pour les poudres préparées par voie sèche conventionnelle « conventional dry route ». De même, une grande variation, allant de 0,2 à 2 atm% de dopage au cérium, a été rapportée pour la concentration d'extinction [104,144,145] dans les luminophores YAG :Ce. La concentration d'extinction dépend de la technique utilisée pour le traitement des poudres et elle diffère fortement pour les nano matériaux et les matériaux monocristal (Bulk) [140].

Cette partie de ce chapitre sera consacré à l'étude de l'effet de concentration de l'ion de cérium dans la matrice YAG sur les propriétés de scintillation de luminophore YAG : Ce synthétisé à l'échelle nanométrique par la méthode de sol gel. Pour cela, nous avons étudié l'effet de la concentration sur la résolution d'énergie, le rendement lumineux, le temps de déclin, le temps de montée et la résolution de temps en coïncidence CTR. Pour le faire, quatre détecteurs d'échantillon avec différents concentration ont été préparés comme il est indiqué au tableau IV.1. Pour simplifier, dans tout ce qui suit, les quatre échantillons préparés seront nommés YAG1, YAG2, YAG3 et YAG4, correspondant respectivement aux concentrations de 0.1 %, 0.5 %, 1 % et 2 % de l'ion Ce<sup>3+</sup>.

Tableau 4-1 : Échantillons des luminophores YAG : Ce<sup>3+</sup> avec différent concentrations

Y <sub>3-x</sub> Al <sub>5</sub> O <sub>12</sub> :Ce <sub>x</sub>	YAG1	YAG2	YAG3	YAG4
X (mol)	0.003	0.015	0.03	0.06
Quantité de Ce [mol%]	0.1	0.5	1	2

La figure IV.1 montre une photographie des poudres luminophores du YAG : Ce synthétisées à différentes concentrations et calcinées à 1000°C pendant 4 heures

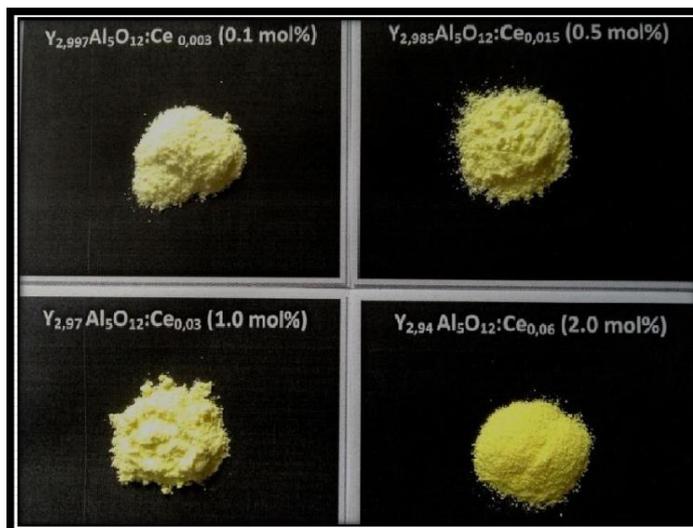


Figure 4-1 : Photographie des poudres luminophores du  $Y_{3-x}Al_5O_{12} : Ce_x$  [10].

La figure IV.2 présente une photographie sur les quatre détecteurs d'échantillon préparés à partir de luminophores YAG élaborés avec différentes concentrations. Tous les détecteurs d'échantillon étudiés dans ce travail ont été conçus selon la même procédure et respectent des dimensions identiques de  $20 \times 15 \times 1 \text{ mm}^3$ .

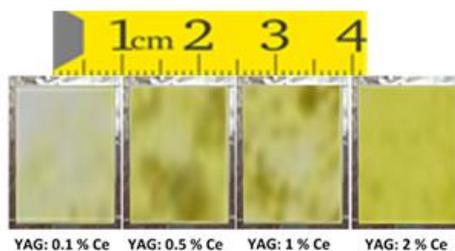


Figure 4-2: Échantillon détecteurs préparés

#### 4.2.1. Effet sur la résolution énergétique ( $R$ )

La résolution énergétique des quatre détecteurs d'échantillon a été mesurée en utilisant la chaîne d'instrumentation développée et présentée dans la sous-section III.2.2. Les spectres ont été mesurés en utilisant les mêmes conditions expérimentales (HT, gain, temps de mise en forme et le temps d'acquisition), la source de  $^{137}\text{Cs}$  a été utilisée pour l'excitation des échantillons. De plus, le même PMT et la même technique de couplage ont été utilisés,

ce qui permet de comparer les résultats de  $R$  en négligeant les termes  $R_M$  et  $R_p$  (résolution de transfert et résolution de multiplication, définis au chapitre 1 paragraphe I.3.5 ). Tout changement dans la valeur de la résolution d'énergie  $R$  sera donc dû au changement de la résolution intrinsèque de matériau. La figure IV.3 présente les spectres de la source radioactive  $^{137}Cs$  avec les différents échantillons.

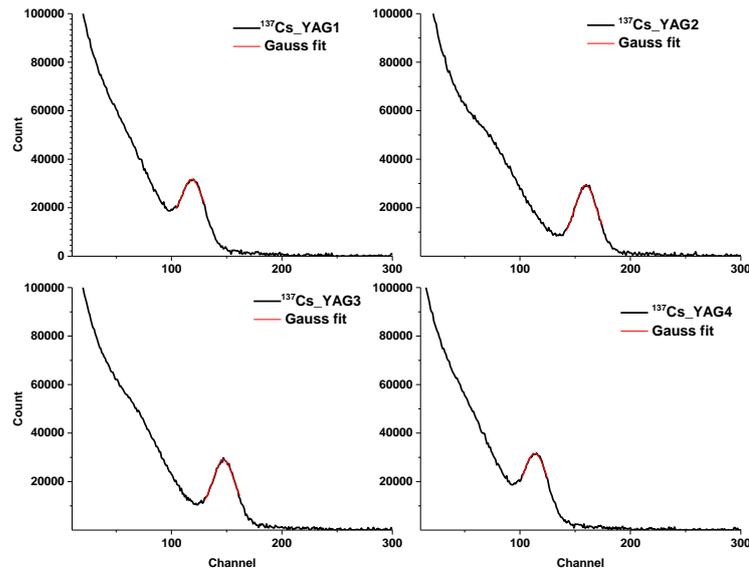


Figure 4-3 : Spectres d'énergie des quatre échantillons détecteur collectés avec la source de  $^{137}Cs$

L'ajustement des données par gaussien modèle, permet de calculer le FWHM et la position du photo-pic qui correspond à l'absorption totale des photons gamma dans le scintillateur YAG, la résolution d'énergie de chaque détecteur d'échantillon est calculée et présentée sur le tableau IV.2.

Tableau 4-2: Résolution énergétique des quatre échantillons mesurés à 662keV  $\gamma$ -  $^{137}Cs$

Échantillons	FWHM (%)	Position du Pic	Résolution énergétique $R$
YAG1 (0.1% Ce)	19.24	120.25	16
YAG2 (0.5% Ce)	19.32	160.95	12
YAG3 (1% Ce)	19.25	148.05	13
YAG4 (2% Ce)	19.65	115.62	17

➤ *Analyse et discussion des résultats*

La première remarque qu'on peut constater à partir des résultats obtenus est que la concentration en ion de  $Ce^{3+}$  a un effet significative sur la résolution intrinsèque  $E_i$  de YAG :  $Ce^{3+}$ , plus la concentration augmente jusqu'à 0.5 mol % la résolution s'améliore, mais la résolution commence à se dégrader en dépassant cette concentration (0.5 mol %) suivant l'allure présenté sur la Figure IV.4.

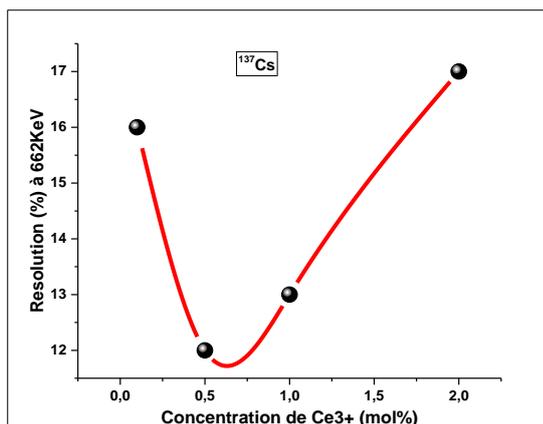


Figure 4-4 : Effet de la concentration sur la résolution d'énergie

En effet, l'augmentation de la concentration de cérium au-delà de 0.5 mol %, entraîne la diminution de la taille moyenne des cristallites et la détérioration de la cristallinité de la poudre YAG, cet effet peut être expliqué si l'on considère que les atomes de cérium ne remplacent pas les atomes d'yttrium et occupent des sites interstitiels résultant en un grand nombre de dislocations ou la formation d'un composé qui se développe avec le YAG:  $Ce^{3+}$  [10,146]. Ces défauts de la structure ont un effet négative sur la qualité de cristal, ce qui conduit à la dégradation de la résolution intrinsèque  $R_i$  de ce matériau (YAG) et par conséquence de sa résolution énergétique [147]. On peut d'ailleurs noter que le dopage de la matrice YAG avec un taux de 2 % (soit  $x = 0.06$ ) en ions  $Ce^{3+}$  conduit à une faible résolution [146].

#### 4.2.2. Effet sur le rendement lumineux (RL)

Les rendements lumineux (RL) de la scintillation des quatre échantillons ont été calculés en utilisant le système d'instrumentation présenté dans la sous-section III.2.2. La méthode de comparaison a été utiliser pour l'estimation de RL, un détecteur de référence NaI : Tl a été utilisé comme détecteur de référence. Les mesures des spectres ont été effectuées dans les mêmes conditions expérimentales, le temps de mise en forme a été réglé sur 3  $\mu s$  et la haute tension (HT) a été fixé à 1600v. Les positions des pics ont été calculée à partir des spectres

présentés sur la figure IV.5. Le gain de l'amplificateur dans le détecteur de référence (NaI: Tl) a été réglé sur 100 et 200 pour les détecteurs d'échantillon (YAGs).

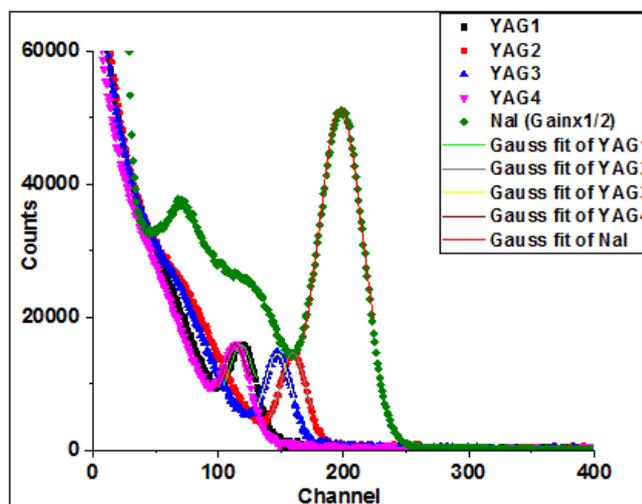


Figure 4-5 : Spectres d'énergie de la source de  $^{137}Cs$  couplés avec les détecteurs d'échantillon YAGs et le détecteur de référence NaI :Tl

De plus, le nombre de photoélectrons  $N_{phe}$  générés dans le photodétecteur pour un photon gamma dans le scintillateur est connu. En fait,  $N_{phe}$  peut être estimé comme :

$$N_{phe} = LY \times E_{\gamma} \times \eta_{det} \quad 4-1$$

Où, LY est le rendement lumineux du scintillateur (en photons/MeV),  $E_{\gamma}$  est l'énergie du rayon gamma incident en MeV (0,662 dans ce cas),  $\eta_{det}$  est l'efficacité quantique du photodétecteur sur le spectre d'émission du scintillateur pris comme 27,6 % pour le PMT GDB-4FF. Le tableau IV.3 montre les résultats obtenus

Tableau 4-3: Effet de la concertation sur le rendement lumineux des échantillons préparés

Échantillons	Position de Pic NaI	Position de Pic YAG	RL Relative (%)	RL (ph/MeV)	$N_{phe}$ @662 keV
YAG1 (0.1% Ce)	185.2	120.25	32.5	13000±3000	2323±536
YAG2 (0.5% Ce)	185.2	160.95	43.5	17400±3400	3110±600
YAG3 ( 1% Ce)	185.2	148	40	16300±2800	2913±500
YAG4 ( 2% Ce)	185.2	115.625	31.25	12500±2300	2234±411

➤ *Analyse et Discussion des résultats*

D'après la figure IV.5, nous pouvons observer que pour les deux premières valeurs de concentration en ions de cérium ( $x=0,003$  et  $0,015$ ), les pics dans les spectres se décalent vers

des canaux plus élevés à mesure que la concentration en ions de cérium augmente, ce qui indique que le rendement lumineux augmente avec l'augmentation de la concentration en  $Ce^{3+}$ . Cependant, à partir de la valeur  $x=0,015$  (0,5 mol%), le rendement lumineux diminue malgré l'augmentation de la concentration en  $Ce^{3+}$  et continue de diminuer en augmentant la concentration jusqu'à  $x=0,06$ .

D'un autre côté, la figure IV.6 illustre la variation du rendement lumineux en fonction de la concentration en ions de cérium. Nous avons observé que l'échantillon présentant les performances les plus élevées en termes de rendement lumineux, sous une excitation énergétique de 662 KeV, correspond à une concentration molaire de 0,5 mol% (soit  $x=0,015$ ). Au-delà de cette concentration, le phénomène d'auto-extinction par concentration se produit, ce qui entraîne une diminution du rendement des échantillons. En effet, à des concentrations élevées d'ions  $Ce^{3+}$ , la distance entre deux espèces  $Ce^{3+}$  est réduite, favorisant les interactions qui peuvent provoquer une migration d'énergie vers des défauts ou des impuretés, entraînant des processus de désexcitation non radiatifs. Il est intéressant de noter que le dopage de la matrice YAG avec un taux de 2% (soit  $x=0,06$ ) en ions  $Ce^{3+}$  conduit à un faible rendement lumineux.

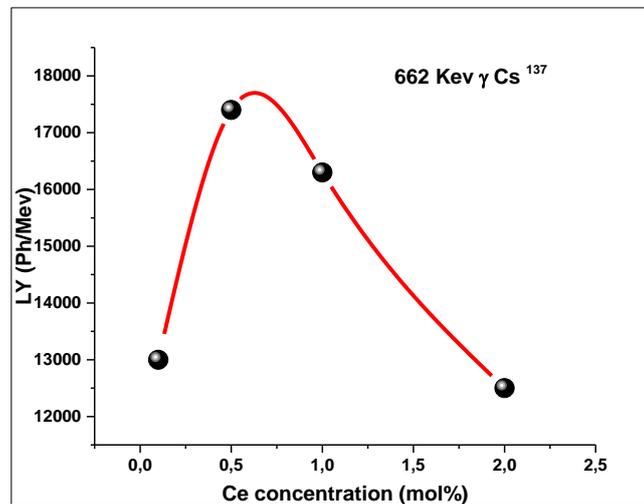


Figure 4-6 : Évolution de rendement lumineux des poudres YAG :  $Ce^{3+}$  en fonction du taux d'ions  $Ce^{3+}$  sous excitation gamma 662keV

#### 4.2.3. Effet sur le temps de déclin

Pour évaluer l'influence de la concentration en ions de  $Ce^{3+}$  sur la constante de temps de déclin, on a utilisé le système présenté dans la sous-section III.2.3, les échantillons ont été

préparés par la même méthode expliqué dans la section III.2.3.1, les quatre spectres ont été collectés dans les mêmes conditions expérimentale : (HT=1600v, gain =100, le temps de mise en forme est fixé à 10 ns, la fenêtre de coïncidence dans le module de coïncidence 2040 a été réglé à 1000 ns. Pour le module de TAC, l'intervalle de temps est réglé à 1500 ns, le temps de collection de spectres est égale à 4h ), la source de  $^{137}Cs - \gamma$  a été utilisé comme source d'excitation. La figure IV.7 montre les résultats obtenus

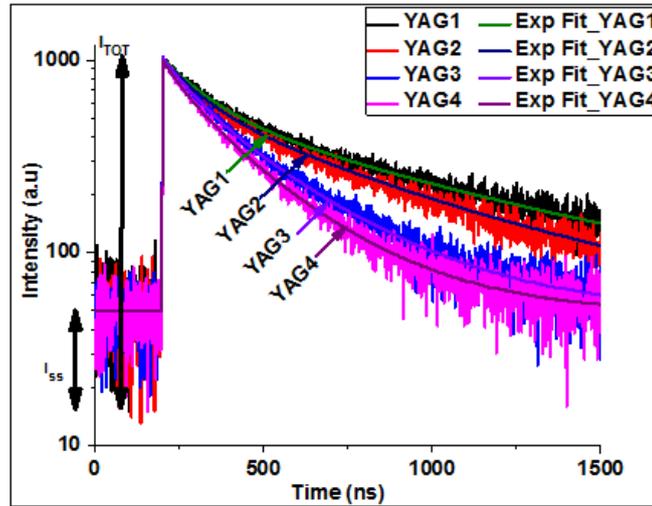


Figure 4-7 : Spectres de temps de déclin des quatre détecteurs d'échantillon YAGs

Le tableau IV.4 regroupe les paramètres d'ajustement par une double équation de décroissance exponentielle (Équation 3.2), les intensités des composants rapide et lent sont également déterminés. En plus, le coefficient  $\alpha$  a été calculé, ce dernier fournit des informations sur l'intensité de la lumière de scintillation restant après plusieurs dizaines à centaines de microsecondes après l'excitation par rayons  $\gamma$ . Sa valeur est liée à une augmentation du bruit de fond (background) dû à la « lumière lente » restant après les excitations précédentes [124]. Il est défini comme :

$$\alpha = \frac{I_{ss}}{I_{Tot}} * 100 (\%) \quad 4-2$$

Où :  $I_{ss}$  et  $I_{Tot}$  représentent respectivement les intensités des composants « super-slow » et « Total » dans les spectres de déclin.

Tableau 4-4 : Effet de la concentration sur le temps de déclin sous excitation gamma  $^{137}Cs$ 

Échantillon	Composante				Coefficient $\alpha$ (%)
	Rapide		Lente		
	$\tau_f$ (ns)	Intensité (%)	$\tau_s$ (ns)	Intensité (%)	
YAG1	134±1.6	36	769±5.3	64	3.3
YAG2	112±0.7	39	586±2.2	61	3.03
YAG3	96±1.8	41	319±0.9	59	3.01
YAG4	82±0.9	43	265±0.7	57	3.0

➤ *Analyse et discussion des résultats*

D'après les résultats obtenus on remarque que pour les quatre détecteurs d'échantillon de formulation  $Y_{3-x}Al_5O_{12} : Ce_x$  avec ( $x= 0,003, 0.015, 0.03$  et  $0.06$ ), la constante de déclin devient plus rapide avec l'augmentation de la concentration de l'ion de cérium, les courbes de décroissance semblent d'être représenté par deux composantes exponentiels (Équation 3.2), les temps de décroissance primaire (rapide) varient de 80 à 140 ns et les temps de décroissance secondaire (lent) varient de 300 à 800 ns.

Une raison possible de la décroissance plus rapide est qu'une concentration élevée en  $Ce^{3+}$  augmente le taux de transfert de l'hôte vers le  $Ce^{3+}$ , Un comportement similaire d'augmentation de la concentration de  $Ce^{3+}$  entrain une diminution du temps de décroissance a également été observé dans YAG: Ce (Céramique) [148],[149]. La figure IV.8 montre l'allure de temps de décroissance primaire (rapide) et secondaire (lent) en fonction de la concentration. La diminution du temps de décroissance de la scintillation peut provenir de l'effet d'extinction de la concentration dû à l'interaction ion-ion et à la réabsorption [146].

Il convient de souligner que l'échantillon YAG : 2%  $Ce^{3+}$  (YAG4) présentait une meilleure temps de décroissance de la scintillation par rapport au YAG: Ce monocristal et céramique étudiés dans les références [124,125].

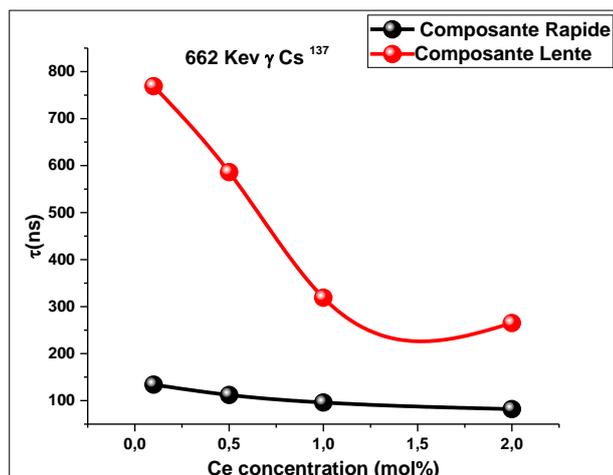


Figure 4-8 : Effet de la concentration sur les temps de déclin- composants rapide et lente

Les intensités relatives des composants rapide et lent dans les profils de temps de décroissance ont été également calculées et analysées. Comme le montre la Figure IV.9, on constate une augmentation de l'intensité de composant rapide au détriment de l'intensité de composant lent en fonction de l'augmentation de la concentration de  $Ce^{3+}$ , cela est due à la diminution de l'effet des défauts qui agissent comme un centre de relaxation non radiatives.

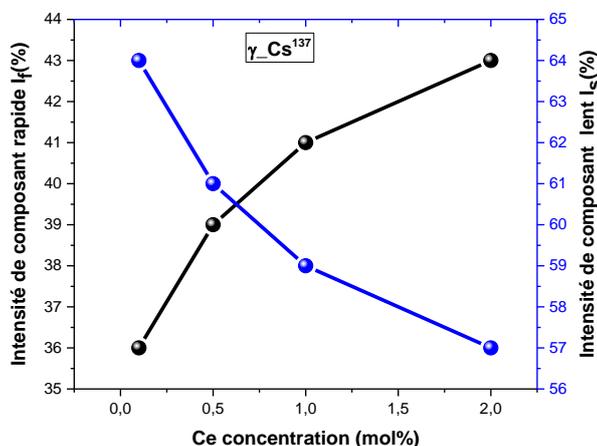


Figure 4-9 : Évolution des intensités des composants rapide et lent de YAG :  $Ce^{3+}$  sous excitation  $\gamma$ -662KeV en fonction de la concentration de  $Ce^{3+}$

Pour le paramètre  $\alpha$ , les valeurs obtenus pour différents concentrations de  $Ce^{3+}$  sont présentées sur le tableau IV.4, on a constaté une diminution de ce dernier en fonction de l'augmentation de la concentration, Cette diminution peut indiquer la diminution de la

contribution de l'ancienne composante lente et l'amélioration des propriétés de scintillation due au phénomène d'extinction de la concentration.

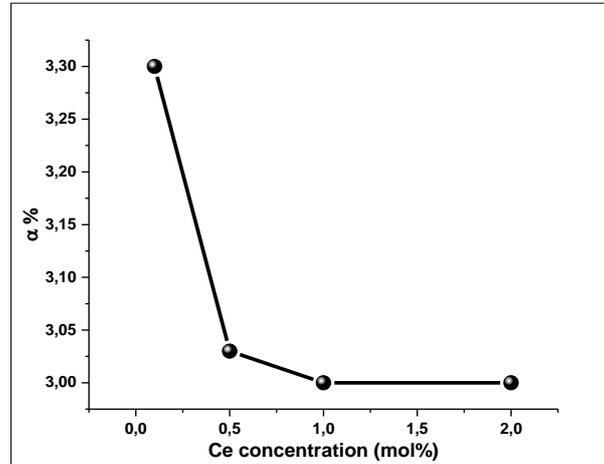


Figure 4-10 : Évolution de coefficient  $\alpha$  en fonction de la concentration

#### 4.2.4. Effet sur le temps de montée

Le temps de montée  $\tau_r$  d'un détecteur correspond au temps nécessaire pour que le signal d'impulsion passe de 10 % à 90 % de sa valeur maximale. Ce temps est déterminé par la durée de collecte de la charge dans le détecteur lui-même et ne dépend pas des propriétés du circuit externe ou de la charge. Il existe une relation entre le temps de montée, la résolution temporelle du détecteur et la concentration de dopant : une diminution du temps de montée permet d'améliorer la résolution temporelle du détecteur. Cette résolution temporelle s'améliore également avec l'augmentation de la concentration de dopant, mais cette amélioration devient moindre au fur et à mesure que la concentration de dopant augmente [102]. Dans cette section on a étudié l'influence de la concentration de l'ion de cérium sur le temps de montée, le temps de montée des échantillons avec différentes concentrations de  $Ce^{3+}$  a été calculé en utilisant les données présentées sur la figure IV.7 et l'équation 3.2. Le tableau IV.5 résume les résultats obtenus

Tableau 4-5: Temps de montée des échantillons

Échantillons	Temps de Monté $\tau_r$ (PS)
YAG1 (0.1% Ce)	2401±18
YAG2 (0.5% Ce)	2302±27
YAG3 (1% Ce)	2083±39
YAG4 (2% Ce)	2054±39

➤ *Analyse et discussion des résultats*

On a observé que le temps de montée  $\tau_r$  diminuait lorsque la concentration de  $Ce^{3+}$  augmentait. Cela peut être dû au fait que la présence d'ions  $Ce^{3+}$  permet une plus grande efficacité de collecte de charges, réduisant ainsi le temps nécessaire pour que le signal d'impulsion atteigne son amplitude maximale. De plus, la diminution du temps de montée est généralement associée à une amélioration de la résolution temporelle du détecteur, ce qui peut également être bénéfique pour des applications telles que la tomographie par émission de positons (TEP) ou la spectrométrie gamma.

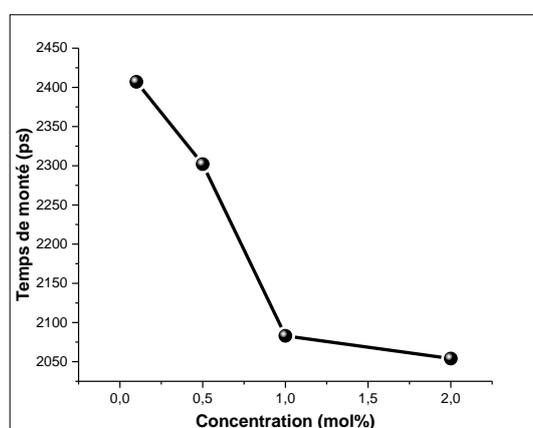


Figure 4-11 : Effet de concertation sur le temps de monté

#### 4.2.5. Effet sur la résolution temporelle

La concentration en cérium des luminophores de YAG a un impact sur la distribution temporelle des photons de scintillation. Comme l'ont démontré les recherches de Glodo et al. [102], les différentes constantes de temps de scintillation varient en fonction de la concentration en cérium. Plus précisément, à mesure que la concentration en cérium augmente, le temps de montée de la distribution temporelle des photons diminue (voir Figure IV.12), ce qui entraîne une amélioration significative de la résolution temporelle.

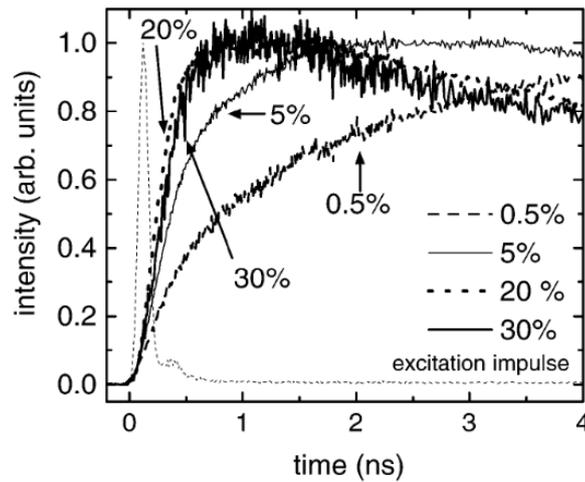


Figure 4-12 : Partie croissante de la distribution temporelle des photons de scintillation pour différents dopages en cérium (tiré de Glodo et al. [102]).

Nous avons mesuré la résolution temporelle (CTR) des quatre détecteurs d'échantillon en utilisant le système de mesure en coïncidence développé dans l'expérience décrite dans la sous-section III.2.4 Les résultats obtenus sont présentés sur figure IV.13

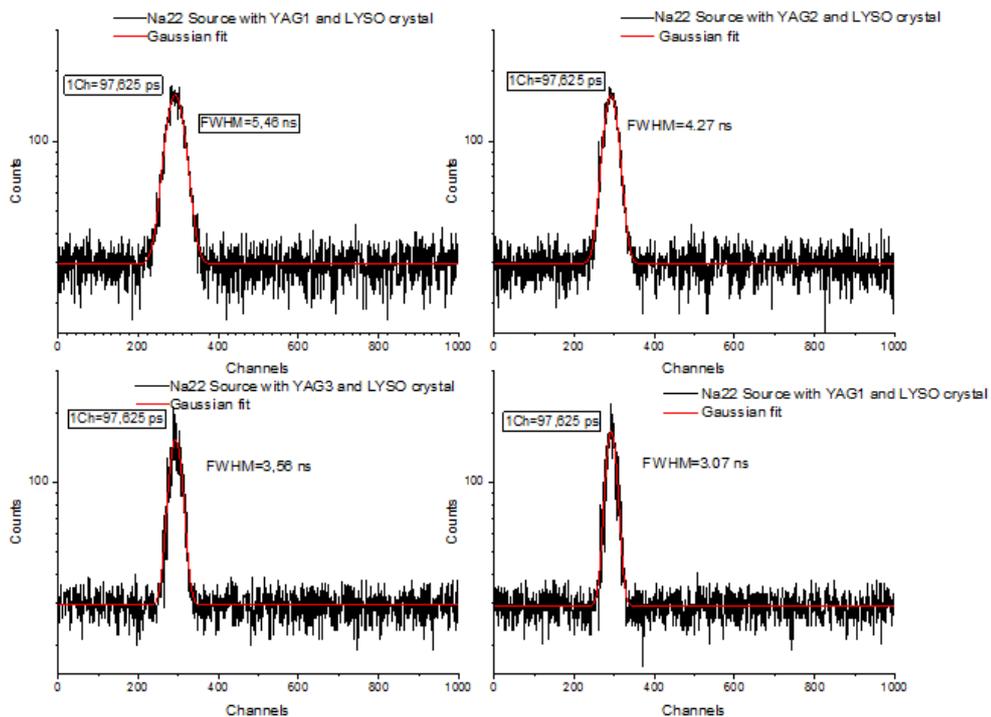


Figure 4-13 : Spectres de la résolution temporelle de YAG dopé avec différents concentration

Tableau 4-6 : Résolution temporelle (CTR) mesurées par le YAG : Ce avec différentes concentrations

Échantillons	Résolution temporelle (CTR) (ns)
YAG1 (0.1% Ce)	5.46±0.5
YAG2 (0.5% Ce)	4.27±0.9
YAG3 (1% Ce)	3.56±0.2
YAG4 (2% Ce)	3.07±0.3

➤ *Analyse et discussion des résultats*

D'après les résultats obtenus on constate que l'augmentation de la concentration en ion de cérium entraîne une diminution de la résolution temporelle. Figure IV.14. On peut voir que la concentration de  $Ce^{3+}$  et la position cristallographique dans la matrice hôte YAG peuvent influencer l'intensité de la luminescence ainsi que les temps de montée et de décroissance. Par conséquent, le contrôle du contenu en  $Ce^{3+}$  avec une structure de YAG bien ordonné est une tâche très importante.

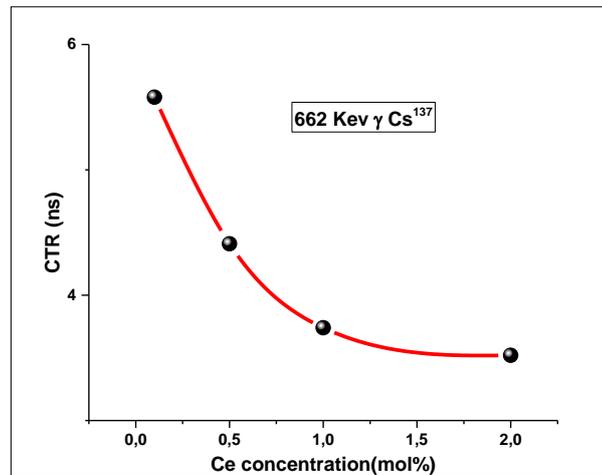


Figure 4-14 : Effet de la concentration sur la Résolution temporelle CTR

En plus, il est connue que la CTR est proportionnel au  $\sqrt{\tau_r \tau_d / N_{ph}}$ , dans la figure IV.15, on a tracé cette relation pour les échantillons de YAG : Ce avec différents concentration, cette dernière a été bien ajusté avec une fonction linéaire, sa pente présente une valeur de 29.88. On pense que  $\tau_r \cdot \tau_d$  est compensé par  $N_{ph}$  lorsqu'on augmente la concentration de  $Ce^{3+}$ .

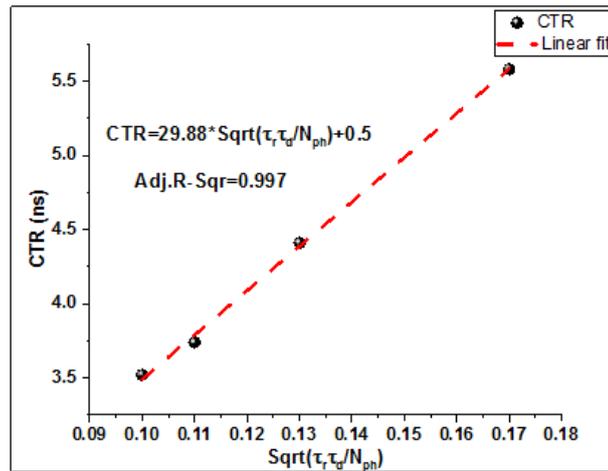


Figure 4-15 : Dépendance ente CTR et  $\sqrt{\tau_r \tau_d / LY}$  pour le nano scintillateur YAG dopé  $Ce^{3+}$

#### 4.3. Étude de l'effet de traitement thermique sur les propriétés de scintillation de YAG : $Ce^{3+}$

Un traitement de recuit thermique est toujours appliqué aux scintillateurs pour améliorer leur qualité de scintillation. Des expériences de recuit systématique des cristaux  $Lu_2Si_2O_7: Ce$  sous différentes températures et différentes atmosphères ont été réalisées par Feng et al [150], ils ont trouvé une forte augmentation de l'intensité de luminescence du  $Lu_2Si_2O_7: Ce$  recuit dans l'air au-dessus de 1400 °C, qui était due au remplissage des lacunes par la diffusion d'atomes d'oxygène. C.wang et al [151] ont étudié les effets de température de recuit des cristaux GYGAG dans différentes atmosphères, les résultats montrent que l'effet de traitement thermique, principalement dans l'air (en dessous de 1200 °C), peut améliorer les performances de scintillation de GYGAG : Ce en augmentant son efficacité de scintillation.

Dans cette partie de ce chapitre, nous nous sommes intéressés à l'influence de la température du traitement de nanoscintillateur YAG : Ce sur les propriétés de scintillation. Pour cela, nous avons préparés six détecteurs d'échantillon (Figure IV.16) à partir de luminophore  $Y_{2,985}Al_5O_{12}: Ce_{0,015}$ , synthétisé par la méthode de sol gel avec une concentration de 0.5 mol% (Le pourcentage de cérium conduisant aux meilleures rendement) et calcinés dans l'air à différentes températures (800,850,950,1000,1050 et 1150° C) pendant quatre heures 4h. L'influence de température de traitement sur propriétés structurales et de luminescence ont été étudié dans les travaux de recherche antérieurs [10],[152].



Figure 4-16 : Échantillons préparés pour l'étude de l'effet thermique

On remarque que les échantillons recuits à 800 et 850° C ont une couleur blanche, tandis que les échantillons recuits à 950, 1000, 1050 et 1150° C ont une couleur jaune. Pour simplifier, les échantillons avec différentes températures de recuit ont été nommés YAG800, YAG850, YAG950, YAG1000, YAG1050 et YAG1150.

#### 4.3.1. Effet sur la résolution énergétique

Pour étudier l'effet de température de recuit sur la résolution énergétique nous avons utilisé le système d'instrumentation présenté dans la sous-section III.2.2, Les spectres énergétique des échantillons  $Y_{2,985}Al_5O_{12} : Ce_{0,015}$  recuites à différentes températures dans l'intervalle de 800 à 1150 °C sous excitation  $\gamma$  662 KeV émis par la source de  $^{137}Cs$  sont présentés sur la figure IV.17.

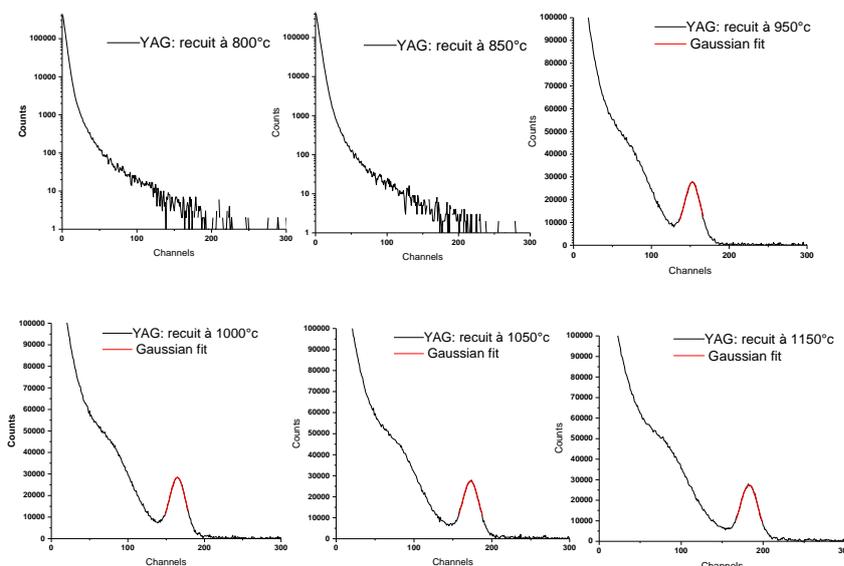


Figure 4-17 : Spectres énergétique des échantillons détecteurs recuite à différents température

Le tableau IV.7 résume les résultats obtenus

Tableau 4-7: Effet de la température de recuit sur la résolution en énergie du YAG : 0,5 % Ce

Température de recuit	FWHM	Position du Pic	Résolution d'énergie (%)
T=800°C	--	--	--
T=850°C	--	--	--
T=950°C	24.51	153.22	16
T=1000°C	19.32	160.95	12
T=1050°C	19.08	173.54	11
T=1150°C	18.41	184.14	10

➤ *Analyse et discussion des résultats*

La figure IV.18 montre l'effet de traitement thermique sur la résolution énergétique, on a constaté que la résolution des échantillons YAG :0.5 % Ce a été amélioré de 16% pour T=1000°C à 10% pour T=1150°C, ce résultat peut être expliqué par la taille des cristallites de YAG : Ce obtenus pour chaque température. En effet, les études menées sur de la microstructure de YAG : Ce synthétisé sous différentes températures de recuit ont montré l'amélioration du degré de cristallisation et l'augmentation des tailles des cristallites avec l'augmentation de la température de recuit [10], ce qui permet la réduction des défauts de surface qui sont très critiques à l'échelle nanométrique et par conséquent l'amélioration de la résolution intrinsèque de matériau. En outre, à des basses températures de recuit le réseau cristallin est assez désordonné et les centres des piégés de la lumière (comme NO, OH) sont relativement importantes [10], ce qui conduit à la dégradation de la résolution énergétique.

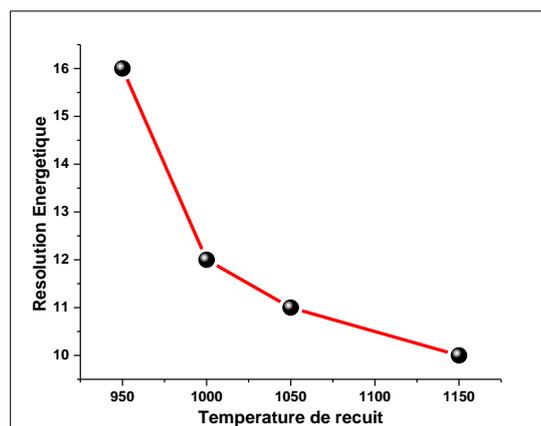


Figure 4-18 : Effet de température de recuit sur la résolution énergétique

### 4.3.2. Effet sur le rendement lumineux (RL)

Pour étudier l'effet de température sur le rendement lumineux des détecteurs d'échantillon, le système d'instrumentation décrit dans la sous-section III.2.2 a été utilisé, un détecteur à scintillation NaI : Tl a été utilisé comme référence pour estimer le RL des échantillons en utilisant la méthode de comparaison. La figure IV.19 présente les spectres d'énergie des échantillons, collecté sous excitation  $\gamma$ -662 keV de  $^{137}Cs$ .

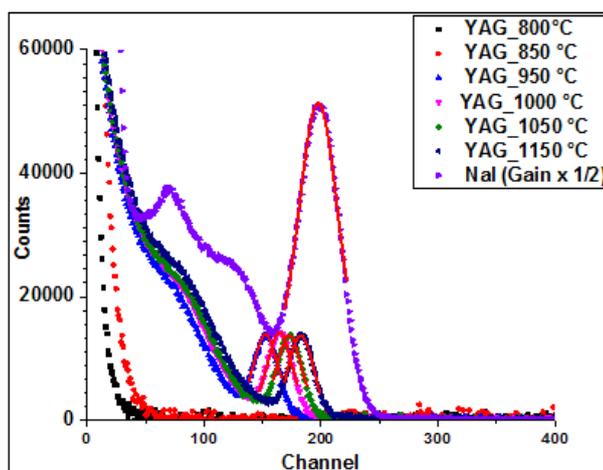


Figure 4-19 : Effet de température de recuit sur le rendement lumineux

Le tableau IV.8 résume les résultats obtenus

Tableau 4-8 : Effet de la température de recuit sur le rendement lumineux de YAG : 0,5 % Ce

Température de recuit	Position du Pic	RLY (%)	Rendement Lumineux ph/MeV	$N_{phe}$ @662 keV
T=800°C	--	--	--	--
T=850°C	--	--	--	--
T=950°C	153.44	39	15800±3200	2824±570
T=1000°C	168.35	43.5	17600±3500	3145±625
T=1050°C	170.52	44	17800±3600	3181±645
T=1150°C	181.55	47	18900±3800	3378±680
NaI : Tl	193.58	100	40000±8000	7150±1429

#### ➤ Analyse et discussion des résultats

La figure IV.20 montre l'effet de traitement thermique sur la taille des cristallites et le rendement lumineux des détecteurs d'échantillon, on remarque l'augmentation de rendement avec l'augmentation de température de recuit. Guerbous et al. [152] ont constaté que la taille

des cristallites augmentent de 42 à 58 nm avec l'élévation de la température de recuit de 950 à 1150 °C pour le YAG : Ce<sup>3+</sup> nanopoudre. Cette augmentation a permis d'améliorer la cristallinité de matériau et de diminuer les défauts de surface qui agissent comme centres de transition non radiatives et empêchent l'incorporation parfaite des ions Ce<sup>3+</sup> dans le réseau Y. Donc, lorsque la température de calcination est augmentée, cela entraîne une augmentation de la taille des cristallites, ce qui conduit par conséquent à une augmentation du rendement lumineux (RL) du nanoscintillateur YAG : Ce<sup>3+</sup> [146]. De plus, il est à noter que l'échantillon YAG1150 présentait un rendement lumineux comparable à celui du YAG: Ce monocristal.

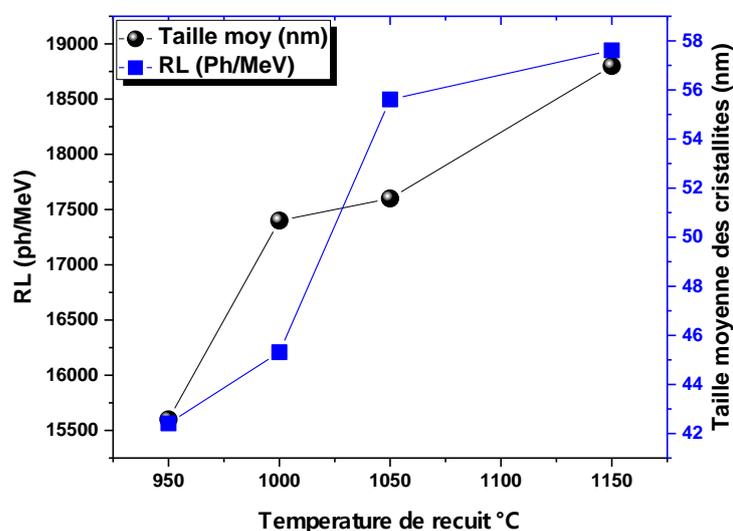


Figure 4-20 : Relation entre la taille des cristallites et le RL de YAG :Ce en fonction de température de calcination

### 4.3.3. Effet sur le temps de déclin et temps de monté

Dans cette partie, la méthode de coïncidence retardée a été utilisée pour la mesure de temps de décroissance de la scintillation des échantillons étudiés, cette méthode est basée sur la technique de comptage de photons uniques corrélée dans le temps dans lequel l'énergie déposée dans les deux détecteurs (Start et Stop) a été mesurée [123].

L'objectif visé à travers cette étude est d'évaluer l'effet du traitement thermique sur la constante de déclin. Pour cela, nous avons utilisé les échantillons décrits dans la section IV.3. Le système de mesure utilisé est celui décrit dans la sous-section III.2.3, et les résultats obtenus sont présentés dans la figure IV.21.

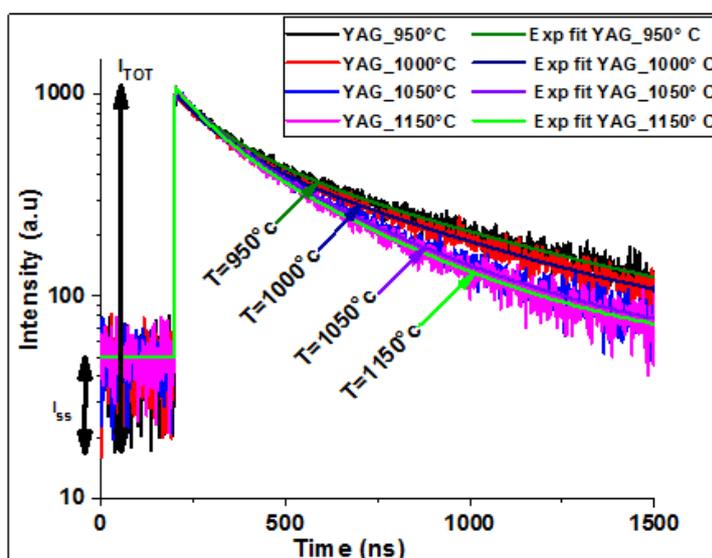


Figure 4-21 : Spectres de temps de décroissance des détecteurs d'échantillons calcinés à différentes température

Les courbes de décroissance de tous les échantillons ont été ajustées en utilisant une fonction double exponentielle, décrite par l'équation :

$$I(t) = A_f e^{-t/\tau_f} - A_r e^{-t/\tau_r} + A_s e^{-t/\tau_s} + y_0 \quad 4-3$$

L'ajustement des données expérimentaux, nous a permis de déterminer les temps de décroissance primaire et secondaire ainsi que le temps de montée des échantillons en étude. En plus, le paramètre  $\alpha$  a été déterminé, le tableau IV.9 résume les résultats obtenus.

Tableau 4-9 : Résumé de déclin des impulsions de scintillation en fonction de la température de recuit

Échantillons	Composantes				Temps de monté (ns)	Coefficient $\alpha$ (%)
	Rapide		Lente			
	$\tau_f$ (ns)	Intensité (%)	$\tau_s$ (ns)	Intensité (%)		
YAG_800°C	--	--	--	--	--	--
YAG_850°C	--	--	--	--	--	--
YAG_950°C	131±1.9	37	664±2.7	63	2.7±0.43	3.5
YAG_1000°C	113±1.6	39	588±1.4	61	2.4±0.22	3.0
YAG_1050°C	110±1.5	40	420±1.3	60	2.2±0.17	3.1
YAG_1150°C	105±0.9	42	396±1.1	58	2.0±0.15	3.1

➤ *Analyse et discussion des résultats :*

Les résultats obtenus montrent une diminution de la constante de temps de déclin pour les deux composants (rapide et lent) avec l'augmentation de la température de recuit. En effet, l'augmentation de la température de calcination permet de synthétiser des nanoscintillateurs avec une taille de cristallite relativement grande et un réseau cristallin bien ordonné, avec moins d'impuretés [152]. Cette amélioration de la qualité de la structure cristalline explique la décroissance plus rapide des photons lors du processus de recombinaison. Les figures IV.22 et IV.23 montrent respectivement, le déclin des composantes rapide et lent de nanoscintillateur YAG : Ce en fonction de la température de recuit.

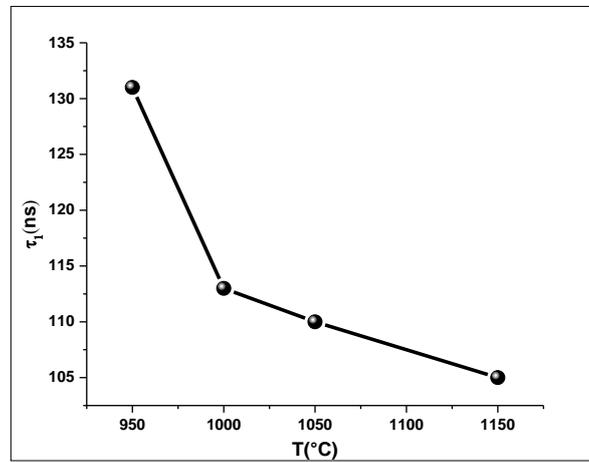


Figure 4-22 : Effet de traitement thermique sur la composante de décroissance rapide

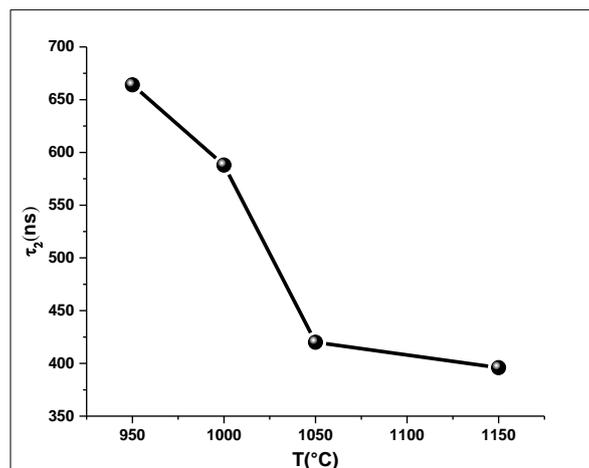


Figure 4-23 : Effet de traitement thermique sur la composante de décroissance lente

La Figure IV.24 décrit l'évolution des intensités relative aux composantes rapide et lente en fonction de la température de calcination, on constate une augmentation de l'intensité de composante rapide au détriment de l'intensité de composante lente en fonction de température de traitement, donc l'augmentation de température de traitement permet aussi d'augmenter l'intensité relative au composante rapide et de diminuer l'intensité relative au composante lente, cela revient de la diminution des centres de piégeage des porteurs de charge libres en augmentant la température de recuit.

Pour le temps de montée, les résultats obtenus pour les échantillons élaborés aux différents températures de recuit sont regroupées sur le tableau IV.9. On remarque que ce dernier diminue lorsque la température de traitement augmente.

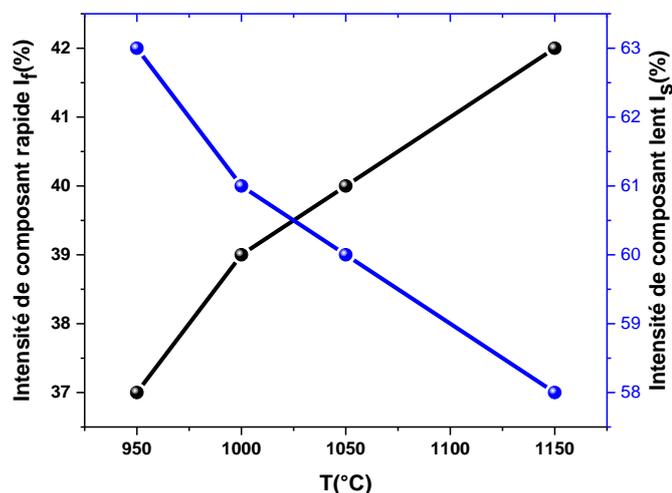


Figure 4-24 : Évolution des intensités des composantes rapide et lente de YAG : 0.5%  $Ce^{3+}$  sous excitation  $\gamma - Cs^{137}$  en fonction de température de traitement

#### 4.3.4. Effet sur la résolution temporelle

Cette section est dédiée à l'étude de l'effet de la température de recuit des poudres YAG :0.5% Ce sur la résolution temporelle (CTR). La CTR est fortement influencée par le temps de montée, qui a une incidence directe sur la qualité de la résolution temporelle. Nous avons constaté précédemment que le temps de montée diminue à mesure que la température de recuit augmente. Donc, d'après Glodo et al. [102] la résolution CTR sera affecté.

Pour mesurer la (CTR), nous avons utilisé des détecteurs d'échantillons préparés à partir de poudres synthétisées à différentes températures de recuit (800°C, 850°C, 950°C, 1000°C, 1050°C et 1150°C). Pour le système d'instrumentation, nous avons opté pour le système de mesure en coïncidence présenté dans le paragraphe III.2.4. Le MCA a été configuré pour collecter un spectre sur 1024 canaux, avec une plage de temps de TAC réglée à 100 ns, un temps d'intégration de 10 ns, un temps de différentiation de 20 ns et une haute tension (HT) fixée à 1600V pour les deux détecteurs. Les spectres obtenus sont présentés dans la figure IV.25."

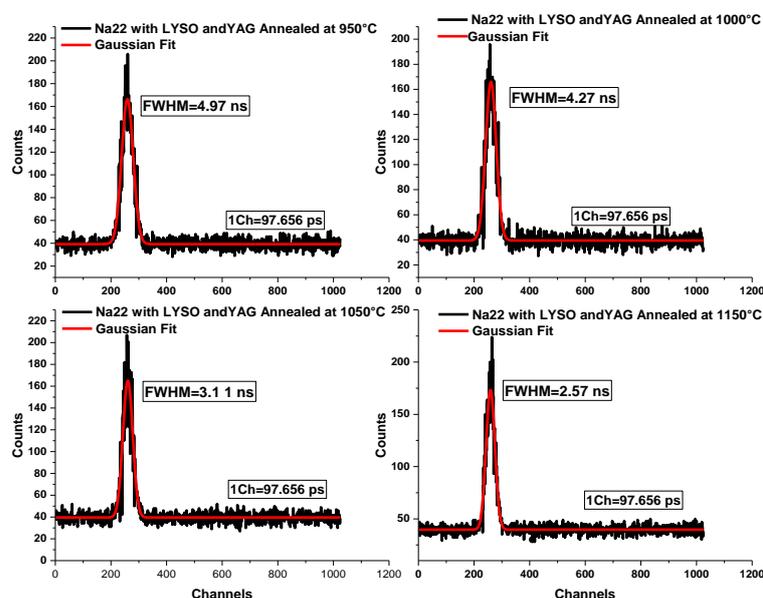


Figure 4-25 : CTR mesurées pour différentes températures de recuit

Le tableau IV.10 résume les valeurs de la CTR en fonction de température de recuit

Tableau 4-10 : CTR des échantillons YAG :  $Ce^{3+}$  calcinées aux différents températures

Échantillons	Résolution temporelle (CTR) (ns)
YAG_950°C	4.97±0.3
YAG_1000°C	4.27±0.7
YAG_1050°C	3.11±0.1
YAG_1150°C	2.57±0.3

#### ➤ Analyse et discussion des résultats

D'après les résultats obtenus, on a constaté que la CTR est affectée par la température de recuit. En effet, cette variation a été attendue de fait que ces paramètres dépendent de RL, temps de montée et temps de déclin, tous ces propriétés sont affectées par la variation

de température de traitement. L'échantillon recuit à 1150 °C présente la meilleure valeur de CTR, cet échantillon a présenté aussi le meilleur RL et temps de déclin. L'augmentation de température de recuit a permis d'élaborer un matériau YAG : Ce avec un réseau cristallin bien ordonné et d'augmenter la taille des cristallites ce qui peut réduire les impuretés et les défauts de surface et améliorer les propriétés de scintillation des nano scintillateurs YAG :  $Ce^{3+}$ .

#### 4.4. Étude de l'effet de l'atmosphère de recuit sur les propriétés de scintillation de YAG : $Ce^{3+}$

Dans cette partie, nous avons étudié l'effet de l'atmosphère de recuit sur les différentes propriétés de scintillation de luminophore YAG : 0.5 %  $Ce^{3+}$  calciné à 1000°C, ces propriétés peuvent être affectées par l'atmosphère de traitement, ce dernier influence la concentration des lacunes d'oxygène et le degré de réduction de  $Ce^{4+} \rightarrow Ce^{3+}$  dans la matrice YAG et par conséquent le rendement lumineux de scintillation. En plus, l'ion de cérium à l'état tétravalent  $Ce^{4+}$  permet de créer une voie supplémentaire de recombinaison radiative rapide dans le processus de scintillation avec un effet positif qui consiste à l'accélération de la réponse de scintillation et une augmentation de RL [153]. Dans cette étude, trois échantillons à base de luminophore YAG : 0.5 %  $Ce^{3+}$  recuit à 1000 °C ont été préparés, le premier échantillon a été recuit sous gaz inerte d'azote, le deuxième échantillon a été recuit sous air et le troisième a été recuit sous vide, la Figure IV.26 présente un aperçu sur les échantillons préparés.

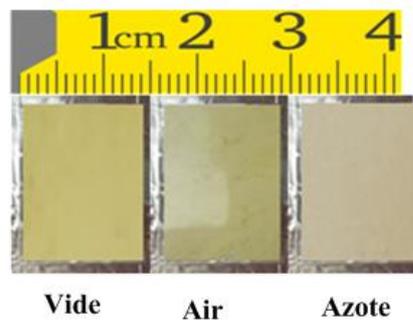


Figure 4-26 : Échantillons préparés pour l'étude de l'effet de l'atmosphère de recuit

Pour simplifier, dans ce qui suit, les détecteurs d'échantillon préparés seront désignés par les noms YAG\_Nitrogen, YAG\_Air et YAG\_Vacuum en fonction de l'atmosphère de recuit utilisée lors du processus de synthèse.

#### 4.4.1. Effet sur la résolution énergétique

Pour étudier l'effet de l'atmosphère de recuit sur la résolution énergétique, nous avons utilisé l'expérience décrite dans la section III.2.2, Les spectres énergétique de la source  $^{137}Cs$   $-\gamma$  662 keV ont été collectés en utilisant les détecteurs d'échantillon  $Y_{2,985}Al_5O_{12} : Ce_{0,015}$  calcinés à 1000 °C aux différents atmosphères. La Figure IV.27, présente les spectres obtenus.

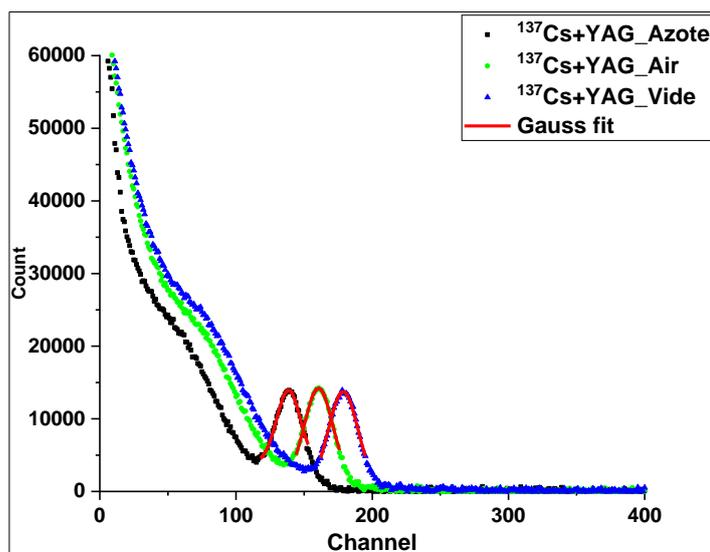


Figure 4-27: Spectres énergétique des détecteurs d'échantillon calcinés à 1000°C sous différentes atmosphères et irradiée par les rayons  $\gamma$ -662 KeV

L'ajustement des données permet de mesurer les positions et la FWHM (Full Width Half Maximum) des photo-pics. La résolution d'énergie du YAG : 0.5%  $Ce^{3+}$  calciné à différentes atmosphères a été déterminée et résumé dans le tableau IV.11. La Figure IV.28 montre l'effet de l'atmosphère sur la résolution d'énergie du YAG :  $Ce^{3+}$ .

Tableau 4-11 : Effet de l'atmosphère de recuit sur la résolution énergétique

Échantillons	FWHM	Position des pics	Résolution d'énergie (%)
YAG_Azote	27.71	138.54	20
YAG_Air	19.27	160.56	12
YAG_Vide	19.65	178.71	11

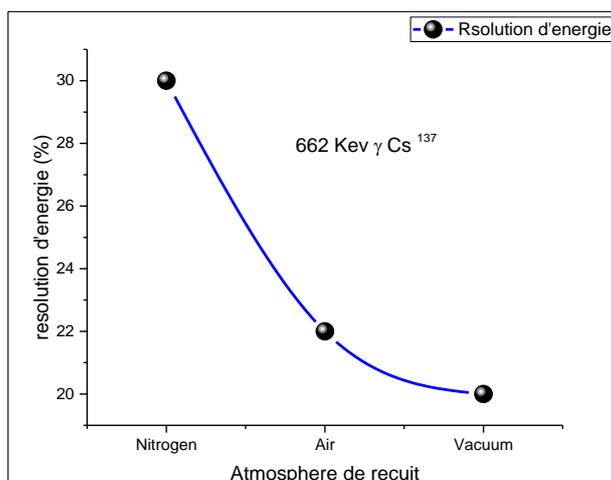


Figure 4-28 : Effet de l'atmosphère de recuit sur la résolution énergétique de YAG :  $Ce^{3+}$  nanoscintillateur

#### ➤ Analyse et discussion des résultats

La résolution d'énergie  $R$  des trois échantillons a été calculée, on constate que l'échantillon recuit sous vide présente la meilleure résolution par rapport aux échantillons recuits à l'air et à l'azote. Les résolutions des trois détecteurs d'échantillon ont été mesurées avec les mêmes paramètres expérimentaux (HV, gain, temps de mise en forme...), donc tout changement de la valeur de  $R$  sera principalement dû au changement de la résolution intrinsèque de matériaux. Le facteur le plus important qui peut altérer la résolution d'énergie est la non-proportionnalité du rendement lumineux. Ce dernier est influencé par de nombreux quanta secondaires gamma et X et par diffusion d'électrons secondaires. Une étude suggère une corrélation entre le taux d'impuretés dans le cristal et la résolution intrinsèque, un cristal pur peut donner une meilleure résolution en énergie [147].

En effet, la calcination sous vide peut aider à obtenir un luminophore YAG avec une taille de cristallite plus grande que celle obtenue sous des atmosphères d'air et d'azote [154], En réalité, la calcination sous vide permet de réduire la pression et d'éliminer les gaz résiduels, favorisant ainsi la croissance des grains de cristal pendant le processus de calcination. Cette méthode peut donc améliorer la qualité cristalline du matériau et réduire les contributions liées aux réponses de la non-proportionnalité et la non-homogénéité [107].

#### 4.4.2. Effet sur le rendement lumineux RL

Pour étudier l'effet de l'atmosphère de recuit sur le rendement lumineux des échantillons, nous avons utilisé l'expérience présentée dans la section III.2.2, un détecteur à scintillation NaI : Tl a été utilisé comme référence et la source radioactive de  $^{137}Cs$  a été utilisée pour l'irradiation des échantillons. Pour les paramètres de l'expérience, le temps de mise en forme a été réglé à 3  $\mu s$ , la haute tension HT=1600v, le gain pour le détecteur de référence a été fixé à 100 et pour les échantillons à 200. La Figure IV.29 présente les spectres d'énergie des échantillons étudiés.

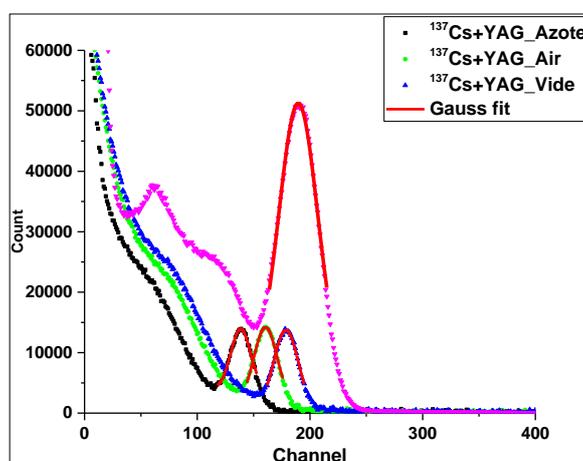


Figure 4-29 : Spectres énergétique des détecteurs d'échantillon calcinés à 1000°C sous différentes atmosphères et le détecteur de référence sous irradiation  $\gamma$ -662 KeV

Le RL relative des détecteurs d'échantillon peut être déterminée en comparant les positions des pics des échantillons avec celle de référence. Le rendement lumineux de NaI:Tl a été estimé à  $40\,000 \pm 8\,000$  ph/MeV [112], d'où le rendement lumineux absolu a été calculé. Le tableau IV.12 résume les résultats obtenus.

Tableau 4-12 : Effet de l'atmosphère de recuit sur le rendement lumineux de YAG : % Ce

Échantillon	Position de pic	RLY (%)	Rendement lumineux absolue (Ph/MeV)	$N_{phe}$ @662 keV
YAG_Azote	138.54	36	$14500 \pm 2600$	$2591 \pm 464$
YAG_Air	162.56	43	$17400 \pm 3400$	$3110 \pm 607$
YAG_Vide	178.71	47	$18800 \pm 3600$	$3360 \pm 645$
NaI :Tl	189.55	100	$40000 \pm 8000$	$7149 \pm 1429$

➤ *Analyse et discussion des résultats*

D'après les résultats obtenus, on constate que l'atmosphère de recuit a un effet important sur le rendement lumineux de scintillation RL [107], le détecteur d'échantillon préparé à partir de nanopoudre YAG :  $Ce^{3+}$  recuit sous vide présente un RL élevé par rapport aux deux autres échantillons (air et azote). Ce résultat pourrait être dû à l'effet de la taille des cristallites, le recuit sous vide permet des tailles plus grandes par rapport le recuit sous azote et sous air [154]. Pour le YAG:  $Ce^{3+}$  synthétisé par la méthode sol-gel, une forte intensité de photoluminescence (PL) a été observée pour les grandes tailles de cristallites [152]. Dans cette étude, le même comportement a été observé pour le rendement lumineux de scintillation des nano-poudres YAG :  $Ce^{3+}$ . De plus, le vide est une atmosphère propre, ce qui permet de fournir des conditions de réaction propres, d'où la calcination dans une telle atmosphère permet d'obtenir des nanophosphores YAG :  $Ce^{3+}$  avec une densité de défauts relativement réduite, ces défauts agissent comme des centres de relaxation non radiatifs et empêchent l'incorporation parfaite des ions  $Ce^{3+}$  dans le site Y [154].

#### 4.4.3. Effet sur la constante de déclin

Dans cette section, nous avons mesuré le temps de déclin de nanoscintillateur YAG : 0.5% Ce calciné à 1000°C sous différentes atmosphères. L'objectif est d'étudier l'effet de l'atmosphère de recuit sur la constante de déclin, pour cela nous avons utilisé les échantillons préparé et présenté dans la section IV.4, la méthode de mesure est la même que celle décrite dans le paragraphe III.2.3, la Figure IV.30 montre les résultats obtenus.

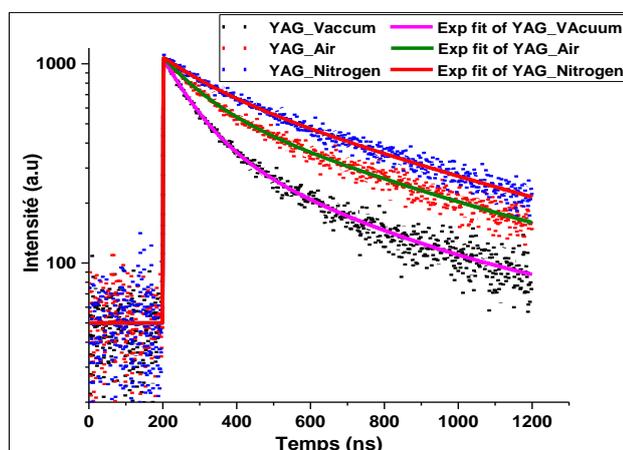


Figure 4-30 : Spectres de temps de déclin des échantillons calcinés sous différents atmosphères

Le tableau ci-dessous regroupe les résultats de l'effet de l'atmosphère sur la constante de déclin :

Tableau 4-13 : Temps de décroissance de la scintillation du YAG :  $Ce^{3+}$  sous différentes atmosphères de recuit

Échantillons	Composantes				Coefficient $\alpha$ (%)
	Rapide		Lente		
	$\tau_1$ (ns)	Intensité (%)	$\tau_2$ (ns)	Intensité (%)	
YAG_Azote	131±12	18	640±40	82	3.0
YAG_Air	113±4	39	590±20	61	3.0
YAG_Vide	90±1.2	63	435±14	37	2.9

➤ *Analyse et discussion des résultants :*

Les résultats obtenus montrent que le recuit sous vide permet l'obtention d'un scintillateur avec des performances temporelles meilleur qu'un recuit sous air ou sous azote, la Figure IV.31 montre la variation de temps déclin de la composante rapide de YAG :0.5%  $Ce^{3+}$  à 1000°C pour les trois échantillons étudiés (recuit sous azote, air et vide). Ce résultat peut-être explique par de degré de réduction de  $Ce^{3+} \rightarrow Ce^{4+}$  dans la matrice YAG, ce qui permet d'augmenter la contribution des ions  $Ce^{4+}$  dans le processus de scintillation et l'accélération de la réponse de scintillation [107].

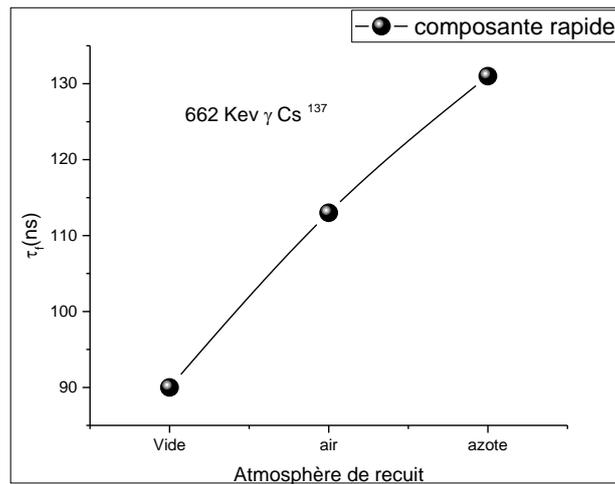


Figure 4-31 : Variation de la composante rapide de temps de décroissance en fonction de l'atmosphère de recuit

Des observations similaires ont été relevées pour la composante de scintillation lente, comme illustré dans la Figure IV.32.

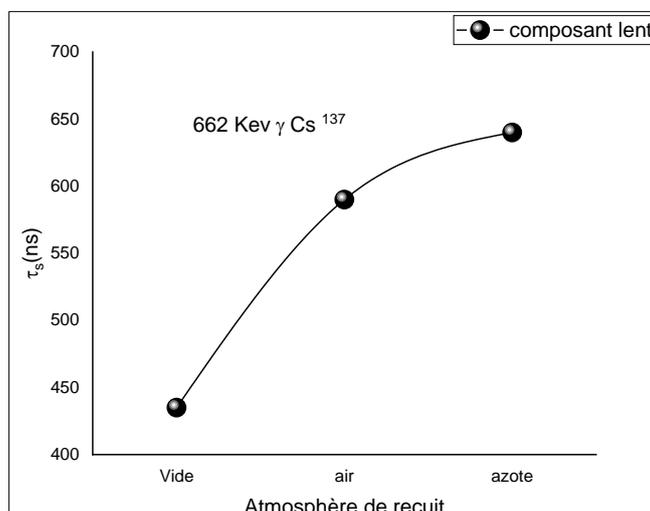


Figure 4-32 : Variation de la composante lente de temps de déclin en fonction de l'atmosphère de recuit

Pour la variation des intensités des composants rapide et lent des échantillons recuits sous différentes atmosphères, le vide permet l'obtention d'une intensité élevée de composant rapide de temps de déclin par rapport à l'air et l'azote. Figure IV.33, ceci peut être due à la suppression des lacunes d'oxygène qui se produisent lors de recuit sous vide.

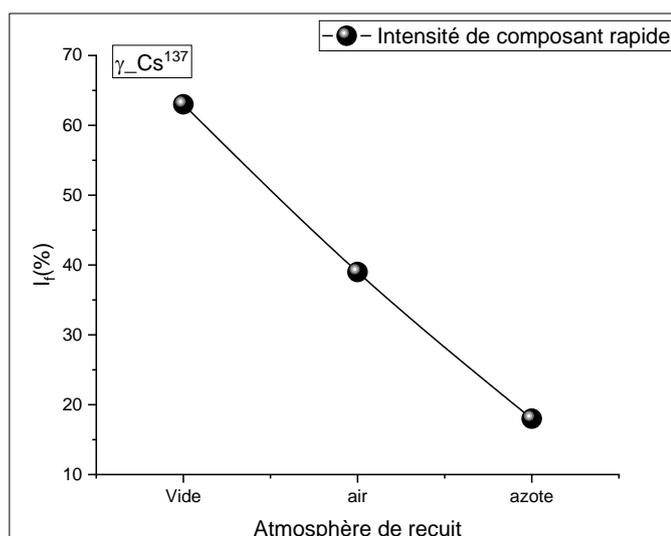


Figure 4-33 : Variation de l'intensité de composant rapide de temps de déclin en fonction de l'atmosphère de recuit

#### 4.5. Conclusion

Ce chapitre présente une étude approfondie de l'impact des différents paramètres de synthèse sur les propriétés de scintillation du nanoscintillateur YAG: Ce. Cette investigation a été menée afin d'analyser les effets de ces paramètres sur les performances du matériau en termes de scintillation.

Dans un premier temps, une étude de l'effet de la concentration des ions de cérium a été menée, révélant un impact significatif sur les propriétés de scintillation du matériau. En effet, il a été constaté que l'augmentation de la concentration améliore le rendement lumineux jusqu'à la valeur d'extinction (0.5 % mol Ce<sup>3+</sup>). Pour les propriétés temporelles, une amélioration du temps de décroissance et de la résolution temporelle a été constatée en augmentant la concentration de Ce<sup>3+</sup>. De plus l'échantillon avec 2% Ce<sup>3+</sup> (YAG2) présentait un temps de décroissance plus rapide que celui du YAG: Ce monocristal.

Le deuxième paramètre étudié est l'effet de la température de recuit. Des échantillons de YAG : 0,5 mol% (la meilleure concentration en termes de rendement lumineux) calcinés à différentes températures dans l'air atmosphérique. Les résultats montrent que l'augmentation de la température de traitement a permis d'augmenter la taille des poudres de YAG : Ce et d'améliorer leur efficacité de scintillation.

Dans la troisième investigation, nous avons étudié l'effet de l'atmosphère de recuit sur les caractéristiques de scintillation. Les résultats montrent que la calcination sous vide permet d'élaborer un scintillateur YAG : Ce présentant les meilleures propriétés de scintillation. Cette investigation nous a permis d'identifier les paramètres optimaux pour élaborer des nanoscintillateurs avec une efficacité de scintillation élevée.

---

*Conclusion Générale  
Et Perspectives*

---

## *Conclusion Générale*

Dans le cadre de cette thèse, nous avons développé trois systèmes d'instrumentation nucléaire qui ont pour objectif d'étudier l'impact de la concentration de  $Ce^{3+}$ , de la température de calcination et des atmosphères de recuit sur les propriétés de scintillation du nanoscintillateur YAG:  $Ce^{3+}$  sous excitation de rayons  $\gamma$  à 662 keV. Ce dernier a été élaboré à l'échelle nanométrique par la méthode de sol-gel. Ces systèmes permettent d'évaluer les performances de ce nanoscintillateur pour les applications de détection nucléaire. Nous avons observé que les propriétés de scintillation des nanoscintillateurs YAG dopés au  $Ce^{3+}$  peuvent être ajustées en contrôlant la teneur en  $Ce^{3+}$ , la température et l'atmosphère de recuit.

Pour évaluer correctement les propriétés de scintillation, les poudres élaborées ont été conçues comme détecteur de rayonnement et des opérations de préparation, telles que l'homogénéisation de surface et le couplage efficace avec la fenêtre PMT, ont été effectuées pour assurer le maximum de collection de lumière de scintillation.

Nous avons constaté que le rendement lumineux relatif pour les particules  $\alpha$  était de  $0,18 \pm 0,02$  par rapport aux rayons  $\gamma$  pour tous les échantillons avec différentes concentrations, ce rapport était approximativement le même, ce qui signifie que 83 % de la lumière des particules  $\alpha$  étaient éteintes.

Le détecteur d'échantillon avec 0,5 mol %  $Ce^{3+}$  a montré une augmentation de rendement lumineux de 15600 ph/MeV à 950 °C (avec une taille de 42 nm) à 18900 ph/MeV à 1150 °C (avec une taille de 58 nm) de manière quasi linéaire. Cela peut être attribué à l'augmentation de l'intensité de la luminescence  $Ce^{3+}$ , qui à son tour est liée à l'augmentation de la taille des cristallites. Ainsi, l'échantillon YAG1150 présentait un rendement lumineux comparable à celui du YAG: Ce monocristal.

La résolution en énergie pour l'échantillon YAG2 a été améliorée de 16 % à 10 % (FWHM) avec l'augmentation de la température de recuit. Cette amélioration est due à la résolution intrinsèque qui est liée à la diminution des défauts de surface et à l'augmentation du rendement photo-électronique  $N_{Phe}$ . De plus, tous les échantillons présentaient des composantes de scintillation rapide et lente. La décroissance de la composante rapide a diminué de 134 ns à 82 ns avec l'augmentation de la concentration de  $Ce^{3+}$  et l'intensité relative a augmenté de 36 % à 43 %. Le même comportement a également été observé pour l'échantillon YAG :0.5 % Ce

(YAG2) avec l'augmentation de la température de recuit. Ainsi, l'échantillon YAG4 Présentait un temps de décroissance plus rapide que celui du YAG: Ce monocristal et céramique

Nous avons également constaté que l'atmosphère de recuit avait un impact significatif sur les propriétés de scintillation des nanoscintillateurs YAG : Ce<sup>3+</sup>, le recuit sous vide offrant les meilleures caractéristiques par rapport au recuit à l'air et à l'azote. Par conséquent, le recuit sous vide est une méthode appropriée pour développer des nanoscintillateurs YAG : Ce<sup>3+</sup> destinés à être utilisés dans des applications de détection de rayonnement.

Dans l'ensemble, les résultats de notre étude mettent en évidence le potentiel du nanoscintillateur YAG : Ce<sup>3+</sup> en tant que candidat prometteur pour les applications de détection de rayonnement. En particulier, le nanoscintillateur YAG: Ce<sup>3+</sup> surmonte certains inconvénients associés aux monocristaux, tels que leur taille limitée, leur flexibilité limitée, leur fragilité et leur coût de fabrication élevé, ce qui en fait une alternative convaincante pour la prochaine génération de détecteurs à scintillation. Des recherches plus poussées sur l'optimisation des propriétés des nanocristaux et la compréhension des mécanismes sous-jacents peuvent conduire à des améliorations significatives des performances et des applications des détecteurs à scintillation élaborées à l'échelle nanométrique.

Pour approfondir notre étude, nous avons prévu d'étudier des paramètres supplémentaires, tel que le pH de la solution utilisée lors de l'élaboration du nanophosphore YAG : Ce<sup>3+</sup>. De plus, l'évaluation des détecteurs d'échantillon sous forme de poudre est une étape cruciale dans l'identification des conditions de synthèse optimales. En procédant à cette évaluation initiale, nous pouvons rationaliser le développement des scintillateurs sous forme céramiques transparentes qui présentent un potentiel important pour de futures applications, ouvrant ainsi la voie pour nouvelles recherches dans ce domaine. De plus, le dopage mixte est une autre approche prometteuse pour obtenir un rendement lumineux élevé dans les matériaux scintillateurs. Par exemple, il a été rapporté que le dopage mixte peut entraîner un rendement optique de  $4 \times 10^4$  ph/MeV, ce qui en fait une direction de recherche importante pour les applications des poudres en détection nucléaire.

---

## *Références*

---

## Références

- [1] G.F. Knoll, Radiation detection and measurement, John Wiley & Sons, 2010.
- [2] F. Grum, R.J. Becherer, Optical radiation measurements. Volume 1-Radiometry, New York. (1979).
- [3] W.R. Leo, Techniques for nuclear and particle physics experiments: a how-to approach, Springer Science & Business Media, 2012.
- [4] A.D. Stephan, Survey of instrumentation and measurement, (2001).
- [5] M.F. L'Annunziata, Handbook of radioactivity analysis, Academic press, 2012.
- [6] H.M.H. Fadlalla, C.C. Tang, E.M. Elssfah, J. Zhang, E. Ammar, J. Lin, X.X. Ding, Synthesis and characterization of photoluminescent cerium-doped yttrium aluminum garnet, Mater. Res. Bull. 43 (2008) 3457–3462.
- [7] Y. Lv, W. Zhang, H. Liu, Y. Sang, H. Qin, J. Tan, L. Tong, Synthesis of nano-sized and highly sinterable Nd: YAG powders by the urea homogeneous precipitation method, Powder Technol. 217 (2012) 140–147.
- [8] H.M.H. Fadlalla, C. Tang, Sol–gel preparation and photoluminescence properties of Ce<sup>3+</sup>-activated Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> nano-sized powders, J. Cryst. Growth. 311 (2009) 3737–3741. <https://doi.org/org/10.1016/j.jcrysro.2009.04.040>.
- [9] Y.-C. Wu, S. Parola, O. Marty, M. Villanueva-Ibanez, J. Mugnier, Structural characterizations and waveguiding properties of YAG thin films obtained by different sol–gel processes, Opt. Mater. (Amst). 27 (2005) 1471–1479. <https://doi.org/org/10.1016/j.optmat.2005.03.004>.
- [10] A. Boukerika, Elaboration par voie sol-gel et caractérisation des matériaux inorganiques de type grenats (Y, Lu)<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> activés aux ions cérium. Thèse de doctorat, Université de Jijel, 2014.
- [11] C.B. Carter, M.G. Norton, Ceramic materials: science and engineering, Springer, 2007.
- [12] C. Greskovich, S. Duclos, Ceramic scintillators, Annu. Rev. Mater. Sci. 27 (1997) 69–88.
- [13] G. Blasse, Scintillator materials, Chem. Mater. 6 (1994) 1465–1475.
- [14] L. Yang, T. Lu, H. Xu, N. Wei, Synthesis of YAG powder by the modified sol–gel combustion method, J. Alloys Compd. 484 (2009) 449–451. <https://doi.org/org/10.1016/j.jallcom.2009.04.123>.
- [15] F. Yuan, H. Ryu, Ce-doped YAG phosphor powders prepared by co-precipitation and heterogeneous precipitation, Mater. Sci. Eng. B. 107 (2004) 14–18. <https://doi.org/org/10.1016/j.mseb.2003.10.002>.
- [16] N. Jia, X. Zhang, W. He, W. Hu, X. Meng, Y. Du, J. Jiang, Y. Du, Property of YAG: Ce phosphors powder prepared by mixed solvothermal method, J. Alloys Compd. 509 (2011) 1848–1853. <https://doi.org/org/10.1016/j.jallcom.2010.10.071>.
- [17] S.-K. Ruan, J.-G. Zhou, A.-M. Zhong, J.-F. Duan, X.-B. Yang, M.-Z. Su, Synthesis of Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>: Eu<sup>3+</sup> phosphor by sol-gel method and its luminescence behavior, J. Alloys Compd. 275 (1998) 72–75. [https://doi.org/org/10.1016/S0925-8388\(98\)00276-X](https://doi.org/org/10.1016/S0925-8388(98)00276-X).
- [18] A. Boukerika, L. Guerbous, N. Brihi, Ce-doped YAG phosphors prepared via sol–gel method: Effect of some modular parameters, J. Alloys Compd. 614 (2014) 383–388. <https://doi.org/org/10.1016/j.jallcom.2014.06.133>.

- 
- [19] R. Hofstadter, Alkali halide scintillation counters, *Phys. Rev.* 74 (1948) 100.
- [20] R. Hofstadter, The detection of gamma-rays with thallium-activated sodium iodide crystals, *Phys. Rev.* 75 (1949) 796.
- [21] P.A. Rodnyi, *Physical processes in inorganic scintillators*, CRC press, 1997.
- [22] G. Blasse, B.C. Grabmaier, A general introduction to luminescent materials, in: *Lumin. Mater.*, Springer, 1994: pp. 1–9.
- [23] C. Pedrini, C. Dujardin, J.C. Gacon, A.N. Belsky, A.N. Vasil'ev, A.G. Petrosyan, Cerium-doped fluorescent and scintillating ionic crystals, *Radiat. Eff. Defects Solids.* 154 (2001) 277–286.
- [24] A.N. Vasil'ev, Polarization approximation for electron cascade in insulators after high-energy excitation, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms.* 107 (1996) 165–171.
- [25] B. Yavidov, Polaron with disordered electron-phonon interaction, *ArXiv Prepr. ArXiv1408.3697.* (2014).
- [26] A.M. Stoneham, *Theory of defects in solids: electronic structure of defects in insulators and semiconductors*, Oxford University Press, 2001.
- [27] K.S. Song, R.T. Williams, *Self-trapped excitons*, (2013).
- [28] B. Viana, *Materiaux scintillateurs pour rayons X et gamma*, *Actual. Chim.* (2002) 107–110.
- [29] C.W.E. Van Eijk, Fast scintillators and their applications, *Radiat. Eff. Defects Solids.* 119 (1991) 9–14.
- [30] P.A. Rodnyi, Core-valence band transitions in wide-gap ionic crystals, *Sov. Physics. Solid State.* 34 (1992) 1053–1066.
- [31] M. Nikl, A. Yoshikawa, T. Fukuda, Charge transfer luminescence in Yb<sup>3+</sup>-containing compounds, *Opt. Mater. (Amst).* 26 (2004) 545–549.
- [32] E. Nakazawa, S. Shionoya, Cooperative Luminescence in YbP O 4, *Phys. Rev. Lett.* 25 (1970) 1710.
- [33] P. Dorenbos, The 5d level positions of the trivalent lanthanides in inorganic compounds, *J. Lumin.* 91 (2000) 155–176.
- [34] M. Nikl, Wide band gap scintillation materials: progress in the technology and material understanding, *Phys. Status Solidi.* 178 (2000) 595–620.
- [35] C.W.E. Van Eijk, Inorganic scintillators in medical imaging, *Phys. Med. Biol.* 47 (2002) R85–R106.
- [36] P. Iredale, The effect of the non-proportional response of NaI (Tl) crystals to electrons upon the resolution for  $\gamma$ -rays, *Nucl. Instruments Methods.* 11 (1961) 340–346.
- [37] P. Dorenbos, J.T.M. de Haas, C.W.E. Van Eijk, Non-proportionality in the scintillation response and the energy resolution obtainable with scintillation crystals, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 42 (1995) 2190–2202. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2015.07.059>.
- [38] M. Balcerzyk, M. Moszynski, M. Kapusta, Energy resolution of contemporary scintillators. Quest for high resolution proportional detector, (2000).
- [39] M. Balcerzyk, M. Moszynski, M. Kapusta, Intrinsic energy resolution and nonlinearity of some contemporary scintillators, (1999).
- [40] E. Zych, C. Brecher, J. Glodo, Kinetics of cerium emission in a YAG: Ce single crystal: the

- role of traps, *J. Phys. Condens. Matter.* 12 (2000) 1947.
- [41] M.G. Calas, M.J.-M. Costantini, M.C. Pédrini, M.P. Dorenbos, M.M. Nikl, M.D. Gourier, M.B. Aléonard, de l'Université Pierre et Marie Curie (Paris VI), (2006).
- [42] G. Bizarri, J.T.M. de Haas, P. Dorenbos, C.W.E. Van Eijk, Scintillation properties of  $\varnothing$  1.1 inch, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 53 (2006) 615.
- [43] D.W. Cooke, K.J. McClellan, B.L. Bennett, J.M. Roper, M.T. Whittaker, R.E. Muenchausen, R.C. Sze, Crystal growth and optical characterization of cerium-doped Lu 1.8 Y 0.2 SiO<sub>5</sub>, *J. Appl. Phys.* 88 (2000) 7360–7362.
- [44] Hamamatsu, Photomultiplier tubes, in: 3rd Ed. Ed.; Hamamatsu Photonics K.K., 1988.
- [45] Hamamatsu, Characteristic and use of Si APD (Avalanche Photodiode),", in: Broch. Tech., 2004.
- [46] G.H. Narayan, J.R. Prescott, The contribution of the NaI (Tl) crystal to the total linewidth of NaI (Tl) scintillation counters, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 15 (1968) 162–166.
- [47] J.R. Prescott, G.H. Narayan, Electron responses and intrinsic line-widths in NaI (Tl), *Nucl. Instruments Methods.* 75 (1969) 51–55.
- [48] B. Pirard, C. d'Uston, S. Maurice, O. Gasnault, Performance limits of new generation scintillators for planetary gamma-ray spectroscopy, in: 36th Annu. Lunar Planet. Sci. Conf., 2005: p. 2187.
- [49] C. Kuntner, E. Auffray, C. Dujardin, P. Lecoq, C. Pedrini, M. Schneegans, Development of new mixed LuYAP: Ce crystals for application in a small animal PET scanner with DOI capability, in: 2002 IEEE Nucl. Sci. Symp. Conf. Rec., IEEE, 2002: pp. 676–681.
- [50] P. Anfré, Localisation des interactions de rayonnements ionisants sur des fibres monocristallines scintillatrices, (2007).
- [51] I. Vilardi, A. Braem, E. Chesi, F. Ciocia, N. Colonna, F. Corsi, F. Cusanno, R. De Leo, A. Dragone, F. Garibaldi, Optimization of the effective light attenuation length of YAP: Ce and LYSO: Ce crystals for a novel geometrical PET concept, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 564 (2006) 506–514.
- [52] M. Jacquemet, C. Jacquemet, N. Janel, F. Druon, F. Balembois, P. Georges, J. Petit, B. Viana, D. Vivien, B. Ferrand, Efficient laser action of Yb: LSO and Yb: YSO oxyorthosilicates crystals under high-power diode-pumping, *Appl. Phys. B.* 80 (2005) 171–176.
- [53] R. Gaume, B. Viana, J. Derouet, D. Vivien, Spectroscopic properties of Yb-doped scandium based compounds Yb: CaSc<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, Yb: SrSc<sub>2</sub>O<sub>4</sub> and Yb: Sc<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>, *Opt. Mater. (Amst).* 22 (2003) 107–115.
- [54] R. Gaume, P.H. Haumesser, B. Viana, D. Vivien, B. Ferrand, G. Aka, Optical and laser properties of Yb: Y<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> single crystals and discussion of the figure of merit relevant to compare ytterbium-doped laser materials, *Opt. Mater. (Amst).* 19 (2002) 81–88.
- [55] P.-H. Haumesser, R. Gaume, B. Viana, E. Antic-Fidancev, D. Vivien, Spectroscopic and crystal-field analysis of new Yb-doped laser materials, *J. Phys. Condens. Matter.* 13 (2001) 5427.
- [56] M. Osiński, J.B. Plumley, N.J. Withers, B.A. Akins, G. Medina, A.C. Rivera, G.A. Smolyakov, Synthesis and characterization of lanthanide halide scintillating nanocrystals for gamma radiation detection, in: 2010 Int. Conf. Nanosci. Nanotechnol., IEEE, 2010: pp. 189–192. <https://doi.org/10.1109/ICONN.2010.6045245>.
- [57] S.K. Gupta, Y. Mao, Recent advances, challenges, and opportunities of inorganic

- nanoscintillators, *Front. Optoelectron.* 13 (2020) 156-187, <https://doi.org/10.1007/s12200-020-1003-5>.
- [58] A.R. Chakhmouradian, F. Wall, Rare earth elements: minerals, mines, magnets (and more), *Elements*. 8 (2012) 333–340.
- [59] J.S. Abell, I.R. Harris, B. Cockayne, B. Lent, An investigation of phase stability in the  $Y_2O_3$ - $Al_2O_3$  system, *J. Mater. Sci.* 9 (1974) 527–537.
- [60] B. Cockayne, The uses and enigmas of the  $Al_2O_3$ - $Y_2O_3$  phase system, *J. Less Common Met.* 114 (1985) 199–206.
- [61] I. Warshaw, R. Roy, Stable and Metastable Equilibria in the Systems  $Y_2O_3$ - $Al_2O_3$ , and  $Gd_2O_3$ - $Fe_2O_3$ , *J. Am. Ceram. Soc.* 42 (1959) 434–438.
- [62] D. Pawlak, Z. Frukacz, Z. Mierczyk, A. Suchocki, J. Zachara, Spectroscopic and crystallographic studies of YAG:  $Pr^{4+}$  single crystals, *J. Alloys Compd.* 275 (1998) 361–364.
- [63] A. Emiraliev, A.G. Kocharov, R. V Bakradze, U. Karimov, Z.I. Ahmetzhanov, The neutron diffraction redefinition of the coordinates of the atoms of oxygen in yttrium-aluminium garnet, *Kristallografiya*. 21 (1976) 211–213.
- [64] L.I. Kazakova, G.M. Kuz'micheva, E.M. Suchkova, Growth of  $Y_3Al_5O_{12}$  crystals for jewelry, *Inorg. Mater.* 39 (2003) 959–970.
- [65] A.A. Kaminskii, H.J. Eichler, K. Ueda, S.N. Bagaev, G.M.A. GAD, Stimulated Raman scattering in  $Y_3Al_5O_{12}$  single crystal, *Phys. Status Solidi. A. Appl. Res.* 181 (2000) R19–R20.
- [66] S. Geller, M.A. Gilleo, The crystal structure and ferrimagnetism of yttrium-iron garnet,  $Y_3Fe_2(FeO_4)_3$ , *J. Phys. Chem. Solids*. 3 (1957) 30–36.
- [67] J. Dong, K. Lu, Noncubic symmetry in garnet structures studied using extended x-ray-absorption fine-structure spectra, *Phys. Rev. B.* 43 (1991) 8808.
- [68] S. Geller, G.P. Espinosa, P.B. Crandall, Thermal expansion of yttrium and gadolinium iron, gallium and aluminum garnets, *J. Appl. Crystallogr.* 2 (1969) 86–88.
- [69] F. Euler, J.A. Bruce, Oxygen coordinates of compounds with garnet structure, *Acta Crystallogr.* 19 (1965) 971–978.
- [70] D. Rodic, M. Mitric, R. Tellgren, H. Rundlof, The cation distribution and magnetic structure of  $Y_3Fe_{(5-x)}Al_xO_{12}$ , *J. Magn. Mater.* 232 (2001) 1–8.
- [71] V. BILLIET, A. VANDENDRIESSCHE, *Communications des membres, Communications.* 1932 (1931) 1936.
- [72] A.K. Pradhan, K. Zhang, G.B. Loutts, Synthesis of neodymium-doped yttrium aluminum garnet (YAG) nanocrystalline powders leading to transparent ceramics, *Mater. Res. Bull.* 39 (2004) 1291–1298.
- [73] D.J. Robbins, B. Cockayne, B. Lent, C.N. Duckworth, J.L. Glasper, Investigation of competitive recombination processes in rare-earth activated garnet phosphors, *Phys. Rev. B.* 19 (1979) 1254.
- [74] D. Sangla, N. Aubry, A. Nehari, A. Brenier, O. Tillement, K. Lebbou, F. Balembois, P. Georges, D. Perrodin, J. Didierjean, Yb-doped  $Lu_3Al_5O_{12}$  fibers single crystals grown under stationary stable state for laser application, *J. Cryst. Growth.* 312 (2009) 125–130.
- [75] Y. Kuwano, K. Suda, N. Ishizawa, T. Yamada, Crystal growth and properties of  $(Lu, Y)_3Al_5O_{12}$ , *J. Cryst. Growth.* 260 (2004) 159–165.
- [76] M.E. Cañibano Crespo, Propriétés spectroscopiques de l'ion  $Yb^{3+}$  dans les familles d'oxydes

- de molybdates  $K_5 Bi (MO_4)_4$ , de grenats  $Y_3 Al_5 O_{12}$ ,  $Gd_3 Ga_5 O_{12}$ ,  $Lu_3 Al_5 O_{12}$  et de perovskites  $YAlO_3$ : analyse de mécanismes d'extinction par concentration et évaluation de l'émission las, (2004).
- [77] A.G. Petrosyan, K.L. Ovanesyan, R. V Sargsyan, G.O. Shirinyan, D. Abler, E. Auffray, P. Lecoq, C. Dujardin, C. Pedrini, Bridgman growth and site occupation in LuAG: Ce scintillator crystals, *J. Cryst. Growth.* 312 (2010) 3136–3142.
- [78] Y. Fujimoto, M. Sugiyama, T. Yanagida, S. Wakahara, S. Suzuki, S. Kurosawa, V. Chani, A. Yoshikawa, Comparative study of optical and scintillation properties of  $Tm^{3+}$ : YAG, and  $Tm^{3+}$ : LuAG single crystals, *Opt. Mater. (Amst).* 35 (2013) 2023–2026.
- [79] S.C. Abrahams, S. Geller, Refinement of the structure of a grossularite garnet, *Acta Crystallogr.* 11 (1958) 437–441.
- [80] L. Chen, X. Chen, F. Liu, H. Chen, H. Wang, E. Zhao, Y. Jiang, T.-S. Chan, C.-H. Wang, W. Zhang, Charge deformation and orbital hybridization: intrinsic mechanisms on tunable chromaticity of  $Y_3 Al_5 O_{12}$ :  $Ce^{3+}$  luminescence by doping  $Gd^{3+}$  for warm white LEDs, *Sci. Rep.* 5 (2015) 1–17.
- [81] W. Zhao, S. Anghel, C. Mancini, D. Amans, G. Boulon, T. Epicier, Y. Shi, X.Q. Feng, Y.B. Pan, V. Chani,  $Ce^{3+}$  dopant segregation in  $Y_3 Al_5 O_{12}$  optical ceramics, *Opt. Mater. (Amst).* 33 (2011) 684–687.
- [82] W. Chen, J. Zhang, Using nanoparticles to enable simultaneous radiation and photodynamic therapies for cancer treatment, *J. Nanosci. Nanotechnol.* 6 (2006) 1159–1166. <https://doi.org/10.1166/jnn.2006.327>.
- [83] H.R. Krall, F.A. Helvy, D.E. Persyk, Recent developments in GaP (Cs)-dynode photomultipliers, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 17 (1970) 71–74.
- [84] H.R. Krall, D.E. Persyk, Recent work on fast photomultipliers utilizing GaP (Cs) dynodes, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 19 (1972) 45–49.
- [85] B. Leskovar, C.C. Lo, P.R. Hartig, K. Sauer, Photon counting system for subnanosecond fluorescence lifetime measurements, *Rev. Sci. Instrum.* 47 (1976) 1113–1121.
- [86] G.A. Morton, H.M. Smith, H.R. Krall, The performance of high-gain first-dynode photomultipliers, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 16 (1969) 92–95.
- [87] R.E. Simon, B.F. Williams, Secondary-electron emission, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 15 (1968) 167–170.
- [88] E. Sakai, Recent measurements on scintillator-photodetector systems, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 34 (1987) 418–422.
- [89] M. Miyajima, S. Sasaki, E. Shibamura, Number of photoelectrons from a photomultiplier cathode coupled with a NaI (Tl) scintillator, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res.* 224 (1984) 331–334.
- [90] R. Mirzoyan, F. Goebel, J. Hose, C.C. Hsu, J. Ninković, D. Paneque, A. Rudert, M. Teshima, Enhanced quantum efficiency alkali photo multiplier tubes, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 572 (2007) 449–453.
- [91] C.H. Nowlin, J.L. Blankenship, Elimination of undesirable undershoot in the operation and testing of nuclear pulse amplifiers, *Rev. Sci. Instrum.* 36 (1965) 1830–1839.
- [92] E.V.D. Van Loef, P. Dorenbos, C.W.E. Van Eijk, K. Krämer, H.-U. Güdel, High-energy-resolution scintillator:  $Ce^{3+}$  activated  $LaBr_3$ , *Appl. Phys. Lett.* 79 (2001) 1573–1575.
- [93] E.V.D. Van Loef, P. Dorenbos, C.W.E. Van Eijk, K.W. Krämer, H.-U. Güdel, Scintillation

- properties of LaBr<sub>3</sub>: Ce<sup>3+</sup> crystals: fast, efficient and high-energy-resolution scintillators, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 486 (2002) 254–258.
- [94] C.W.E. Van Eijk, P. Dorenbos, E.V.D. Van Loef, K. Krämer, H.-U. Güdel, Energy resolution of some new inorganic-scintillator gamma-ray detectors, *Radiat. Meas.* 33 (2001) 521–525.
- [95] E.V.D. Van Loef, P. Dorenbos, C.W.E. Van Eijk, K.W. Krämer, H.U. Güdel, Scintillation properties of K<sub>2</sub>LaX<sub>5</sub>: Ce<sup>3+</sup> (X= Cl, Br, I), *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 537 (2005) 232–236.
- [96] M.D. Birowosuto, P. Dorenbos, C.W.E. van Eijk, K.W. Krämer, H.-U. Güdel, Scintillation and luminescence properties of Ce<sup>3+</sup> doped ternary cesium rare-earth halides, *Phys. Status Solidi.* 204 (2007) 850–860.
- [97] U. Shirwadkar, J. Glodo, E. V Van Loef, R. Hawrami, S. Mukhopadhyay, A. Churilov, W.M. Higgins, K.S. Shah, Scintillation properties of Cs<sub>2</sub>LiLaBr<sub>6</sub> (CLLB) crystals with varying Ce<sup>3+</sup> concentration, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 652 (2011) 268–270.
- [98] J. Glodo, E. van Loef, R. Hawrami, W.M. Higgins, A. Churilov, U. Shirwadkar, K.S. Shah, Selected Properties of Cs<sub>2</sub>LiYCl<sub>6</sub>, Cs<sub>2</sub>LiLaCl<sub>6</sub>, and Cs<sub>2</sub>LiLaBr<sub>6</sub> Scintillators, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 58 (2011) 333–338.
- [99] M. Zhuravleva, K. Yang, C.L. Melcher, Crystal growth and scintillation properties of Cs<sub>3</sub>CeCl<sub>6</sub> and CsCe<sub>2</sub>Cl<sub>7</sub>, *J. Cryst. Growth.* 318 (2011) 809–812.
- [100] K. Yang, M. Zhuravleva, H. Rothfuss, C.L. Melcher, Optical and scintillation properties of single crystal CsSr<sub>1-x</sub>Eu<sub>x</sub>I<sub>3</sub>, in: *IEEE Nucl. Sci. Symp. Med. Imaging Conf.*, IEEE, n.d.: pp. 1603–1606.
- [101] B.W. Sturm, N.J. Cherepy, O.B. Drury, P.A. Thelin, S.E. Fisher, S.A. Payne, A. Burger, L.A. Boatner, J.O. Ramey, K.S. Shah, Effects of packaging SrI<sub>2</sub> (Eu) scintillator crystals, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 652 (2011) 242–246.
- [102] J. Glodo, W.W. Moses, W.M. Higgins, E.V.D. Van Loef, P. Wong, S.E. Derenzo, M.J. Weber, K.S. Shah, Effects of Ce concentration on scintillation properties of LaBr<sub>3</sub>: Ce, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 52 (2005) 1805–1808.
- [103] O. Guillot-Noël, J.T.M. de De Haas, P. Dorenbos, C.W.E. Van Eijk, K. Krämer, H.U. Güdel, Optical and scintillation properties of cerium-doped LaCl<sub>3</sub>, LuBr<sub>3</sub> and LuCl<sub>3</sub>, *J. Lumin.* 85 (1999) 21–35.
- [104] S.A. Hassanzadeh-Tabrizi, Synthesis and luminescence properties of YAG: Ce nanopowder prepared by the Pechini method, *Adv. Powder Technol.* 23 (2012) 324–327.
- [105] P. Rai, M.-K. Song, H.-M. Song, J.-H. Kim, Y.-S. Kim, I.-H. Lee, Y.-T. Yu, Synthesis, growth mechanism and photoluminescence of monodispersed cubic shape Ce doped YAG nanophosphor, *Ceram. Int.* 38 (2012) 235–242.
- [106] M. Nikl, Scintillation detectors for x-rays, *Meas. Sci. Technol.* 17 (2006). <https://doi.org/10.1088/0957-0233/17/4/R01>.
- [107] B. Zahra, L. Guerbous, H. Bousbia-salah, A. Boukerika, Effect of annealing atmospheres on the scintillation properties of Ce<sup>3+</sup>-doped YAG nanoscintillator, *Radiat. Detect. Technol. Methods.* (2023). <https://doi.org/10.1007/s41605-023-00397-x>.
- [108] E. Young, C.C. Lo, EVALUATION OF THE BEIJING INSTRUMENT GDB-44F ,Lo Electronics Research and Development, 1982.

- [109] 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/https://doi.org/10.1016/j.optmat.2018.02.045>.
- [110] 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).
- [111] A.I. Abramov, I.U.A. Kazanskii, E.S. Matusevich, *Fundamentals of experimental methods in nuclear physics*, Hayka, 1970.
- [112] V. Jarý, J. Pejchal, *Scintillators around us*, Center of, Center of Administration and Operation CAS, v. v. i. Layout: Jakub Krč; Type: Serifa. Editor in charge: Petra Královcová. First edition, 2018. Edition number 12413., institute of physics of the Czech Academy of Sciences, 2018.
- [113] J.B. Birks, *The theory and practice of scintillation counting: International series of monographs in electronics and instrumentation*, Elsevier, 2013. <https://doi.org/10.1016/C2013-0-01791-4>.
- [114] M. Moszyński, T. Ludziejewski, D. Wolski, W. Klamra, L.O. Norlin, Properties of the YAG:Ce scintillator, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 345 (1994) 461–467. [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(94\)90500-2](https://doi.org/10.1016/0168-9002(94)90500-2).
- [115] J.A. Mares, A. Beitlerova, M. Nikl, N. Solovieva, C. D’Ambrosio, K. Blazek, P. Maly, K. Nejezchleb, F. De Notaristefani, Scintillation response of Ce-doped or intrinsic scintillating crystals in the range up to 1MeV, *Radiat. Meas.* 38 (2004) 353–357.
- [116] J. Li, S. Sahi, M. Groza, Y. Pan, A. Burger, R. Kenarangui, W. Chen, Optical and scintillation properties of Ce<sup>3+</sup>-doped LuAG and YAG transparent ceramics: a comparative study, *J. Am. Ceram. Soc.* 100 (2017) 150–156.
- [117] M. Nikl, A. Yoshikawa, Recent R&D Trends in Inorganic Single-Crystal Scintillator Materials for Radiation Detection, *Adv. Opt. Mater.* 3 (2015). <https://doi.org/10.1002/adom.201400571>.
- [118] R.M. Turtos, S. Gundacker, S. Omelkov, E. Auffray, P. Lecoq, Light yield of scintillating nanocrystals under X-ray and electron excitation, *J. Lumin.* 215 (2019). <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2019.116613>.
- [119] M. Moszyński, D. Wolski, T. Ludziejewski, M. Kapusta, A. Lempicki, C. Brecher, D. Wiśniewski, A.J. Wojtowicz, Properties of the new LuAP:Ce scintillator, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 385 (1997) 123–131. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(96\)00875-3](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(96)00875-3).
- [120] M. Moszyński, T. Ludziejewski, D. Wolski, W. Klamra, L.O. Norlin, Properties of the YAG:Ce scintillator, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 345 (1994) 461–467. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0168-9002\(94\)90500-2](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0168-9002(94)90500-2).
- [121] A. Kling, D. Kollwe, D. Mateika, Scintillation properties of cerium-doped gadolinium-scandium-aluminum garnets, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 346 (1994) 205–212. [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(94\)90705-6](https://doi.org/10.1016/0168-9002(94)90705-6).
- [122] M. Moszyński, B. Bengtson, Light pulse shapes from plastic scintillators, *Nucl. Instruments Methods.* 142 (1977) 417–434.
- [123] 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.

- [124] E. Mihóková, M. Nikl, J.A. Mareš, A. Beitlerova, A. Vedda, K. Nejezchleb, K. Blažek, C. D'Ambrosio, Luminescence and scintillation properties of YAG: Ce single crystal and optical ceramics, *J. Lumin.* 126 (2007) 77–80.
- [125] 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>.
- [126] E. Abuelhia, K. Alzimami, M. Alkhorayef, Z. Podolyák, N.M. Spyrou, Measurement of coincidence timing resolution of scintillation detectors compared to semiconductor detectors to image three-photon positron annihilation, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 278 (2008) 767–771. <https://doi.org/10.1007/s10967-008-1608-4>.
- [127] U. Ackermann, W. Egger, P. Sperr, G. Dollinger, Time- and energy-resolution measurements of BaF<sub>2</sub>, BC-418, LYSO and CeBr<sub>3</sub> scintillators, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 786 (2015) 5–11. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2015.03.016>.
- [128] W. Chewpraditkul, L. Swiderski, M. Moszynski, T. Szczesniak, A. Syntfeld-Kazuch, C. Wanarak, P. Limsuwan, Comparative studies of Lu<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>:Ce and Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>:Ce scintillators for gamma-ray detection, *Phys. Status Solidi Appl. Mater. Sci.* 206 (2009) 2599–2605. <https://doi.org/10.1002/pssa.200925161>.
- [129] 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>.
- [130] A. Speghini, F. Piccinelli, M. Bettinelli, Synthesis, characterization and luminescence spectroscopy of oxide nanopowders activated with trivalent lanthanide ions: the garnet family, *Opt. Mater. (Amst.)* 33 (2011) 247–257. <https://doi.org/10.1016/j.optmat.2010.10.039>.
- [131] Y. Li, R.M. Almeida, Preparation and optical properties of sol–gel derived thick YAG: Ce<sup>3+</sup> phosphor film, *Opt. Mater. (Amst.)* 34 (2012) 1148–1154.
- [132] D. Lozano-Mandujano, J. Zarate–Medina, R. Morales-Estrella, J. Munoz-Saldana, Synthesis and mechanical characterization by nanoindentation of polycrystalline YAG with Eu and Nd additions, *Ceram. Int.* 39 (2013) 3141–3149.
- [133] H.M.H. Fadlalla, C.C. Tang, YAG: Ce<sup>3+</sup> nano-sized particles prepared by precipitation technique, *Mater. Chem. Phys.* 114 (2009) 99–102.
- [134] M. Zeng, Y. Ma, Y. Wang, C. Pei, The effect of precipitant on co-precipitation synthesis of yttrium aluminum garnet powders, *Ceram. Int.* 38 (2012) 6951–6956.
- [135] W. Zhang, J. Cen, Z. Hu, H. Wu, X. Sheng, L. Luo, Co-precipitation synthesis and luminescent properties of indium-substituted YAG: Ce<sup>3+</sup>, *Adv. Powder Technol.* 24 (2013) 21–25.
- [136] A. Bhaskar, H.-Y. Chang, T.-H. Chang, S.-Y. Cheng, Microwave annealing of YAG: Ce nanophosphors, *Mater. Lett.* 78 (2012) 124–126.
- [137] C. Liu, R. Yu, Z.-W. Xu, C.A.I. Jing, X. Yan, X.-T. Luo, Crystallization, morphology and luminescent properties of YAG: Ce<sup>3+</sup> phosphor powder prepared by polyacrylamide gel method, *Trans. Nonferrous Met. Soc. China.* 17 (2007) 1093–1099.
- [138] T. Ogi, A.B.D. Nandiyanto, W.-N. Wang, F. Iskandar, K. Okuyama, Direct synthesis of spherical YAG: Ce phosphor from precursor solution containing polymer and urea, *Chem. Eng. J.* 210 (2012) 461–466.

- [139] E. De la Rosa, L.A. Diaz-Torres, P. Salas, A. Arredondo, J.A. Montoya, C. Angeles, R.A. Rodriguez, Low temperature synthesis and structural characterization of nanocrystalline YAG prepared by a modified sol–gel method, *Opt. Mater. (Amst)*. 27 (2005) 1793–1799.
- [140] G. Singh, V. Thomas, V. Tiwari, A.K. Karnal, Effect of Cerium Doping on Optical and Scintillation Properties of Transparent YAG ceramic, *Ceram. Int.* 43 (2017). <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2017.04.047>.
- [141] M.L. Saladino, E. Caponetti, D.C. Martino, S. Enzo, G. Ibba, Effect of the dopant selection (Er, Eu, Nd or Ce) and its quantity on the formation of yttrium aluminum garnet nanopowders, *Opt. Mater. (Amst)*. 31 (2008) 261–267.
- [142] S.-J. Liu, T.-J. Peng, Z. Song, L. Bian, G.-B. Song, Q.-L. Liu, Solid solubility and photoluminescence of  $Y_3Al_5O_{12}: Ce^{3+}$  prepared by using  $(Y_{1-x}Ce_x)_2O_3$  as precursor, *Chinese Phys. B*. 23 (2014) 48106.
- [143] Y.C. Kang, I.W. Lenggoro, S. Bin Park, K. Okuyama, YAG: Ce phosphor particles prepared by ultrasonic spray pyrolysis, *Mater. Res. Bull.* 35 (2000) 789–798.
- [144] X. He, X. Liu, R. Li, B. Yang, K. Yu, M. Zeng, R. Yu, Effects of local structure of  $Ce^{3+}$  ions on luminescent properties of  $Y_3Al_5O_{12}: Ce$  nanoparticles, *Sci. Rep.* 6 (2016) 1–11.
- [145] Y. Hui, X. Sun, J. Chen, X. Li, D. Huo, S. Liu, Q. Zhu, M. Zhang, J.-G. Li, Fabrication and Luminescent Properties of YAG: Ce Transparent Microspheres by Laser Heating, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 61 (2014) 362–366.
- [146] B. Zahra, L. Guerbous, H. Bousbia-salah, A. Boukerika, Effect of  $Ce^{3+}$  content and annealing temperature on the optical and scintillation properties of  $Ce^{3+}$ -doped  $Y_3Al_5O_{12}$  Nanoscintillator synthesized by sol gel route, *Phys. Status Solidi*. n/a (2023). <https://doi.org/https://doi.org/10.1002/pssa.202300022>.
- [147] M. Moszyński, Energy resolution and non-proportionality of scintillation detectors—new observations, *Radiat. Meas.* 45 (2010) 372–376. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2009.10.012>.
- [148] T. Ludziejewski, M. Moszyński, M. Kapusta, D. Wolski, W. Klamra, K. Moszyńska, Investigation of some scintillation properties of YAG: Ce crystals, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 398 (1997) 287–294. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(97\)00820-6](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(97)00820-6).
- [149] F. Armetta, C. Defilippi, C. Giordano, E. Caponetti, L. Marciniak, D. Hreniak, M.L. Saladino, Influence of cerium content and heat treatment on Ce:YAG@glass wool nanostructures, *J. Nanoparticle Res.* 21 (2019). <https://doi.org/10.1007/s11051-019-4589-z>.
- [150] H. Feng, D. Ding, H. Li, S. Lu, S. Pan, X. Chen, G. Ren, Annealing effects on Czochralski grown  $Lu_2Si_2O_7: Ce^{3+}$  crystals under different atmospheres, *J. Appl. Phys.* 103 (2008) 83109.
- [151] C. Wang, D. Ding, Y. Wu, H. Li, X. Chen, J. Shi, Q. Wang, L. Ye, G. Ren, Effect of thermal annealing on scintillation properties of  $Ce:Gd_2Y_1Ga_{2.7}Al_2.3O_{12}$  under different atmosphere, *Appl. Phys. A*. 123 (2017) 384. <https://doi.org/10.1007/s00339-017-0997-z>.
- [152] L. Guerbous, A. Boukerika, Nanomaterial Host Bands Effect on the Photoluminescence Properties of Ce-Doped YAG Nanophosphor Synthesized by Sol-Gel Method, *J. Nanomater.* 5(2):1-10 (2015). <https://doi.org/10.1155/2015/617130>.
- [153] X. Chen, Z. Hu, J. Dai, H. Chen, Y. Shi, H. Kou, T. Wang, A. Vedda, A. Beitlerova, R. Kucerkova, The influence of air annealing on the microstructure and scintillation properties of Ce, Mg: Lu AG ceramics, *J. Am. Ceram. Soc.* 102 (2019) 1805–1813.

- [154] A. Boukerika, L. Guerbous, M. Belamri, Effect of different annealing atmospheres on the structural and luminescence properties of Ce<sup>3+</sup>-doped YAG phosphors synthesized by sol-gel method, *Optik (Stuttg)*. 127 (2016) 5235–5239. <https://doi.org/10.1016/j.ijleo.2016.03.037>.