

## LE DÉCLIN DE LA FLUORESCENCE DE VERRES DOSIMÈTRES EXCITÉS PAR DES ÉCLAIRS DE LUMIÈRE ULTRAVIOLETTE

J. BARTHE, D. BLANC, L. COMMANAY\*, H. FRANÇOIS\*\*  
et J.L. TEYSSIER\*\*\*

(manuscrit reçu le 19 février 1969)

### RÉSUMÉ

Le déclin de la fluorescence de verres dosimètres français est étudié au moyen des éclairs très courts de lumière ultraviolette venant d'un laser. On décrit le dispositif de mesure mis au point. A partir de 500 ns après l'excitation, il existe trois constantes de temps de décroissance; la plus longue semble surtout associée à la prédose, les amplitudes des autres augmentant beaucoup plus rapidement en fonction de la dose absorbée.

Ces expériences permettent d'envisager la construction d'appareils de lecture plus sensibles que ceux dont on dispose actuellement; elles offrent aussi un moyen original d'étude de la structure de tels milieux fluorescents.

### ABSTRACT

The decay of the fluorescence of French glass dosimeters is studied using very short flashes of ultraviolet light coming from a laser. The measurement apparatus set up is described; starting from 500 ns after excitation, three decay time constants exist. The longest seems especially associated with the pre-dose; the amplitudes of the other two increase much more rapidly as a function of the absorbed dose.

These experiments enable one to consider the construction of reading devices more sensitive than those we are now using; they also provide an original way to study the structure of such fluorescent media.

### INTRODUCTION

Les lumidosimètres sont généralement des verres aux phosphates contenant de l'argent, qui joue le rôle d'activateur. Après irradiation par des rayons X ou  $\gamma$ , ils manifestent, sous excitation ultraviolette constante, une luminescence dont

\* Centre de Physique Atomique et Nucléaire, Université de Toulouse, 118, route de Narbonne, 31 - Toulouse.

\*\* Service Technique d'Études de Protection du C.E.A., B.P. n° 6, 92 - Fontenay-aux-Roses.

\*\*\* Laboratoire des radiations ionisantes, Faculté des Sciences, 87 - Limoges.

l'intensité est proportionnelle à la dose qu'ils ont reçue. Intégrant les doses et les conservant sans affaiblissement, ils trouvent leur emploi en radioprotection comme en radiobiologie, où ils tendent à remplacer les émulsions photographiques.

Cependant, les verres non irradiés produisent une luminescence parasite ou « prédose »; compte tenu de leur sensibilité propre, les systèmes de lecture les plus élaborés affichent des pré doses équivalentes à 0,4 röntgen [1].

KASTNER et ses collaborateurs [2] ont étudié le déclin de la luminescence de verres de fabrication japonaise excités par les éclairs ultraviolets d'un laser. Ils constatent la présence de 2 constantes de temps, l'une due à la pré dose, l'autre due à la dose, dix fois plus grande que la première. Aussi, en discriminant dans le temps, pourrait-on déterminer directement la dose réellement reçue par le verre.

Les résultats publiés par KASTNER sont très prometteurs mais aussi très fragmentaires. Aussi avons-nous repris la question avec des verres mis au point par la Société Carbonisation Entreprise et Céramique en liaison avec le Commissariat à l'Energie Atomique [3].

## I - PRINCIPE DE LA MESURE DES CONSTANTES DE TEMPS DU DÉCLIN DE LA LUMINESCENCE DE VERRES EXCITÉS PAR DES ÉCLAIRS DE LUMIÈRE ULTRAVIOLETTE.

### I - PRINCIPE DU DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

On éclaire le verre par une impulsion lumineuse ultraviolette délivrée par un laser. Deux photomultiplicateurs sont placés de part et d'autre du verre (fig. 1). Le premier, appelé PM de mesure, est normalement mal polarisé. Le second, au contraire, appelé PM de référence, est toujours sous tension. Ainsi, lorsqu'un éclair ultraviolet est émis, seul le second PM délivre un signal. Ce signal remplit trois fonctions :

- sa montée sert de référence des temps et assure le déclenchement du dispositif de synchronisation de l'oscilloscope Tektronix 585 A qui permet de visualiser les phénomènes,

- sa montée commande également la mise sous tension complète du PM de mesure, avec un retard réglable par l'intermédiaire d'un circuit approprié,

- l'amplitude permet la mesure en valeur relative du nombre de photons émis lors de chaque éclair.

Ainsi, le PM de mesure reçoit très peu de photons UV (outre le fait qu'il est mal polarisé, il est muni d'un filtre UV). Puis, au bout d'un temps que l'on peut se fixer et qui est grand vis-à-vis de la durée de l'éclair, il fonctionne normalement et ne voit plus alors que les photons orange, émis par le verre. Le signal qu'il délivre est envoyé sur l'oscilloscope et photographié.

### 2 - PRINCIPALES CARACTÉRISTIQUES DE LA SOURCE D'ÉCLAIRS ULTRAVIOLETS

#### a) *Le laser.*

C'est un laser à rubis « Athènes RD 91 » fabriqué par la Compagnie Générale d'Electricité. Il délivre des éclairs dont les caractéristiques sont les suivantes :

Temps de montée :	30 ns
Temps de descente :	30 ns
Longueur d'onde :	694,3 nm
Energie moyenne par impulsion :	600 mJ
Fréquence de répétition maximale :	1 Hz

Possibilité d'un déclenchement manuel pour des fréquences inférieures à 1 Hz.

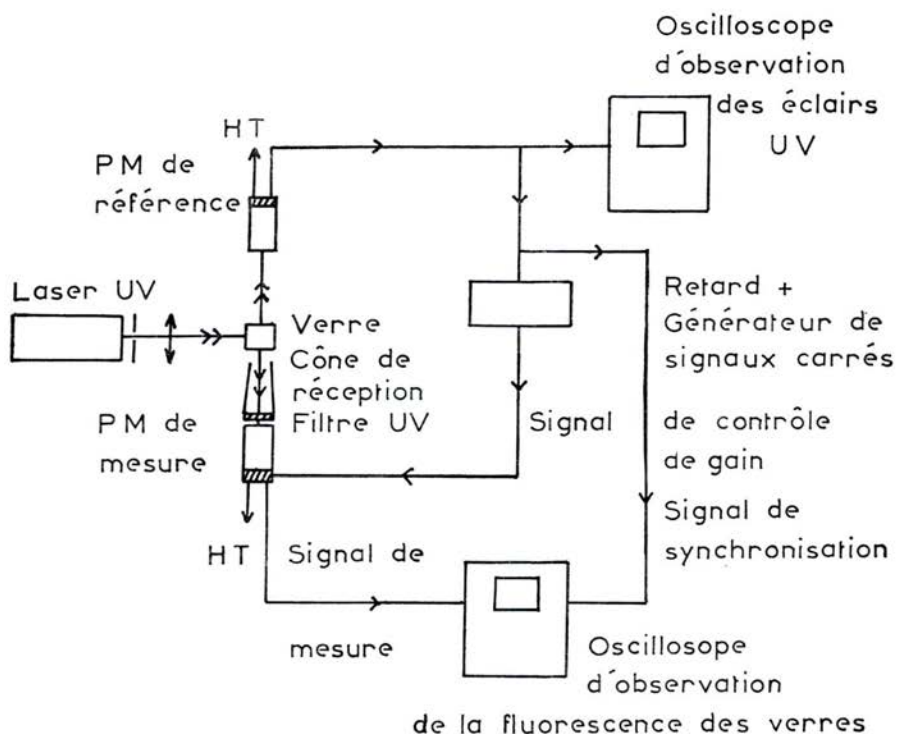


FIG. 1. — Schéma d'ensemble du dispositif expérimental.

Après la traversée d'un cristal de K.D.P. (phosphate de potassium di-hydrogéné), la fréquence de la lumière est doublée ( $\lambda = 347,1$  nm); la conversion de fréquence se produit pour 10 %, environ, de l'énergie incidente. Le constructeur affirme que la forme des impulsions ultraviolettes est sensiblement la même que celle des impulsions rouges.

b) *Filtration de la lumière : élimination du rayonnement rouge.*

90 % environ des photons émis par le laser traversent le cristal de K.D.P. sans être convertis. A titre de précaution, il est bon de les éliminer avant qu'ils n'atteignent le verre, puisque celui-ci émet une luminescence orange.

On pourrait utiliser un filtre interférentiel centré dans l'ultraviolet mais ses faces métalliques se détérioreraient rapidement sous l'effet de la chaleur, compte tenu de l'énergie contenue dans chaque tir du laser. Nous avons disposé sur le trajet du faisceau lumineux une cuve de quartz remplie d'une solution aqueuse de sulfate de cuivre (10 %). Au cours de la manipulation, nous n'avons constaté aucune détérioration visible ni aucune modification perceptible de son spectre d'absorption. Nous avons mesuré la transmission de ce filtre à l'aide d'un monochromateur et de deux sources de lumière :

- 1 - une lampe à filament de tungstène très chaud,
- 2 - une lampe à vapeur de mercure.

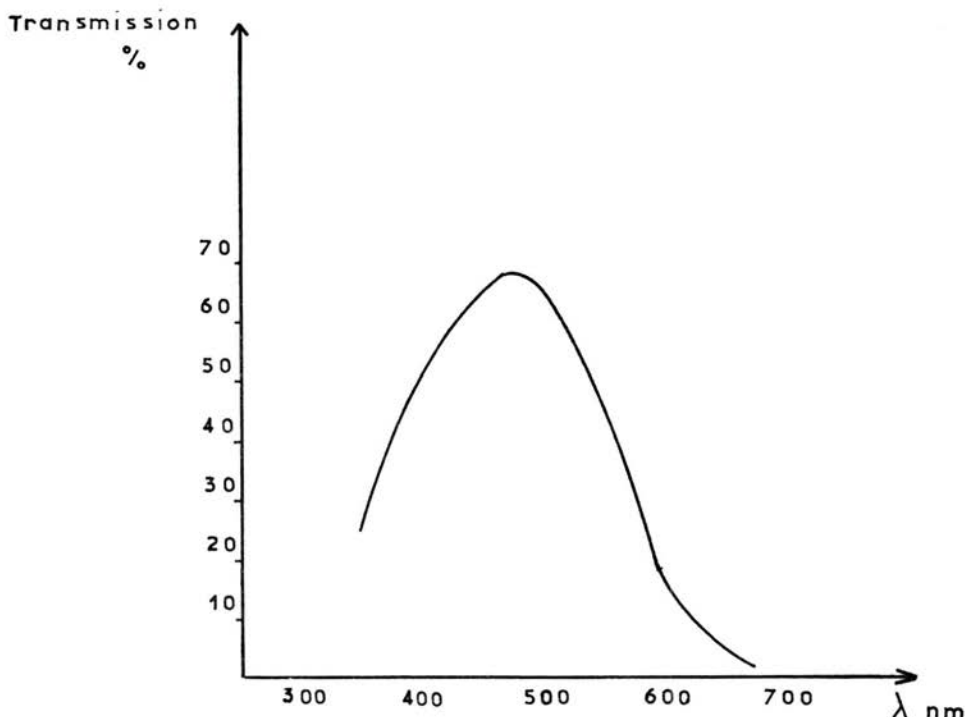


FIG. 2. — Pouvoir de transmission du filtre éliminant la lumière rouge.

La transmission est inférieure à 0,1 % à  $\lambda = 694,3$  nm et est de l'ordre de 27 % à  $\lambda = 347,1$  nm. Le rapport de séparation de ce filtre pour les deux longueurs d'onde considérées est au moins égal à 270 (fig. 2).

### 3 - LES PHOTOMULTIPLICATEURS

Le photomultiplicateur de mesure est du type Radiotechnique 56 AVP. Le maximum de sa courbe de réponse spectrale se situe à 430 nm (photocathode de type S 11) et la sensibilité de la photocathode est de l'ordre de 70  $\mu\text{A/lumen}$ .

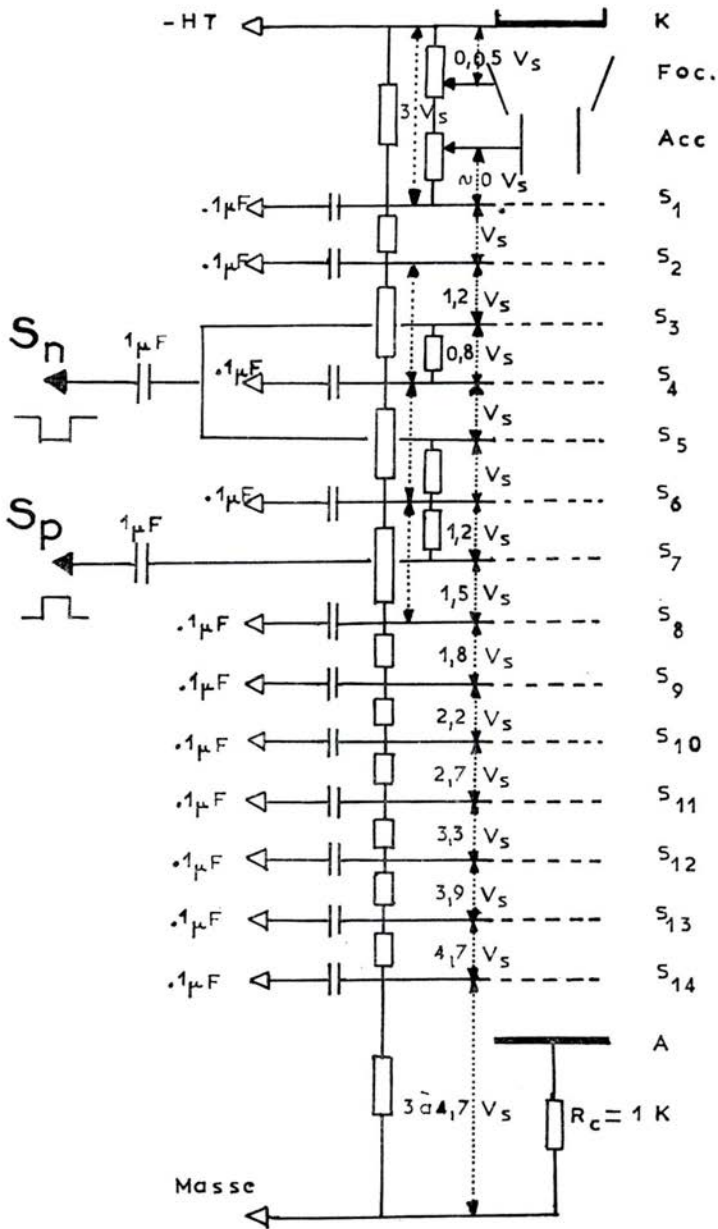


FIG. 3. — Schéma du pont de polarisation du P.M. de mesure.

Le second photomultiplicateur est un RCA 6328. Sa réponse spectrale, du type S-4, est maximale à 400 nm. Son gain est plus faible, et de l'ordre de  $10^5$  pour une tension totale appliquée de 1 000 V.

#### 4 - CIRCUITS DE CONTROLE DU GAIN

##### a) Pont de polarisation.

Pour bloquer le PM de mesure en régime permanent, on ne polarise pas correctement certaines de ses dynodes : les dynodes 3 et 4 sont au même potentiel et les dynodes 5 et 7 sont au potentiel de la dynode 6. La figure 3 présente le montage électronique réalisé. Le photomultiplicateur possède alors un gain 1 000 fois plus faible environ que sa valeur nominale.

Pour ramener le gain à cette valeur, il suffit de polariser les dynodes 3, 5 et 7 en leur appliquant des impulsions de tension délivrées par un générateur de signaux rectangulaires.

La largeur des impulsions qui est de  $15 \mu\text{s}$  fonctionne correctement. Leur amplitude détermine les potentiels des dynodes 3, 5 et 7.

##### b) Problèmes posés par l'analyse des signaux prélevés sur l'oscilloscope cathodique.

La détermination des constantes de temps à partir des signaux observés sur l'oscilloscope est d'autant plus précise que le tracé de ces signaux est plus fin.

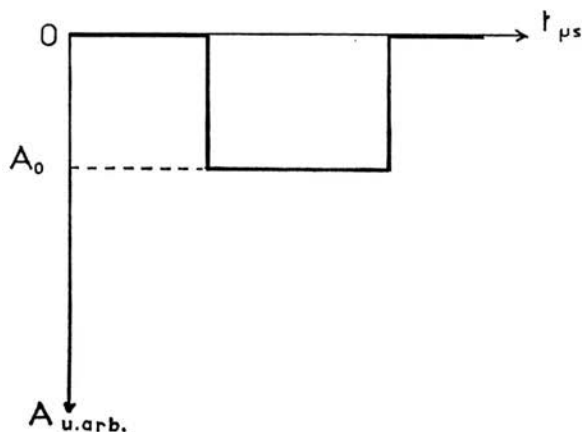


FIG. 4 — Réponse attendue du P.M. de mesure à un flux lumineux continu.

Nous avons étudié cette question en éclairant le photomultiplicateur de mesure par un flux de lumière continu dont on pouvait faire varier l'intensité. Normalement, compte tenu du fonctionnement de ce photomultiplicateur, on doit recueillir à l'anode un créneau de tracé bien défini et très fin quelle que soit l'intensité lumineuse incidente (fig. 4). Or il n'en est rien lorsque le flux incident

est faible (fig. 5) : la partie horizontale du créneau se présente alors comme une bande lumineuse formée d'une succession de courbes exponentielles décroissantes de faible amplitude et de fréquence élevée. Chaque courbe correspond en fait à l'impact d'un photon sur la photocathode (fig. 5). Lorsque la tension totale appliquée au PM est de 2 000 V, l'amplitude du créneau ne peut être mesurée qu'avec une précision de 20 % ce qui est nettement insuffisant. Nous avons constaté qu'en diminuant la tension appliquée, le phénomène s'atténue progressivement : à 1 700 volts la précision est meilleure que 1 %. C'est pourquoi nous avons sélectionné cette tension de fonctionnement.

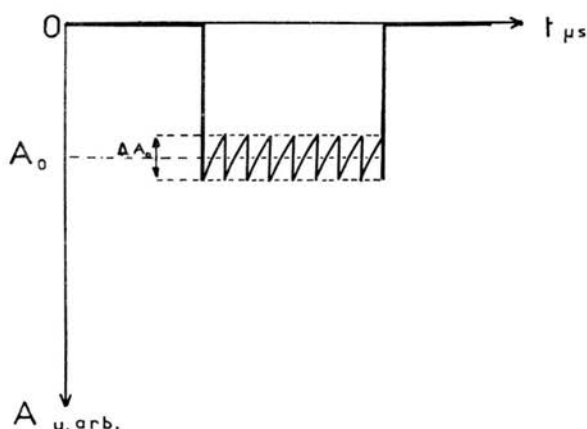


FIG. 5. — Réponse du P.M. de mesure à un flux lumineux continu peu intense.

c) *Choix de l'amplitude des impulsions de tension appliquées aux dynodes 3, 5 et 7 du PM de mesure.*

Les dynodes 3, 5 et 7 sont polarisées brusquement par application de créneaux de tension délivrés par un générateur de signaux rectangulaires. Normalement, ces créneaux devraient avoir une amplitude telle que les dynodes se retrouvent aux potentiels correspondant à une répartition progressive des tensions entre toutes les dynodes du PM.

Pour une tension totale de 1 700 V on devrait avoir :

- pour les dynodes 3 et 5 : un créneau négatif de — 50 V,
- pour la dynode 7 : un créneau positif de 60 V.

En fait, lorsqu'on éclaire le PM par un flux continu de lumière, le signal anodique n'est pas rigoureusement rectangulaire : il présente deux pointes négatives, l'une lors de la montée du créneau, l'autre lors de sa descente (fig. 6). Pour éliminer ce phénomène, il faut augmenter la tension de polarisation des dynodes. Nous avons pris finalement comme valeurs :

- + 80 V pour la tension du créneau positif,
- 60 V pour la tension du créneau négatif.

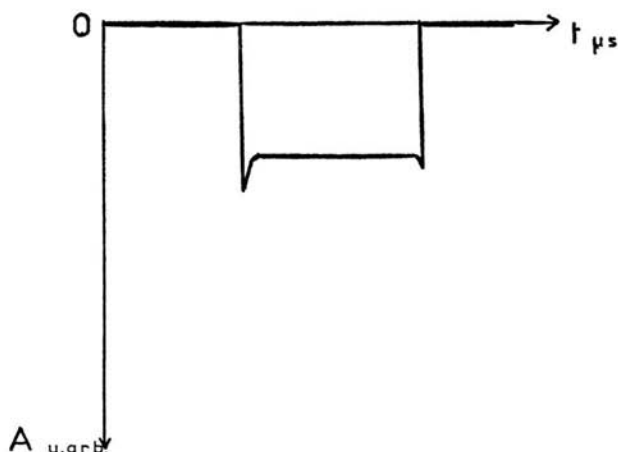


FIG. 6. — Signal obtenu en éclairant le P.M. par un flux lumineux constant.

Au total, la solution adoptée est la suivante :

- répartition progressive des tensions sur toutes les dynodes excepté les dynodes 3, 5, 7 (la linéarité de la réponse du PM est assurée même pour de forts signaux),
- tension totale d'alimentation de 1 700 V,
- tension du créneau positif de + 80 V,
- tension du créneau négatif de — 60 V.

#### 5 - GÉNÉRATEUR DE SIGNAUX RECTANGULAIRES A RETARD VARIABLE

Le générateur comprend essentiellement un circuit déphaseur de  $\pi$  et deux circuits monostables (fig. 7). On obtient ainsi deux créneaux en phase : le premier négatif d'amplitude égale à 60 V, le second positif d'amplitude égale à 80 V. Le premier monostable détermine le retard de ces créneaux par rapport au signal d'entrée : ce retard peut varier de 0,1  $\mu$ s à 4  $\mu$ s. Le second fixe leur largeur, qui est de 15  $\mu$ s.

## II - RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Nous avons étudié la décroissance de la fluorescence de verres dosimètres français, de formes cylindriques. Ils ont reçu, préalablement, des doses comprises entre 0 et 800 rads.

A partir de 500 ns après l'excitation, nous avons obtenu trois composantes exponentielles dans la décroissance de la fluorescence. L'intensité de cette fluorescence varie en fonction du temps  $t$  selon une loi du type :

$$I(t) = A_1 \exp - \frac{t}{\tau_1} + A_2 \exp - \frac{t}{\tau_2} + A_3 \exp - \frac{t}{\tau_3}$$



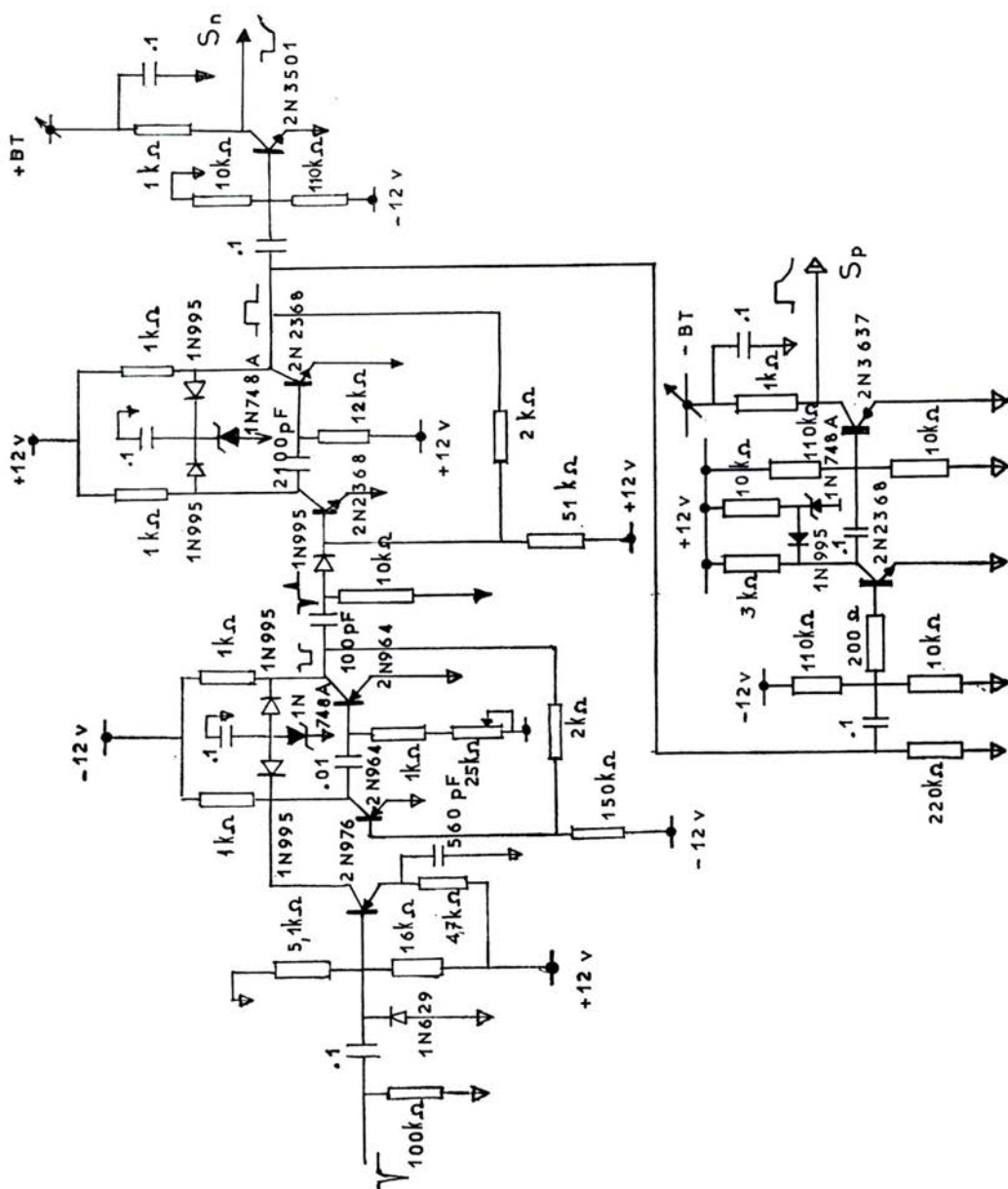


FIG. 7. — Le générateur de signaux carrés à retard variable.

Nous avons mesuré les valeurs de constantes de temps  $\tau_1$ ,  $\tau_2$ ,  $\tau_3$  et celles des amplitudes relatives correspondantes  $A_1$ ,  $A_2$ ,  $A_3$  en fonction de la dose.

TABLEAU 1  
CONSTANTES DE TEMPS  
EN FONCTION DE LA DOSE D'IRRADIATION REÇUE PAR LES VERRES

Dose (rads)	Constante de temps de décroissance ( $\mu\text{s}$ )		
	$\tau_1$	$\tau_2$	$\tau_3$
Prédose	$0,75 \pm 0,15$	$3,50 \pm 0,5$	$32 \pm 3,5$
0,1	$0,70 \pm 0,14$	$2,50 \pm 0,5$	$8 \pm 1$
1	$0,65 \pm 0,13$	$2,45 \pm 0,5$	$13 \pm 1,5$
5	$0,75 \pm 0,15$	$2,1 \pm 0,3$	$6,75 \pm 0,7$
10	$0,95 \pm 0,30$	$2,65 \pm 0,5$	$7,4 \pm 0,75$
100	$0,50 \pm 0,20$	$1,85 \pm 0,3$	$10 \pm 1$
200	$0,60 \pm 0,15$	$1,7 \pm 0,3$	$5 \pm 0,5$
800	$0,80 \pm 0,15$	$1,95 \pm 0,3$	$5,3 \pm 0,5$

Erreurs des mesures : 10 % pour  $\tau_3$ .  
15 % pour  $\tau_2$ .  
20 % pour  $\tau_1$ .

Les valeurs expérimentales sont portées dans les tableaux 1 et 2. On peut en tirer les conclusions suivantes :

a) La constante de temps ( $\tau_1$ ), la plus courte, est voisine de  $0,70 \mu\text{s}$ . Sa valeur est toujours la même, que le verre soit irradié ou non. Son amplitude relative  $A_1$  croît avec la dose.  $\tau_1$  est donc lié aux états excités du verre, qu'ils soient créés ou non par l'irradiation.

b) La constante de temps intermédiaire ( $\tau_2$ ) est de l'ordre de  $2 \mu\text{s}$ , quelle que soit la dose. Pour les verres non irradiés elle est nettement plus longue et voisine de  $3 \mu\text{s}$ .

c) La valeur de la constante de temps la plus longue ( $\tau_3$ ), dans le cas des verres irradiés, varie de  $5$  à  $13 \mu\text{s}$  suivant la dose reçue par les verres. Cependant les résultats sont très dispersés, et l'on ne constate aucune variation continue de sa valeur en fonction de la dose. Pour les verres non irradiés, enfin,  $\tau_3$  est très grande ( $32 \mu\text{s}$ ).

d)  $A_2$  et  $A_3$  varient avec la dose absorbée comme  $\tau_2$  et  $\tau_3$  et ont des valeurs différentes de celles des verres non irradiés; on peut en conclure que les émissions de photons correspondant sont liées, contrairement au cas précédent, à la destruction d'états excités de nature différente selon que le verre est irradié ou non. Ces

émissions de photons très intenses masquent sans doute celles correspondant aux constantes  $\tau_2$  et  $\tau_3$  des verres non irradiés.

TABLEAU 2  
AMPLITUDES RELATIVES CORRESPONDANT AUX TROIS CONSTANTES DE TEMPS  
POUR DES DOSES DE 0, 200 ET 800 RADS

Dose	$\tau_1$ ( $\mu$ S)	$\tau_2$ ( $\mu$ S)	$\tau_3$ ( $\mu$ S)
	Amplitude (u. arb.)	Amplitude (u. arb.)	Amplitude (u. arb.)
0 rad (prédose)	$0,75 \pm 0,15$	$3,5 \pm 0,5$	$32 \pm 3,5$
	$0,24 \pm 0,03$	$0,07 \pm 0,007$	$0,09 \pm 0,01$
200 rads	$0,60 \pm 0,15$	$1,7 \pm 0,3$	$5 \pm 0,5$
	$9,5 \pm 0,9$	$6,1 \pm 0,6$	$2,4 \pm 0,25$
800 rads	$0,80 \pm 0,15$	$1,95 \pm 0,3$	$5,3 \pm 0,5$
	$21,8 \pm 2,2$	$37,5 \pm 3,8$	$12 \pm 1,2$

C'est donc surtout à partir de l'examen des couples de valeur ( $A_3$ ,  $\tau_3$ ) que l'on peut espérer pouvoir séparer les contributions de la dose et de la prédose à la luminescence d'un verre.

## CONCLUSION

Ces expériences nous ont permis d'apprécier l'intérêt considérable du sujet; elles demandent à être précisées de façon systématique. C'est ce que nous faisons actuellement, en substituant au laser, de manipulation incommode, une source UV classique (Hg sous pression) associée à une cellule de POCHELLS.

Nous pensons que les résultats obtenus permettront de concevoir un système de lecture des verres dosimètres beaucoup plus sensible que ceux qui existent actuellement [1], et permettront aux dosimètres de ce type de concurrencer, dans ce domaine, la thermoluminescence.

Bien plus, de telles mesures constituent un moyen original de sonder le mécanisme de la luminescence dans les matériaux de ce genre. On peut espérer

qu'elles pourront constituer un critère de qualité des matériaux pour lumidosimètre, et qu'elles permettront d'améliorer encore les compositions employées pour leur fabrication.

Nous remercions très vivement le Commissariat à l'Energie Atomique pour les moyens qu'il a mis à notre disposition, et en particulier M. Jacques PRADEL, chef du S.T.E.P., M. Georges SOUDAIN, Ingénieur dans ce service, pour les conseils et les encouragements qu'ils nous ont prodigués.

#### BIBLIOGRAPHIE

- [1] BACIOTTI J.P., BLANC D., TEYSSIER J.L., FRANÇOIS H. et SOUDAIN G. Nucl. Instr. Methods, **50**, 1967, p. 93.
- [2] KASTNER J., EGGENBERGER G. et LONGNECKER A. Proc. Conf. « Microdosimetry », Ispra 1967, Euratom 1968.
- [3] CHAPUIS A.M., SIGLI P., FRANÇOIS H., NICODÈME N., CARPENTIER S. et DELARUE R. C.R. Colloque Inter. Electr. Nucl., Toulouse, Mars 1968, volume 3.
- [4] BARTHÉLÉMY C. Les conversions de fréquences, Centre de recherches de la C.G.E. Division des applications optiques, Marcoussis, Mars 1968.