

31. M. AGENO. — Alcune considerazioni sul fenomeno delle scintillazioni nei cristalli organici.

Riassunto. — Si prendono in esame le misure comparative fino ad oggi eseguite sulle scintillazioni prodotte in cristalli di sostanze organiche da raggio γ o particelle ionizzanti veloci.

Si fa vedere come questi dati sperimentali non permettano di trarre conclusioni definite relativamente al meccanismo del fenomeno, per due motivi: 1) le caratteristiche tecniche dei mezzi di osservazione usati limitano l'osservazione stessa ad un ristretto ed arbitrario intervallo di frequenza delle radiazioni emesse e di vita media degli stati eccitati; 2) le misure non sono mai state fatte in condizioni tali da poter apportare ad esse tutta una serie di correzioni, necessarie per ricavarne un dato significativo di rendimento.

Si propone un meccanismo capace di render conto in generale del fenomeno delle scintillazioni nei cristalli organici e di servire di guida (nel caso che l'esperienza lo confermi) all'ulteriore lavoro di ricerca.

Résumé. — L'A. fait l'examen comparé des mesures faites jusqu'à présent des scintillations que les rayons- γ ou des particules rapides ionisantes provoquent dans les cristaux des substances organiques.

Il démontre que les données expérimentales obtenues ne consentent pas de tirer des conclusions définies relatives au mécanisme du phénomène, et ceci pour les deux raisons suivantes: 1) les caractéristiques techniques des moyens d'observation employés limitent l'observation-même à un intervalle de fréquence restreint et arbitraire des radiations émises et de la durée moyenne des excitations; 2) les mesures n'ont jamais été faites dans des conditions permettant d'y apporter une entière série de corrections, indispensables pour déduire une expression adéquate du rendement.

L'A. décrit un mécanisme qui serait capable de permettre de nous rendre compte du phénomène général des scintillations dans les cristaux organiques et qui pourrait indiquer (au cas où l'expérience le confirmerait) quelle direction devrait suivre un ultérieur travail de recherche.

Summary. — A review of the comparative measurements carried out so far in crystals of organic material by means of gamma rays or quick ionizing particles is given.

It is shown, that these experimental data do not allow to draw con-

clusions as to the mechanism of this phenomenon, and that for two reasons:

1) the technical characteristics of the instruments of observation used so far limit the observation itself to a restricted and arbitrary interval of emitted frequencies and average life of the states thus produced.

2) The measurements were not carried out under such conditions, which would have allowed to calculate the series of corrections required in order to obtain significant data of efficiency.

A mechanism is described, which is capable to register the phenomenon of scintillations in organic crystals and which could lead (if the experiments confirm it) to further research.

Zusammenfassung. — Es werden zusammenfassend die bis jetzt ausgeführten, vergleichenden Untersuchungen besprochen, die an Kristallen organischer Substanzen durch Gammastrahlen oder raschen, ionisierenden Teilchen zwecks Hervorrufung von Scintillationen ausgeführt wurden.

Der Verfasser zeigt, dass die experimentellen Daten keine endgültigen Schlüsse auf die Mechanismen dieser Erscheinung zulassen, und das aus zwei Gründen: 1) die technischen Eigenheiten der Beobachtungsinstrumente beschränken dieselbe auf ein enges und willkürlich gewähltes Frequenzintervall der Strahlungen und Durchschnittsdauer der hervorgerufenen Zustände, 2) die Messungen wurden nie in einer Weise ausgeführt, die die Vornahme der notwendigen Korrekturen gestattet hätte, die zur richtigen Leistungsbestimmung unentbehrlich sind.

Es wird ein Mechanismus beschrieben, mit dem man im Allgemeinen Scintillationserscheinungen in organischen Kristallen registrieren kann und der, (insofern das durch weitere Versuche bestätigt werden sollte) zur weiteren Gestaltung der Arbeit auf diesen Gebiete dienen kann.

1. — Le scintillazioni prodotte nei cristalli di alcune sostanze organiche da bombardamento con raggi γ o con elettroni veloci furono com'è noto scoperte da KALLMANN nel 1947 (¹⁻²). Da allora, una gran quantità di lavoro sperimentale è stato dedicato da molti Autori allo studio di questo fenomeno, generalmente con lo scopo di realizzare un rivelatore di raggi γ e β il più efficiente possibile.

E' rimasto invece piuttosto in ombra il problema chimico-fisico di chiarire il meccanismo attraverso cui queste scintillazioni si producono e nel corso del lavoro di ricerca e di confronto dei vari fosfori organici poco ci si è preoccupati di riconoscere dei criteri generali che possano

servire di guida nella ricerca stessa o di fondare il confronto su basi oggettive, indipendenti dalle contingenze sperimentali.

Sono stati così successivamente proposti, come le sostanze più idonee per rivelare raggi β o γ , la naftalina ⁽²⁾, l'antracene ⁽³⁾, lo stilbene (1-2-difeniletilene) ⁽⁴⁾, il crisene ⁽⁵⁾, il difeniletano (1-2-dibenzile) ⁽⁶⁾, il difenilacetilene ⁽⁷⁾, il terfenile (p-difenilbenzene) ⁽⁸⁾. I dati di efficienza relativa dei diversi Autori sono però assai difficilmente confrontabili (data la differenza sostanziale delle condizioni sperimentali) o in evidente contrasto gli uni con gli altri.

Si è in generale ammesso più o meno implicitamente, nei primi tempi, che la proprietà di scintillare fosse in qualche modo connessa con la presenza nella molecola di anelli benzenici condensati. Successivamente, con la scoperta di fosfori la cui molecola non contiene tali anelli, si è ripiegato in genere sull'ammissione che tale proprietà sia connessa con la presenza di doppi legami in risonanza propri dell'anello benzenico ⁽⁹⁾, nonostante che la assai scarsa efficienza di molti composti aromatici dimostri senz'altro che questa condizione è tutt'altro che sufficiente.

In ciò che segue, mi propongo di esporre alcune osservazioni di carattere generale, che, per quanto semplici, non sembra siano state per ora tenute in sufficiente considerazione e che forse possono un poco facilitare l'orientamento nella complessa e intricata mole dei risultati sperimentali.

2. — Un esame anche superficiale dei dati comparativi fino ad oggi raccolti mostra innanzi tutto, che sull'efficienza come scintillatore di un cristallo di una determinata sostanza organica influisce in modo fondamentale il grado di purezza della sostanza stessa. Per quanto non siano state fino ad oggi fatte prove sistematiche dell'influenza delle varie possibili impurezze, sembra che si possa asserire in generale che le sostanze pure sono assai più efficienti dei prodotti commerciali.

Questo carattere distingue nettamente i fosfori organici di cui ci stiamo occupando da quell'altro gruppo di fosfori inorganici (NaI, KI, LiF, ecc.) che sono stati pure studiati in questo ultimo periodo, allo stesso scopo, con ottimi risultati, e che debbono la loro proprietà di scintillare a ben determinati agenti attivatori (l Tl, ecc.) secondo un meccanismo ormai abbastanza conosciuto.

Ciò fa pensare che la proprietà dei fosfori inorganici sia intrinseca della molecola o del reticolo cristallino di cui essa fa parte. E' stato notato a questo proposito ⁽¹⁰⁾ e confermato da altri Autori, che la naftalina allo stato liquido praticamente non dà luogo a scintillazioni. Ma da ciò non si può dedurre che si sia in presenza di una proprietà

del reticolo, in quanto gli urti tra le molecole allo stato liquido possono far sì che l'energia di eccitazione venga dissipata in calore, anzichè emessa sotto forma di radiazione. Comunque, la struttura della molecola ha indubbiamente un ruolo fondamentale.

Tuttavia, prima di trarre delle conclusioni dall'esame del piccolo numero di sostanze fino ad oggi effettivamente studiate, occorre tener conto della selezione che i nostri mezzi sperimentali impongono ai nostri dati di osservazione. Noi abbiamo, in altre parole, aperta su questo fenomeno delle scintillazioni una finestra estremamente stretta e può anche darsi ch'essa ci presenti come propria di particolarissime sostanze una proprietà che può in realtà essere assai più generale.

Quali sono infatti le condizioni che debbono essere soddisfatte, affinché noi possiamo con gli attuali mezzi osservare delle scintillazioni?

Debbono innanzi tutto esistere dei livelli tali che la transizione dall'uno all'altro sia accompagnata dall'emissione di un quanto la cui frequenza cada nel campo di sensibilità del fotocatodo. In pratica, con i fotomoltiplicatori oggi in uso, tale campo è ristretto al più tra 3000 e 5000 Å.

Inoltre, la transizione in questione deve avvenire con una vita media non troppo lunga, perchè se no il fenomeno non si presenta più come un piccolo flash nel cristallo. I diversi quanti giungono sul fotocatodo distribuiti su di un intervallo di tempo lungo rispetto alle costanti di tempo dei circuiti amplificatori e l'impulso si perde nelle fluttuazioni del fondo. In pratica si può forse assumere come limite superiore per la vita media un tempo dell'ordine di 10^{-5} sec.

Infine, questa vita media non potrà neppure, in generale, essere troppo breve. In tal caso infatti potrà avvenire che la luce emessa venga con grande intensità riassorbita nello stesso cristallo. Al fotocatodo giunge allora solo una minima frazione dei quanti prodotti: quelli liberati in un sottile straterello superficiale del cristallo. Le scintillazioni non si osservano perchè il cristallo non è trasparente alla sua luce di fluorescenza. In pratica, si può forse assumere come limite inferiore per la vita media un tempo dell'ordine di 10^{-9} sec., cioè per uno o due ordini di grandezza più breve delle vite medie effettivamente osservate nei migliori fosfori ⁽¹¹⁻¹³⁾.

Può darsi che queste condizioni siano soddisfatte solo in relazione a determinate caratteristiche strutturali abbastanza generali della molecola. Ma se, com'è probabile, la proprietà in questione è assai più diffusa di quanto oggi non sembri, può essere praticamente impossibile ricavare dai limitati dati di osservazione delle conclusioni attendibili, senza aver prima individuato le caratteristiche generali del fenomeno.

Si potrebbe per esempio proporre, per spiegare questi fenomeni di luminescenza, un meccanismo analogo a quello, ormai noto, da cui traggono origine le bande di raggi X molli nei cristalli di vari ossidi, bombardati con raggi catodici di energia appropriata ⁽¹⁴⁾.

In tal caso, lo studio spettroscopico, esteso a tutto lo spettro, della luce emessa da singoli cristalli di sostanze pure e lo studio sistematico di come tale spettro varia in relazione a determinate modifiche introdotte nella molecola, potrebbe essere un'opportuna via d'attacco per taluni problemi sulla struttura di queste molecole relativamente complesse. Viceversa, la presenza di una banda proprio tra 3000 e 5000 Å verrebbe in tal caso a dipendere da particolarità strutturali, abbastanza inessenziali per ciò che riguarda la natura del fenomeno.

3. -- Un altro motivo per cui gli attuali dati comparativi, per quanto numerosi, sono di assai scarso significato dipende dal fatto che le misure sono in generale state eseguite in condizioni geometriche non chiare, senza apportare tutte quelle correzioni che sono necessarie per rendere il dato indipendente dalle particolarità del dispositivo sperimentale. Qualche valutazione tentata del numero di quanti per scintillazione ha dato risultati incerti, oscillanti tra 20.000 e 200.000 quanti ⁽⁹⁾.

E' tuttavia facile anche qui stabilire alcuni criteri che dovrebbero rendere possibile un confronto significativo tra i vari fosfori.

Innanzitutto, è chiaro che non conviene a questo scopo, sperimentare con raggi γ , ma con particelle α od elettroni veloci, tutti possibilmente della stessa energia. Per poter determinare un dato di rendimento, occorre infatti conoscere il numero di particelle che attraverso il cristallo e l'energia che ciascuna di esse vi lascia. Questa energia non è sufficientemente definita nel caso degli elettroni secondari fotoelettrici o Compton di raggi γ incidenti.

Occorre in secondo luogo definire le condizioni geometriche in modo tale che si possa valutare quale frazione dei quanti generati investe il catodo del fotomoltiplicatore. Il caso ideale sarebbe evidentemente quello di lamine cristalline lateralmente illimitate (in confronto alle dimensioni del fotocatodo) e di spessore relativamente piccolo. Nel caso che si sfrutti la riflessione per aumentare la frazione di luce raccolta, occorrerà tener conto che nella riflessione viene in generale alterata la composizione spettrale della luce. Sarà di conseguenza necessario conoscere e la composizione spettrale della luce di scintillazione e l'andamento del coefficiente di riflessione in funzione della frequenza, per poter introdurre, se necessario, le correzioni del caso.

Si dimentica poi sempre che la probabilità di assorbimento di un quanto e conseguente emissione di un elettrone da parte del fotocatodo

è una funzione assai rapidamente variabile della frequenza. E' quindi assolutamente necessario, per poter stabilire un confronto tra l'efficienza di due fosfori, conoscere la composizione spettrale della luce emessa da ciascuno di essi e correggere i risultati della misura sulla base della curva di sensibilità spettrale del fotomoltiplicatore impiegato. Questa correzione, che è evidentemente indispensabile, per quanto mi risulta non è mai stata apportata.

Infine, potrà darsi che si debba tener conto dell'assorbimento della luce emessa nello stesso cristallo emittente, determinando in precedenza l'andamento del coefficiente di assorbimento in funzione della frequenza, per poter risalire dal numero dei quanti uscenti dal cristallo per intervallo di frequenza unitario, al numero dei quanti effettivamente generato in ciascuna scintillazione.

Solo tenendo conto di queste correzioni sarà possibile ottenere per ciascun cristallo un dato di rendimento significativo, nella forma di numero medio di quanti emessi per intervallo unitario di frequenza, per scintillazione prodotta da una particella di specie ed energia determinata.

Roma - Istituto Superiore di Sanità - Laboratorio di Fisica.

BIBLIOGRAFIA

- (¹) I. BROSER, H. KALLMANN: Zeits. f. Naturforschung 2^a - 439 - 1947.
- (²) I. BROSER, H. KALLMANN: Zeits. f. Naturforschung 2^a - 642 - 1947.
- (³) P. R. BELL: Phys. Rev. 73 - 1405 - 1948.
- (⁴) H. T. GITTINGS, R. T. TASCHKE, A. R. RONZIO, E. JONES, W. J. MASILUN: Phys. Rev. 75 - 205 - 1949.
- (⁵) E. J. SCHILLINGER JR, B. WALDAMANN, W. C. MILLER: Phys. Rev. 75 - 900 - 1949.
- (⁶) W. S. KOSKI, C. O. THOMAS: Phys. Rev. 76 - 308 - 1949.
- (⁷) C. F. RAVILIOUS, J. O. ELLIOT, S. H. LIEBSON: Phys. Rev. 77 - 851 - 1950.
- (⁸) R. HOFSTADTER, S. H. LIEBSON, J. O. ELLIOT: Phys. Rev. 78 - 81 - 1950.
- (⁹) R. HOFSTADTER: Phys. Rev. 75 - 796 - 1949.
- (¹⁰) M. AGENO, M. CHIOZZOTTO, R. QUERZOLI: Phys. Rev. 79 - 720 - 1950.
- (¹¹) J. O. ELLIOT, S. H. LIEBSON, R. D. MYERS, C. F. RAVILIOUS: R. S. I. 21 - 631 - 1950.
- (¹²) A. LUNDBY: Phys. Rev. 80 - 477 - 1950.
- (¹³) S. H. LIEBSON, M. E. BISHOP, J. O. ELLIOT: Phys. Rev. 80 - 907 - 1950.
- (¹⁴) N. F. MOTT, R. W. GURNEY: Electronic Processes in Ionic Crystals, Oxford 1948 - pag. 75.