



STRUCTURE DE LA TRACE DES PARTICULES IONISANTES POUR L'ÉTUDE DE LA RADIOLUMINESCENCE DES MILIEUX ORGANIQUES AROMATIQUES CONDENSÉS

On présente un modèle de la trace des particules ionisantes dans des substances organiques aromatiques condensés. A cet égard on tient compte de la nature et de l'évolution des activations primaires créées par l'irradiation. Dans le milieu on considère trois types de régions, la trace, les blobs et les spurs, parmi lesquelles se distribuent les excitations. Les formules donnant les fractions de l'énergie transmise par le corpuscule primaire à chacune de ces régions, sont déduites. Les valeurs de certains paramètres qui interviennent dans ces expressions sont enfin discutées.

1 — INTRODUCTION

Dans des travaux précédents (1, 2) nous avons étudié l'influence de la nature et de l'énergie des particules ionisantes sur le rendement de la radioluminescence des scintillateurs organiques aromatiques. Nous avons examiné plus précisément la variation de la luminescence spécifique du milieu, dS/dx ⁽¹⁾ avec le nombre de charges z et la perte d'énergie spécifique des corpuscules chargés dE/dx . Il ressort des résultats obtenus que, dans le cas d'une excitation par des rayonnements peu énergiques, caractérisés par une perte d'énergie dE/dx élevée ⁽²⁾, la quantité dS/dx cesse d'être une fonction linéaire de dE/dx . En effet, pour des valeurs croissantes de dE/dx elle passe par un maximum et diminue pour des pouvoirs d'arrêt élevés. Ce défaut de linéarité et la formation de ce maximum ont été attribués à des phénomènes de dégradation de l'énergie d'excitation des molécules dus à des perturbations qui agissent sur le système des électrons moléculaires. Celles-ci sont produites par d'autres activations induites au voisinage, et pratiquement au même temps, par la particule incidente; leur intensité dépend de l'énergie et de la nature de cette dernière.

Pour bien étudier ces phénomènes il convient de distinguer, dans le milieu, les molécules excitées dans des régions caractérisées par une faible densité en activations, de celles formées dans des zones où cette densité est élevée. En effet, si les premières peuvent être considérées comme étant isolées par rapport à ce type de perturbations, il n'en est pas de même pour les dernières. Une analyse théorique du rendement de radioluminescence doit ainsi être précédée par l'élaboration d'un modèle de trace des particules; celui-ci doit décrire et les différents types de régions où peuvent se situer les activations créées par un corpuscule incident et la répartition de l'énergie transmise par ce dernier à la cible irradiée.

Dans ce travail nous présenterons un tel modèle pour le cas d'une substance organique aromatique pure. Tout d'abord nous faisons référence à des études récentes sur la nature et l'évolution des

(1) Nombre de photons émis par unité de parcours d'une particule.

(2) Par exemple: protons et particules α d'énergies respectivement inférieures à 1 et 10 MeV.

espèces primaires créées par le passage d'un rayonnement. Nous indiquerons ensuite les mécanismes de dégradation de l'énergie d'excitation qui peuvent expliquer la variation de la luminescence spécifique. Nous définirons alors les différentes régions qu'il faut considérer dans un milieu irradié et nous déduirons les expressions des fractions de l'énergie du corpuscule primaire transmises, par unité de parcours de ce dernier, à chacune de ces régions.

Nous avons utilisé ce modèle de trace pour l'étude de la radioluminescence d'échantillons du scintillateur plastique NE 102A ce que nous a permis de déterminer les paramètres qui caractérisent les fractions mentionnées. Nous profiterons ici de leur connaissance pour faire une discussion sur la répartition de l'énergie et pour suggérer quelques données définissant les régions proposées.

2 — NATURE ET ÉVOLUTION DES EXCITATIONS PRIMAIRES

Au sein d'un milieu irradié, les molécules sont soumises à un flux de particules primaires, secondaires etc., caractérisées par un spectre d'énergie («spectre de dégradation») qui a été étudié par FANO (3, 4). Dans le cas d'une irradiation par des électrons, en particulier, cet auteur introduit une fonction d'intensité spectrale $Y(T)$ qui représente le nombre d'électrons d'énergie T traversant, par unité de temps et d'énergie, un volume sphérique de section unitaire (4). Pour prévoir la nature des excitations produites dans le milieu il faut considérer séparément l'action des corpuscules rapides et lents de ce spectre.

— D'après des travaux sur la perte d'énergie caractéristique des électrons (5, 6) nous savons que *les corpuscules rapides du spectre de dégradation (d'énergie $T \gg E_2 \approx 50$ eV)* donnent lieu, lors des collisions optiques primaires, à des états collectifs d'oscillation des électrons de valence — les plasmons. Dans le cas particulier de substances aromatiques le spectre d'excitation en phase condensée présente deux maxima: pour le benzène, par exemple, un de ces derniers correspond à l'énergie de 7eV et est attribué aux électrons π ; l'autre maximum, plus large que le premier, est observé pour une énergie de ≈ 20 eV et correspond

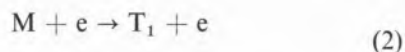
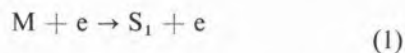
à une oscillation de la totalité des électrons de valence. Dans un temps très court ($\approx 10^{-15}$ s) et par un processus mal connu, ces plasmons donnent lieu à la formation des états excités de molécules individuelles dont l'énergie est ≥ 7 eV (7). Ces derniers sont les états superexcités définis par PLATZMAN (8). L'évolution des molécules portées sur ces niveaux dont l'énergie moyenne est de l'ordre de 20 eV a fait l'objet de plusieurs travaux (1) car elle joue un rôle important dans la prévision des effets ultimes de l'interaction des particules ionisantes dans le milieu.

Les principaux processus d'évolution d'un état superexcité pouvant amener à l'émission de lumière sont la conversion interne vers les états d'excitations plus bas, la dissociation et l'autoionisation (7, 9). Très récemment FUCHS (10, 11) a mis en évidence que, pour les milieux condensés la probabilité de ce troisième mécanisme qui donne lieu à la formation d'un ion positif M^+ et d'un électron libre, est plus élevée que celle des deux autres; la valeur relative de cette probabilité doit même augmenter avec l'énergie d'excitation, pouvant devenir égale à l'unité pour des valeurs de celle-ci dépassant l'énergie d'ionisation. Cette conclusion est, par ailleurs, cohérente avec celle de THOMAS *et al.* (12, 13) qui ont été amenés à attribuer une origine ionique à tous les états excités pour expliquer leurs résultats de la radiolyse de solutions de substances aromatiques.

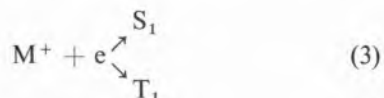
La répartition de l'énergie entre l'ion M^+ et l'électron n'est pas encore très bien connue ce qui difficle la description précise de leur évolution. En ce qui concerne l'ion positif, VOLTZ (7) admet que, dans des temps de l'ordre de 10^{-14} s, il perd son énergie par une série de transitions non radiatives l'amenant à son niveau de vibration le plus bas; dans ce cas la charge M^+ doit rester localisée près du lieu de sa création jusqu'à sa neutralisation. Pour prévoir le rôle des électrons il faut connaître l'énergie cinétique dont ils sont animés. Celle-ci doit être faible, si on tient compte du fait que l'énergie moyenne d'un état superexcité est de l'ordre de 20 eV. Elle peut cependant, être supérieure à celle des états électroniques excités singulets S_1 et triplets T_1 les plus bas, de plusieurs substances

(1) Pour un résumé de plusieurs travaux parus sur ce sujet, voir la réf. (9).

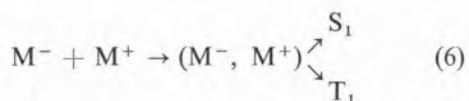
aromatiques, ce qui rend possible l'excitation de ces niveaux moléculaires suivant les réactions



cette dernière correspondant à un processus d'échange électronique dont la section efficace peut être comparable à celle de l'excitation des niveaux singulets (14, 15). Les électrons d'énergie inférieure à S_1 et T_1 peuvent provenir directement de l'auto-ionisation, ou être des électrons ayant déjà subi une ou plusieurs collisions électroniques. Ils sont capables de créer des états excités suivant les réactions:



(4)



(7)

Les mécanismes 3 et 4 correspondent à la recombinaison de l'électron avec un ion positif; la formation d'excitons triplets est cependant impossible, par des raisons de conservation de spin, si la neutralisation (M^+ , e) a lieu entre un électron et leur ion parent. Les électrons ayant échappé à la recombinaison peuvent être fixés par une molécule neutre et créer un ion négatif M^- . Celui-ci, pour sa part, donne lieu, avec l'ion positif, à un complexe (M^+ , M^-) dont la neutralisation conduit à des excitations moléculaires. Notons enfin que, après les réactions 1 et 2 la recombinaison et la formation du complexe (M^+ , M^-) sont encore probables. L'autoionisation d'un niveau superexcité est, dans ces cas, suivie de la formation de plus qu'un exciton.

— Les réactions 1 à 7 sont également valables pour les *électrons lents* ($T < E_2$) formés lors des

collisions ionisantes produites par la particule primaire ou par des corpuscules secondaires. Ces électrons constituent d'ailleurs une fraction appréciable du spectre de dégradation (16). Ils peuvent avoir une énergie supérieure à celle des électrons qui résultent de l'autoionisation d'un état superexcité et ont par rapport à ces derniers, plus de chances de produire des excitations directes par les réactions 1 et 2. La formation d'autres excitons étant encore possible après ces processus, nous devons espérer que l'action des électrons lents soit traduite par la création d'un nombre important d'excitations.

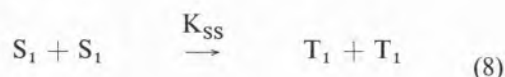
De ce qui précède nous pouvons conclure que le passage d'une particule primaire dans un milieu est accompagné de la formation d'une grande quantité de molécules excitées. Celle-ci doit avoir lieu dans un temps très court, de l'ordre ou même inférieur à 10^{-12} s (7).

Pour prévoir le rapport T/S entre le nombre d'excitons triplets et singulets il faut considérer séparément les régions du milieu qui sont caractérisées par une densité élevée en activations, et celles où cette densité est faible. Si on admet que dans ces dernières les paires ion positif-électron sont isolées les unes des autres, la recombinaison M^+ , e^- conduit surtout à un exciton singulet car elle se fera, dans la plupart des cas, entre l'électron et l'ion parent. Il faut cependant considérer l'hypothèse de la réalisation du processus d'échange électronique 2 lequel peut être suivi de la réaction 4. Il y aurait alors la production de deux états T_1 mais la probabilité de ce processus n'est pas élevée dans l'ensemble des régions où les paires sont isolées (17). Dans ces zones du milieu il faut donc s'attendre à des faibles valeurs du rapport T/S. Il n'en est pas de même dans les régions où la densité en paires d'ions est suffisamment élevée pour que la recombinaison soit complètement aléatoire. En effet, il est bien connu que les molécules excitées lors des réactions 3 et 4 ont alors une probabilité égale de se trouver dans un état singulet ou dans un des trois états triplets possibles, ces derniers étant ainsi statistiquement favorisés. Ceci conduit donc à un rapport T/S = 3. Si, en plus, on considère la production directe des excitons triplets nous pouvons encore concevoir des zones du milieu où la valeur de T/S soit même supérieure à 3 (17).

3 — EVOLUTION DES NIVEAUX MOLÉCULAIRES S_1 ET T_1

Dans ce paragraphe nous considérons surtout les mécanismes liés aux phénomènes de dégradation de l'excitation moléculaire pouvant expliquer la variation du rendement de radioluminescence d'une substance aromatique pure avec la nature et l'énergie des particules incidentes.

En ce qui concerne l'exciton S_1 il faut envisager, outre l'émission de fluorescence caractérisée par un temps de décroissance de l'ordre de 10^{-9} s, un certain nombre de transitions non radiatives (18). Parmi celles-ci nous signalons les interactions singulet-singulet

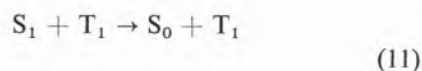
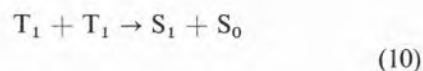


donnant lieu à la formation de deux états triplets et les interactions singulet-triplet

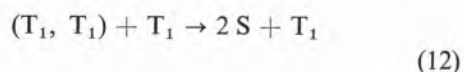


conduisant l'exciton S_1 à l'état fondamental sans modification de l'état triplet. Ces réactions dont les constantes de vitesse pour l'anthracène sont respectivement de l'ordre de $K_{SS} = 3 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ et $K_{ST} = 2 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, constituent, en effet, un mécanisme important d'inhibition des excitations singulet dépendant de la concentration en activations (19-22). Cependant, pour que ces processus ne puissent pas affecter la constante de temps de la fluorescence il faut qu'ils soient plus rapides que les transitions radiatives $S_1 \rightarrow S_0$. En comparant les valeurs des constantes de vitesses K_{SS} et K_{ST} avec celle de la constante de temps de fluorescence pour l'anthracène il est alors facile de vérifier que les effets de dégradation ne doivent être efficaces que dans les régions du milieu ayant des concentrations en S_1 supérieures à $\approx 10^{16} \text{ cm}^{-3}$. Pour définir ces zones il convient de décrire les phénomènes d'extinction en termes d'une longueur critique R_d telle que la disparition d'un état S_1 ait lieu avec certitude si au moins une autre espèce activée (S_1 ou T_1) se trouve à une distance $R < R_d$; dans le cas contraire ($R > R_d$) la probabilité de dégradation est considérée négligeable.

L'évolution des excitons triplets peut se faire par des processus monomoléculaires (phosphorescence et intercombinaison non radiative) et bimoléculaires (interactions $T_1 - T_1$). Cependant pour des concentrations en niveaux T_1 suffisamment élevées ($> 10^{13} \text{ cm}^{-3}$) les premiers sont négligeables. Les interactions triplet-triplet peuvent conduire à la formation d'un état S_1 et par conséquent à une émission de lumière, qui caractérise le signal différé de la scintillation (23). Par ailleurs l'étude expérimentale de la luminescence spécifique due à ce signal, a mis en évidence des phénomènes de dégradation des excitations triplets dont la nature n'a pas été bien définie (1, 2). Divers auteurs (24-27) ayant vérifié que l'émission lumineuse liée aux états triplets diminuait lorsque l'on injectait des porteurs de charge dans le milieu irradié, ont été amenés à considérer, comme responsable de la dégradation, une interaction directe triplet-porteur de charge. C'est notamment ce qu'admet WAKAYAMA (27) dans des conditions telles que les processus monomoléculaires de deexcitation des excitons triplets sont plus probables que les mécanismes bimoléculaires. Par contre si ces derniers sont prépondérants cet auteur considère que la dégradation doit être plutôt due à une interaction entre un porteur de charge et un produit intermédiaire, de nature inconnue, formé lors de l'annihilation triplet-triplet. Dans des régions du milieu caractérisées par une densité élevée en excitons triplets (les réactions monomoléculaires y étant donc négligeables) nous pouvons encore envisager comme mécanisme de dégradation les réactions successives suivantes:



L'extinction de l'émission différée serait alors expliquée par la dégradation de l'exciton S_1 lors d'une interaction singulet-triplet analogue à celle considérée précédemment. L'addition de 10 et 11 donne la réaction globale



qui traduit la disparition de deux excitons T_1 par l'action d'un troisième créé dans son voisinage. La validité de la réaction 12 pour expliquer la dégradation de la luminescence différée doit cependant être vérifiée (par des mesures de luminescence spécifique et par l'étude cinétique du signal différé, par exemple).

En absence de précisions sur le mécanisme réel, nous allons admettre que les phénomènes d'extinction se produisent entre un état triplet T_1 et un centre inhibiteur créé à son voisinage. Ceci implique que la réaction ait lieu dans une zone du milieu ayant une concentration élevée en activations. Pour caractériser ces régions il convient d'introduire une nouvelle longueur critique R_d' entre l'exciton T_1 et le couper dont la définition est analogue à celle de R_d .

4 — DISTRIBUTION SPATIALE DES ACTIVATIONS

De ce que nous venons de dire nous pouvons conclure que l'évolution des états S_1 et T_1 doit être distincte suivant elle a lieu ou pas dans des régions du milieu caractérisées par une densité élevée en activations. Il est donc important de savoir comment se distribuent les différentes excitations. Pour cela il convient de faire la distinction entre les états moléculaires activés par des particules rapides et par des corpuscules lents. Sur la fig. 1 nous schématisons un modèle de distribution d'activations dans le cas, plus simple, d'une irradiation par des électrons. Après le passage de la particule primaire il faut considérer:

4.1 — Les molécules excitées, lors de l'évolution des plasmons isolés, dans des régions de petites dimensions que nous designerons par «spurs»⁽¹⁾. Ces activations sont produites par des corpuscules primaires ou secondaires dont l'énergie $T \geq E_1$ est telle que le libre parcours moyen λ entre deux collisions successives, soit égal ou supérieur à une longueur R_s de l'ordre de grandeur des dimensions des «spurs».

4.2 — Les molécules activées par les électrons lents du spectre de dégradation ($T < E_2$), suivant les processus (1) à (7) et qui restent également localisées dans des «spurs».

4.3 — Les molécules excitées par des électrons d'énergie comprise entre E_1 et E_2 et caractérisées par une valeur de la quantité λ inférieure à R_s . Ces molécules s'accumulent dans des régions que nous appellerons «blobs»⁽¹⁾, où les «spurs» se recouvrent.

La distribution des activations produites par des particules lourdes (protons, particules α , etc.) de pouvoir ionisant élevé, est schématisée sur la fig. 2. Nous y considérons:

a) La formation d'une trace cylindrique matérialisée par les spurs et par les blobs centrés près de la trajectoire de la particule primaire et engendrés par des électrons secondaires d'énergie $T < E_1$.
b) Les spurs isolés et les blobs créés par les électrons secondaires plus rapides (rayons δ) d'énergie $T > E_1$ auxquels s'applique le modèle de la fig. 1.

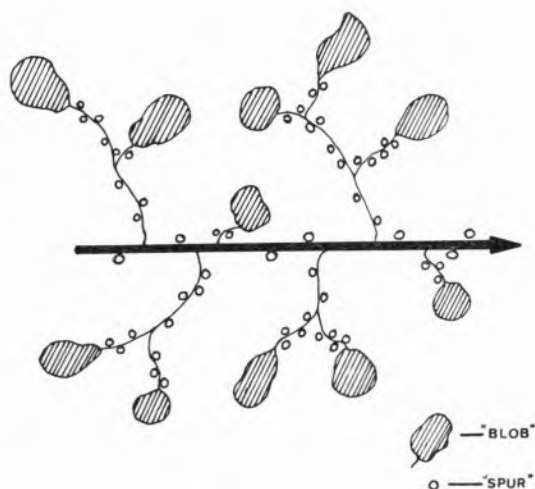


Fig. 1

Représentation schématique de la distribution spatiale des régions où se situent les espèces activées produites par un électron rapide.

Les blobs et la trace constituent donc les régions caractérisées par une densité élevée en activations. En conformité avec ce qui a été dit au paragraphe précédent nous admettons que les processus de dégradation des états singulets et triplets y sont très probables.

(1) Nous adoptons ici une nomenclature identique à celle suggérée par MAGEE (28).

5 — RÉPARTITION DE L'ÉNERGIE DISSIPÉE PAR LA PARTICULE PRIMAIRE

En tenant compte des modèles de distributions des activations indiqués sur les figs. 1 et 2, nous pouvons maintenant établir les expressions donnant les fractions de l'énergie de la particule primaire dissipée dans chacune des zones considérées. Pour cela nous commençons par analyser le cas de l'irradiation par des électrons.

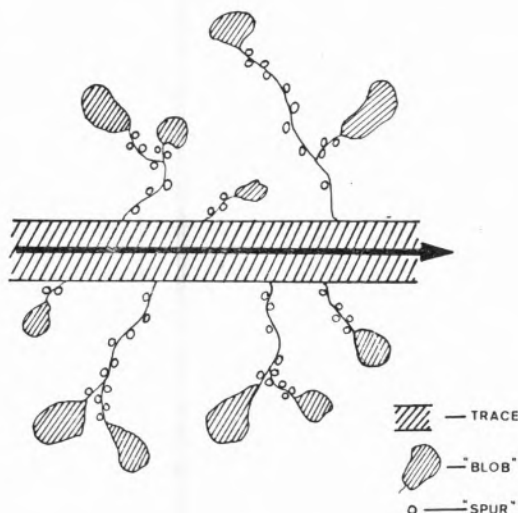


Fig. 2

Représentation schématique de la distribution spatiale des régions où se situent les espèces activées produites par une particule lourde de pouvoir ionisant élevé.

5.1 — IRRADIATION PAR DES ÉLECTRONS

Les «blobs» ont été définis comme étant des régions de densité élevée en activations créées par le recouvrement des spurs dus aux électrons d'énergie T telle que $E_2 < T < E_1$. Pour déterminer le rapport $F_{E_1 E_2}(T)$ de l'énergie incidente qui est dissipée dans ces zones en quantités comprises entre E_1 et E_2 , à celle perdue dans le milieu par la particule primaire, nous partons d'une hypothèse suggérée par FANO (29) et par GRAY (30). Selon ces auteurs, tout électron dont l'énergie est supérieure à une certaine valeur E , dissipe cette quantité E d'une façon fortement localisée en fin de parcours. Dans le cas d'une irradiation par un électron d'énergie incidente $T > E$, il faut tenir compte

de tous les électrons secondaires d'énergie supérieure à E . Le nombre n de ces derniers créés, par unité de parcours, à la suite des chocs centraux qui leur confèrent une énergie comprise entre E et la valeur maximale $T/2$ qu'ils peuvent acquérir, est donné par

$$n = \int_E^{T/2} d(dn/dx) = \Psi \int_E^{T/2} \frac{dQ}{Q^2} = \Psi \left(\frac{1}{E} - \frac{2}{T} \right) \quad (1)$$

où $d(dn/dx) = \Psi (dQ/Q^2)$ est le nombre de corpuscules secondaires d'énergie comprise entre Q et $Q + dQ$.

Le facteur Ψ est défini par

$$\Psi = \frac{\pi e^4 N Z}{T} \quad (2)$$

NZ étant le nombre d'électrons par cm^3 du milieu et e la charge de l'électron. La proportion F_{Es} de l'énergie cédée au milieu par ces n particules secondaires en quantités égales à E s'écrit

$$F_{Es}(T) = \frac{nE}{dT/dx} \quad (3)$$

Comme la perte d'énergie spécifique dT/dx est de la forme

$$\frac{dT}{dx} = \Psi B(T) \quad (4)$$

où $B(T)$ est le nombre d'arrêt donné, d'après BETHE (31) par

$$B(T) = 2 \log \left(\sqrt{\frac{e}{2}} \frac{T}{I} \right) \quad (5)$$

il vient

$$F_{Es}(T) = \frac{1}{B(T)} \left(1 - \frac{2E}{T} \right) \quad (6)$$

I étant le potentiel moyen d'ionisation du milieu.

Si l'électron primaire est complètement absorbé dans le milieu il perd, lui aussi, une quantité E à la fin de son parcours, correspondant à une proportion

$$F_{Ep}(T) = \frac{E}{T} \quad (7)$$

La fraction totale $F_E(T) = F_{Es}(T) + F_{Ep}(T)$, donnée par:

$$F_E(T) = \frac{1}{B(T)} \left(1 - \frac{2E}{T} \right) + \frac{E}{T} \quad (8)$$

définit donc la part de l'énergie de la particule incidente qui est transférée de manière localisée.

Pour déterminer la fraction $F_{E_1 E_2}(T)$, il nous faut faire la différence entre les parts $F_{E_1}(T)$ et $F_{E_2}(T)$ d'énergie dissipée en quantités égales respectivement à E_1 par des électrons d'énergie initiale supérieure à E_1 et à E_2 par des corpuscules d'énergie plus grande que E_2 .

On doit, de plus, tenir compte de la fraction $F_{E_1 - E_2}(T)$ cédée au milieu par des électrons produits directement avec des énergies comprises entre E_1 et E_2 . La fraction $F_{E_1 E_2}$ est en effet donnée par

$$F_{E_1 E_2}(T) = F_{E_1}(T) - F_{E_2}(T) + F_{E_1 - E_2}(T) \quad (9)$$

où $F_{E_1 - E_2}(T)$ est de la forme

$$F_{E_1 - E_2}(T) = \frac{\Psi \int_{E_2}^{E_1} \frac{dQ}{Q}}{dT/dx} = \frac{1}{B(T)} \log \frac{E_1}{E_2} \quad (10)$$

Les proportions $F_{E_1}(T)$ et $F_{E_2}(T)$ étant données par l'expression 8 nous pouvons écrire finalement

$$F_{E_1 E_2}(T) = \frac{E_1 - E_2}{T} \left(1 - \frac{2}{B(T)} \right) + \frac{1}{B(T)} \log \frac{E_1}{E_2} \quad (11)$$

Dans le cas, par contre, où l'électron incident n'est pas totalement absorbé, cette expression se simplifie, car le terme provenant de la fin de parcours du corpuscule primaire disparaît. La relation 11 devient alors:

$$F_{E_1 E_2}(T) = \frac{1}{B(T)} \log \frac{E_1}{E_2} - \frac{2}{B(T)} \frac{E_1 - E_2}{T} \quad (12)$$

Notons enfin que, si l'énergie T de l'électron considéré est telle que $E_2 < T < E_1$, on a

$$F_{TE_2}(T) = \frac{T - E_2}{T} \quad (13)$$

et si $T < E_2$

$$F_{TE_2} = 0$$

5.2 — IRRADIATION PAR DES IONS LOURDS

Nous avons défini, pour le cas d'une irradiation par des particules lourdes de pouvoir ionisant élevé, deux régions ayant une forte densité en activations: la trace et les blobs. Nous établirons maintenant les relations qui donnent les fractions de l'énergie de la particule primaire dissipée dans la trace, dans les blobs et dans les spurs isolés.

5.2.1 — ENERGIE DISSIPÉE DANS LA TRACE

Par une question de simplicité il convient plutôt de déterminer la fraction Φ_1 de l'énergie dissipée hors de la trace par des électrons secondaires d'énergie $T \geq E_1$, la valeur que nous cherchons étant alors $(1 - \Phi_1)$.

Le nombre de corpuscules secondaires, d'énergie comprise entre T et $T + dT$, produits par unité de parcours, par une particule incidente de masse M , nombre de charges z et énergie E , est donné par

$$d \left(\frac{dn}{dx} \right) = \frac{\pi e^4 M}{mE} z^2 N Z \frac{dT}{T^2} \quad (14)$$

m étant la masse de l'électron. L'énergie dissipée

hors de la trace par unité de parcours de l'ion primaire peut être déterminée par la somme

$$\int_{E_1}^{T_{\max}} T \frac{d}{dT} \left(\frac{dn}{dx} \right) dT \quad (15)$$

où $T_{\max} = (4mE)/M$ est l'énergie maximale susceptible d'être transmise à un électron lors d'une collision avec la particule incidente. Nous pouvons alors obtenir la fraction Φ_1 en faisant

$$\Phi_1 = \frac{\int_{E_1}^{T_{\max}} T \frac{d}{dT} \left(\frac{dn}{dx} \right) dT}{dE/dx} \quad (16)$$

Calculant l'intégrale et remplaçant la perte d'énergie spécifique du corpuscule incident par l'expression de BETHE (31)

$$\frac{dE}{dx} = \frac{2\pi e^4 z^2}{mE} NZ \operatorname{Log} \frac{4mE}{MI} \quad (17)$$

nous arrivons finalement à

$$\Phi_1 = \frac{1}{2} \frac{\operatorname{Log} (4mE/ME_1)}{\operatorname{Log} (4mE/MI)} \quad (18)$$

L'énergie dissipée par la particule primaire dans la trace est donc $(1 - \Phi_1) dE/dx$. Dans le cas particulier où $E_1 < T_{\max}$ il est évident que toute l'énergie de la particule reste localisée dans la trace.

5.2.2 — ENERGIE DISSIPÉE DANS LES «BLOBS»

Rappelons que les «blobs» sont produits par les électrons secondaires, tertiaires ... d'énergie T comprise entre E_2 et E_1 , à la fin de leur parcours. Si on tient compte de l'expression 9 et de la définition de Φ_1 , il est facile de vérifier que la fraction Φ_2

de l'énergie de l'ion primaire dissipée dans ces «blobs» est donnée par

$$\Phi_2 = \frac{\int_{E_1}^{T_{\max}} F_{E_1 E_2} T \frac{d}{dT} \left(\frac{dn}{dx} \right) dT}{dE/dx} \quad (19)$$

Si l'on introduit dans cette relation les expressions 11, 14, et 17 nous obtenons

$$\Phi_2 = \frac{S}{2 \operatorname{Log} \frac{4mE}{MI}} \quad (20)$$

où

$$S = \int_{E_1}^{T_{\max}} \left\{ \frac{E_1 - E_2}{T^2} \left[1 - \frac{1}{\operatorname{Log} \left(\sqrt{\frac{e}{2}} \frac{T}{I} \right)} \right] + \frac{\operatorname{Log} E_1/E_2}{2T \operatorname{Log} \left(\sqrt{\frac{e}{2}} \frac{T}{I} \right)} \right\} dT \quad (21)$$

L'énergie dissipée dans les blobs, par unité de parcours de la particule incidente, est alors donnée par $\Phi_2 dE/dx$.

5.2.3 — ENERGIE DISSIPÉE DANS LES SPURS ISOLÉS

Les spurs isolés sont créés soit lors des collisions optiques induites par des électrons secondaires d'énergie supérieure à E_1 soit par l'action directe des électrons lents du spectre de dégradation, d'énergie inférieure à E_2 . D'après les définitions de Φ_1 et de Φ_2 il devient évident que l'énergie perdue par la particule primaire par unité de son parcours qui reste localisée dans ces zones du milieu, est donné par $(\Phi_1 - \Phi_2) dE/dx$.

6 — DISCUSSION

Le modèle que nous venons de décrire a été le point de départ de l'établissement d'une nouvelle expression théorique de la luminescence spécifique des scintillateurs aromatiques. Dans une prochaine

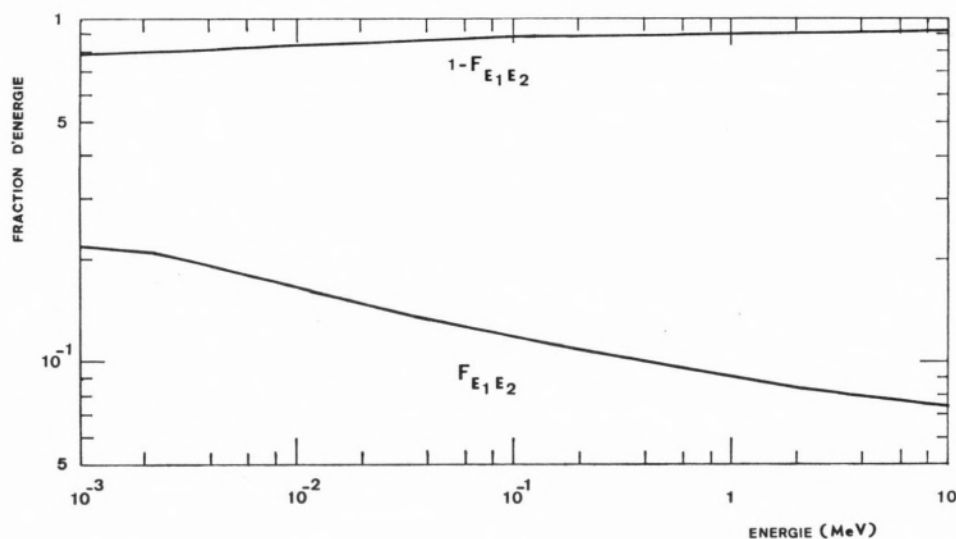


Fig. 3

Répartition de l'énergie cédée au milieu (scintillateur plastique NE 102 A) par un électron d'énergie E .

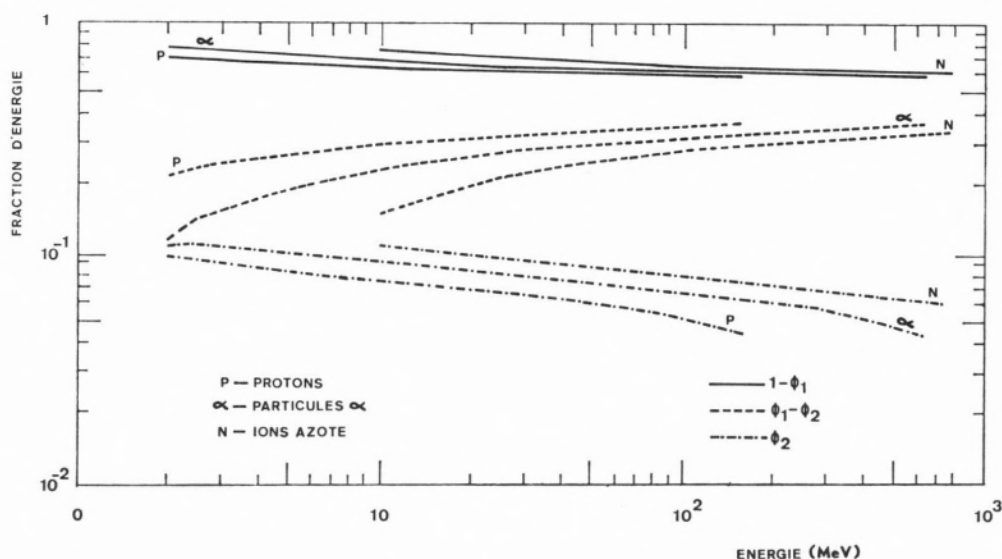


Fig. 4

Répartition de l'énergie cédée au milieu (scintillateur plastique NE 102 A) par une particule lourde d'énergie (E).

publication nous présenterons la déduction de cette relation bien comme la détermination des différents paramètres intervenant dans cette dernière. Il nous semble intéressant de donner ici les valeurs que nous avons trouvé pour les énergies E_1 et E_2 qui ont été respectivement 300 et 50 eV⁽¹⁾. En effet celles-ci nous permettent maintenant de déterminer la variation, des fractions $F_{E_1 E_2}$, Φ_1 ,

Φ_2 , $(\Phi_2 - \Phi_1)$ et $(1 - \Phi_1)$ en fonction de l'énergie des particules primaires, ainsi que d'obtenir une valeur moyenne pour le rayon de la trace et d'un spur.

(1) Ces valeurs ont été obtenues en tenant compte des résultats des mesures de luminescence spécifique d'échantillons de scintillateur plastique NE 102 A.

Les courbes qui traduisent la variation de ces fractions en fonction de l'énergie du rayonnement, sont représentées sur la fig. 3 pour les électrons ⁽¹⁾ et sur la fig. 4 pour les protons, les particules α et les ions azote.

L'analyse de ces courbes montre que, pour les particules lourdes la plupart de l'énergie du corpuscule primaire est concentrée dans la trace. En effet on obtient $(1 - \Phi_1) \approx 60\%$ même pour des énergies supérieures à 100 MeV. Par ailleurs, la fraction Φ_2 , donnant l'énergie dissipée dans les blobs, est très faible puisqu'elle est presque toujours inférieure à 10 %. En ce qui concerne l'irradiation par des électrons on remarque également que l'énergie perdue dans la formation des blobs est en général faible; il faut descendre au dessous de 0,4 MeV pour trouver une fraction $F_{E_1 E_2} > 10\%$.

Finalement à partir de la valeur de E_1 nous pouvons encore déduire l'ordre de grandeur du diamètre moyen d'un spur et du rayon moyen de la trace. En effet, rappelons que la quantité E_1 est l'énergie des électrons secondaires en dessous de laquelle il y a recouvrement des spurs ce qui nous permet d'admettre que le libre parcours moyen, λ , d'un électron ayant cette énergie, doit être de l'ordre de grandeur des dimensions d'un spur. Par ailleurs, la trace étant définie comme une région engendrée par des électrons d'énergie $T < E_1$, son rayon moyen peut être identifié au parcours d'un de ces corpuscules dont l'énergie est égale à E_1 .

Le libre parcours moyen entre deux spurs créés par un électron caractérisé par une perte d'énergie spécifique dT/dx , est donné en première approximation par

$$\lambda = W_{sp} (dT/dx)^{-1}$$

où W_{sp} est énergie moyenne de formation d'un spur. En faisant $W_{sp} = 50$ eV (11, 32) nous obtenons pour un électron de 300 eV $\lambda \approx 20$ Å. Cette valeur est en bon accord avec celle suggérée par MAGEE pour le diamètre d'un spur (28).

En ce qui concerne le parcours R d'un électron, on peut le calculer employant la relation empirique présentée par MAGEE (28)

$$R = A E^m$$

En faisant $A = 2,2 \cdot 10^{-3}$ et $m = 1,5$ (2) nous

obtenons pour $T = 300$ eV la valeur la $R \approx 100$ Å laquelle peut en effet être identifiée au rayon de la trace puisqu'elle est en bon accord avec d'autres résultats expérimentaux (23, 28, 33).

7 — CONCLUSION

Dans ce travail nous venons de décrire un modèle de répartition des excitations créées par une particule ionisante dans un milieu aromatique condensé, et de l'énergie dissipée dans ce dernier par le corpuscule incident. A cet égard nous avons tenu compte des conclusions récentes, parues dans la littérature, sur la nature et l'évolution des activations primaires produites par le passage de la particule.

Dans le cas d'une irradiation par des électrons rapides, de faible pouvoir ionisant, nous avons considéré lors des collisions distantes induites par des corpuscules primaires, secondaires, tertiaires ... d'énergie $T \geq E_2$, la formation d'états collectifs d'oscillation, les plasmons, dont le déclin conduit les molécules à des niveaux superexcités. Nous avons admis que le seul processus d'évolution de chacun de ces états, pouvant amener à une émission de lumière, était son autoionisation donnant un ion positif M^+ et un électron. Pour traduire le rôle de ce dernier nous avons indiqué un schéma réactionnel rassemblant les différents processus par lesquels il peut induire la formation d'excitations singulets S_1 et triplets T_1 dans un milieu pur. Nous avons considéré l'excitation directe par collision optique ou par échange électronique et l'activation indirecte, soit par recombinaison avec un ion positif, soit par l'intermédiaire de la production d'un complexe (M^+ , M^-). En ce qui concerne l'action des électrons secondaires, tertiaires ... d'énergie inférieure à E_2 nous avons admis qu'ils peuvent avoir un comportement identique à ceux créés lors de l'autoionisation d'un niveau superexcité mais ayant une probabilité plus élevée de produire des excitations par des processus directs.

(1) Dans le cas où la particule primaire n'est pas absorbée dans le milieu irradié.

(2) La valeur de la quantité A a été calculée pour le scintillateur plastique NE102 A; celle de m est l'indiquée par MAGEE (28).

La région du milieu affectée par le déclin d'un plasmon a été désignée par «spur», il étant de même pour les zones où s'accumulent les activations créées par les électrons d'énergie $T < E_2$. Nous avons cependant considéré que les spurs produits par l'action d'un électron d'énergie comprise entre E_2 et E_1 se recouvrent dans des régions dénommées «blobs» qui sont ainsi caractérisées par une densité élevée d'activations.

Dans le cas d'une irradiation par des particules lourdes de pouvoir ionisant élevé, en plus des spurs et des blobs produits par l'action d'électrons secondaires d'énergie $T > E_1$, nous avons défini, près de la trajectoire de la particule primaire, une trace engendrée par l'ensemble des blobs et des spurs créés par le corpuscule incident et par les électrons secondaires d'énergie $T < E_1$.

Parmi les processus qui contrôlent l'évolution des excitons S_1 et T_1 nous nous sommes intéressés aux phénomènes de dégradation pouvant être responsables par la variation non linéaire de la luminescence spécifique des scintillateurs aromatiques. Dans le cas des états S_1 nous avons considéré les interactions entre deux singulets et entre un singulet et un triplet. Elles ont été caractérisées en termes d'un paramètre R_d tel que toute molécule portée dans un état S_1 disparaisse si à son voisinage à une distance égale ou inférieure à R_d , il y a eu formation d'un exciton S_1 ou T_1 . L'inhibition des excitons T_1 a été, de sa part, attribuée à une interaction entre un état T_1 et un centre inhibiteur dont la nature n'a pas été bien précisée mais qui pourrait être une pair d'excitons triplets (T_1 , T_1). Un paramètre R'_d identique à R_d a été également défini. Nous avons admis que ces mécanismes de dégradation sont très probables dans les zones du milieu ayant une forte densité d'activations (les blobs et la trace).

La répartition de l'énergie de la particule incidente, absorbée par la substance irradiée, a été établie tenant compte des trois types de régions qui ont été définies. Dans le cas d'une irradiation par des électrons nous avons déduit la relation donnant la fraction $F_{E_1 E_2}$ de l'énergie du corpuscule primaire dissipée dans les blobs. Pour les particules lourdes nous avons déduit les expressions des fractions Φ_1 , Φ_2 et $(\Phi_1 - \Phi_2)$ qui définissent la partie de l'énergie qui reste respectivement hors de la trace, dans les blobs isolés et dans les spurs

isolés; la fraction correspondante à l'énergie perdue dans la trace est donc égale à $(1 - \Phi_1)$. Nous avons profité de la connaissance des énergies E_1 et E_2 pour présenter les courbes donnant la variation de ces fractions en fonction de l'énergie de particules ionisantes (électrons, protons, particules α et ions azote). Il a été ainsi possible de vérifier que dans le cas d'une irradiation par des rayonnements de pouvoir ionisant élevé, la plupart de l'énergie cédée au milieu par le corpuscule reste localisée dans des zones à forte densité d'activations et qu'il n'en est pas de même pour le cas des électrons. Par ailleurs nous avons pu déduire l'ordre de grandeur des dimensions de la trace et d'un spur et montrer que les valeurs obtenues sont en bon accord avec celles proposées par d'autres auteurs.

REMERCIEMENTS

Je tiens à exprimer ma très vive reconnaissance à Monsieur R. Voltz, Professeur à la Faculté des Sciences de L'Université Louis Pasteur de Strasbourg dont les conseils m'ont été une aide précieuse dans l'exécution de ce travail.

BIBLIOGRAPHIE

1. Silva, J. L., «Thèse Doctorat d'Etat», Strasbourg, 1969.
2. Silva, J. L. et Voltz, R., *Rev. Phys. Appl.*, **7**, 127 (1972).
3. Fano, U., *Phys. Rev.*, **92**, 328 (1953).
4. Spencer, L. V. et Fano, U., *Phys. Rev.*, **93**, 1172 (1954).
5. Pines, D., «Elementary Excitations in Solids», Benjamin, New York, 1964.
6. Powel, C. J., *Health Phys.*, **13**, 1265 (1967).
7. Voltz, R., *Proc. Tenth Czech. Ann. Meeting Radiation Chemistry*, Mariánské Lázně, 1970.
8. Platzman, R. L., *Vortex*, **23**, 372 (1962).
9. Singh, A., *Radiation Res. Rev.*, **4**, 1 (1972).
10. Fuchs, G., «Thèse Doctorat d'Etat», Strasbourg, 1972.
11. Fuchs, G., Heisel, F. et Voltz, R., *J. Phys. Chem.*, **76**, 3867 (1972).

12. Thomas, J. K. et Mani, I., *J. Chem. Phys.*, **51**, 1834 (1969).
13. Bensasson, R. V. et Thomas, J. K., *Intern. J. Radiation Phys. Chem.*, **1**, 185 (1969).
14. Brongersma, H. H., Hart, I. A. et Oosterhoff, L. J., *Nobel Symp.*, **5**, 211 (1967).
15. Compton, R. N., Huebner, R. H., Reinhardt, P. W. et Christophorou, L. G., *J. Chem. Phys.*, **48**, 901 (1968).
16. Santar, I. et Bednar, J., *Collection Czech. Chem. Commun.*, **33**, 1 (1968).
17. Magee, J. L. et Huang, J., *J. Phys. Chem.*, **76**, 3801 (1972).
18. Birks, J. B., «Photophysics of Aromatic Molecules», Wiley Interscience, London, 1970, p. 38.
19. Fourny, J., Delacôte, G. et Schott, M., *Phys. Rev. Letters*, **21**, 1085 (1968).
20. Pope, M., Geacintov, N., et Vogel, F., *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **6**, 83 (1969).
21. Pope, M., Geacintov, N., Saperstein, D. et Vogel, F., *J. Lumin.*, **1**, 2, 224 (1970).
22. Babenko, S. D., Benderskii, V. A., Goldansky, V. I. et Larrunshko, A. G., *Phys. Stat. Sol. (b)*, **45**, 91 (1971).
23. King, T. et Voltz, R., *Proc. Roy. Soc. (London), Ser. A*, **289**, 424 (1966).
24. Helfrich, W., *Phys. Rev. Letters*, **16**, 401 (1966).
25. Rumyantsev, B. M. et Frankevich, E. L., *Opt. Spectrosc.*, **27**, 427 (1969).
26. Ern, V. et McGhie, A. R., *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **15**, 277 (1971).
27. Wakayama, N. et Williams, D. F., *J. Chem. Phys.*, **57**, 1770 (1972).
28. Mozunder, A. et Magee, J. L., *Radiation Res.*, **28**, 203 (1966).
29. Fano, U., *Phys. Rev.*, **151**, 698 (1943).
30. Gray, L. H., «Actions Chimiques et Biologiques des Radiations», Ed. H. Haissinsky, Masson, Paris, 1955, p. 1.
31. Bethe, H. A. et Ashkin, J., «Experimental Nuclear Physics», Vol. 1, Ed. E. Segré, Wiley Interscience, New York, 1953, p. 166.
32. Magee, J. L., *Ann. Rev. Phys. Chem.*, **12**, 389 (1961).
33. Kallmann, H. et Brucker, G. J., *Phys. Rev.*, **108**, 1122 (1957).

RESUMO

Apresenta-se um modelo de traço das partículas ionizantes em meios orgânicos aromáticos condensados. Na elaboração do modelo têm-se em consideração os conhecimentos actuais sobre a natureza e evolução das activaões primárias produzidas pela irradiação. Considera-se que estas activaões se distribuem no meio, segundo três tipos de regiões: o traço, os «blobs» e os «spurs». Deduzem-se ainda as expressões que definem a quantidade da energia da partícula primária que é transmitida a cada uma destas regiões. Os valores de alguns dos parâmetros que aparecem nas fórmulas apresentadas, são por sua vez discutidos.