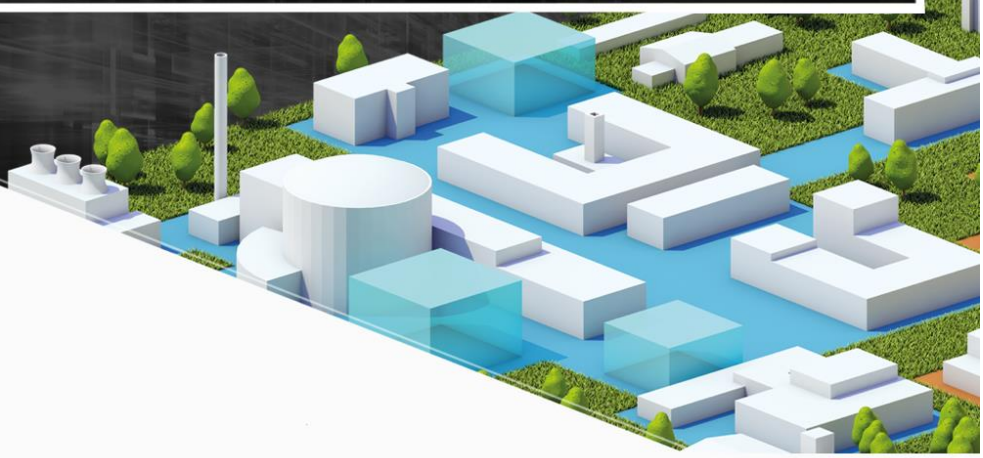
NARODOWE CENTRUM BADAŃ JĄDROWYCH ŚWIERK

Rozprawa doktorska

mgr Zuzanna Mianowska

Badania energetycznej zdolności rozdzielczej i nieproporcjonalnej odpowiedzi świetlnej scyntylatora CsI:Tl w oparciu o spektrometrię cyfrową



Promotor: Prof. dr hab. Marek Moszyński

Promotor pomocniczy: Dr Agnieszka Syntfeld – Każuch

Otwock 2022

Streszczenie

Prezentowane badania dotyczą zagadnienia poprawy parametrów spektrometrycznych materiałów scyntylacyjnych z grupy halogenków alkalicznych z zastosowaniem analizy impulsów świetlnych scyntylacji. Badania eksperymentalne nad odpowiedzią świetlną CsI:Tl i innych kryształów, które przeprowadzono w ciągu ostatnich 30 lat wykazały, że na parametry spektrometryczne kryształu CsI:Tl duży wpływ ma istnienie tzw. wolnych składowych scyntylacji. Poprawę tych parametrów można uzyskać poprzez wydłużenie podstawy czasu kształtowania impulsów świetlnych w procesie detekcji światła.

W niniejszym opracowaniu został przeanalizowany i omówiony parametr ilości światła, energetycznej zdolności rozdzielczej (z jej wkładem od rozdzielczości wewnętrznej, statystycznej i szumowej) i nieproporcjonalności w funkcji czasu trwania impulsu świetlnego. Badania przeprowadzono z użyciem trzech metod pomiaru i analizy danych.

W pierwszej zastosowano klasyczną analogową aparaturę spektrometryczną, aby sprawdzić odpowiedź świetlną scyntylatorów CsI:Tl w warunkach zmiennej domieszki talu, temperatury, energii wzbudzenia i czasu całkowania impulsu. Przebadano kryształy CsI:Tl o stężeniu talu od 0,0012% wag. do 0,13% wag. w zakresie temperatur od 30°C do -70°C z użyciem źródeł promieniowania X i gamma o energiach od 17 keV do 835 keV. Dane te były przetwarzane z czasem całkowania od 4 μs do 20 μs. Druga metoda umożliwiła rejestrację uśrednionych impulsów świetlnych bezpośrednio z fotopowielacza. Wybór zdarzeń odbywał się z zastosowaniem modułów NIM, zaś rejestracja uśrednionych sygnałów świetlnych, odpowiadających pikom pełnej energii, prowadzona była z zastosowaniem oscyloskopu z czasem trwania impulsu do 500 μs. Trzecia technika koncentrowała się na akwizycji pojedynczych sygnałów scyntylacyjnych z użyciem wysokiej klasy oscyloskopu cyfrowego i analizie zgromadzonych danych off-line. W tym przypadku impulsy świetlne rejestrowano z czasem wynoszącym 150 μs.

Przeprowadzona w rozprawie analiza pokazała zmianę kształtów impulsów świetlnych wraz z temperaturą. Ponadto schłodzenie kryształów z 30°C do -70°C powodowało wydłużanie czasów zaniku scyntylacji CsI:Tl. Zaobserwowano znaczącą poprawę nieproporcjonalnej odpowiedzi świetlnej scyntylatorów wraz ze wzrostem czasu całkowania, nawet do 500 μs, co sugerowało możliwość poprawy energetycznej zdolności rozdzielczej przy takich samych czasach całkowania. Jednakże, precyzyjne pomiary energetycznej zdolności rozdzielczej, możliwe z zastosowaniem pomiaru pojedynczych impulsów scyntylacji, w zakresie czasu całkowania do 150 μs i dla szerokiego zakresu energii kwantów gamma, przyniosły przeciwne konkluzje. Po początkowej poprawie badanego parametru dla czasu całkowania sięgającego około 34 μs (granica całkowań metodą

analogową) następowało znaczące pogorszenie energetycznej zdolności rozdzielczej pomimo poprawy nieproporcjonalności (energetyczna zdolność rozdzielcza skorygowana o wkład szumów elektronicznych oraz wkład statystyczny liczby fotoelektronów). Możliwość poprawy parametrów spektrometrycznych z wydłużaniem czasu całkowania utożsamiano z analizą całkowitego impulsu świetlnego opisywanego trzema eksponencjalnymi składowymi CsI:Tl sięgającymi 30 μs w temperaturze pokojowej (sumaryczna liczba fotonów od poszczególnych składowych). Z kolei przypuszczano, że wydłużenie czasu całkowania impulsów świetlnych powyżej zaniku trzeciej składowej, do obszaru tzw. poświaty, może pogorszyć energetyczną zdolność rozdzielczą.

Pokazano, że najlepsze wartości energetycznej zdolności rozdzielczej są osiągane, gdy czas całkowania pojedynczego impulsu świetlnego będzie dynamicznie dostosowany do energii zdeponowanej w krysztale. Jako, że kształt impulsu świetlnego zależy od energii promieniowania γ absorbowanej w scyntylatorze. Podobnie, optymalne wartości pozostałych parametrów spektrometrycznych wydają się ulegać poprawie, gdy zrezygnujemy ze stałej wartości czasów całkowania impulsów świetlnych i wprowadzimy zmienne ich wartości uwarunkowane wysokością i czasem trwania sygnałów scyntylacji.

Podziękowania

Niniejsza praca nie powstałaby bez osób, które wspierały mnie przez ostatnie lata. Chciałabym kilkoma słowami wyrazić wobec nich wdzięczność.

Ogromne podziękowania kieruję do ***prof. Marka Moszyńskiego*** *za ciągle „otwarte drzwi”. Za możliwość nieograniczonych dyskusji, trafne spostrzeżenia oraz stopniowe formowanie dobrej praktyki naukowej.*

Dziękuję dr ***Agnieszce Syntfeld – Każuch*** *za nadzór merytoryczny i redaktorski nad pracą, a także za pomoc, której udzieliła mi w momencie życiowych zmian.*

Dziękuję mojemu mężowi ***dr Sławomirowi Mianowskiemu****, który wspierał mnie i dyskutował ze mną wszystkie aspekty tej pracy.*

Merytorycznie wspierali mnie ***prof. Aleksander Gektin, dr Sergei Vasyukov, dr Sergei Gridin****, a także umożliwili mi pracę na bogatej serii kryształów jodków cezu domieszkowanych talem.*

Współpracowałam ponadto z ***śp. prof. Richardem Williamsem*** *oraz* ***dr Mikem Mayhugh****, którzy poszerzali moją wiedzę w zakresie modelowania procesów scyntylacji w kryształach Cs:Tl.*

Dziękuję Kolegom i Koleżankom, w szczególności: ***dr Pawłowi Sibczyńskiemu****,* ***dr Tomaszowi Szczęśniakowi*** *za cenne uwagi i możliwość konsultacji w momencie mojego wdrażania w pomiary spektrometrii gamma.* ***Dr Kamilowi Brylewowi*** *za wsparcie w nauce programowania w języku Python oraz dyskusje w zakresie procesów luminescencji w scyntylatorach. Dziękuję* ***Andrzejowi Dziedzicowi*** *za życzliwą pomoc i wsparcie w obszarze stosowanych układów pomiarowych.*

Spis treści

1. Wprowadzenie 3
1.1. Cel pracy 5
1.2. Układ pracy 8
2. Zjawisko scyntylacji na przykładzie kryształu CsI:Tl 10
2.1. Proces 1 – Konwersja energii 11
2.2. Proces 2 – Termalizacja 16
2.3. Proces 3 – Migracja nośników 16
2.4. Proces 4 – Emisja światła 18
3. Właściwości spektrometryczne detektorów promieniowania gamma 19
3.1. Wydajność scyntylacji 20
3.2. Odpowiedź świetlna 21
3.3. Zanik scyntylacji 22
3.4. Poświata 22
3.5. Nieproporcjonalność 23
3.6. Energetyczna zdolność rozdzielcza 25
4. Dotychczasowa wiedza o jodku cezu domieszkowanym talem 28
4.1. CsI:Tl na tle innych popularnych materiałów scyntylacyjnych 28
4.2. Ilość światła i energetyczna zdolność rozdzielcza CsI:Tl 31
4.3. Składowe scyntylacji impulsu świetlnego 33
4.4. Nieproporcjonalna odpowiedź CsI:Tl 38
5. Fotopowielacz, jako przykład detektora światła 41
5.1. Zarys historyczny i podstawy działania fotopowielaczy 41
5.2. Wydajność kwantowa i odpowiedź spektralna 44
5.3. Szumy, prąd ciemny i ciemne zliczenia 44
5.4. Widmo pojedynczego fotoelektronu 46
6. Metodyka badań 48
6.1. Wykaz materiałów scyntylacyjnych stosowanych w pracy 48
6.2. Specyfikacja fotopowielacza XP5212/B 50
6.3. Wykaz źródeł promieniowania X i gamma użytych w pracy 51
6.4. Wykaz technik pomiarowych stosowanych w pracy 52

7. Wyniki 62
7.1. Wyniki uzyskane z zastosowaniem układu analogowego 62
7.2. Wyniki uzyskane z zastosowaniem układu analogowo – cyfrowego 74
7.3. Wyniki uzyskane z zastosowaniem układu cyfrowego 88
8. Dyskusja wyników 109
Bibliografia 113

1. Wprowadzenie

Spektrometria promieniowania gamma z użyciem detektorów scyntylacyjnych należy do jednych z najpopularniejszych i najważniejszych technik detekcji używanych zarówno w badaniach podstawowych, jak i obszarze aplikacyjnym. Detektor scyntylacyjny składa się z materiału posiadającego zdolność emisji światła na skutek absorpcji promieniowania oraz z fotodetektora, którym może być klasyczny fotopowielacz lub np. fotodetektor krzemowy [1, 2]. Popularność detektorów scyntylacyjnych wynika z ich wysokiej wydajności detekcji, zdolności do rejestracji widm energetycznych promieniowania, możliwości pracy w warunkach wysokiej intensywności promieniowania rzędu 10^7 zliczeń na sekundę, czy osiąganej najlepszej rozdzielczości czasowej w eksperymentach bazujących na pomiarze czasu przelotu cząstki. Scyntylatory umożliwiają rejestrację promieniowania elektromagnetycznego (X i gamma), neutronów, protonów, mionów, cząstek alfa i ciężkich jonów. Dodatkowo, ze względu na dużą różnorodność dostępnych scyntylatorów pod względem ich składu chemicznego oraz dostępnych rozmiarów i kształtów, materiały te odgrywają dominującą rolę w detekcji promieniowania w porównaniu z innymi detektorami gazowymi czy półprzewodnikowymi. Znalazły one zastosowanie w badaniach podstawowych z zakresu fizyki jądrowej, fizyki wysokich energii, chemii jądrowej, chemii ciała stałego, ale również w badaniach środowiskowych, medycynie nuklearnej, przemyśle, monitoringu granic, czy w zastosowaniach militarnych [1-7].

Z punktu widzenia spektrometrii promieniowania gamma istotne są następujące właściwości materiałów scyntylacyjnych [1, 6]:

• wysoka gęstość i duża liczba atomowa głównego pierwiastka materiału, zapewniające wysoką wydajność detekcji promieniowania,

• wysoka odpowiedź świetlna odpowiedzialna za jakość dostarczanego sygnału,

• szybki czas zaniku impulsu świetlnego, odzwierciedlający czas zaniku składowych luminescencji kryształu i pozwalający na pomiary z dużą liczbą zliczeń na sekundę,

• niski wkład scyntylatora w mierzoną energetyczną zdolność rozdzielczą.

Spośród wyszczególnionych powyżej właściwości materiałów scyntylacyjnych zrozumienie natury energetycznej zdolności rozdzielczej jest celem badań zawartych w tej rozprawie. Przeprowadzone dotychczas badania wykazały, że jednym z czynników ograniczającym ten parametr jest zjawisko nieproporcjonalności [6, 8-10]. Nieproporcjonalna odpowiedź świetlna utożsamiana jest z obecnością licznych wtórnych kwantów X, γ i elektronów, powstających w procesie oddziaływania promieni γ z jonami w krysztale [11-17].

Jedną z metod badawczych umożliwiających opis odpowiedzi świetlnej materiałów scyntylacyjnych jest analiza kształtów impulsów świetlnych, która uwzględnia ich rozkład na składowe zaniku scyntylacji. Prace dotyczące wpływu wolnych składowych scyntylacji na mierzalne parametry spektrometryczne w korelacji z zastosowaną podstawą całkowania sygnału świetlnego zostały podsumowane w pracy [6]. Szczegółowa analiza, potwierdzająca potrzebę pomiaru wolnych składowych scyntylacji w materiałach scyntylacyjnych, została przeprowadzona i zaprezentowana m.in. w publikacjach dotyczących następujących materiałów scyntylacyjnych: niedomieszkowanego CsI [3, 8, 9], CsI:Tl [17-20], CsI:Na [21], CsI:In [22], ZnSe:Te [23], niedomieszkowanego NaI w temperaturze ciekłego azotu [24], czy NaI:Tl w temperaturze od 23°C do -40°C [25]. Większość danych prezentowanych w tych pracach dotyczy pomiarów wykonanych z użyciem aparatury analogowej, która obecnie wypierana jest przez rozwiązania cyfrowe.

Niezależnie jednak od zastosowanej techniki pomiarowej, wspólny wniosek płynący z tych prac wskazuje, że w przypadku scyntylatorów posiadających dwie lub więcej składowych zaniku scyntylacji, najlepszą energetyczną zdolność rozdzielczą i relatywnie najniższy wkład pochodzący od wewnętrznej energetycznej zdolności rozdzielczej (ang. *intrinsic resolution*[1]) uzyskuje się w przypadku, gdy układ spektrometryczny umożliwia zebranie całego światła emitowanego przez scyntylator (sumaryczne światło od wszystkich składowych scyntylacji w całym zakresie trwania impulsu) [6, 26].

Analiza wolnych składowych scyntylacji pokazała, że komponenty te mogą charakteryzować się przeciwnymi trendami nieproporcjonalnej odpowiedzi świetlnej. Pierwsze tego typu pomiary wykonano w Narodowym Centrum Badań Jądrowych (NCBJ) badając kryształ NaI:Tl. Zaobserwowano wówczas „nadmiar” liczby fotonów względem 662 keV dla niskoenergetycznych kwantów gamma w przypadku szybkiej składowej zaniku scyntylacji (225 ns), względem deficytu ilości światła dla wolnej składowej zaniku (1 μs) [27]. Podobne obserwacje zebrano badając kryształy CsI:Tl i CsI:Na [28].

---

[1] W rozprawie doktorskiej podczas wprowadzania pojęć niejednokrotnie przywoływane są ich angielskie odpowiedniki. Wynika to w dużej mierze z tego, że zdecydowana większość literatury dostępnej w dziedzinie materiałów scyntylacyjnych i pomiarów spektrometrii gamma, czy też dotycząca technik detekcji promieniowania jest anglojęzyczna. Mimo to, autorka dokonała wszelkich starań by pojęcia w niniejszej rozprawie uzyskały rzetelne tłumaczenia.

1.1. Cel pracy

Celem pracy jest zbadanie korelacji między energetyczną zdolnością rozdzielczą i nieproporcjonalnością scyntylatorów CsI:Tl, a czasem całkowania impulsów świetlnych do 500 μs poprzez zastosowanie metod spektrometrii cyfrowej.

Impulsy świetlne kryształu jodku cezu domieszkowanego talem charakteryzują się długim czasem zaniku opisywanym trzema stałymi sięgającymi do 16 μs [29] oraz znaczącą poświatą (ang. *afterglow*) [2]. Właściwości te powodują, że scyntylator CsI:Tl jest dobrym materiałem do badań wpływu wolnych składowych impulsu na takie parametry jak: ilość światła, energetyczna zdolność rozdzielcza oraz nieproporcjonalność. Z kolei, analiza kształtów impulsów scyntylacji wpisuje się w aktualny trend w dziedzinie materiałów scyntylacyjnych, dążący do poprawy energetycznej zdolności rozdzielczej materiałów scyntylacyjnych z grupy halogenków alkalicznych poprzez lepsze zrozumienie np. ograniczeń związanych z obecnością efektu nieproporcjonalności [6, 7, 30, 31].

Rozprawa doktorska bazuje na dwóch pracach autorki opublikowanych w czasopiśmie Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A:

[1] Z. Mianowska, M. Moszyński, K. Brylew, M. Chabera, A. Dziedzic, A. V. Gektin, T. Krakowski, S. Mianowski, A. Syntfeld-Każuch, T. Szczęśniak, K. Zezuliński, *The light response of CsI:Tl crystal after interaction with gamma radiation study using analysis of single scintillation pulses and digital oscilloscope readout*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, 1031 (2022) 166600, *DOI: 10.1016/j.nima.2022.166600.*

[2] Z. Mianowska, M. Moszyński, A. Dziedzic, A. Gektin, S. Gridin, X. Lu, M. R. Mayhugh, S. Mianowski, P. Sibczyński, Ł. Świderski, A. Syntfeld-Każuch, T. Szczęśniak, R. T. Williams, S. Vasyukov, *The Light Response of CsI:Tl Scintillators with Tl Concentrations of 0.05wt% to 0.13wt% for a Temperature Range of 303K to 203K*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, 914 (2019) 165-172, DOI: 10.1016/j.nima.2018.07.016.

Ponadto wyniki uzyskane w ramach doktoratu zostały wykorzystane w przeglądowej publikacji pamięci profesora Richarda Williamsa przygotowanej w odpowiedzi na zaproszenie edytorów czasopisma Journal of Materials Chemistry C:

[3] A. Syntfeld-Każuch, **Z. Mianowska**, M. Moszyński, *Energy resolution of CsI(Tl) scintillator*, J. Mater. Chem. C – praca wysłana do recenzji w maju 2022.

W ramach pomiarów odpowiedzi świetlnej scyntylatorów jodków cezu autorka rozprawy współpracowała z grupą profesora Alexandra Gektina z Instytutu Materiałów Scyntylacyjnych (ISMA) z Charkowa na Ukrainie. Naukowcy ISMA dołożyli wszelkich starań, aby opracować technologię wzrostu wysokiej jakości homogenicznych kryształów z grupy CsI:A (gdzie A oznacza domieszki). Ponadto autorka współpracowała z grupą śp. profesora Richarda Williamsa z Wake Forest University i doktora Michaela Mayhugh z Faceted Development – obie grupy z USA. Naukowcy Ci stanowili wsparcie w dziedzinie numerycznego modelowania procesów scyntylacji. Efektem tej współpracy jest publikacja:

[4] S. Gridin, D. Onken, R. T. Williams, Ł. Świderski, **Z. Mianowska**, A. Syntfeld-Każuch, M. Moszyński, V. Gayshan, S. Vasiukov, A. Gektin, *Pulse shape analysis of individual gamma events—Correlation to energy resolution and the possibility of its improvement*, J. Appl. Phys., 124 (2018) 154504, DOI: 10.1063/1.5048034.

Autorka współuczestniczyła również w innych badaniach dotyczących właściwości scyntylacyjnych kryształu CsI:Tl. Wyniki tych badań zostały opublikowane w pracy:

[5] Ł. Świderski, M. Moszyński, W. Czarnacki, K. Brylew, M. Grodzicka-Kobyłka, **Z. Mianowska**, T. Sworobowicz, A. Syntfeld-Każuch, T. Szczęśniak, W. Klamra, R. T. Williams, S. Gridin, X. Lu, M. R. Mayhugh, A. Gektin, S. Vasyukov, C. Piemonte, F. Acerbi, A. Ferri, A. Gola, T. Zawistowski, *Scintillation response to gamma-rays measured at wide temperature range for Tl doped CsI with SiPM readout*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, 916 (2019) 32, DOI: 10.1016/j.nima.2018.10.149.

Rezultaty badań przedstawione w rozprawie doktorskiej były ponadto prezentowane w formie wystąpień ustnych lub plakatów na poniższych konferencjach międzynarodowych:

- IEEE Symposium on Radiation Measurements and Applications (SORMA)
  Berkeley, Stany Zjednoczone, 2021.05.19 – 2021.05.28 (wydarzenie on-line)
  Z. Mianowska, M. Moszyński, K. Brylew, A. Gektin, S. Mianowski, A. Syntfeld-Każuch,
  Plakat: *The non-proportionality and energy resolution of cesium iodide doped thallium calculated using analysis of raw scintillation light pulse events.*
- Europhysical Conference on Defects in Insulating Materials (EURODIM)
  Bydgoszcz, Polska, 2018.07.08 – 2018.07.13
  Z. Mianowska, M. Moszyński**,** A. Dziedzic, A. Gektin, S. Gridin, X. Lu, M. R. Mayhugh**,** S. Mianowski**,** P. Sibczyński**,** Ł. Świderski**,** A. Syntfeld-Każuch**,** T. Szczęśniak**,** R. T. Williams, S. Vasyukov,
  Prezentacja ustna: *Non-proportionality phenomenon of CsI:Tl scintillators – new observations.*

- International Conference on Scintillating Materials and their Applications (SCINT)
  Chamonix, Francja, 2017.09.18 – 2017.09.22
  Z. Mianowska, M. Moszyński**,** A. Gektin, S. Gridin, X. Lu, M. R. Mayhugh, S. Mianowski**,** Ł. Świderski**,** A. Syntfeld-Każuch**,** T. Szczęśniak, R. T. Williams, S. Vasyukov,
  Plakat: *Light pulse decays and non-proportionality characteristics of CsI:Tl at temperatures down to -70°C.*
- IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (IEEE NSS/MIC)
  Strasbourg, Francja, 2016.10.29 – 2016.11.06
  Z. Mianowska, M. Moszyński**,** P. Sibczyński**,** Ł. Świderski**,** A. Syntfeld-Każuch**,** T. Szczęśniak**,** A. Gektin, S. Vasyukov, R. T. Williams, S. Gridin, X. Lu, M. R. Mayhugh,
  Prezentacja ustna: *Study of CsI:Tl scintillators with different concentration of Tl at the temperature range from +30°C to -70°C.*
- School on Advanced Scintillator Materials (ASCIMAT)
  Mediolan, Włochy, 2016.09.10 – 2016.09.13
  Z. Mianowska, M. Moszyński**,** A. Syntfeld-Każuch,
  Plakat i krótka prezentacja ustna: *Set-up optimization for measurements of CsI:Tl scintillation properties.*

Zuzanna Mianowska jest ponadto współautorką innych 5 recenzowanych publikacji oraz 8 plakatów zaprezentowanych na międzynarodowych konferencjach z dziedziny technik detekcji i materiałów scyntylacyjnych.

Przedstawiona w niniejszej rozprawie część badań obejmowała także zadania realizowane w ramach przyznanego autorce w 2020 roku finansowania z funduszy NCBJ na realizację projektu badawczego skierowanego do naukowców na wczesnym etapie kariery o temacie: *Rejestracja impulsów świetlnych emitowanych z materiałów scyntylacyjnych z grupy jodków cezu po wzbudzeniu ich źródłami promieniowania gamma – limity i możliwości aparaturowe.*

Dodatkowo w latach 2016 – 2021 autorka brała czynny udział przy realizacji zadań związanych z detekcją promieniowania z zastosowaniem materiałów scyntylacyjnych w ramach realizacji projektów Ram-Scan (NCBiR), INNDEX (NCBiR), C-BORD (H2020) oraz ReVaMP (H2020).

1.2. Układ pracy

Niniejsza rozprawa doktorska rozpoczyna się od przeglądu wiedzy dotyczącej fizyki materiałów scyntylacyjnych, spektrometrii promieniowania gamma oraz układów detekcji. W pierwszej kolejności przedstawiono proces scyntylacji w materiale jodku cezu domieszkowanego talem. Zjawisko przeanalizowano od momentu interakcji kwantów X i gamma z ośrodkiem materiału scyntylacyjnego z perspektywy padającego fotonu, do momentu emisji światła ze scyntylatora w postaci światła widzialnego (***Rozdział 2. Zjawisko scyntylacji na przykładzie kryształu CsI:Tl***). W następnym kroku przywołano najważniejsze z punktu widzenia tej pracy definicje parametrów pomiarowych używanych w spektrometrii gamma (***Rozdział 3. Właściwości spektrometryczne detektorów promieniowania gamma***). Następnie przedstawiono różnorodność dostępnych na rynku scyntylatorów ze szczególnym uwzględnieniem kryształu CsI:Tl. Podsumowano dotychczasową wiedzę o CsI:Tl, skupiając się przede wszystkim na informacjach dotyczących spektrometrii gamma (***Rozdział 4. Dotychczasowa wiedza o CsI:Tl***). W **rozdziale 5.** ***Fotopowielacz, jako przykład detektora światła***, opisano klasyczny fotopowielacz, jako detektor światła wybrany do pomiarów właściwości spektrometrycznych CsI:Tl. Po krótce wyszczególniono informacje dotyczące podstaw działania tego fotodetektora, w tym widmo pojedynczego fotoelektronu oraz obecność szumów wewnętrznych. Dalsza część rozprawy wprowadza w tematykę eksperymentu zrealizowanego w ramach niniejszej pracy. W **rozdziale** ***6. Metodyka Badań*** przywołano szczegółowe informacje dotyczące zastosowanych materiałów scyntylacyjnych, fotopowielacza i źródeł promieniowania X i gamma stosowanych w pracy. Opisano techniki pomiarowe służące do rejestracji odpowiedzi świetlnej ze scyntylatorów, wyszczególniając trzy użyte w pracy układy pomiarowe. W pierwszej kolejności opisano dobrze znany układ bazujący na analogowej analizie impulsów świetlnych, zbudowany w oparciu o moduły elektroniczne w standardzie NIM oraz analogowy wielokanałowy analizator. Następnie przywołano układ analogowo – cyfrowy, w którym wybór zdarzeń odbywał się z zastosowaniem modułów NIM, zaś sama rejestracja uśrednionych sygnałów świetlnych pochodzących z obszarów pików pełnej energii, prowadzona była z zastosowaniem oscyloskopu cyfrowego. Ostatnim zastosowanym układem był układ w pełni cyfrowy, bazujący na wysokiej klasy oscyloskopie cyfrowym i analizie zebranych sygnałów off-line z zastosowaniem skryptów języka Python. **Rozdział 7.** ***Wyniki*** podzielono na trzy podrozdziały nawiązujące do zastosowanych układów pomiarowych. Początkowo opisano właściwości spektrometryczne CsI:Tl badane z zastosowaniem techniki analogowej. Zaprezentowane wyniki związane były z kontynuacją badań dotyczących wpływu wolnych składowych scyntylacji na pomiar ilości światła, energetycznej zdolności rozdzielczej (wraz z wkładem od wewnętrznej energetycznej zdolności rozdzielczej

i rozdzielczości statystycznej) oraz nieproporcjonalności. Pomiary przeprowadzono dla kwantów X i gamma o energiach od 17 keV do 835 keV w zakresie temperatur od 30°C do -70°C. W trakcie testów uwzględniono wpływ zmiany czasu całkowania sygnałów świetlnych na otrzymywane parametry. Przebadano kryształy zawierające domieszkę talu w zakresie od 0,0012 do 0,13 procenta wagowego. W kolejnym kroku zaprezentowano wyniki zmierzone z zastosowaniem układu analogowo – cyfrowego. Pokazano uśrednione impulsy scyntylacji z zastosowaniem długiej podstawy czasu sięgającej 500 μs. Istotna na tym etapie była procedura wyodrębnienia składowych zaniku scyntylacji, pośrednio związanych z procesami emisji światła z centrów luminescencji w krysztale CsI:Tl. Ostatni podrozdział prezentuje wyniki uzyskane dla analizy pojedynczych impulsów świetlnych z użyciem techniki w pełni cyfrowej w temperaturze 20°C. Analiza ta obejmowała budowę widm energetycznych oraz wyznaczenie parametrów spektrometrycznych, takich jak ilość światła, energetyczna zdolność rozdzielcza (ze szczególnym uwzględnieniem wkładu szumowego pochodzącego od elektroniki) oraz nieproporcjonalność. Każdy z tych podrozdziałów opatrzony został w komentarz podsumowujący poszczególne etapy analizy. W następnym kroku (***Rozdział 8. Dyskusja wyników***) poddano dyskusji zebrane w ramach prezentowanej rozprawy doktorskiej wyniki eksperymentalne. Zestawiono je z dotychczasową wiedzą naukową oraz wyszczególniono najważniejsze rezultaty uzyskane w pracy. Kończąc rozprawę zaproponowano tematykę przyszłych badań, poszerzającą zaprezentowane w niniejszej rozprawie wyniki.

2. Zjawisko scyntylacji na przykładzie kryształu CsI:Tl

Zjawisko scyntylacji polega na wytworzeniu w ośrodku materialnym błysku światła na skutek interakcji promieniowania jonizującego z materiałem ośrodka. W trakcie interakcji całość lub część energii niesionej przez promieniowanie jest deponowana w materiale absorbera i emitowana w procesie luminescencji. Proces scyntylacji związany jest więc z konwersją energii wewnątrz materiału scyntylacyjnego. W ramach rozprawy doktorskiej, przedstawiono pomiary wykonywane z zastosowaniem promieniowania gamma o energiach rzędu dziesiątek lub setek tysięcy elektronowoltów. Sama luminescencja to z kolei proces zachodzący na poziomie energetycznym odpowiadającym pojedynczym lub dziesiątkom elektronowoltów.

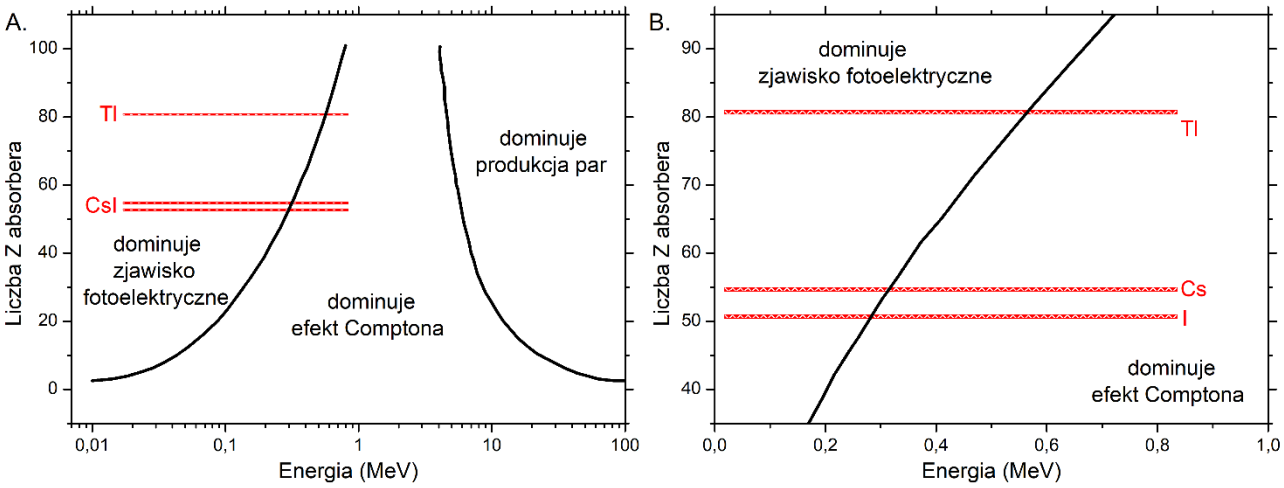
W niniejszym rozdziale krótko opisano etapy procesów prowadzących do powstania scyntylacji w krysztale CsI:Tl, poczynając od momentu oddziaływania materiału z promieniowaniem X i gamma, a kończąc na emisji wytworzonego światła. W tabeli 2.1. wyszczególniono te etapy, bazując na analizie prac [2, 32-38].

Tabela 2.1. Sekwencje procesów prowadzących do scyntylacji w ośrodku.

Procesy prowadzące do scyntylacji	Typy oddziaływań
(1) Konwersja energii	• Odziaływania podstawowe (zjawisko fotoelektryczne, efekt Comptona, tworzenie par), • Emisja promieniowania charakterystycznego X lub elektronów Augera lub promieniowania hamowania, • Tworzenie par elektron – dziura oraz „gorących” elektronów z nadwyżką energii (tworzenie nośników swobodnych).
(2) Termalizacja	• Nieelastyczne procesy oddziaływania „gorących” elektronów i dziur oraz ich termalizacja.
(3) Migracja nośników	• Rekombinacja par elektron – dziura, • Obsadzanie centrów luminescencji (tworzenie stanów ekscytonowych i grup wzbudzonych centrów luminescencyjnych).
(4) Emisja światła	• Emisja światła z centrów luminescencji, • Relaksacja wzbudzonych centrów luminescencyjnych (powrót do stanów podstawowych).

2.1. Proces 1 – Konwersja energii

W pierwszy etapie zdarzeń prowadzących do scyntylacji, związanych z częściowym lub całkowitym przeniesieniem energii padającego promieniowania gamma na energię elektronów, wyszczególnić należy trzy podstawowe rodzaje oddziaływania promieniowania gamma z materią, tj. zjawisko fotoelektryczne, efekt Comptona i tworzenie par [2]. Prawdopodobieństwo zajścia wyszczególnionych procesów uwarunkowane jest wartością energii padającego promieniowania gamma oraz wartością liczby atomowej Z materiału absorbera – zależność wymienionych wielkości przedstawiono na rysunku 2.1.1A, gdzie linie czarne wykresu opisują sytuacje równowagowe możliwości wystąpienia sąsiadujących oddziaływań, a kolor czerwony zakreśla obszar odpowiadający energiom linii gamma emitowanych przez źródła promieniotwórcze stosowane w ramach niniejszych badań, tj. w zakresie od 17 keV (linia od ^{93}Mo) do 835 keV (linia od ^{54}Mn) i liczbie Z odpowiadającej jodkowi cezu domieszkowanemu talem (Z_{Cs}=55, Z_{I}=53, Z_{Tl} =81). Z kolei rysunek 2.1.1B jest powiększeniem obszaru naszych zainteresowań w skali liniowej. Wykres pokazuje, że zjawisko fotoelektryczne występuje głównie w interakcji CsI:Tl z promieniowaniem X i gamma o wartości energii do około 300 keV, natomiast powyżej tego progu zaczyna dominować efekt Comptona.



Rysunek 2.1.1. Prawdopodobieństwo występowania trzech podstawowych typów oddziaływania promieniowania gamma z materią (A). Czarne linie opisują równowagę w występowaniu sąsiadujących efektów (oś energii zaprezentowano w skali logarytmicznej). Część (B) pokazuje powiększenie obszaru objętego zainteresowaniem niniejszej pracy – oś energii w skali liniowej [2].

Zjawisko fotoelektryczne, efekt Comptona i tworzenie par

Oddziaływanie promieniowania X i gamma z materią poprzez zjawisko fotoelektryczne i efekt Comptona można analizować z punktu widzenia padającego promieniowania. Zjawisko fotoelektryczne dotyczy sytuacji, gdy całość energii E_γ niesionej przez kwant gamma, ulega zdeponowaniu w materiale na skutek interakcji z atomami absorbera. Efektem tego odziaływania jest wybicie fotoelektronu z jednej z powłok elektronowych. Największe prawdopodobieństwo wybicia elektronu obserwowane jest dla powłok bliskich jądru (K, L), dla których typowe energie wiązania mieszczą się w granicach od kilku do dziesiątek keV. Oddziaływanie to nie dotyczy interakcji z elektronami swobodnymi. W efekcie procesu powstaje fotoelektron obdarzony energią (E_f) pomniejszoną o wartość energii wiązania elektronu (E_w) na powłoce zgodnie z zależnością 2.1.1 [2].

$$E_f = E_\gamma - E_w \qquad (2.1.1)$$

Drugim typem oddziaływania jest efekt Comptona, polegający na rozproszeniu promieniowania gamma na swobodnych lub słabo związanych elektronach absorbera. Po interakcji obserwujemy zakrzywienie toru padającego promieniowania pod kątem θ w stosunku do pierwotnego kierunku propagacji fali elektromagnetycznej. Dodatkowo promieniowanie gamma przekazuje porcję niesionej energii elektronowi na powłoce. W efekcie tego oddziaływania dochodzi do wybicia tego elektronu, który definiowany jest jako elektron odrzutu. Wartość energii kwantu gamma po interakcji z materią (E_γ') można opisać korzystając z zależności 2.1.2.

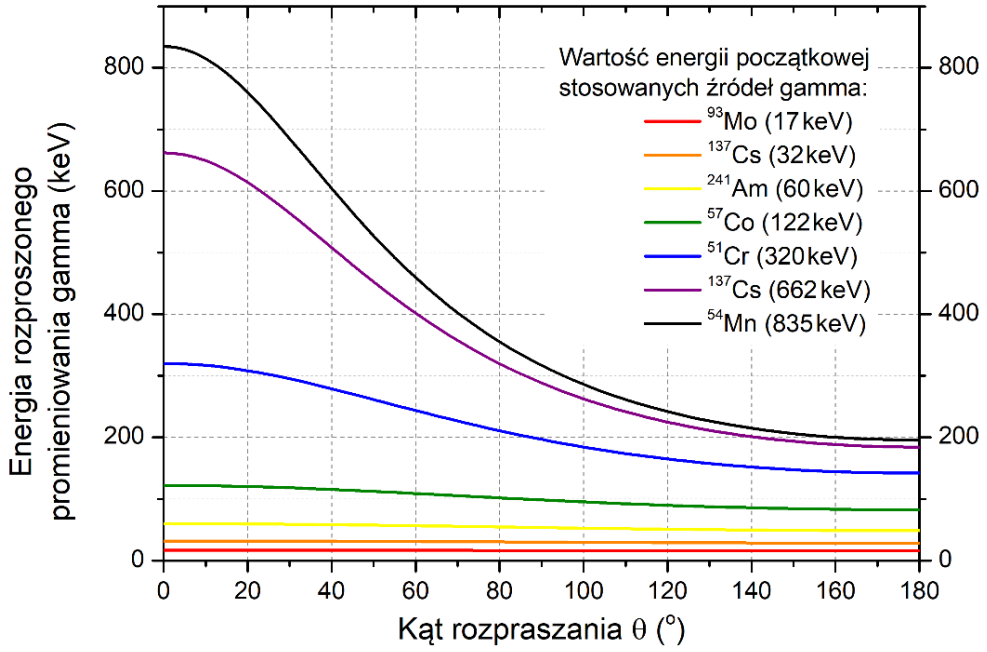
$$E_{\gamma'} = \frac{E_\gamma}{1+\frac{E_\gamma}{m_0c^2}(1-\cos\theta)} \qquad (2.1.2)$$

gdzie m_0c^2 jest masą spoczynkową elektronu równą 0,511 MeV [2].

Z kolei energia unoszona przez wybity elektron (E_e^-) w odniesieniu do prawa zachowania energii jest zgodna z równaniem 2.1.3.

$$E_{e^-} = E_\gamma - E_{\gamma'} \qquad (2.1.3)$$

Wizualizację zmiany wartości energii promieniowania gamma dla wybranych źródeł gamma stosowanych w niniejszej pracy, zgodnie z efektem Comptona, przedstawia rysunek 2.1.2. Warto zauważyć, że im większe wychylenie promieniowania gamma względem początkowego kierunku propagacji, tym większa jest strata jego energii, a w konsekwencji rośnie energia unoszona przez elektron odrzutu [2].



Rysunek 2.1.2. Zmiana wartości energii promieniowania gamma w funkcji kąta rozpraszania na przykładzie wybranych linii gamma w zakresie od 17 keV do 835 keV.

W trzecim wariancie może dojść do efektu tzw. tworzenia par. Zjawisko to zachodzi w momencie, gdy energia padającego promieniowania gamma przekracza dwukrotnie masę spoczynkową elektronu, tj. 1,022 MeV. W interakcji, która musi zachodzić w polu kulombowskim jądra, kwant gamma znika i pojawia się para elektron-pozyton, zaś cała nadwyżka energii powyżej 1,022 MeV ulega zamianie w energię kinetyczną dzieloną pomiędzy dwie cząstki. W następnym etapie pozyton ulega anihilacji z elektronem po spowolnieniu w ośrodku absorbującym, z wytworzeniem dwóch kwantów gamma o energii równej 0,511 MeV.

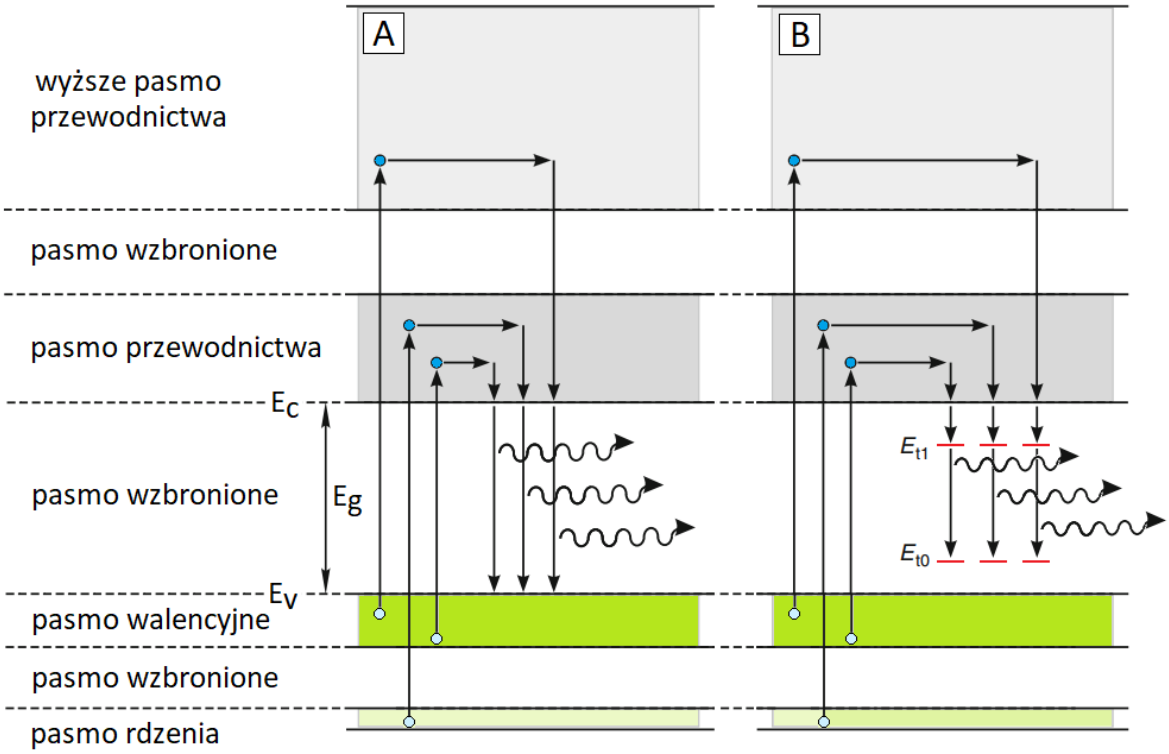
Promieniowanie X i gamma docierając do materiału absorbera oddziałuje z nim w przeważającej mierze poprzez całą kaskadę występujących po sobie zdarzeń. Dla przykładu kwant gamma o energii 662 keV emitowany z izotopu ^{137}Cs w pierwszej kolejności z dużym prawdopodobieństwem rozproszy się w krysztale, następnie promieniowanie o zredukowanej energii może ulec ponownemu rozproszeniu, a gdy energia promieniowania będzie odpowiednio niska, możliwa będzie całkowita absorbcja promieniowania w ośrodku, poprzez efekt fotoelektryczny [2].

Konwersja energii - model pasmowy ciała stałego

Uzupełniający opis oddziaływania promieniowania X i gamma z perspektywy materiału absorbera można zaproponować z zastosowaniem modelu pasmowego ciała stałego, który przedstawia strukturę energetyczną w postaci szeregu dozwolonych i wzbronionych pasm warunkowanych poziomami energetycznymi jonów tworzących dany związek. Rysunek 2.1.3 przedstawia model izolatora, którym jest materiał scyntylacyjny. Niższe pasmo energii, zwane pasmem walencyjnym (ang. *valence band*), zawiera rezerwuar elektronów. To właśnie to pasmo elektronów bierze udział w wiązaniu atomów. Mamy więc do czynienia z pasmem o maksymalnej energii jaką mogą posiadać elektrony w stanie podstawowym atomu, które jest pasmem całkowicie zapełnionym. Kolejne wyższe pasmo jest powszechnie określane, jako pasmo przewodnictwa (ang. *conduction band*), które w przypadku scyntylatorów nieorganicznych jest zwykle pozbawione elektronów. Dno pasma przewodnictwa odpowiada najniższemu poziomowi nieobsadzonemu przez elektrony w stanie podstawowym atomu (pasmo całkowicie puste w stanie podstawowym). Pomiędzy tymi dwoma pasmami znajduje się obszar pasma wzbronionego o szerokości E_g (ang. *energy band gap*), w obszarze którego obecność nośników w idealnym krysztale jest energetycznie niedozwolona. Przerwa energetyczna E_g jest zwykle rzędu kliku elektronowoltów (eV) i dla niedomieszkowanych CsI lub zawierających domieszki wynosi ~6 eV [31]. W przypadku nieorganicznych materiałów scyntylacyjnych celowo wprowadza się do układu tzw. centra luminescencji, którymi są zazwyczaj jony domieszkujące, układy molekularne sieci lub defekty sieci. Ich obecność powoduje pojawienie się stanów dozwolonych w paśmie wzbronionym [33, 34, 36].

Wśród powstających centrów można wyszczególnić trzy podstawowe typy:

1. Centra luminescencji, z których przejściu do stanu podstawowego towarzyszy emisja fotonów.
2. Centra gaszenia (ang. *quenching centres*), z których może zachodzić bezpromieniste wytracanie energii w postaci ciepła.
3. Pułapki (ang. *traps*), zdolne do wychwytu i przetrzymywania wolnych elektronów lub dziur [32].

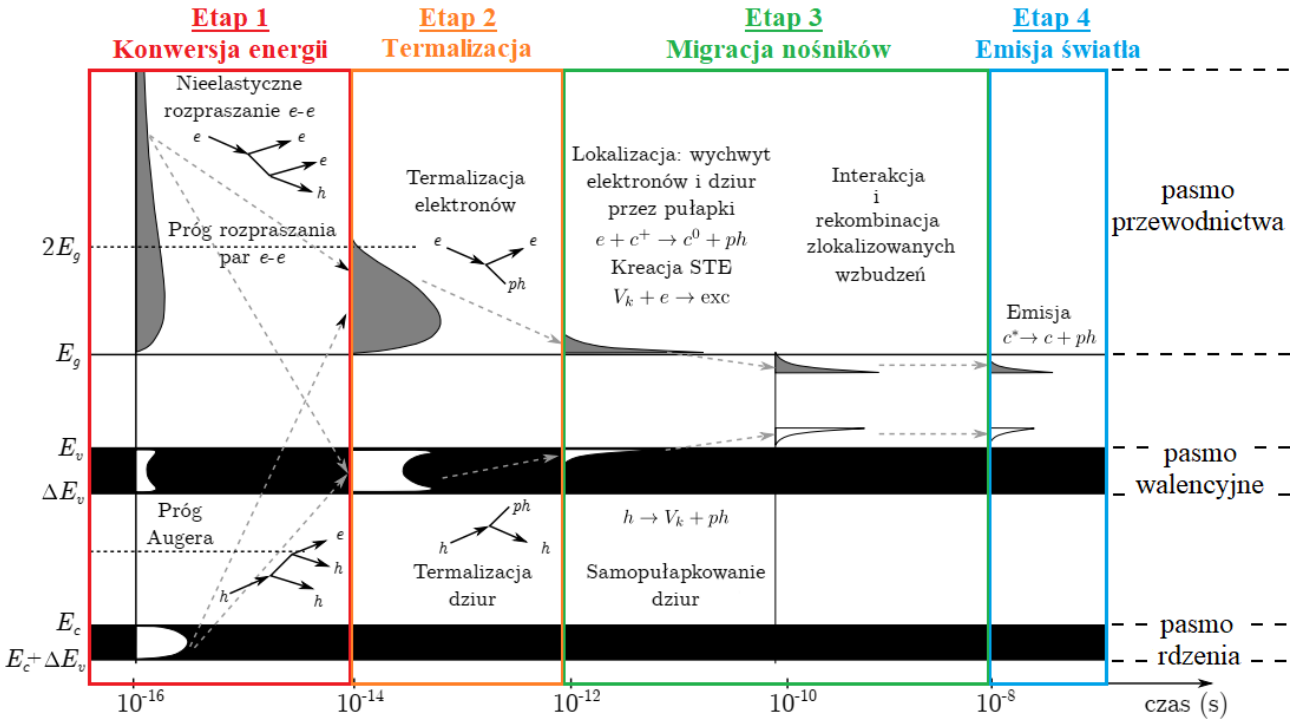


Rysunek 2.1.3. Schemat modelu pasmowego w nieorganicznym scyntylatorze bez obecności domieszki aktywatora (A) oraz z jej dodatkiem (B) na podstawie [34, 37, 38].

W pierwszym etapie mechanizmu scyntylacji elektrony z poziomu pasma walencyjnego lub pasma rdzenia (ang. *core band*) na skutek oddziaływania fotoelektrycznego lub comptonowskiego ulegają wzbudzeniu i jednoczesnemu przeniesieniu do pasm przewodnictwa. W każdej z tych interakcji powstaje para elektron – dziura (proces wzbudzenia na rysunku 2.1.3A i 2.1.3B). Następnie, w przedziale czasu rzędu 10^{-16} – 10^{-14} s, wytwarzana jest duża liczba elektronów wtórnych poprzez nieelastyczne rozpraszanie typu elektron – elektron (e^- – e^-) i w procesie Augera, co wprowadza dodatkowe elektrony do pasma przewodnictwa i dziury do pasma walencyjnego oraz rdzenia (patrz również rysunek 2.2.1). Etap namnażania nośników zostaje zatrzymany, gdy wszystkie elektrony w paśmie przewodnictwa osiągają energię mniejszą niż wartość $2E_g$ (próg rozpraszania e^- – e^-), a wszystkie dziury obsadzają pasmo walencyjne. Wytworzone w ten sposób swobodne nośniki mogą losowo przemieszczać się w krysztale [34-36].

2.2. Proces 2 – Termalizacja

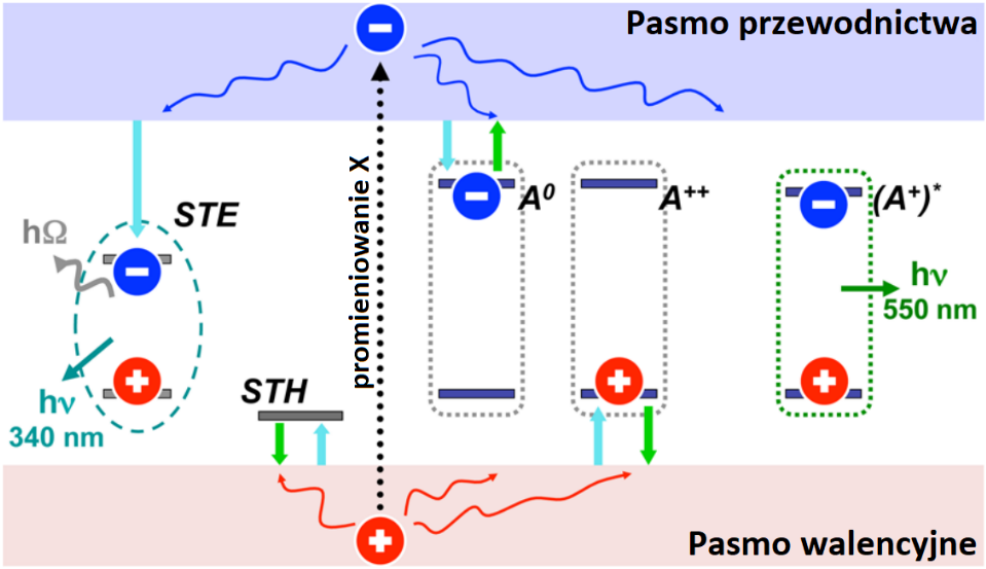
Drugi etap scyntylacji to wspomniana wyżej termalizacja, podczas której dochodzi do wytracania energii nośników poprzez produkcję fononów. Deekscytacja trwa do momentu, aż nośniki osiągną energię odpowiadającą szczytowi pasma walencyjnego dla dziur (E_V) oraz dna pasma przewodnictwa dla elektronów (E_C) [33-35].



Rysunek 2.2.1. Schemat procesów prowadzących do scyntylacji w izolatorze, gdzie poszczególne oznaczenia opisują: e – elektron, h – dziura, ph – fonon, hν – foton, V_k – samopułapkowana dziura, c^n – centrum jonowe z ładunkiem n (zaczerpnięte z [35, 39]).

2.3. Proces 3 – Migracja nośników

W trzecim etapie procesu scyntylacji stermalizowane swobodne elektrony i dziury mogą ponownie znaleźć się w swoim pobliżu, w efekcie czego może dojść do ich połączenia zwanego rekombinacją. Rysunek 2.3.1 przedstawia możliwe ścieżki rekombinacji w scyntylatorach z grupy halogenków alkalicznych typu CsI:A, gdzie A odpowiada atomom aktywatora.



Rysunek 2.3.1 Schemat procesów tworzenia się nośników w scyntylatorach typu CsI:A [37].

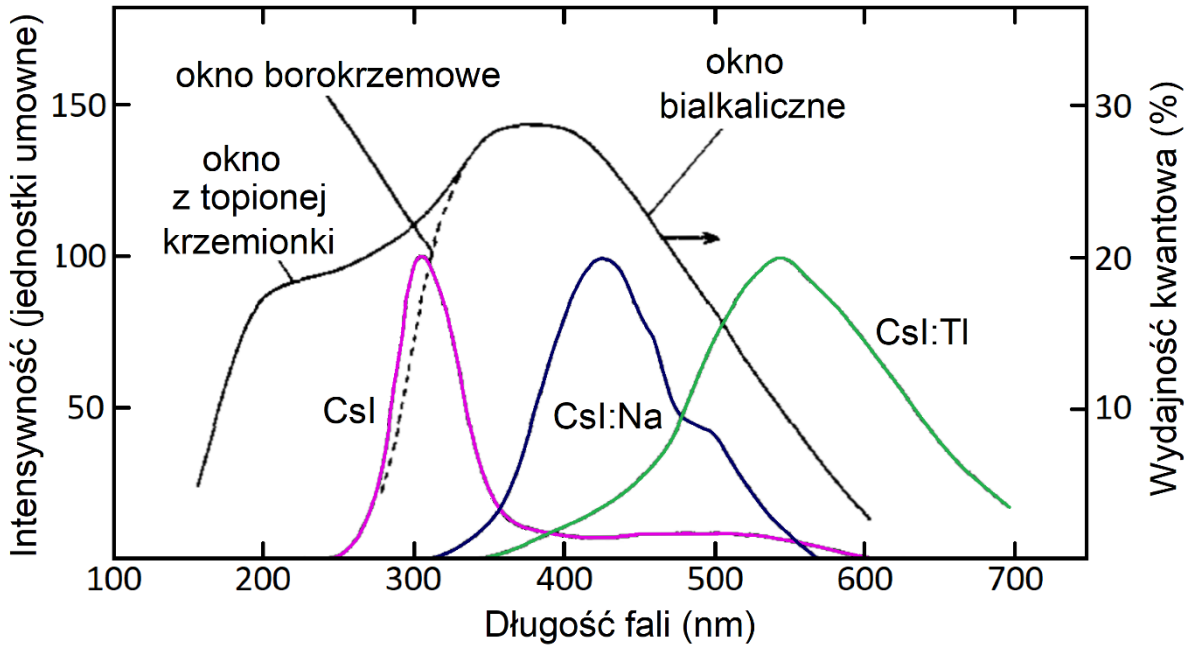
Na rysunku przedstawiono następujące scenariusze zdarzeń:

- samopułapkowanie dziur (ang. *self-trapped hole*, STH),
- wychwyt dziur przez obojętne centra aktywatora A^+ (odpowiadające naturalnemu poziomowi pasma walencyjnego jonów domieszkujących kryształ, np. Na^+, Tl^+, czy In^+) zgodnie ze schematem:
  $A^+ + h^+ \rightarrow A^{2+}$,
- wychwyt dziur przez centrum aktywatora w postaci A^0:
  $A^0 + h^+ \rightarrow (A^+)^*$,
- wychwyt elektronów (e^-) przez centra aktywatora:
  $A^+ + e^- \rightarrow A^0$ lub $A^{2+} + e^- \rightarrow (A^+)^*$,
- wychwyt elektronów w centrach typu STH. Elektron taki nie jest swobodny, ale znajduje się w obszarze oddziaływań kulombowskich wywołanych powstałą po jego wyrwaniu dodatnio naładowaną dziurą, Kompleks elektron – dziura w stanie wzbudzonym nosi nazwę ekscytonu (ang. *self-trapped exciton*, STE). Jest to kompleks obojętny mogący przemieszczać się w krysztale:
  $STH + e^- \rightarrow STE$.

Procesy odwrotne mogą wystąpić poprzez aktywację termiczną i są pokazane jako zielone strzałki na rysunku 2.3.1 [40].

2.4. Proces 4 – Emisja światła

W ostatnim, czwartym procesie dochodzi do relaksacji wzbudzonych centrów luminescencyjnych i odpowiadającej im emisji światła. Światło to charakteryzują stałe czasowe τ rozłożone w szerokim zakresie, które zależą od funkcji falowej poziomów zaangażowanych w procesy deekscytacji. Dla halogenków alkalicznych w zakresie temperatur od -263°C do 27°C, zarówno $(A^+)^*$, jak i STE mogą prowadzić do rekombinacji promienistej z charakterystyką czasową τ_A i τ_{STE} zgodną ze schematami wyświecania: $(A^+)^* \rightarrow A^+ + h\nu$ (emisja światła o długości 550 nm) i STE $\rightarrow h\nu$ (emisja światła o długości 340 nm). Przejście 340 nm jest dominujące dla niedomieszkowanego CsI. Z kolei emisję fotonu o długości fali 450 nm utożsamia się z defektem sieci krystalicznej polegającym na deficycie atomu jodu w strukturze kryształu (ang. *I-vacancies*) [32, 37, 41, 42]. Na rysunku 2.4.1 zaprezentowano widmo emisyjne CsI:Tl w zestawieniu z kryształem niedomieszkowanego CsI i CsI:Na.



Rysunek 2.4.1. Widmo emisyjne CsI:Tl po wzbudzeniu promieniowaniem γ na tle innych halogenków alkalicznych. Na rysunku przedstawiono dodatkowo krzywe wydajności kwantowej dla trzech rodzajów okien fotopowielacza [42].

W tym podrozdziale przedstawiono wyłącznie zwięzły opis mechanizmów wyświecania w krysztale CsI:Tl. Bardziej szczegółowe informacje dotyczące aktualnych badań i wiedzy w tym zakresie znajdują się w pracach [35, 37, 43-51].

3. Właściwości spektrometryczne detektorów promieniowania gamma

Promienie gamma pochodzące z rozpadu radioaktywnego izotopu mają energię w zakresie od kilku keV do około 8 MeV. Do pomiaru promieni gamma powyżej kilkuset keV stosuje się zazwyczaj dwa typy detektorów: detektory bazujące o scyntylatory nieorganiczne oraz detektory półprzewodnikowe. Promieniowanie po interakcji z detektorem scyntylacyjnym, w wyniku którego pojawia się emisja światła może być w następnym kroku wykryte oraz przeanalizowane za pomocą systemu spektrometrycznego. Układy spektrometryczne umożliwiają pomiar widm energetycznych, a szczegółowa analiza tego widma jest zwykle używana do określenia rodzaju i natężenie padającego promieniowania.

Opisując właściwości nieorganicznych materiałów scyntylacyjnych w wyniku detekcji promieniowania jonizującego podaje się najczęściej następujące informacje:

- wydajność konwersji i scyntylacji,
- czas zaniku lub czas trwania impulsu świetlnego scyntylacji,
- energetyczną zdolnością rozdzielczą i rozdzielczość czasową,
- poziom poświaty,
- stabilność temperaturową,
- właściwości optyczne (transmisję i współczynnik załamania światła),
- odporność radiacyjną,
- gęstość, liczbę atomową, gęstość jonizacji i/lub prawdopodobieństwo wystąpienia zjawiska pełnej absorpcji padającego fotonu lub cząstki,
- długość fali emisji, którą należy dopasować do krzywej wydajności detektora światła,
- właściwości mechaniczne (np. twardość),
- stabilność chemiczną w normalnych warunkach atmosferycznych (higroskopijność),
- łatwość hodowli dużych próbek,
- koszt,
- jednorodność lub równomierność rozkładu zanieczyszczeń (jonów aktywatora) w krysztale,
- proporcjonalność odpowiedzi – wydajność scyntylacji, która powinna być proporcjonalna do zdeponowanej energii w jak najszerszym zakresie [52].

Wśród wyszczególnionych wyżej parametrów, znajdują się typowe właściwości spektrometryczne scyntylatorów. Poniżej scharakteryzowano wybrane parametry, kluczowe dla prowadzonych badań.

3.1. Wydajność scyntylacji

Wydajność scyntylacji (ang. *scintillation efficiency*) jest definiowana jako ułamek całkowitej energii padającego fotonu, która jest przekształcana w energię światła widzialnego. Wydajność ta nigdy nie osiąga wartości równej 100%, ponieważ obok deekscytacji w postaci światła konkurencyjnie występuje zawsze deekscytacja w postaci ciepła lub drgań sieci. Wszystkie takie bezpromieniste procesy określa się mianem gaszenia [2, 52]. Procesy limitujące wydajność scyntylacji (η_s) można matematycznie zapisać jako iloczyn wydajności konwersji (β), transferu (S) i luminescencji (Q):

$$\eta_s = \beta \cdot S \cdot Q \qquad (3.1.1)$$

Parametr β opisuje wydajność procesu konwersji, w którym energia niesiona przez kwant gamma jest wykorzystywana do utworzenia dużej liczby par elektron – dziura (e – h). W procesie tym do utworzenia jednej pary jest potrzebna energia rzędu $2{,}3E_g$ [53]. Stąd maksymalną liczbę par e – h, $N_{e\text{-}h(max)}$, możliwą do wytworzenia po interakcji z promieniowaniem o zadanej energii (Eγ), można opisać zależnością 3.1.2.

$$N_{e-h(\max)} = \frac{E_\gamma}{2{,}3 \cdot E_g} \qquad (3.1.2)$$

Współczynnik β jest stosunkiem liczby rzeczywiście utworzonych par elektron – dziura ($N_{e\text{-}h}$) po zaabsorbowaniu jednego fotonu gamma, do wartości $N_{e\text{-}h(max)}$:

$$\beta = \frac{N_{e-h}}{N_{e-h(\max)}} \qquad (3.1.3)$$

Ostatecznie liczbę fotonów świetlnych (N_{ph}) utworzoną w interakcji z pojedynczym kwantem gamma, po uwzględnieniu ilości wytworzonych par e – h, migracji nośników i wydajności wyświecania z centrów luminescencji, można zapisać zależnością 3.1.4 [53]:

$$N_{ph} = n_{e-h} \cdot S \cdot Q = \frac{E_\gamma}{2{,}3 \cdot E_g} \beta \cdot S \cdot Q \qquad (3.1.4)$$

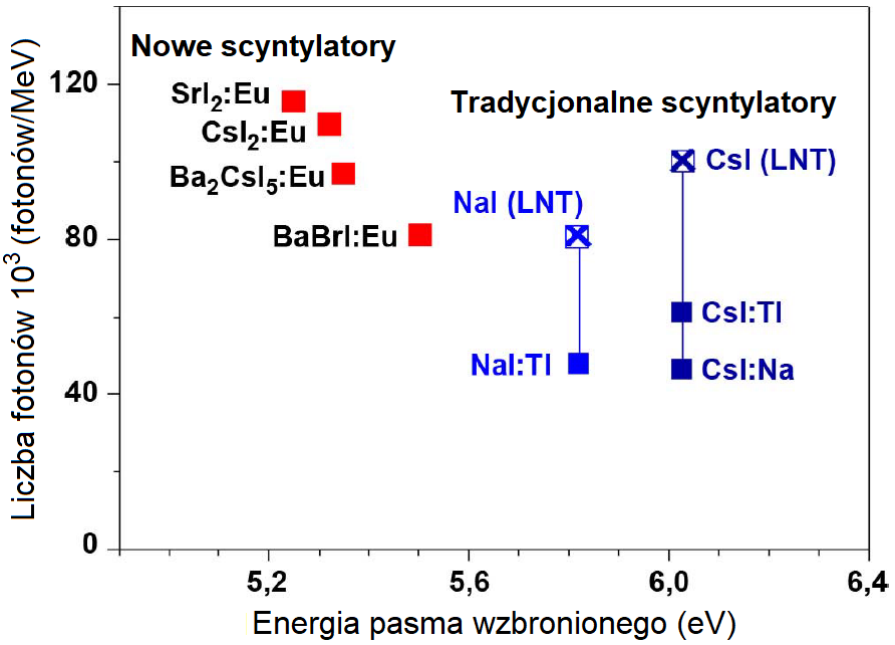
3.2. Odpowiedź świetlna

Całkowita liczba fotonów na jednostkę energii, N_f, wyemitowanych w wyniku interakcji kwantu gamma o energii E_γ lub innego promieniowania jonizującego ze scyntylatorem, wyrażona jest poprzez parametr odpowiedzi świetlnej (ang. *light output*, LO):

$$LO = \frac{N_f}{E_\gamma} = \frac{1}{2{,}3 \cdot E_g} \cdot \beta \cdot S \cdot Q \cdot 10^6 \qquad (3.2.1)$$

gdzie E_γ wyrażone w MeV = 1eV · 10^6, zaś E_g wyrażone w eV.
Wielkość LO opisywana jest zwykle w odniesieniu do 1 MeV zdeponowanej energii [53]. Zmierzona liczba fotonów jest funkcją liczby fotoelektronów (ang. *photo-electron number*, PHE) otrzymanych w fotopowielaczu lub liczby par elektron – dziura w przypadku detektorów krzemowych [54].

Rysunek 3.2.1 przedstawia teoretyczne granice osiągalnej liczby fotonów (wyrażonej w fotonach/MeV), którą można uzyskać dla wybranego materiału scyntylacyjnego. Na przykład, dla CsI:Tl jest to około 60000 fotonów/MeV w temperaturze pokojowej.



Rysunek 3.2.1. Maksymalna osiągalna liczba fotonów wybranych materiałów scyntylacyjnych [31].

3.3. Zanik scyntylacji

Zależność amplitudy impulsu świetlnego od czasu A(t) w scyntylatorach z grupy halogenków alkalicznych można opisać za pomocą funkcji wykładniczej, wyszczególniając człon od części narastającej impulsu, jak i jej zaniku pamiętając, że zanik tej funkcji jest wieloczłonowy. Dla kryształów CsI:Tl impuls świetlny zwykle opisujemy trzema składowymi [29, 52] zgodnie z równaniem 3.3.1.

$$A(t) = A_1\left[exp\left(-\frac{1}{\tau_1}\right) - \exp\left(-\frac{1}{\tau_R}\right)\right] + A_2 exp\left(-\frac{1}{\tau_2}\right) + A_3 exp\left(-\frac{1}{\tau_3}\right) \qquad (3.3.1)$$

gdzie A_i oznacza wartość amplitudy danej składowej „i" o czasie zaniku τ_i. Z kolei τ_R opisuje czas narastania sygnału świetlnego. Warto zauważyć, że dla i>3 równanie 3.3.1 traci swoją przydatność do opisu rzeczywistych krzywych zaniku. Użycie i=3 jest możliwe, jeśli stałe zaniku τ_1, τ_2 i τ_3 różnią się znacznie od siebie [52].

Do opisu udziału składowych w całkowitej odpowiedzi świetlnej reprezentowanej przez impuls świetlny wprowadza się pojęcie intensywności (I_i). Zgodnie z nim wkład poszczególnej składowej „i" rozumianej, jako wartość całki $A_i\tau_i$, odnosi się do sumy wszystkich całek „n" składowych zgodnie z zależnością 3.3.2 [28].

$$I_i = \frac{A_i\tau_i}{\sum_{i=1}^{n} A_i\tau_i} \qquad (3.3.2)$$

3.4. Poświata

Scyntylator może wykazywać długotrwałą luminescencję (rzędu kilku mikrosekund i więcej), zwaną poświatą. Próg występowania poświaty w scyntylatorze można liczyć po czasie około 5-10 krotnie większym od wartości zarejestrowanych czasów zaniku szybkiej luminescencji. Innymi słowy, dowolną luminescencję z czasem zaniku znacznie dłuższym niż czas głównej składowej zaniku scyntylacji można zdefiniować jako poświatę. Źródłem poświaty jest wzrost fosforescencji w krysztale w wyniku termicznego uwalniania nośników z pułapek. Interakcja centrów luminescencyjnych między sobą lub ich oddziaływanie z pułapkami nośników ładunku prowadzi do bardziej złożonej kinetyki procesu scyntylacji z ogólnie dłuższym czasem narastania impulsu i silnym wykładniczym rozpadem z długimi „ogonami" w niektórych przypadkach [35, 52].

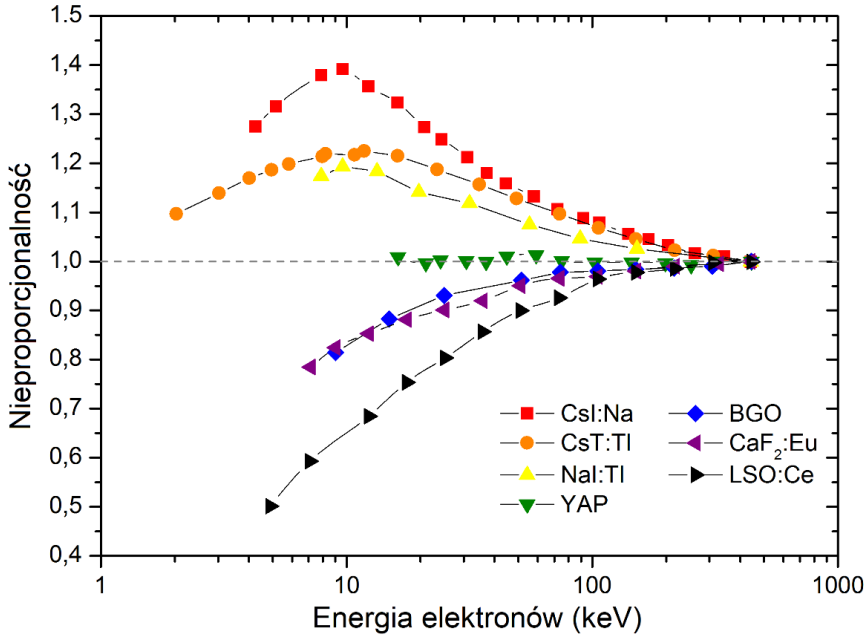
Na przykład w krysztale CsI:Tl poddanym promieniowaniu UV tworzą się centra typu: Tl_2^0 i Tl^{2+}. Centra te w połączeniu z centrami F jodku cezu i wzbudzone np. promieniowaniem gamma, dają dodatkowy wkład do scyntylacji w postaci poświaty. Z tego powodu kryształy jodków cezu powinny być przechowywane w ciemności. Stabilność takich centrów nie jest wysoka, podgrzanie scyntylatorów do temperatury rzędu 70-140°C jest sposobem na obniżenie poziomu poświaty i zwiększenie wydajności radioluminescencji o 40–50%. Poziom poświaty po 6 ms trwania sygnału scyntylacji wynosi od 0,3 do 5,0% dla NaI:Tl, CsI:TI i CsI:Na [35, 52].

3.5. Nieproporcjonalność

Ilość światła rejestrowana przez detektor zależy od energii niesionej przez promieniowanie. W pierwszym przybliżeniu można założyć, że ilość światła emitowana przez scyntylator jest funkcją liniową względem energii padającego promieniowania. Taka sytuacja jest jednak bardzo rzadka i większość nieorganicznych materiałów scyntylacyjnych odznacza się pewnym odstępstwem od tej zależności. Nieliniowe zachowanie scyntylatorów, wliczając w to jodki cezu, jest zagadnieniem zgłębianym od prawie 70 lat. Początkowo mówiono o tym zjawisku wyłącznie w odniesieniu materiałów organicznych, takich jak antracen, naftalen, czy stilben [55, 56]. Obecnie, o zjawisku nieliniowej emisji światła w stosunku do padającego promieniowania mówi się w kontekście nieproporcjonalności scyntylatorów (ang. *scintillator non-proportionality*) lub w skrócie o nieproporcjonalności (NP) [6, 14, 20, 23]. Rysunek 3.5.1 przedstawia krzywe nieproporcjonalności zarejestrowane po wzbudzeniu różnych kryształów monoenergetycznymi wiązkami elektronów. Nieproporcjonalność NP_i wyrażona jest jako liczba fotonów na jednostkę energii, $N_f(E_i)$, wyemitowana przez scyntylator po wzbudzeniu kwantami X i γ w odniesieniu do liczby fotonów powstających po wzbudzeniu promieniowaniem o energii przyjętej za punkt normalizacji, $N_f(E_{normalizacji})$ – obie wartości wyrażone w jednostce fotoelektron/MeV:

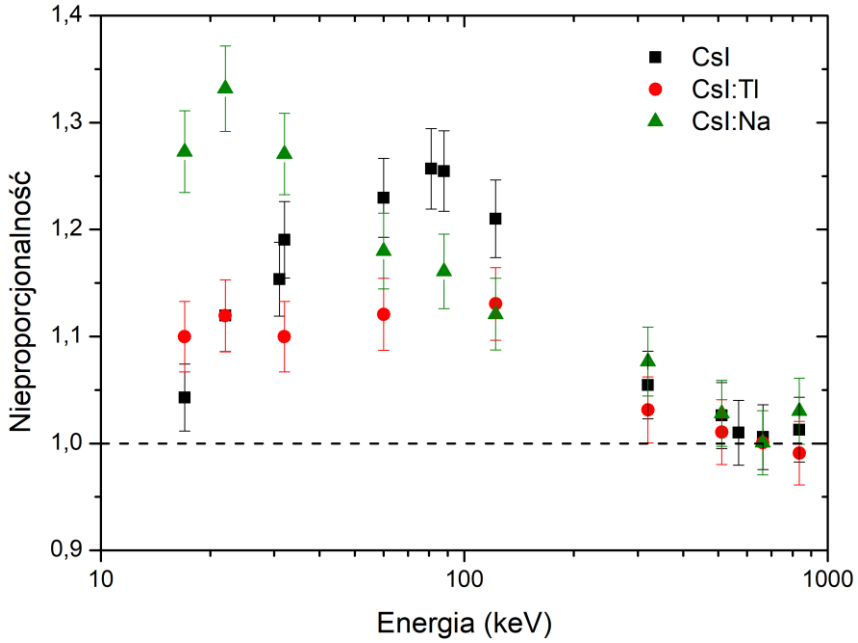
$$NP_i = \frac{N_f(E_i)}{N_f(E_{normalizacji})} \qquad (3.5.1)$$

Rysunek 3.5.1 pokazuje, że scyntylatory nieorganiczne w obszarze niższych energii mogą odznaczać się zarówno wydajniejszą, jak i mniej wydajną konwersją energii padającego promieniowania (tu: elektronów) na światło w stosunku do promieniowania wyżej energetycznego (wartości NP odpowiednio, powyżej i poniżej jedności). Na przedstawionym rysunku za punkt normalizacji przyjęto energię elektronów równą 430 keV [57].



Rysunek 3.5.1. Krzywe nieproporcjonalności (NP) zarejestrowane po wzbudzeniu różnych kryształów nieorganicznych wiązkami elektronów. Dane znormalizowane do energii 430 keV [57].

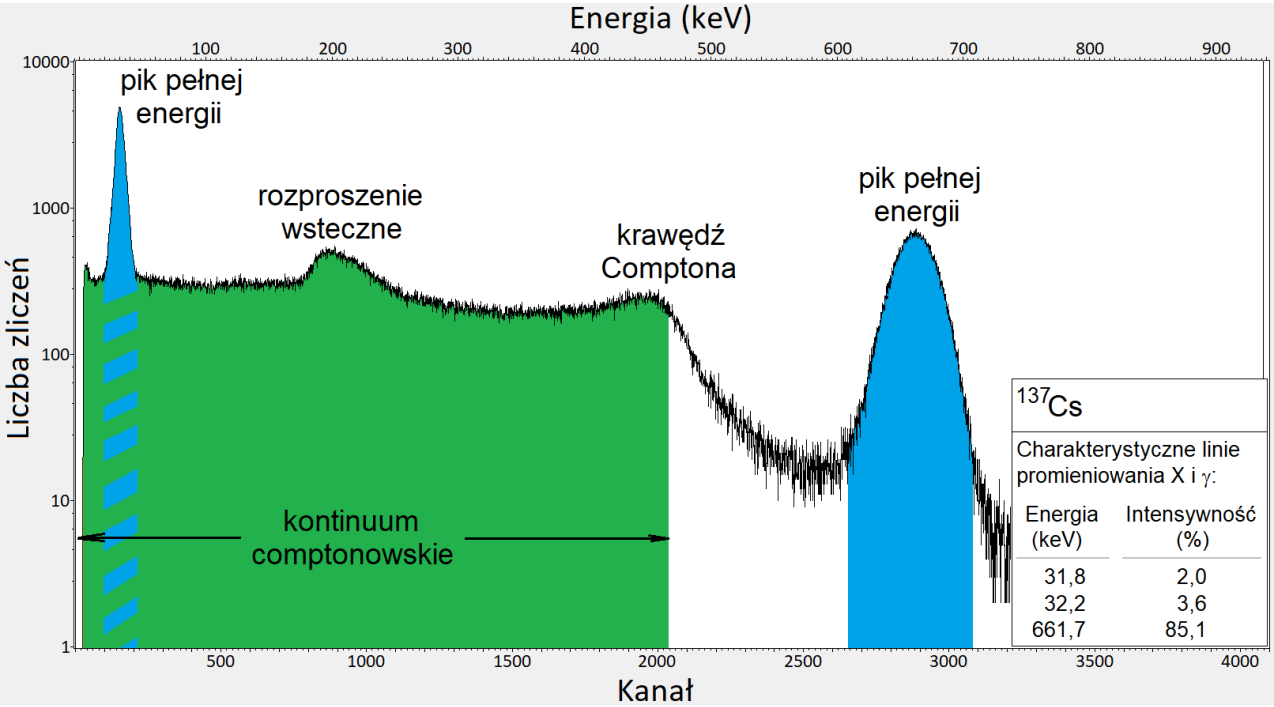
W przypadku badań z użyciem promieniowania gamma względną liczbę światła (LO), mierzoną z użyciem różnych energii, normalizuje się zwyczajowo do wartości uzyskanej dla 662 keV (promieniowanie gamma ze źródła ^{137}Cs). Taką normalizację zastosowano także do wyników prezentowanych w niniejszej rozprawie i pokazano na rysunek 3.5.2 przedstawiającym charakterystyki nieproporcjonalność materiałów scyntylacyjnych z grupy jodków cezu, wzbudzonych promieniowaniem X i gamma o energiach od 17 keV do 835 keV.



Rysunek 3.5.2. Nieproporcjonalność „czystego” CsI [58] oraz CsI z domieszką talu i sodu [28].

3.6. Energetyczna zdolność rozdzielcza

Materiały scyntylacyjne są szeroko stosowane do rejestracji i wizualizacji promieniowania gamma, ze względu na dobrą energetyczną zdolność rozdzielczą, czyli rozróżnianie padającego promieniowania o różnych energiach. Odpowiedź świetlną scyntylatora można zarejestrować w postaci widma energetycznego, które powstaje w wyniku analizy rozkładu wysokości impulsów elektrycznych docierających do analizatora wielokanałowego z wyjścia detektora światła (ang. *pulse height distribution*). Analiza widm energetycznych umożliwia charakteryzowanie padającego promieniowania oraz ocenę użytego układu detekcyjnego. Rysunek 3.6.1. przedstawia przykład takiego widma zarejestrowanego dla kryształu CsI:Tl po interakcji z kwantami gamma emitowanymi ze źródła ^{137}Cs.



Rysunek 3.6.1. Widmo energetyczne kryształu CsI:Tl po interakcji z promieniowaniem ze źródła cezu – 137. Opis rysunku na podstawie danych zaczerpniętych z [2, 59].

Izotop cezu-137 emituje głównie promieniowanie X i gamma o wartościach energii wynoszących odpowiednio: 32,2 keV oraz 661,7 keV [59]. Całkowitą energię tych linii zdeponowaną w scyntylatorze można zaobserwować w postaci pików pełnej energii (ang. *full energy peak*, FEP) zaznaczonych w postaci niebieskich obszarów na rysunku. Dodatkowo kolorem zielonym wyodrębniono obszar odpowiadający rozpraszaniu Comptona. W obszarze tym charakterystycznym punktem jest krawędź Comptona, która powstaje na skutek wstecznego rozproszenia promieniowania

(tj. pod kątem θ = 180°), gdy wybity elektron unosi maksymalną energię opisaną poniższym równaniem (patrz również równanie 2.1.2) [2]:

$$E_{\gamma'} = E_{\gamma} - E_{e^-}|_{\theta=180°} \qquad (3.6.1)$$

Szerokość piku pełnej energii w połowie jego wysokości (FWHM, ang. *full width at half maximum*) wykorzystuje się do wyznaczania parametru energetycznej zdolności rozdzielczej (ang. *energy resolution*, w skrócie ER) z zastosowaniem następującej zależności:

$$ER = \frac{FWHM}{x_{FEP}} \cdot 100\% \qquad (3.6.2)$$

gdzie x_{FEP} to położenie środka rozkładu piku pełnej energii.

Całkowitą mierzoną wartość ER można wyrazić również, jako sumę kwadratów trzech wkładów: wewnętrznej energetycznej zdolności rozdzielczej δ_{sc} (ang. *intrinsic resolution*, IR), rozdzielczości statystycznej δ_{st} (ang. *statistical resolution*, SR) oraz rozdzielczości transferu δ_p (ang. *transfer resolution*, TR) [6, 60]:

$$ER^2 = {\delta_{sc}}^2 + {\delta_{st}}^2 + {\delta_p}^2 \qquad (3.6.3)$$

IR opisuje fluktuacje światła wytwarzaną w samym materiale scyntylacyjnym, bez wpływu fotodetektora. Parametr ten, wyznaczany eksperymentalnie, zależy wyłącznie od struktury krystalicznej scyntylatora i jakości jego hodowli [2]. SR jest związana z fluktuacją liczby fotoelektronów generowanych na fotokatodzie i późniejszym ich powieleniu na dynodach. Rozrzut statystyczny jest opisany wzorem [1, 11]:

$$\delta_{st} = 2{,}35 \cdot \frac{1}{\sqrt{N}} \cdot \sqrt{1+\varepsilon} \qquad (3.6.4)$$

gdzie N jest liczbą fotoelektronów wyznaczoną eksperymentalnie, a ε reprezentuje wariancję związaną z procesem wzmocnienia w fotopowielaczu (ang. *photomultiplier*, PMT) [6, 61].
Ostatni człon, TR, wynika z konieczności przeniesienia sygnału wygenerowanego przez światło na fotokatodzie do dynod fotopowielacza. Wydajność transferu w nowoczesnych fotopowielaczach jest na tyle duża, że parametr ten można zaniedbać w obliczeniach [2, 60, 61].

W przypadku określania wartości energetycznej zdolności rozdzielczej pod uwagę brany jest również parametr szumu δ_n (ang. *noise resolution*, NR) związany z fluktuacjami wywołanymi przez układ detekcyjny i elektronikę odczytu. W przypadku pomiarów z zastosowaniem fotopowielacza i układu analogowego parametr ten jest zaniedbywalny. Jednak analiza danych zebranych w niniejszym opracowaniu z użyciem układu cyfrowe pokazuje, że parametr ten powinien być uwzględniony podczas analizy sygnałów świetlnych z użyciem szerokiego okna czasowego (patrz podrozdział 7.3).

4. Dotychczasowa wiedza o jodku cezu domieszkowanym talem

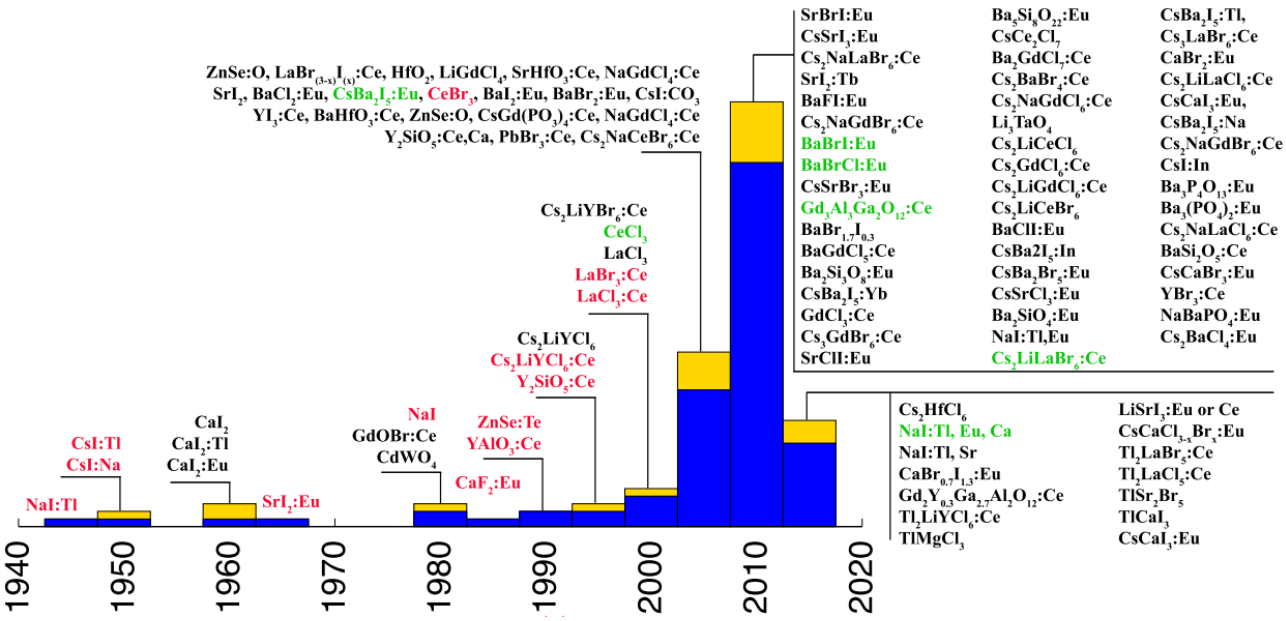
W ramach niniejszej rozprawy doktorskiej zostały przebadane scyntylatory CsI:Tl. Impulsy świetlne kryształów CsI:Tl charakteryzują się długim zanikiem opisywanym trzema stałymi czasu sięgającymi 16 μs [29]. Ponadto CsI:Tl cechuje znacząca poświata. Oba te fakty pokazują, że scyntylator ten jest dobrym materiałem do badań wpływu wolnych składowych impulsu na własności spektrometryczne w spektrometrii z użyciem promieniowania gamma. W rozdziale przedstawiono w sposób zwięzły informacje o innych znanych nieorganicznych materiałach scyntylacyjnych oraz wiedzę o właściwościach spektrometrycznych CsI:Tl.

4.1. CsI:Tl na tle innych popularnych materiałów scyntylacyjnych

Historia syntezy scyntylatorów o dobrych właściwościach scyntylacyjnych należących do grupy halogenów alkalicznych sięga lat 50-tych. W 1948 roku Robert Hofstadter wykazał, że krystaliczny jodek sodu, do którego dodano śladowe ilości jodku talu, odznaczał się zdecydowanie większą odpowiedzią świetlną w stosunku do ówcześnie stosowanych scyntylatorów organicznych (38000 fotonów na MeV zdeponowanego promieniowania gamma). To odkrycie, bardziej niż jakiekolwiek inne pojedyncze wydarzenie, zapoczątkowało erę współczesnej spektrometrii scyntylacyjnej promieniowania gamma. Godne uwagi jest to, że chociaż niektóre z nowszych nieorganicznych scyntylatorów oferują wyższą odpowiedź świetlną, lepszą energetyczną zdolność rozdzielczą, czy lepszy timing, to dostępność NaI:TI o zróżnicowanym kształcie i objętości w stosunku do niskich kosztów jego produkcji, w dalszym ciągu plasuje ten kryształ w czołówce popularności [2].

Podobna sytuacja dotyczy zsyntetyzowanego nieco później jodku cezu. Producenci oferują scyntylatory z talem lub sodem, jako pierwiastkiem aktywującym. Jodek cezu ma jednak nieco większy współczynnik absorpcji promieniowania gamma, na jednostkę objętości, w porównaniu z jodkiem sodu. Ponadto, oprócz podstawowego zastosowania jako detektor promieniowania gamma, CsI:Tl stosowany jest również w spektroskopii ciężkich jonów [2].

Mnogość dostępnych na rynku materiałów scyntylacyjnych sugeruje, że nie istnieje jeden idealny scyntylator, który spełniałby wszelkie oczekiwania użytkowników. W zależności od właściwości danego materiału jego przydatność i zastosowanie w przemyśle lub nauce może być inna [7]. Na rysunku 4.1.1 zaprezentowano szereg nieorganicznych materiałów scyntylacyjnych hodowanych w latach 1940 – 2017 odznaczających się odpowiedzią świetlną na poziomie, co najmniej 20000 fotonów/MeV.



Rysunek 4.1.1. Historia pojawiania się nowych scyntylatorów nieorganicznych, których ilość światła przekracza 20000 fotonów/MeV (wyszczególnione daty dotyczą pierwszych wzmianek o materiale opublikowanych w czasopismach recenzowanych) [7].

Niebieskie słupki na rysunku odpowiadają momentowi wprowadzenia nowego materiału, podczas gdy słupki żółte reprezentują pojawienie się popularnych scyntylatorów z nowymi domieszkami. Dodatkowo czcionką czerwoną wypisano scyntylatory dostępne komercyjnie, podczas gdy czcionka zielona dotyczy materiałów testowanych w laboratoriach. Warto zwrócić uwagę, że wiele wyszczególnionych na wykresie scyntylatorów, czyli odznaczających się bardzo dobrą odpowiedzią świetlną, to kryształy bazujące na halogenach metali ziem alkalicznych. Sytuacja ta pokazuje jeden z aktualnych trendów w zakresie hodowli materiałów scyntylacyjnych, mający na celu poprawę energetycznej zdolności rozdzielczej poprzez wprowadzanie kodomieszek (ang. *co-doping*) do obecnie znanych i powszechnie stosowanych scyntylatorów [7, 31, 62-66].

W tabeli 4.1.1 zaprezentowano zestawienie właściwości popularnych scyntylatorów nieorganicznych zaczerpnięte z książkowego wydania Glena Knolla z 2010 roku [2]. Kryształ CsI:Tl odznacza się na ich tle wysoką odpowiedzią świetlną (około 51800 – 65000 fotonów/MeV), ustępując pod tym względem wyłącznie znacznie droższemu jodkowi strontu (SrI_2:Eu) i jest porównywalny z droższym cenowo bromkiem lantanu ($LaBr_3$:Ce) [2, 54, 67]. Rozszerzenie najnowszych danych dotyczących CsI:Tl przedstawia również prezentowana w następnym podrozdziale tabela 4.3.1.

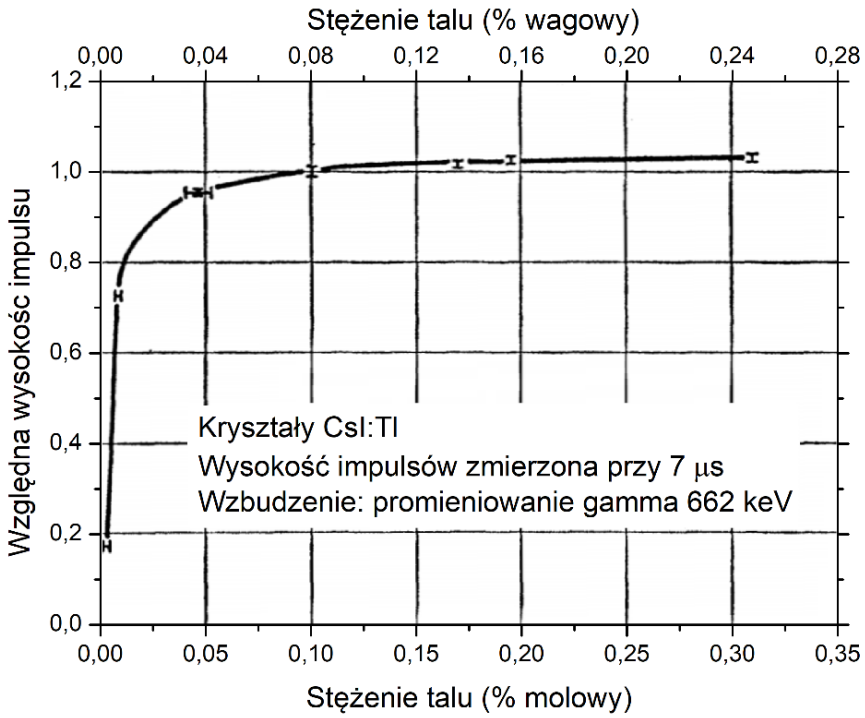
Tabela 4.1.1. Właściwości spektrometrycznych popularnych materiałów scyntylacyjnych [2].

Scyntylator	Gęstość (g/cm3)	Maksimum emisji (nm)	Współczynnik załamania światła	Czas zaniku (µs)	Absolutna odpowiedź świetlna (foton/MeV)
Halogenki alkaliczne					
Nal:Tl	3,67	415	1,85	0,23	38000
Csl:Tl	4,51	540	1,8	0,68 (64%); 3,34 (36%)	65000
Csl:Na	4,51	420	1,84	0,46; 4,18	39000
Lil:Eu	4,08	470	1,96	1,4	11000
Inne wolne scyntylatory nieorganiczne					
BGO	7,13	480	2,15	0,30	8200
$CdW0_4$	7,90	470	2,3	1,1 (40%); 14,5 (60%)	15000
$CaW0_4$	6,1	420	1,94	8	15000
Srl_2:Eu	4,6	435		1,2	85000
ZnS:Ag (polikrystaliczny)	4,09	450	2,36	0,2	
CaF_2:Eu	3,19	435	1,47	0,9	24000
Szybkie scyntylatory nieorganiczne bez aktywatora					
BaF_2 (składowa szybka)	4,89	220		0,0006	1400
BaF_2 (składowa wolna)	4,89	310	1,56	0,63	9500
Csl (składowa szybka)	4,51	305		0,002 (35%); 0,02 (65%)	2000
Csl (składowa wolna)	4,51	450	1,80	wielokrotny, do kilku µs	zmienna
CeF_3	6,16	310, 340	1,68	0,005; 0,027	4400
Szybkie scyntylatory nieorganiczne aktywowane cerem					
GSO	6,71	440	1,85	0,056 (90%); 0,4 (10%)	9000
YAP	5,37	370	1,95	0,027	18000
YAG	4,56	550	1,82	0,088 (72%); 0,302 (28%)	17000
LSO	7,4	420	1,82	0,047	25000
YSO	4,54	420		0,070	24000
LuAP	8,4	365	1,94	0,017	17000
$LaCl_3$:Ce	3,79	350		0,028	46000
$LaBr_3$:Ce	5,29	380	2,05-2,10	0,026	63000
Dla porównania typowy scyntylator organiczny (plastik):					
NE102A	1,03	423	1,58	0,002	10000

4.2. Ilość światła i energetyczna zdolność rozdzielcza CsI:Tl

Jodek cezu domieszkowany talem odznacza się umiarkowaną gęstością (4,51 g/cm^3) i wysoką efektywną liczbą atomową ($Z \approx 54$), co zapewnia wysoką skuteczność wykrywania promieniowania γ poprzez efekt fotoelektryczny, rozpraszanie Comptona i wytwarzanie par. Zasięg promieniowania gamma o energii 662 keV w tym materiale wynosi 1,65 cm [2, 3].

Największą odpowiedź świetlną CsI:Tl odnotowano dla scyntylatorów o domieszce talu przekraczającej 0,1% molowego[2] – patrz rys. 4.2.1 [3, 41].



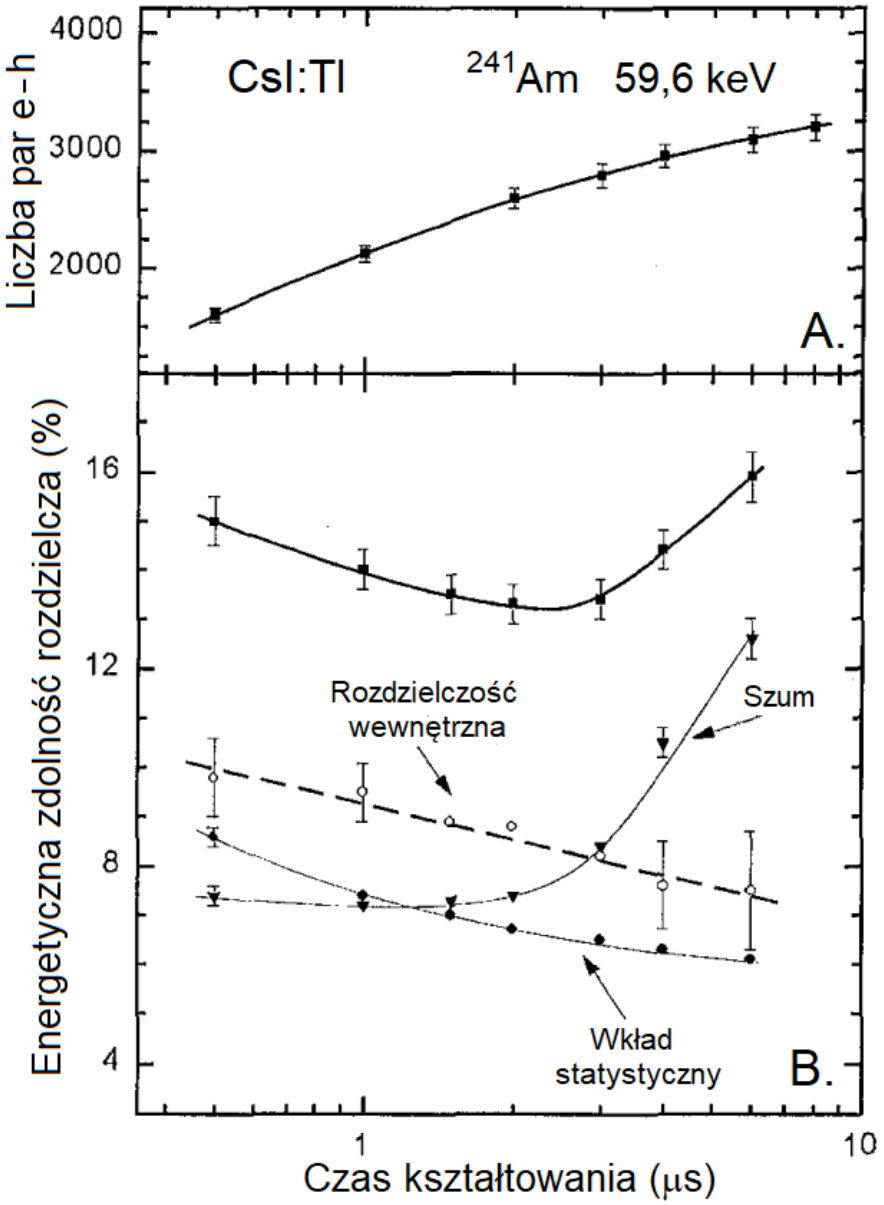
Rysunek 4.2.1. Względna wysokość impulsu świetlnego CsI:Tl z różną domieszką talu [41].

Wykazano również, że wydłużenie czasu kształtowania impulsu świetlnego powoduje ciągły wzrost rejestrowanej ilości światła (patrz rys. 4.2.2A) [19, 68]. Z kolei, najlepszą energetyczną zdolność rozdzielczą odnotowano dla scyntylatorów o domieszce talu na poziomie od 0,05 do 0,1% wagowego (% wag.) [3, 29, 69] oraz przy zastosowaniu najdłuższych (dostępnych z użyciem układów analogowych) czasów kształtowania impulsów scyntylacji [6, 19, 20, 26, 70, 71].

---

[2] % molowy (% mol.) w opisie domieszkowania materiałów scyntylacyjnych rozumiany jest jako stosunek liczby n moli domieszkowanego pierwiastka (tu: Tl) względem liczby moli pierwiastków wchodzących w skład sieci gospodarza (tu: CsI), stąd n_{Tl}/n_{CsI}.

Poprawę wewnętrznej energetycznej zdolności rozdzielczej CsI:Tl z zastosowaniem fotodiody lawinowej (ang. *avalanche photodiode*) przy czasie kształtowania sygnału (ang. *shaping time*) równym 6 μs, co odpowiada czasowi do piku (ang. *peaking time*) równemu 12 μs [19] [3], zaprezentowano na rysunku 4.2.2B.



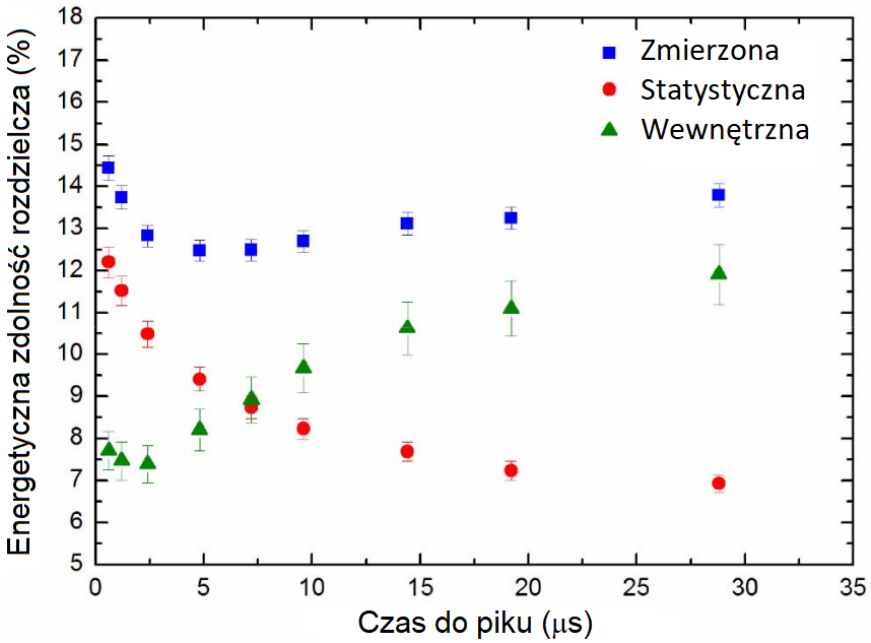
Rysunek 4.2.2. Odpowiedź świetlna (A) oraz energetyczna zdolność rozdzielcza (B) wraz z jej wkładami zmierzone względem długości czasu kształtowania impulsu świetlnego [19].

---

[3] Pojęcie czas kształtowania odnosi się w niniejszej pracy zawsze do angielskiego wyrażenia shaping time, z kolei czas do piku do wyrażenia peaking time. Definicje tych pojęć wytłumaczono w podrozdziale 6.4.

Wspólny wniosek płynący z prac nad różnymi materiałami scyntylacyjnymi, posiadającymi dwie lub więcej komponentów zaniku scyntylacji, jest taki, że najlepszą energetyczną zdolność rozdzielczą i relatywnie najniższy wkład od wewnętrznej energetycznej zdolności rozdzielczej uzyskuje się w sytuacji, gdy układ spektroskopowy umożliwia zebranie całego światła emitowanego przez scyntylator (sumaryczne światło w całym zakresie trwania impulsu) [26].

Z kolei, analiza widm energetycznych niedomieszkowanego CsI w funkcji czasu do piku pokaza, że najlepsza wewnętrzna energetyczna zdolność rozdzielcza jest osiągana dla wartości czasów całkowania poniżej 5 μs i ulega pogorszeniu przy jego wydłużaniu (patrz rysunek 4.2.3) [8].

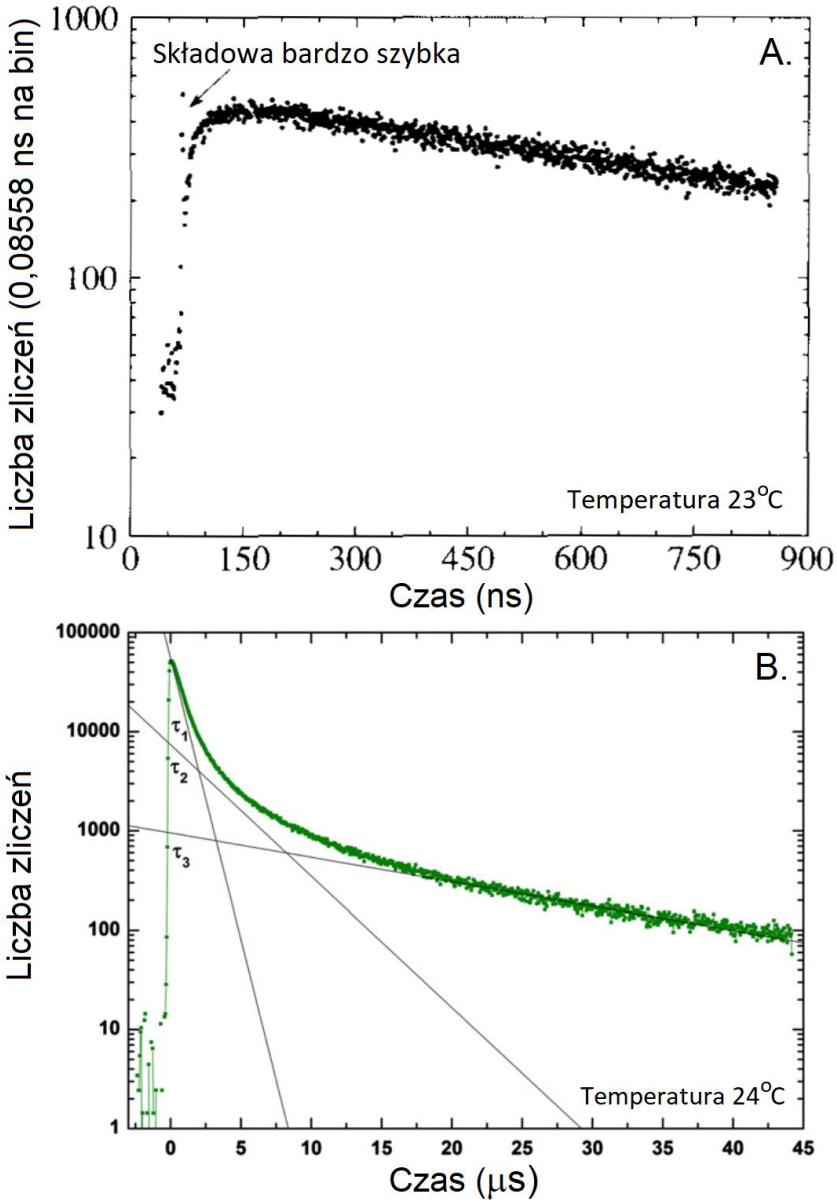


Rysunek 4.2.3. Energetyczna zdolność rozdzielcza wraz z wkładem statystycznym i wewnętrznym zmierzona z zastosowaniem niedomieszkowanego CsI przy energii 662 keV [8].

4.3. Składowe scyntylacji impulsu świetlnego

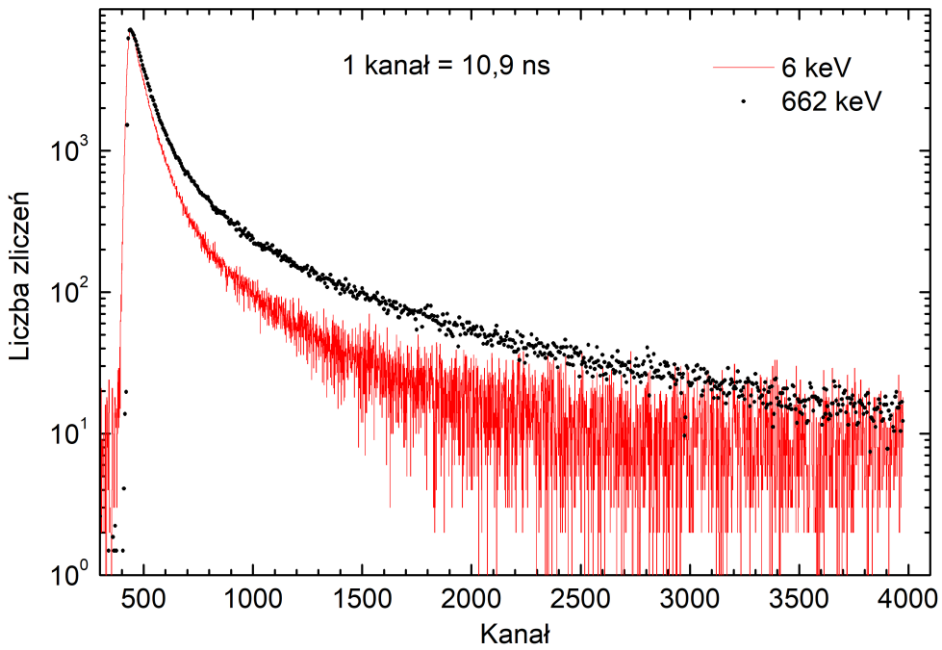
Stany luminescencyjne w Csl:Tl są zapełniane przez procesy wykładnicze, które wywołują długie narastanie sygnału scyntylacji wynoszące około 20 ns. Valentine i inni wyszczególniają dodatkowo bardzo szybką (ang. *ultra-fast*) składową narastania o czasie poniżej 0,5 ns [17]. Późniejszy zanik tych stanów należy do jednych z najwolniejszych, jeśli porównamy jodek cezu z talem do powszechnie stosowanych materiałów scyntylacyjnych. Rysunek 4.3.1 przedstawia uśrednione impulsy świetlne CsI:Tl powstałe po wzbudzeniu kryształu kwantami gamma o energii 662 keV ze źródła ^{137}Cs. W części A zaprezentowano sygnał świetlny zmierzony z zastosowaniem techniki pojedynczego fotonu (ang. *single photon method*), znanej również jako metoda

Bollingera – Thomasa [17, 72]. W części B przedstawiono uśredniony sygnał świetlny zarejestrowany w układzie analogowo – cyfrowym, w którym wykorzystano analogowe bramkowanie sygnałów z obszaru FEP oraz późniejszy odczyt wybranych zdarzeń z użyciem oscyloskopu cyfrowego [71]. Na rysunku wyróżniono trzy charakterystyczne składowe zaniku scyntylacji: składową pierwszą – szybką (ang. *fast component*), składową drugą – wolną (ang. *slow component*) i składową trzecią – najwolniejszą nazywaną „ogonem" (ang. *tail component*).



Rysunek 4.3.1. Impulsy świetlne CsI:Tl zarejestrowane po wzbudzeniu kwantami gamma o energii 662 keV ze wskazaniem bardzo szybkiej składowej narastania sygnału [17] (A) oraz trzech składowych zaniku scyntylacji [71] (B).

Na rysunku 4.3.2 zaprezentowano dwa przykładowe impulsy świetlne CsI:Tl zarejestrowane przy dwóch skrajnych energiach promieniowania X i gamma (6 keV i 662 keV) i znormalizowane w maksimum amplitudy. Analiza przedstawionych sygnałów pokazała, że stosowany czas całkowania sygnałów scyntylacji wynoszący 50 μs, wydaje się być niewystarczający, by w pełni prześledzić odpowiedź świetlną jodku cezu domieszkowanego talem w przypadku energii 662 keV. Wyznaczone w pracy [29] wartości czasów zaniku scyntylacji dla wspomnianych impulsów świetlnych zostały zestawione z innymi wartościami składowych narastania oraz zaniku scyntylacji wyznaczonmi w temperaturze pokojowej – patrz tabela 4.3.1.



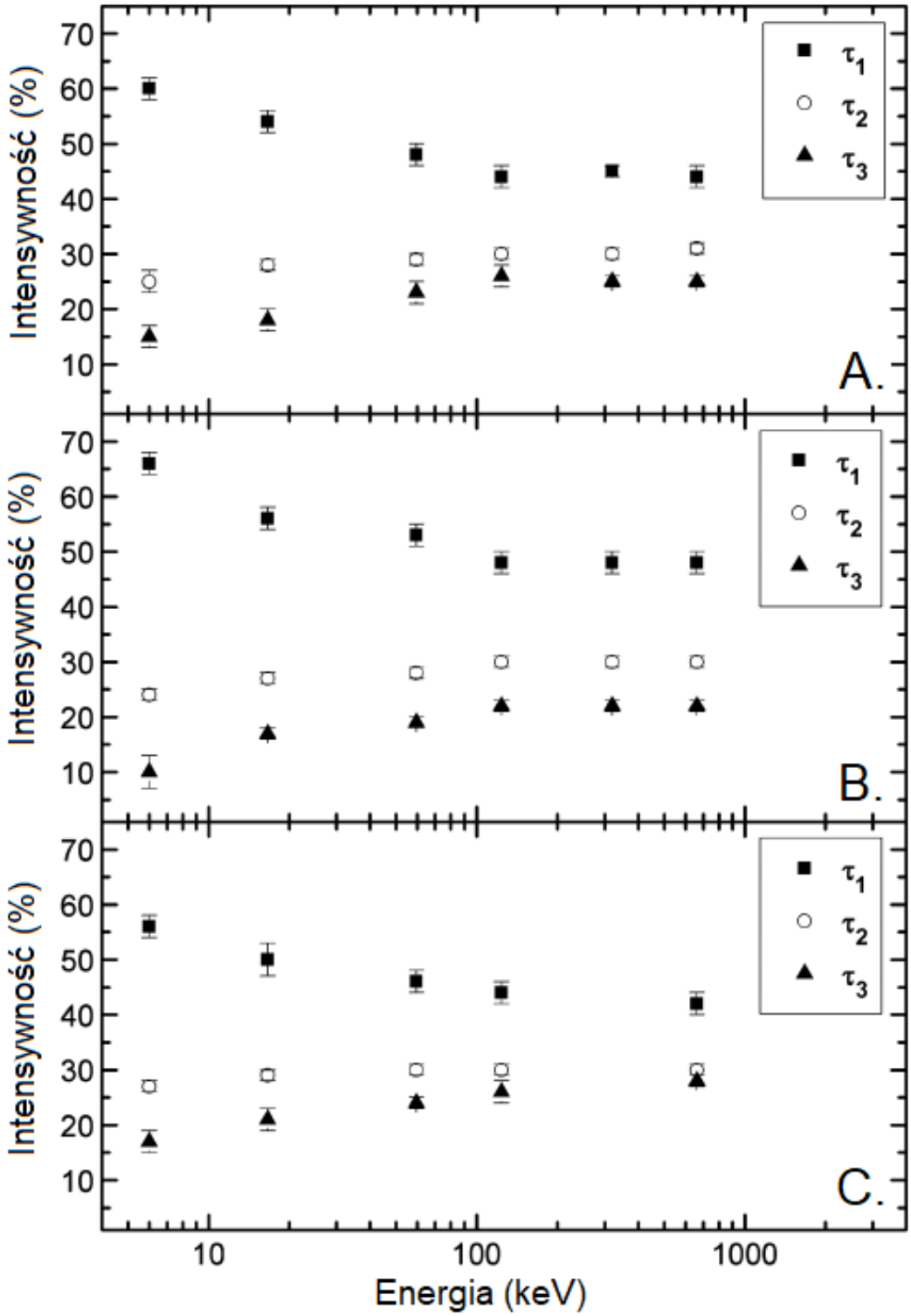
Rysunek 4.3.2. Uśrednione impulsy CsI:Tl zarejestrowane z zastosowaniem techniki Bollingera – Thomasa po wzbudzeniu kryształu kwantami o energii 6 keV i 662 keV. Oba impulsy znormalizowane do jednostkowej wartości liczby zliczeń w maksimum amplitudy [29].

Powołując się na pracę Syntfeld-Każuch i inni [29] emisja światła po wzbudzeniu promieniami gamma o energii 662 keV wykazuje obecność składowych o wartości czasu zaniku i względnej intensywności wynoszącej: τ_1 = 0,73 μs (44%), τ_2 = 3,2 μs (31%) oraz τ_3 = 16 μs (25%). W zaniku scyntylacji wyszczególnia się ponadto poświatę, która może wykluczać użycie CsI:Tl do pomiarów np. z użyciem źródeł promieniowania o wysokiej aktywności [20, 29, 75].

Tabela 4.3.1 Zestawienie wartości składowych narastania i zaniku impulsów świetlnych CsI:Tl zarejestrowanych w temperaturze pokojowej, wraz z odpowiadającymi im wartościami intensywności (o ile zostały podane). Parametry zgodne z odnośnikami literaturowymi (Ref.).

Czas narastania	**Czas 1-ego zaniku (fast)**	**Czas 2-ego zaniku (slow)**	**Czas 3-ego zaniku (tail)**	**Technika i czas całkowania impulsu**	**Ref.**
	900 ns	10 μs		Analogowy oscyloskop 10 μs	[73]
125 ± 10 ns	600±50 ns (54 ± 5%)	3,4 ± 0,5 μs (46 ± 5%)		Bollingera – Thomasa 7,6 μs	[3]
40 ns	800 ns	6,0 μs		Bollingera – Thomasa 10 μs	[68]
19,6 ± 1,9 ns < 0,5 ns (0,2%)	679 ± 10 ns (63,7%)	3,34 ± 0,14 μs (36,1%)		Bollingera – Thomasa (zmodyfikowana) 17 μs	[17, 18]
	730 ± 30 ns (44%) 662 keV 670 ± 20 ns (66%) 6 keV	3,2 ± 0,3 μs (31%) 662 keV 3,1 ± 0,3 μs (24%) 6 keV	16 ± 2 μs (25%) 662 keV 14 ± 3 μs (10%) 6 keV	Bollingera – Thomasa (zmodyfikowana) 50 μs	[29]
	900 ns (48%)	3,5 μs (30%)	18 μs (22%)	Analogowo – cyfrowa 90 μs	[75]

Wykazano również, że intensywność wolnych składowych w całym impulsie świetlnym (wyznaczona zgodnie z zależnością 3.3.2) zmniejsza się dla kwantów gamma o niskich energiach zgodnie z danymi przedstawionymi w tabeli 4.3.1. Dodatkowo na rysunku 4.3.3 pokazano, że tendencja ta jest zachowana dla kryształów CsI:Tl niezależnie od zastosowanego stężenia domieszki talu [29].

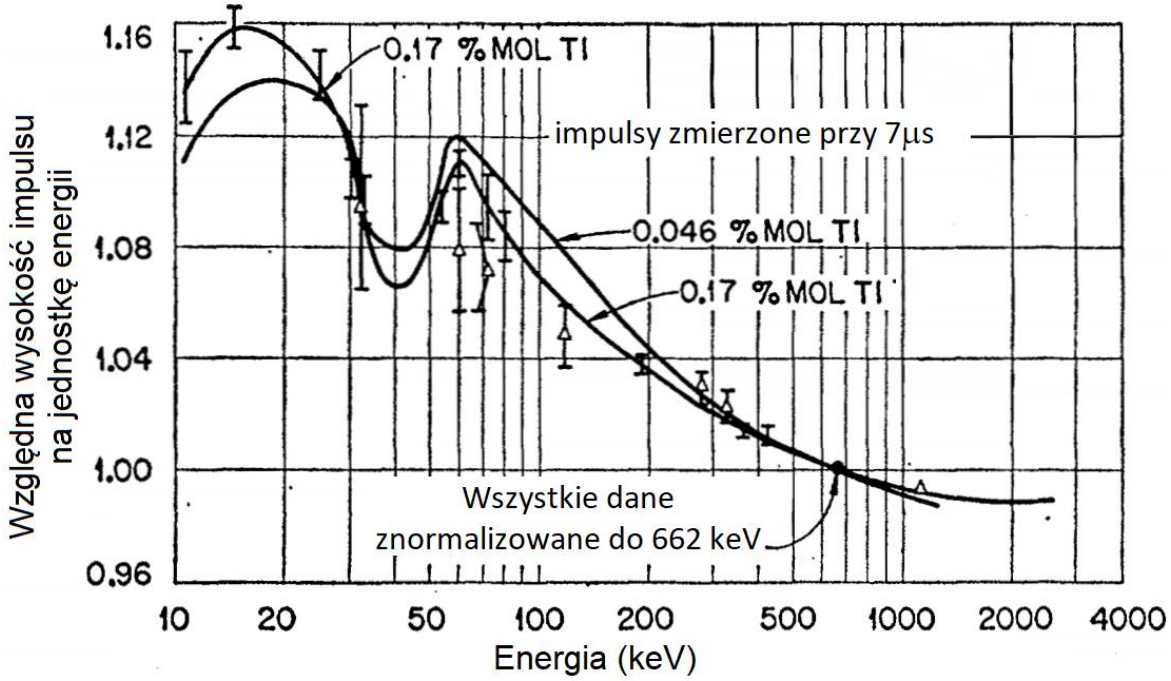


Rysunek 4.3.3. Wartości intensywności składowych zaniku impulsu scyntylacji CsI:Tl o domieszce talu wynoszącej (A) 0,01 % mol. (0,008% wag.), (B) 0,06 % mol. (0,05% wag.) i (C) 0,25 % mol. (0,20 % wag.) w funkcji energii promieniowania gamma [29].

4.4. Nieproporcjonalna odpowiedź CsI:Tl

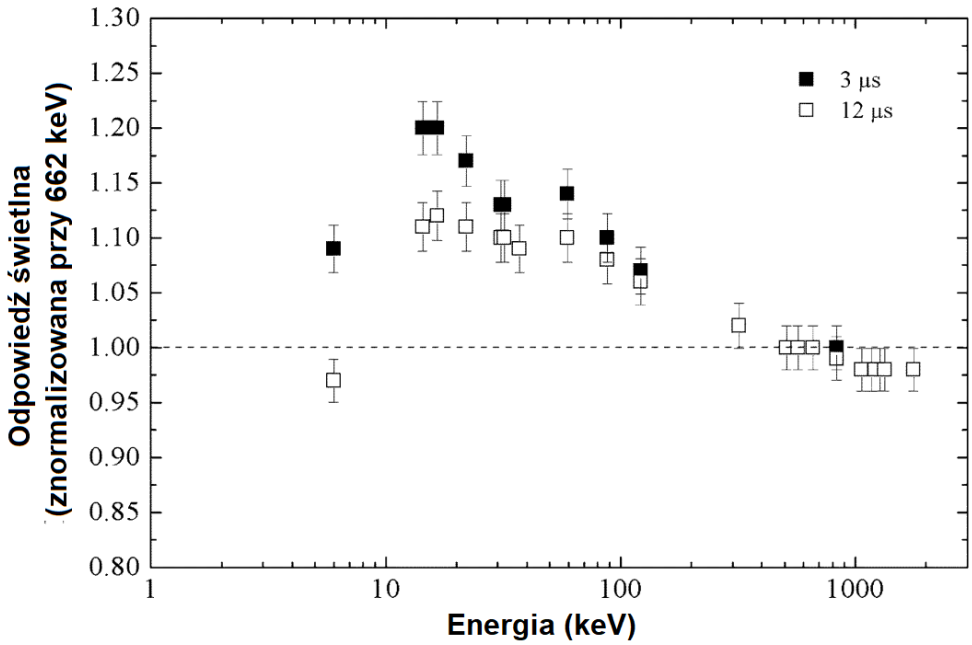
CsI:Tl jest znany jako kryształ emitujący nadmiar światła przy niskich energiach promieniowania X i gamma względem ilości światła przy energiach wyższych w odniesieniu do 1 MeV energii [13, 41, 57, 76]. Badania nieproporcjonalnej odpowiedzi świetlnej CsI:Tl po oddziaływaniu z promieniowaniem gamma były prowadzone już w latach 60-tych i są kontynuowane do dnia dzisiejszego [11-14, 20, 28, 76, 77]. Motywem tych wieloletnich badań jest poznanie przyczyny nieproporcjonalnej odpowiedzi scyntylacji i wyhodowanie kryształów CsI:Tl o niemalże proporcjonalnej zależności ilości światła od energii padającego promieniowania gamma.

Na rysunku 4.4.1 przywołano odpowiedzi świetlne kryształów CsI:Tl ze zmienną ilością domieszki talu, ukazując charakterystyczne dla tego kryształu wygięcie („górka") krzywej nieproporcjonalności powyżej jedności na osi rzędnych [41, 57].



Rysunek 4.4.1. Nieproporcjonalność kryształów CsI:Tl dla różnego stężenia domieszki talu [41].

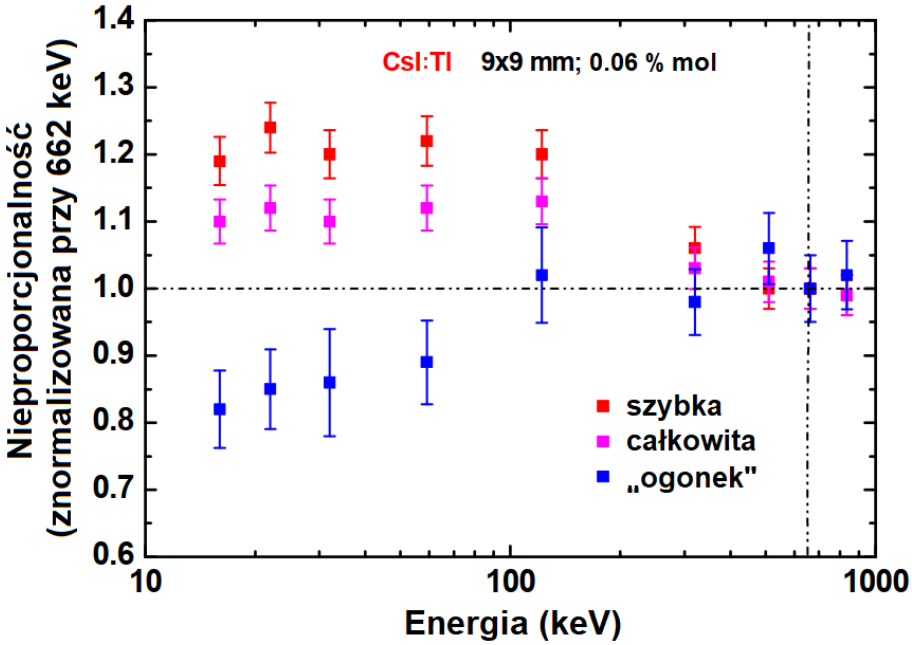
W pracy [20] pokazano, że odpowiedź świetlna kryształu CsI:Tl mierzona z czasem kształtowania impulsu świetlnego wynoszącym 12 μs wykazuje większą proporcjonalność niż z zastosowaniem krótszej podstawy czasu równej 3 μs (patrz rys. 4.4.2). Na poziomie 22 keV zaobserwowano poprawę NP o około 5% przy dłuższej stałej całkowania (zbierania) światła. Taką zależność zaobserwowano dla wszystkich badanych kryształów CsI:Tl, niezależnie od stężenia Tl.



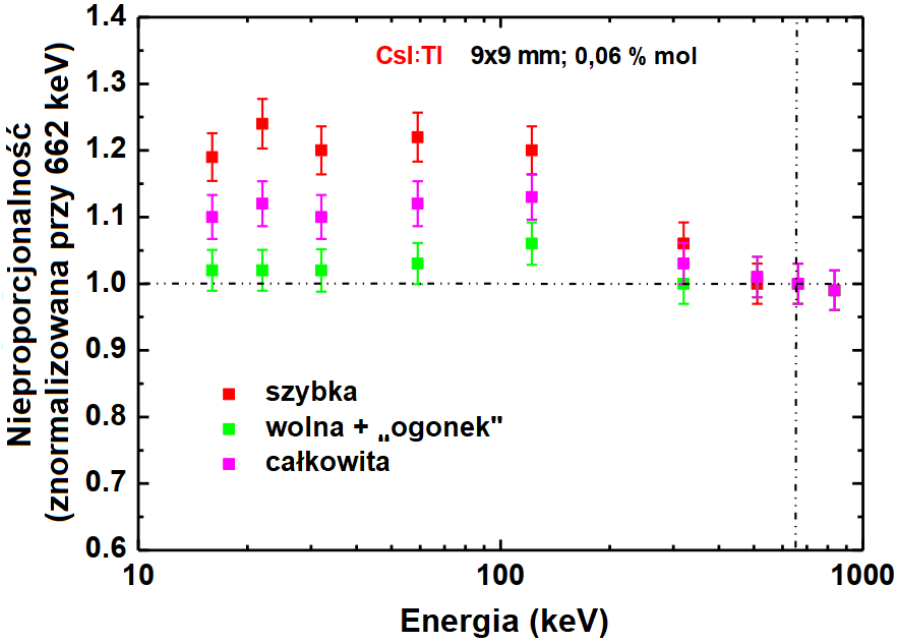
Rysunek. 4.4.2. Nieproporcjonalna odpowiedź CsI:Tl (0,06% mol. = 0,05% wag.) zarejestrowana z zastosowaniem podstawy czasu kształtowania sygnału równej 3 μs i 12 μs [20].

Wykazano ponadto, że krzywa nieproporcjonalności dla CsI:Tl jest wypadkową różnych trzech krzywych NP, otrzymanych oddzielnie dla zdarzeń reprezentowanych przez trzy składowe zaniku impulsu. Na rysunku 4.4.3 przedstawiono składowe NP szybkiego i najdłuższego („ogona") zaniku oraz całkowitą krzywą nieproporcjonalności dla całego impulsu świetlnego. Dla przejrzystości nie pokazano składowej NP dla wolnego zaniku (τ_2), której przebieg jest podobny do charakterystyki szybkiej składowej τ_1. Krzywe nieproporcjonalności w temperaturze pokojowej dla szybkiego i wolnego zaniku cechuje nadmiar światła w niższych energiach (więcej niż 1), natomiast składowa „ogona" wykazuje deficytową charakterystykę nieproporcjonalności (zejście w dół poniżej 1) [28]. Podobne rozdzielenie składowych NP zaobserwowano, gdy temperatura została obniżona do -40°C [78].

Dalsze badania pokazały, że gdy przy wyznaczaniu nieproporcjonalności uwzględni się w analizie sygnałów z PMT jedynie składową wolną i „ogon" impulsu świetlnego to sumaryczna odpowiedź świetlna tych dwóch składowych może prowadzić do prawie proporcjonalnej odpowiedzi świetlnej CsI:Tl w funkcji promieniowania gamma o różnych energiach (patrz rysunek 4.4.4) [75].



Rysunek 4.4.3. Całkowita nieproporcjonalność CsI:Tl wyznaczona dla impulsów świetlnych zarejestrowanych w zakresie do 90 μs oraz nieproporcjonalność składowej szybkiej i „ogona" [28].



Rysunek 4.4.4. Nieproporcjonalność składowych zaniku scyntylacji impulsu świetlnego kryształu CsI:Tl z uwzględnieniem sumy światła od składowej wolnej i „ogona" [75].

Powyższe wyniki otrzymane z użyciem aparatury analogowo – cyfrowej zasugerowały konieczność przeprowadzenia analizy impulsów scyntylacji z użyciem dłuższych podstaw czasu całkowania (powyżej 100 μs). Cyfrowa analiza impulsów pozwala badać wpływ wolnych składowych scyntylacji na NP i inne parametry spektrometryczne CsI:Tl [6, 19, 28, 74, 79].

5. Fotopowielacz, jako przykład detektora światła

Fotopowielacze klasyczne są jednymi z najczęściej stosowanych fotodetektorów światła w fizyce jądrowej i fizyce wysokich energii. Niewątpliwie ich zaletą jest duży stosunek wzmocnienia ładunkowego rzędu 10^6, duża powierzchnia światłoczuła, czy też szybka odpowiedź czasowa. Wśród wad tych urządzeń najczęściej wymieniane są wysokie napięcie zasilania, czułość na pole magnetyczne i większe rozmiary geometryczne w porównaniu do detektorów półprzewodnikowych.

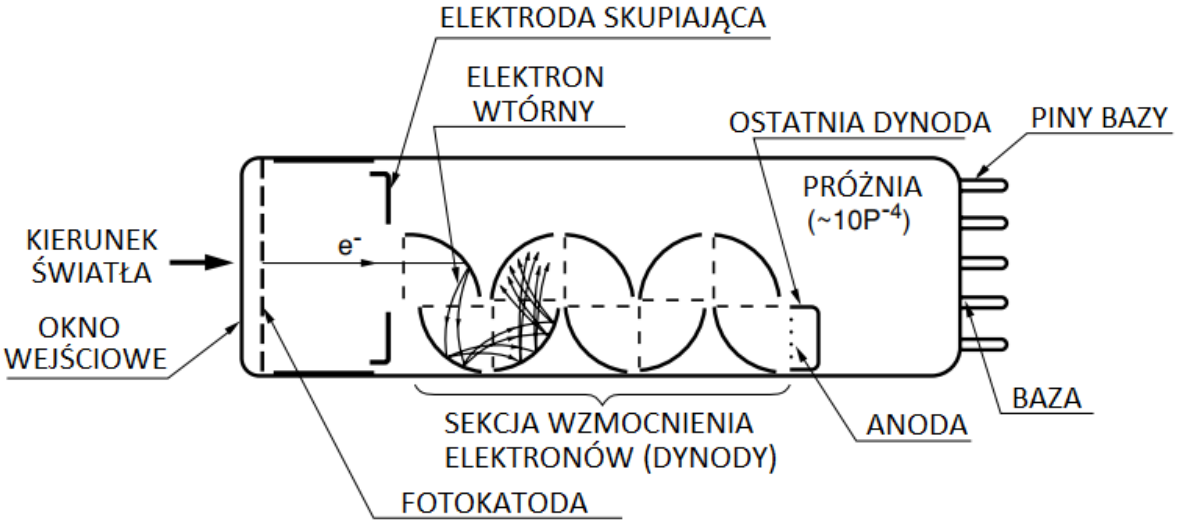
W poniższym podrozdziale zwięźle zarysowano historię powstawania fotopowielaczy. Krótko omówiono budowę i mechanizm działania PMT oraz wyjaśniono podstawowe terminy, takie jak wydajność kwantowa, ciemne zliczenia, czy pojedynczy fotoelektron, które zostały wykorzystane w analizie danych eksperymentalnych przedstawianych na dalszym etapie niniejszej rozprawy.

Szczegółowy opis wszystkich własności fotopowielaczy i ich rodzajów jest niewątpliwie szerszy niż ten przytoczony poniżej. Czytelnika zainteresowanego dokładniejszym zgłębieniem wiedzy w tym obszarze można odesłać do dalszej literatury [5, 79- 81].

5.1. Zarys historyczny i podstawy działania fotopowielaczy

Fotopowielacze są niezwykle czułymi urządzeniami umożliwiającymi rejestrację światła o bardzo niskim natężeniu oraz konwersję tego światła na mierzalny impuls elektryczny. Pozwalają one na interpretację sygnałów świetlnych o długościach fal w przedziale od 10^2 nm do 10^6 nm (od skrajnego ultrafioletu do dalekiej podczerwieni). Odznaczają się dużą powierzchnią detekcji, wysokimi wzmocnieniami sygnału czy możliwością rejestracji pojedynczych fotonów [2]. Pierwsze odkrycia, które dały fundamenty pod konstrukcję fotopowielaczy datuje się na lata 1887 – 1905. Jest to czas, w którym m.in. Henrich Hertz, Aleksandr Stoletow, Joseph Thomson, Philipp Lenard, Robert Millikan oraz Albert Einstein zgłębiali zagadnienia związane ze zrozumieniem, czym jest znany nam w dniu dzisiejszym elektron, czy efekt fotoelektryczny. Równolegle w roku 1902 Austin i Starke skonstruowali pierwsze sekcje wzmacniające sygnał elektronowy (tzw. dynody). W latach 1913 - 1930 Julius Elster, Hans Geitel, Lewis Koller, Norman Campbell rozpoczęli poszukiwania nowych materiałów mogących posłużyć jako fotokatody, poprawiając zakres czułości tych materiałów (zastosowanie katod opartych o pierwiastki alkaliczne np. Ag-O-Cs). Prace prowadzone w latach 40-tych XX-go wieku przez Iamsa, Zworykina, czy Rajchmana przyczyniły się do powstania fotopowielaczy koncepcyjnie stosowanych do dnia dzisiejszego [80, 81].

Ogólny schemat konstrukcji fotopowielacza prezentuje rysunek 5.1.1. Urządzenia te są próżniowymi rurami/walcami wyposażonymi w okno wejściowe, fotokatodę, elektrody skupiające, sekcję wzmocnienia elektronów i anodę zazwyczaj zatopioną w szkle obudowy.



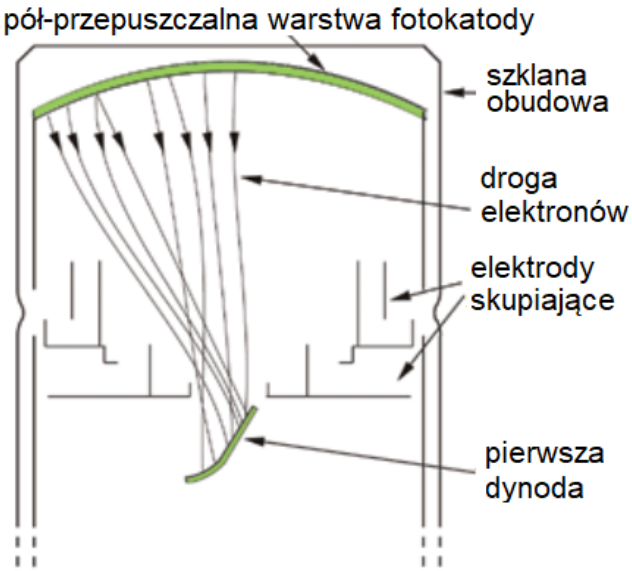
Rysunek 5.1.1. Schemat konstrukcji fotopowielacza [82].

Zasada działania fotopowielaczy polega na tym, że światło docierające do urządzenia przechodzi przez okno wejściowe, po czym trafia na fotokatodę. Na skutek efektu fotoelektrycznego z materiału fotokatody wybijane są elektrony, nazywane również fotoelektronami, które trafiają w próżnię utrzymującą się wewnątrz detektora. W następnym kroku elektrony są elektrostatycznie przyspieszane i skupiane na pierwszej elektrodzie nazywanej dynodą. W tym miejscu rozpoczyna się wzmocnienie wiązki elektronów. Elektrony przemieszczając się zgodnie z potencjałem trafiają na kolejne dynody, wybijając z ich powierzchni coraz więcej elektronów i powodując kaskadową emisję elektronów wtórnych. Tak zwielokrotniony sygnał dociera do ostatniej elektrody nazywanej anodą tworząc wyjściowy, mierzalny sygnał z detektora [2, 82, 80, 83].

Okno wejściowe fotopowielacza jest pierwszym elementem układu mającym wpływ na ostateczny impuls na wyjściu z detektora. Materiał okna rzutuje przede wszystkim na to, jaki zakres światła zostanie wprowadzony do wnętrza „rury" (transmisja zaczyna się na poziomie od 115 nm do 300 nm). Prowadząc pomiary należy być więc szczególnie uważnym jeśli spodziewamy się na przykład światła z zakresu ultrafioletu lub jeśli chcemy użyć fotopowielacza w roli licznika scyntylacyjnego, gdzie istotne jest by okno było wolne od naturalnie występujących zanieczyszczeń radioaktywnych.

Materiał fotokatody jest kolejnym kluczowym elementem, od którego zależy spektralna czułość detektora. Wykonywany jest on często z zastosowaniem półprzewodników, by maksymalnie możliwie obniżyć pracę wyjścia fotoelektronu z powierzchni materiału [83]. Najlepszym wyborem jest fotopowielacz charakteryzujący się maksymalną odpowiedzią w zakresie interesujących nas długości fal. Istnieją również inne kryteria wyboru, np. pomiary z wysoką intensywnością wiązki, czy wielkość generowanego prądu ciemnego.

W dalszym etapie pod rozwagę bierze się obszar skupiania wiązki fotoelektronów. Fotoelektrony wychodzące z fotokatody są sekwencyjnie przyspieszane na skutek przyłożonego do elektrod napięcia i kierowane na pierwszą dynodę z użyciem elektrod skupiających [80]. Rysunek 5.1.2 poglądowo przedstawia tory przemieszczania się fotoelektronów w obszarze skupiania wiązki. Sposób przemieszczania się powstających fotoelektronów rzutuje na odpowiedz czasową fotopowielacza.

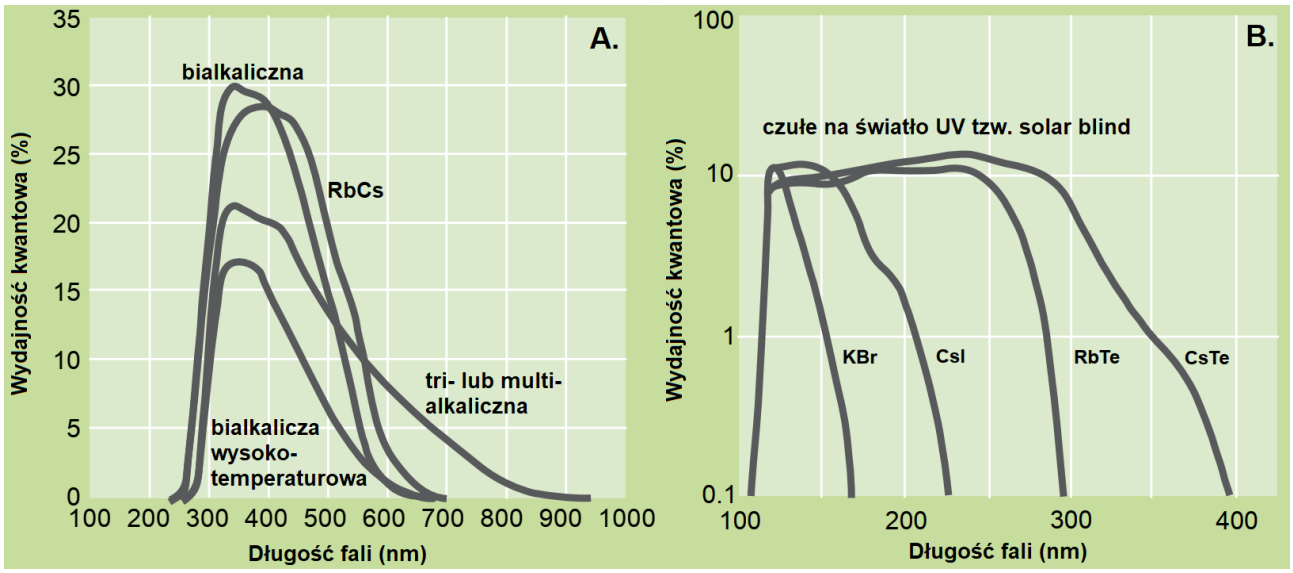


Rysunek 5.1.2. Schemat obszaru skupiania wiązki fotoelektronów [80].

Następnie elektrony kierowane są na kolejne dynody. Materiał elektrod oraz ich konfiguracja odpowiadają za poziom wzmocnienia sygnału i jego stabilność [80]. Na końcu usytuowana jest anoda, na której gromadzi się prąd, będący wypadkową pomiędzy doborem odpowiedniego okna wejściowego, fotokatody, typu sekcji wzmacniającej, czy liczby sekwencji wzmacniających. Geometria anody musi zapewniać optymalne zbieranie elektronów wtórnych, minimalizować efekt nagromadzania się ładunku w tej przestrzeni w celu zapewnienia liniowości fotopowielacza, jak również musi zapewnić impedancję zgodną z impedancją wyjścia z fotopowielacza.

5.2. Wydajność kwantowa i odpowiedź spektralna

Wydajność kwantową fotopowielacza (ang. *quantum efficiency*) w przypadku pomiarów zdarzeń scyntylacyjnych wyraża się, jako stosunek liczby fotoelektronów wyemitowanych przez fotokatodę do liczby fotoelektronów, które do niej dotarły. Maksymalna wydajność kwantowa klasycznych fotopowielaczy przekracza obecnie 40%. Wydajność kwantowa dowolnej fotokatody jest funkcją długości fali/energii padającego światła, jak przedstawiono to na rysunku 5.2.1. Oszacowanie efektywnego widma emisyjnego badanego materiału scyntylacyjnego wymaga jego uśrednienia z wydajnością kwantową stosowanego fotopowielacza.



Rysunek 5.2.1. Wydajność kwantowa wybranych materiałów fotokatodowych [80].

5.3. Szumy, prąd ciemny i ciemne zliczenia

Rejestrując impulsy wyjściowe z fotopowielacza w czasie rzeczywistym z użyciem oscyloskopu możemy zauważyć, że charakterystyczną dla nich cechą jest obecność pewnych stałych wahań względem linii bazowej. W ogólności wahania te można podzielić na dwa typy: wahania obecne bez wprowadzenia sygnału do analizatora, np. zależne od ustawionego pasma przenoszenia urządzenia oraz obecne po przesłaniu impulsu świetlnego. Obserwowane fluktuacje są więc wypadkową szeregu nakładających się na siebie czynników.

Natura szumów jest wielorakiego pochodzenia. Wartość każdego mierzalnego zjawiska fizycznego ze względu na statystykę, obarczona jest pewnym błędem oznaczenia. Dochodzi do tego szum wzmocnienia wynikający z różnej ilości powstających w sekcji wzmocnienia fotoelektronów, czy szum fotokatodowy wynikający z prawdopodobieństwa powstawania fotoelektronów na skutek efektu fotoelektrycznego.

Odpowiedź z fotopowielacza jest rejestrowana nawet, kiedy detektor nie jest wystawiony na działanie żadnego źródła światła. Mierzalna wówczas odpowiedź nazywana jest prądem ciemnym (ang. *dark current*) w przypadku pomiarów stałoprądowych lub ciemnymi zliczeniami (ang. *dark counts*) dla pomiarów impulsowych – wartość ta nazywana jest tłem (ang. *background*). Ciemne zliczenia utożsamia się również z konstrukcją fotopowielacza oraz efektem powstawania i podróży fotoelektronów w detektorze. Jest to jednak najmniejszy wkład na poziomie nie wyższym niż ekwiwalent 0,5 fotoelektronu. Nieco wyższy wkład (na poziomie do ekwiwalentu 2 fotoelektronów) wprowadza spontaniczna emisja fotoelektronów z fotokatody spowodowana ruchami termicznymi, czy naturalnymi źródłami promieniowania. Wysoki wkład do tła (na poziomie do ekwiwalentu 15 fotoelektronów) wprowadza naturalna radioaktywność okna wejściowego (obecność ^{40}K, ^{238}U, ^{232}Th) oraz możliwość jonizacji cząsteczek gazu resztkowego w rurze detektora, co będzie przejawiało się dodatkowym impulsem występującym tuż za impulsem pierwotnym (ang. *afterpulse*). Najwyższy wkład (na poziomie przekraczającym ekwiwalentu 15 fotoelektronów) pochodzi od promieniowania kosmicznego (głównie mionów i elektronów) przechodzących przez okno fotopowielacza i mogących powodować dodatkowy wkład światła w oknie wejściowym na skutek efektu Czerenkowa (80).

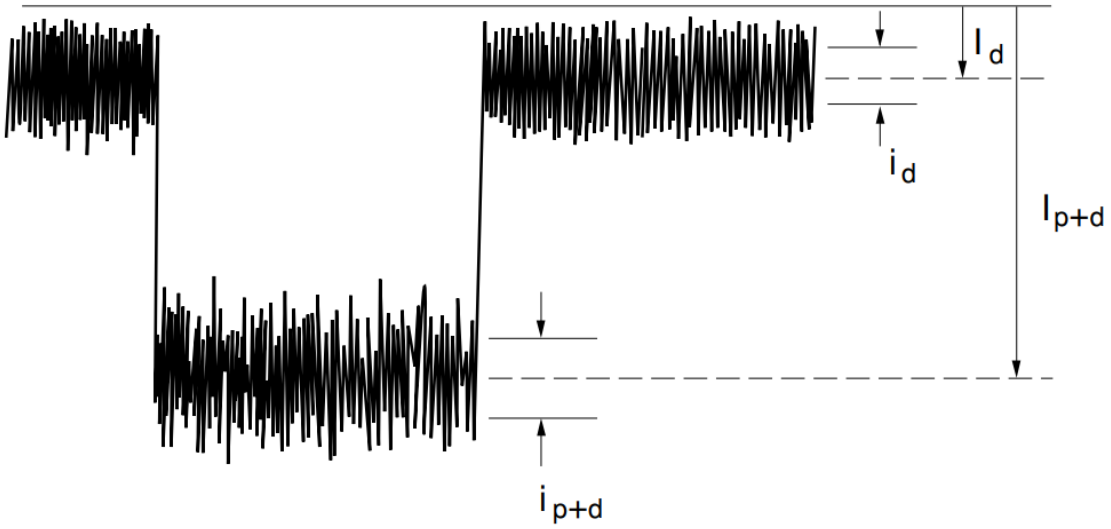
Stosunek sygnału, który chcemy zarejestrować do szumu (ang. *signal to noise ratio*, SN), można wyrazić poprzez analizę przebiegów tych procesów, co zostało zobrazowane na rysunku 5.3.1, gdzie zaznaczone wartości oznaczają odpowiednio:

I_d – średnia wartość składowej szumowej

i_d (r.m.s.) – składowa AC szumu, wyznaczona jako średnia kwadratowa tzw. r.m.s. (ang. *root mean square*)

I_{p+d} – średnia wartość sygnału (z wkładem szumowym)

i_{p+d} (r.m.s.) – składowa AC sygnału (z wkładem szumowym).



Rysunek 5.3.1. Prezentacja parametru r.m.s. definiującego stosunek impulsu do szumu [82].

Stosując te współczynniki, stosunek SN jest określany jako [82]:

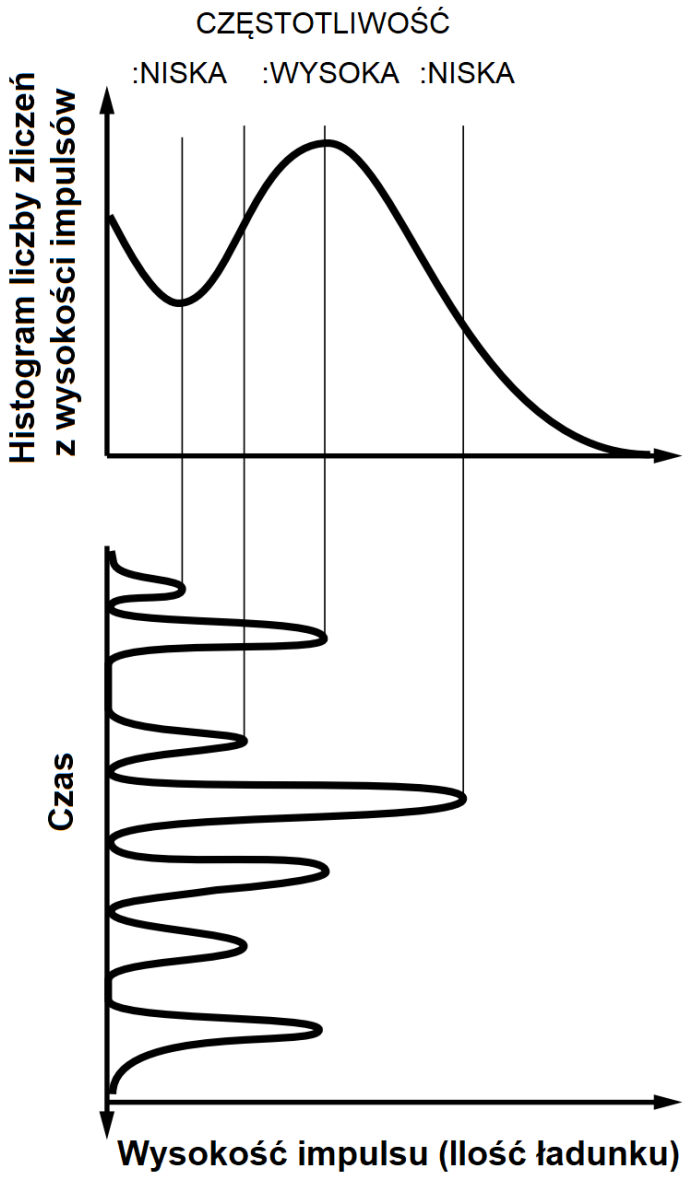
$$SN = \frac{I_p}{i_{p+d}} \qquad (5.3.1)$$

5.4. Widmo pojedynczego fotoelektronu

Kiedy natężenie padającego na fotopowielacz światła staje się bardzo niskie i osiąga stan, w którym nie więcej niż dwa fotoelektrony są emitowane z dostateczną rozdzielczością czasową fotopowielacza (impulsy są rozróżnialne), ten poziom światła nazywa się obszarem pojedynczego fotoelektronu (ang. *single photo-electron*, SPHE). Wydajność kwantowa określa wówczas prawdopodobieństwo emisji fotoelektronów odpowiadające pojedynczemu uderzeniu fotonu w fotokatodę [82]. W obszarze pojedynczego fotoelektronu liczba emitowanych elektronów na foton wynosi jeden lub zero, a wydajność kwantową można postrzegać, jako stosunek liczby fotoelektronów emitowanych z fotokatody do liczby fotonów padających w jednostce czasu.

Liczba elektronów wtórnych uwolnionych z pierwszej dynody nie jest stała. Jest to kilka elektronów wtórnych na elektron pierwotny, gdzie ich krotność opisana jest z dobrym przybliżeniem rozkładem Poissona. Jeżeli fotopowielacz ma N stopni dynod, fotoelektrony emitowane z fotokatody są mnożone kaskadowo do δ_N razy i wyprowadzane jako odpowiednia wiązka elektronów z anody. Charakter powyższych procesów powoduje, że impulsy wyjściowe z anody fotopowielacza podlegają rozkładowi statystycznemu.

Sytuację tą obrazuje rysunek 5.4.1, na którym część górna prezentuje rozkład wysokości impulsów w obszarze pojedynczego fotoelektronu (ang. *single-electron spectrum*), a dolna – emisję impulsów w obszarze pojedynczego fotoelektronu w czasie. Pomiar widm pojedynczego fotoelektronu ma zasadnicze znaczenie dla pomiaru liczby fotoelektronów generowanych przez materiał scyntylacyjny [1].



Rysunek 5.4.1. Rozkład wysokości impulsu fotopowielacza w obszarze pojedynczego fotoelektronu. Część górna – rozkład wysokości impulsu, część dolna – rozkład impulsów w czasie [82].

6. Metodyka badań

W niniejszym rozdziale opisano główne elementy wchodzące w skład trzech układów eksperymentalnych zestawionych na potrzeby przeprowadzonych pomiarów. Rozdział rozpoczyna się od wyszczególnienia badanych kryształów jodków cezu o zmiennej domieszce talu. Następnie przedstawiono charakterystykę stosowanego fotodetektora, którym był klasyczny fotopowielacz oraz przywołano wykaz źródeł promieniotwórczych użytych do wzbudzania procesów scyntylacji w badanych materiałach. W dalszej części opisano trzy techniki eksperymentalne służące do rejestracji odpowiedzi świetlnej CsI:Tl zgodnie z chronologią ich wprowadzania. Badania rozpoczęto od dobrze znanego układ analogowego zaproponowanego przez Bertolacciniego w 1968 roku [84], który wielokrotnie był stosowanym w późniejszych pracach Moszyński i inni np. [54, 60, 85]. W kolejnym etapie opisano układ analogowo–cyfrowy, gdzie rejestracja uśrednionych impulsów świetlnych odbywała się z zastosowaniem oscyloskopu, a wybór zdarzeń, odpowiadających pikowi pełnej energii, z użyciem modułów NIM. Na końcu zaproponowano układ w pełni cyfrowy, gdzie wysokiej klasy oscyloskop został zastosowany do rejestracji pojedynczych impulsów świetlnych, które w dalszym etapie były poddawane analizie off-line.

6.1. Wykaz materiałów scyntylacyjnych stosowanych w pracy

Testowanymi materiałami były kryształy CsI:Tl o wymiarach 12 x 12 x 5 mm^3 wyhodowane w laboratorium ISMA z zastosowaniem techniki ciągłego wzrostu (ang. *continuous growth technique*) [86]. Badane kryształy zawierały domieszkę talu wynoszącą od 0,0012% wag. do 0,13% wag.. Przebadano również jeden kryształ firmy Bicron o wymiarach ϕ9x9 mm^3 i domieszce talu wynoszącej 0,05% wag.. Wykaz tych kryształów przedstawia tabela 6.1.1.

Każdy ze scyntylatorów, przed pomiarem, był owijany kilkoma warstwami taśmy teflonowej o grubości 0,2 mm pełniącej funkcję warstwy refrakcyjnej (patrz rysunek 6.1.1). Następnie na powierzchnię styku z fotopowielaczem nakładano klej optyczny (lepkość = 1M mm^2/s, współczynnik odbicia = 1,4). Dopiero tak przygotowane kryształy były umiejscawiane w centralnej części okna fotopowielacza, a następnie osłaniane przed dostępem światła zewnętrznego.

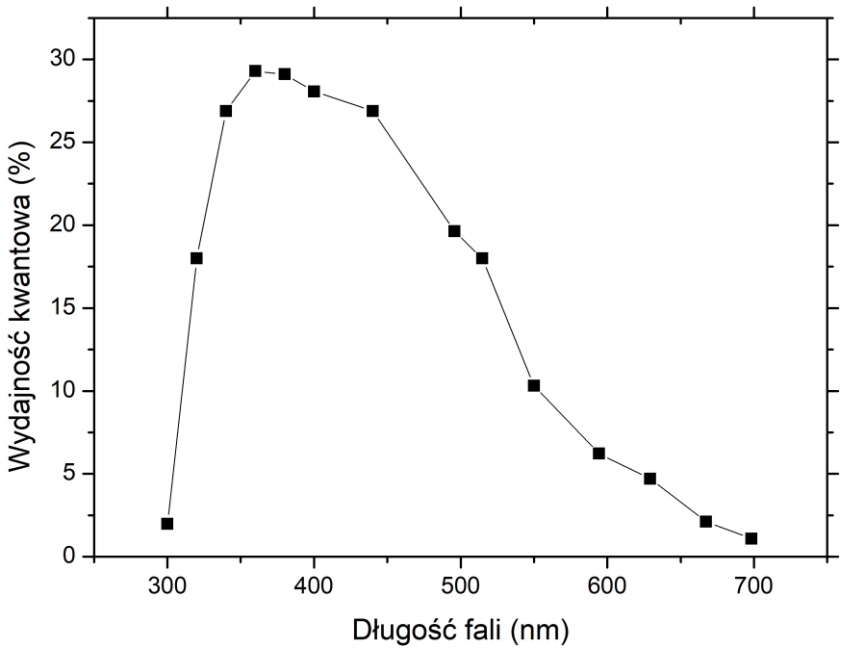
Tabela 6.1.1. Wykaz materiałów scyntylacyjnych stosowanych w pracy.

Nr	Rozmiar (mm^3)	Domieszka Tl (% molowy)	Domieszka Tl (% wagowy)	Producent
1	12 x 12 x 5	0,0012	0,0015	ISMA
2	12 x 12 x 5	0,0090	0,011	
3	12 x 12 x 5	0,010	0,013	
4	12 x 12 x 5	0,011	0,013	
5	12 x 12 x 5	0,012	0,015	
6	12 x 12 x 5	0,014	0,018	
7	12 x 12 x 5	0,019	0,024	
8	12 x 12 x 5	0,039	0,050	
9	12 x 12 x 5	0,040	0,051	
10	12 x 12 x 5	0,046	0,059	
11	12 x 12 x 5	0,051	0,065	
12	12 x 12 x 5	0,051	0,065	
13	12 x 12 x 5	0,067	0,085	
14	12 x 12 x 5	0,083	0,11	
15	12 x 12 x 5	0,13	0,16	
16	ϕ9 x 9	0,06	0,05	Bicron

Rysunku 6.1.1. Kryształ CsI:Tl z nałożoną warstwą teflonu oraz z naniesionym klejem optycznym.

6.2. Specyfikacja fotopowielacza XP5212/B

Światło emitowane przez scyntylatory było rejestrowane z zastosowaniem dwucalowego (51 mm) fotopowielacza firmy Photonis, model XP5212/B [87]. Fotopowielacz ten wyposażony jest w bialkaliczną (SbKCs) fotokatodę o średnicy 48 mm oraz liniowy układ konfiguracji dynod w strukturze wzmocnienia elektronowego, zapewniający bardzo dobrą liniowość mierzonych wysokości impulsów świetlnych. Ponadto zastosowana fotokatoda posiada poszerzoną czułość w zakresie światła niebieskiego [87, 83]. Na rysunku 6.2.1 przedstawiono wydajność kwantową stosowanego fotopowielacza na poziomie 10% w obszarze 550 nm (maksimum emisji CsI:Tl). Fotopowielacz ten został poprawnie wybrany do prowadzonych badań, odznaczając się jednocześnie dużo większym wzmocnieniem sygnału niż, dopasowane lepiej z wydajnością kwantową do widma emisyjnego CsI:Tl, diody PIN (patrz również rys. 2.4.1).



Rysunek 6.2.1. Wydajność kwantowa fotopowielacza stosowanego w niniejszych badaniach (Photonis model XP5212/B, numer seryjny 231888).

6.3. Wykaz źródeł promieniowania X i gamma użytych w pracy

W przeprowadzonych pomiarach stosowano źródła zamknięte zawierające izotopy znajdujące się blisko ścieżki stabilności na mapie nuklidów i emitujących promieniowanie X i gamma w zakresie od 17 keV do 835 keV. W tabeli 6.3.1 wyszczególniono główne linie emisji powstające podczas rozpadu tych izotopów.

Tabela 6.3.1. Wykaz głównych linii promieniowania rentgenowskiego i gamma stosowanych źródeł promieniotwórczych [59]. Zieloną czcionką zaznaczono energie użyte w rozprawie.

Izotop	Połowiczny czas zaniku	Typ rozpadu	Energia (keV)	Intensywność (%)
$^{54}_{25}Mn$	312,2 dnia	wychwyt elektronu	**834,848**	**99,9760**
			5,947	1,64
			5,415	14,6
			5,405	7,4
$^{137}_{55}Cs$	30,08 lat	beta –	**661,657**	**85,10**
			32,194	**3,64**
			31,817	1,99
$^{22}_{11}Na$	2,6018 lat	beta +	1274,537	99,94
			511,0	**179,91**
$^{133}_{56}Ba$	10,551 lat	wychwyt elektronu	383,8485	8,94
			356,0129	**62,05**
			302,8508	18,34
			276,3989	7,16
			80,9979	32,9
			79,6142	2,65
			53,1622	2,14
			35,818	3,51
			34,987	11,4
			34,92	5,88
			30,973	62,2
			30,625	33,9
			4,29	15,7

$^{57}_{27}Co$	271,74 dnia	wychwyt elektronu	136,47356	10,68
			122,06065	**85,60**
			14,4129	9,16
			7,058	2,00
			7,058	3,91
			6,404	32,9
			6,391	16,6
$^{241}_{95}Am$	432.6 lat	alfa	**59,5409**	**35,9**
			26,3446	2,27
			13,9	37
$^{109}_{48}Cd$	461,9 dnia	wychwyt elektronu	88,0336	3,644
			25,455	2,31
			24,943	9,3
			24,912	4,80
			22,163	**56,1**
			21,99	29,8
			2,98	10,4
$^{93}_{42}Mo$	4000 lat	wychwyt elektronu	18,623	6,2
			18,607	3,2
			16,615	**41**
			16,521	21
			2,17	6,1

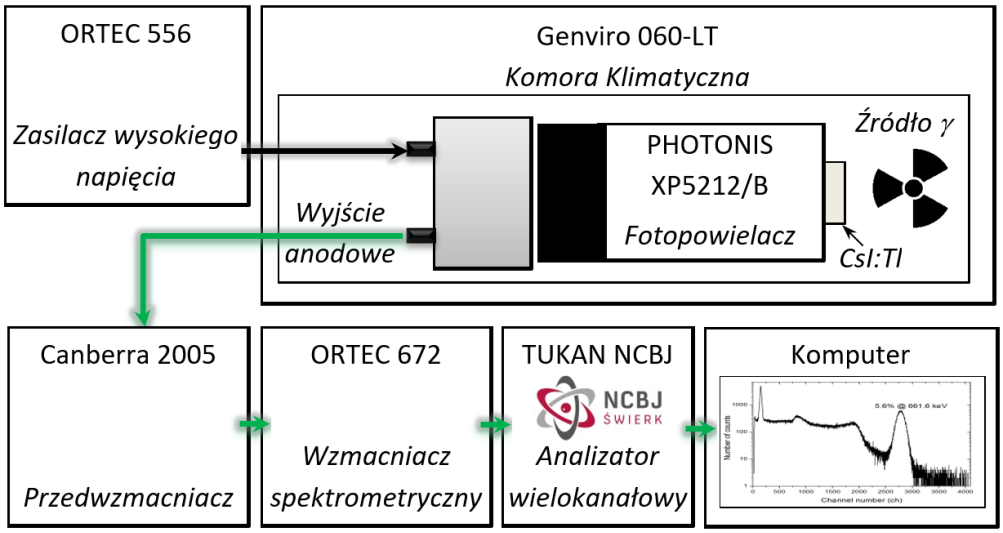
6.4. Wykaz technik pomiarowych stosowanych w pracy

Trzy układy pomiarowe użyto w celu zbadania właściwości badanych materiałów scyntylacyjnych. W każdym przypadku bazą eksperymentu był scyntylator sprzężony z fotopowielaczem (patrz rysunek 6.4.1). Układ ten był umiejscawiany w komorze klimatycznej, Genviro model 060-LT, operującej w wybranym zakresie temperatur od 30°C do -70°C. Wymienione w tabeli 6.3.1 źródła promieniotwórcze wprowadzane były do komory od góry przez specjalnie zaprojektowany do tego celu przepust zaznaczony na zdjęciu żółtą strzałką.

Rysunek 6.4.1. Fotopowielacz z nałożonym materiałem scyntylacyjnym umiejscowiony w komorze klimatycznej.

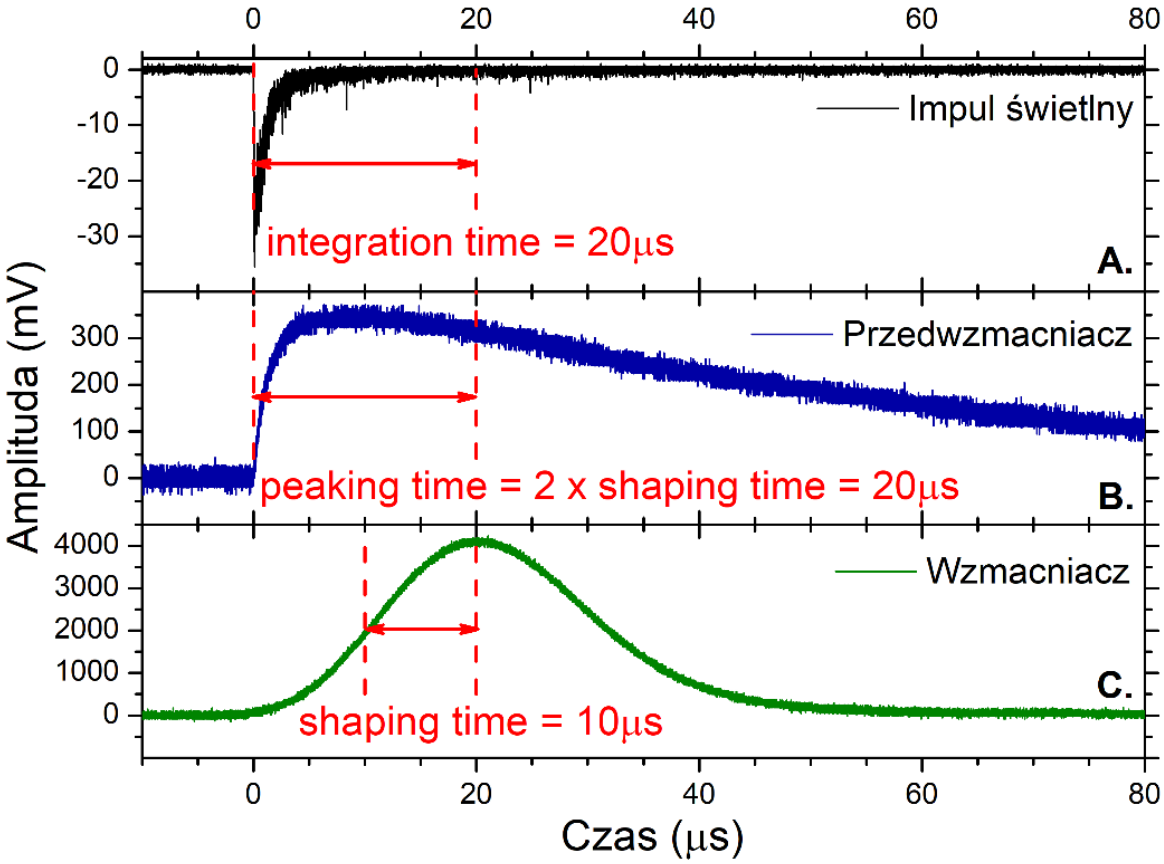
Układ analogowy

Pierwsza użyta metoda pomiarowa bazowała na analogowym zestawie spektrometrycznym, wykorzystującym moduły w standardzie NIM (ang. *Nuclear Instrumentation Module*) oraz analizator wielokanałowy TUKAN 8k. Schemat układu przedstawiono na rysunku 6.4.2.

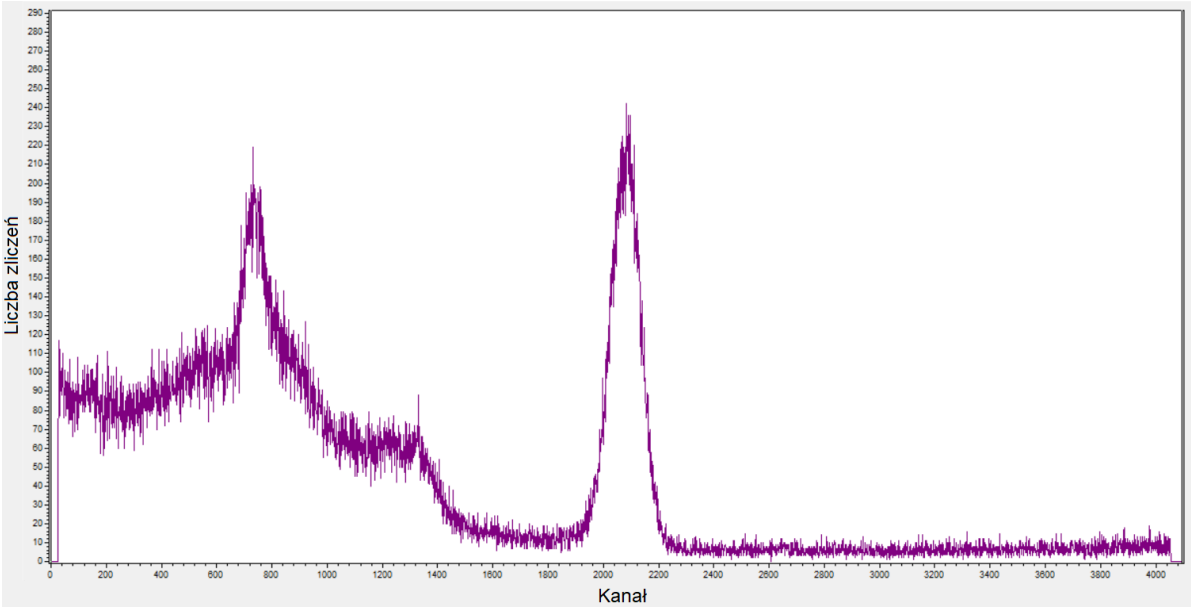


Rysunek 6.4.2. Schemat analogowego układu pomiarowego [74].

Sygnały anodowe z fotopowielacza (patrz rysunek 6.4.3A) były początkowo wysyłane na przedwzmacniacz Canberra 2005, który przekształca ładunek z wyjścia anodowego, na impuls wyjściowy o amplitudzie proporcjonalnej do tego ładunku i stałej zaniku impulsu wynoszącej 50 μs (patrz rysunku 6.4.3B) [88]. Następnie sygnały te były wzmacniane i kształtowane z zastosowaniem wzmacniacza spektroskopowego ORTEC 672. W tym przypadku unipolarne impulsy wyjściowe można było kształtować w sposób gaussowski z szerokością sygnału wyjściowego w zakresie od 0,5 μs do 10 μs. Wartości czasu kształtowania (*shaping time*) ustawiane na stosowanym wzmacniaczu, są dwu krotnie mniejsze niż odpowiadające im wartości czasu do piku (*peaking time*). W związku z tym zakres czasów kształtowania 0,5 μs – 10 μs odpowiada czasom do piku równym 1 μs – 20 μs (patrz rysunku 6.4.3B i 6.4.3C) [89]. Tak wzmocnione i ukształtowane sygnały przesyłane były do wielokanałowego analizatora Tukan 8k [90], gdzie rejestrowane było widmo energetyczne odpowiadające rozkładowi impulsów wyjściowych z PMT względem energii promieniowania gamma zdeponowanej w scyntylatorze (patrz rysunek 6.4.4). Należy podkreślić, że w tej terminologii czas do piku stosowany w układach analogowych odpowiada czasowi całkowania (ang. *integration time*) dalej stosowanemu w technice cyfrowej.



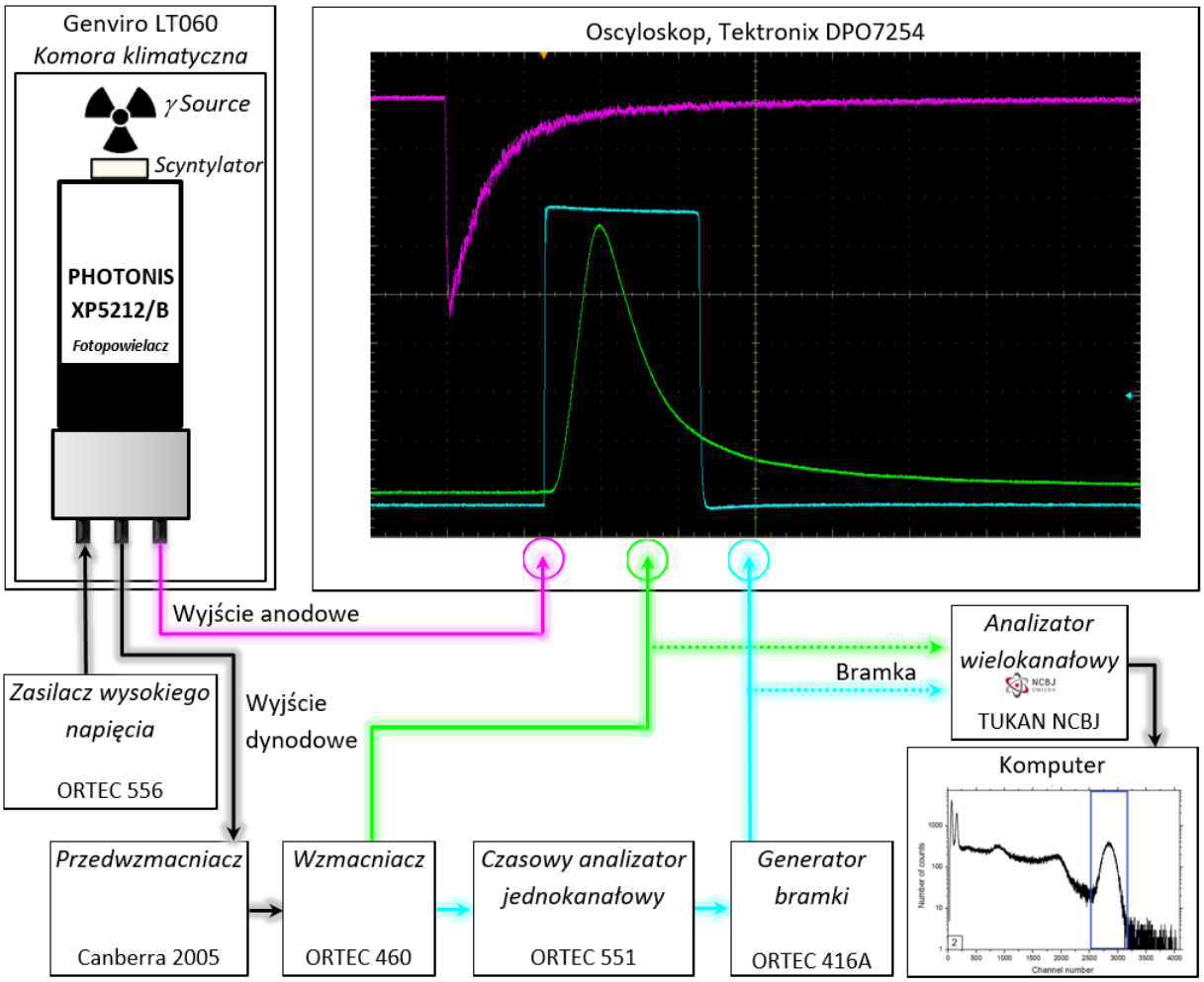
Rysunek 6.4.3. Przetwarzanie impulsu anodowego z użyciem modułów analogowych [88, 89].



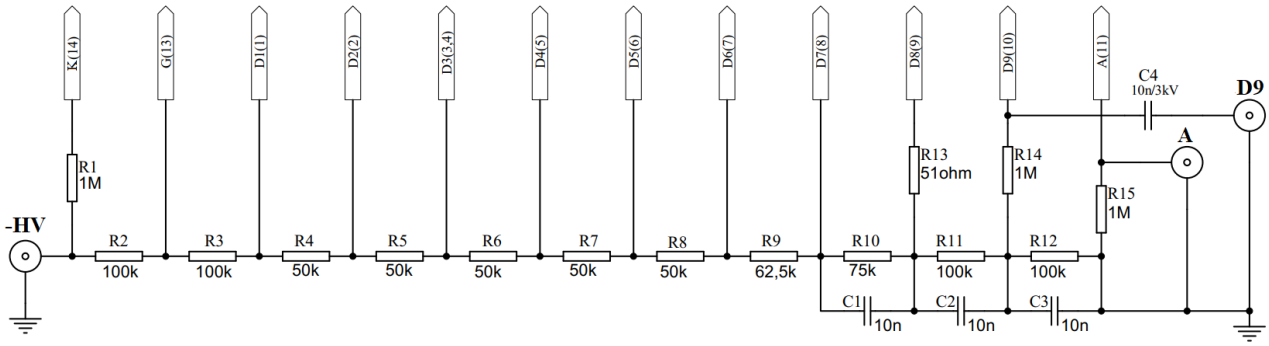
Rysunek 6.4.4. Przykładowe widmo energetyczne CsI:Tl po interakcji z promieniowaniem ze źródła ^{22}Na zarejestrowane z zastosowaniem analizatora Tukan 8k przy czasie do piku równym 20 μs.

Układ analogowo – cyfrowy

Druga technika pomiarowa umożliwiała rejestrację impulsu wyjściowego z fotopowielacza bez układu wzmacniającego i kształtującego. Schemat układu prezentuje rysunek 6.4.5. W układzie tym wykorzystano dwa wyjścia sygnałowe z PMT. Pierwsze wyjście wyprowadzono z przedostatniej dynody zgodnie ze schematem dzielnika napięciowego zaprezentowanego na rysunku 6.4.6. Wyjście to było zastosowane w celu wyboru impulsów świetlnych odpowiadających wyłącznie zakresowi pików pełnej energii. Sygnał z dynodowy był przekierowywany przez przedwzmacniacz Canberra 2005 i wzmacniacz ORTEC 460 do czasowego analizatora jednokanałowego ORTEC 551 (ang. *Timing Single Channel Analyzer*), którego zadaniem był wybór zdarzeń o zadeklarowanej wartości amplitudy z całego zakresu zdarzeń na widmie energetycznym (patrz rysunek 6.4.7A) i wystawienie logicznego sygnału wyzwalania dla układu ORTEC 416A, którego sygnał wyjściowy bramkował analizator TUKAN 8k [88, 91-93]. W przeprowadzonych pomiarach zakres selekcji zdarzeń odpowiadał rozkładowi piku pełnej energii dla danego źródła promieniotwórczego zarejestrowanego w analizatorze (patrz rysunek 6.4.7B) [90]. Informacja o wybranych zdarzeniach wyzwalała również zbieranie ściśle określonych sygnałów z wyjścia anodowego. Wyselekcjonowane impulsy świetlne były wysłane bezpośrednio na wejście oscyloskopu cyfrowego Tektronix model DPO7254 [94] i były uśrednianie wewnątrz pamięci wewnętrznej oscyloskopu (dla 1000 zdarzeń). Wynik tej operacji, opisujący impuls jako zmianę napięcia w funkcji czasu, zapisywany był na dysku twardym (patrz rysunek 6.4.7C).



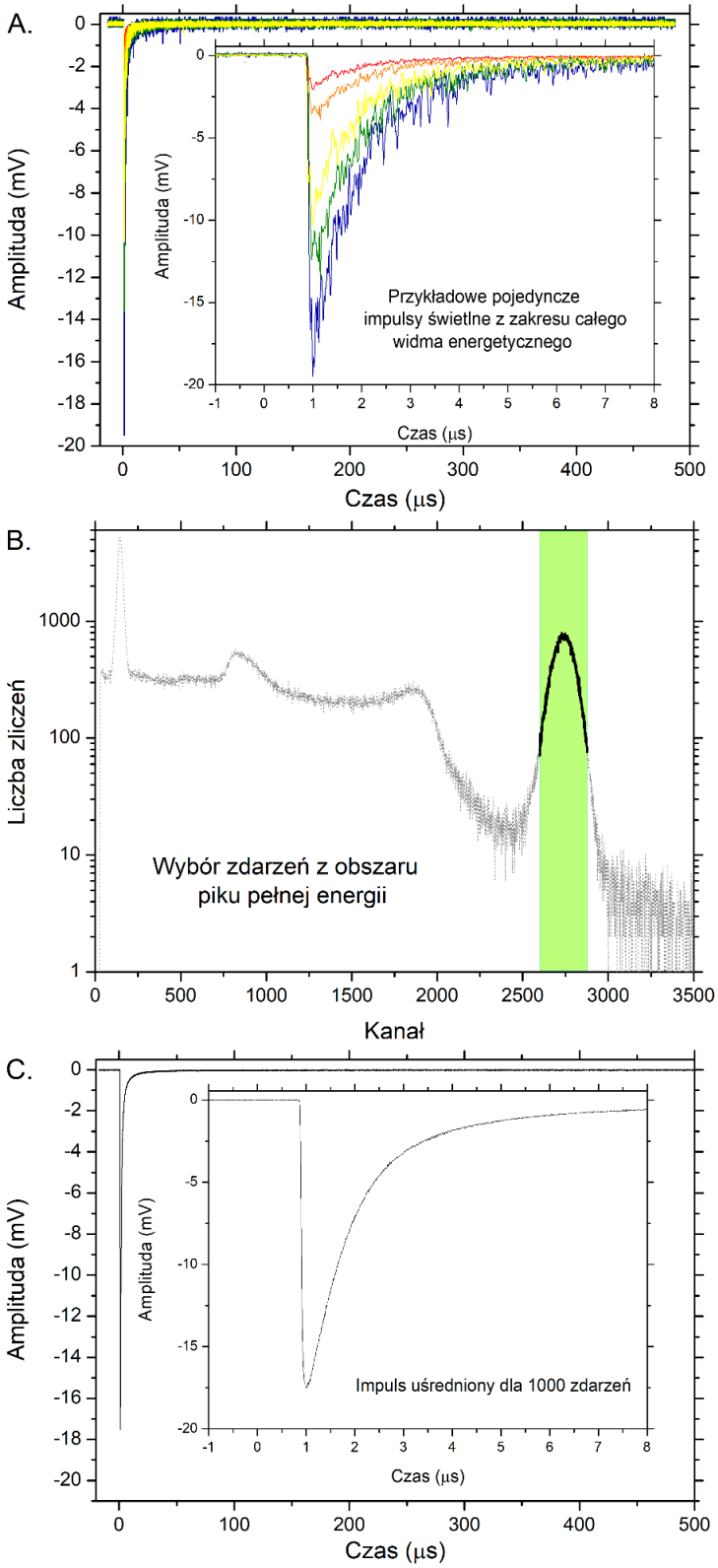
Rysunek 6.4.5. Schemat analogowo – cyfrowego układu pomiarowego [74].



Rysunek 6.4.6. Schemat dzielnika napięciowego stosowanego przy pomiarze w układzie analogowo – cyfrowym, gdzie oznaczenia dotyczą: K – katoda, G – elektroda skupiająca, D- dynoda, A - anoda.

By zminimalizować prawdopodobieństwo ewentualnych zniekształceń uśrednianych sygnałów spowodowanych obecnością np. pile-upów, w trakcie całego pomiaru utrzymywano niską liczbę zliczeń w obszarze FEP, na poziomie 5 zliczeń na sekundę. Na potrzeby przeprowadzonej analizy założono także, że wpływ fotopowielacza na kształt rejestrowanych impulsów jest pomijalny.

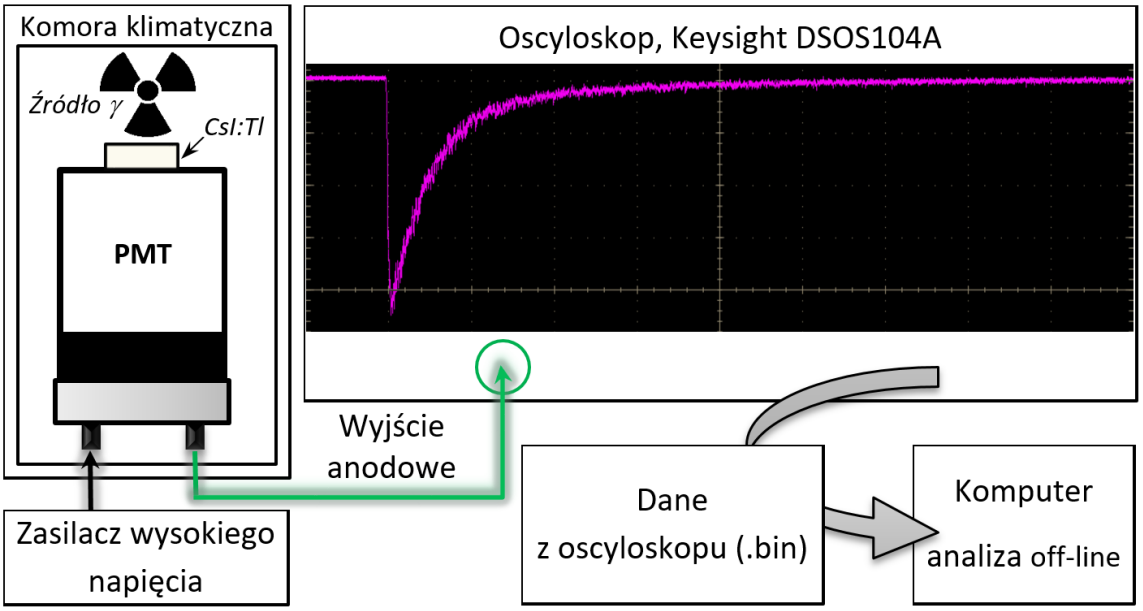
Szerokość połówkowa pojedynczego fotoelektronu jest w tym przypadku zdecydowanie krótsza niż czas trwania zaniku scyntylacji (odpowiednio około 20 ns względem dwóch składowych zaniku impulsu CsI:Tl – pierwsza ~ 1 μs, druga ~ 3,3 μs [20, 29, 87].



Rysunek 6.4.7. Schemat procedury wyboru impulsów anodowych z zakresu pików pełnej energii.

Układ cyfrowy

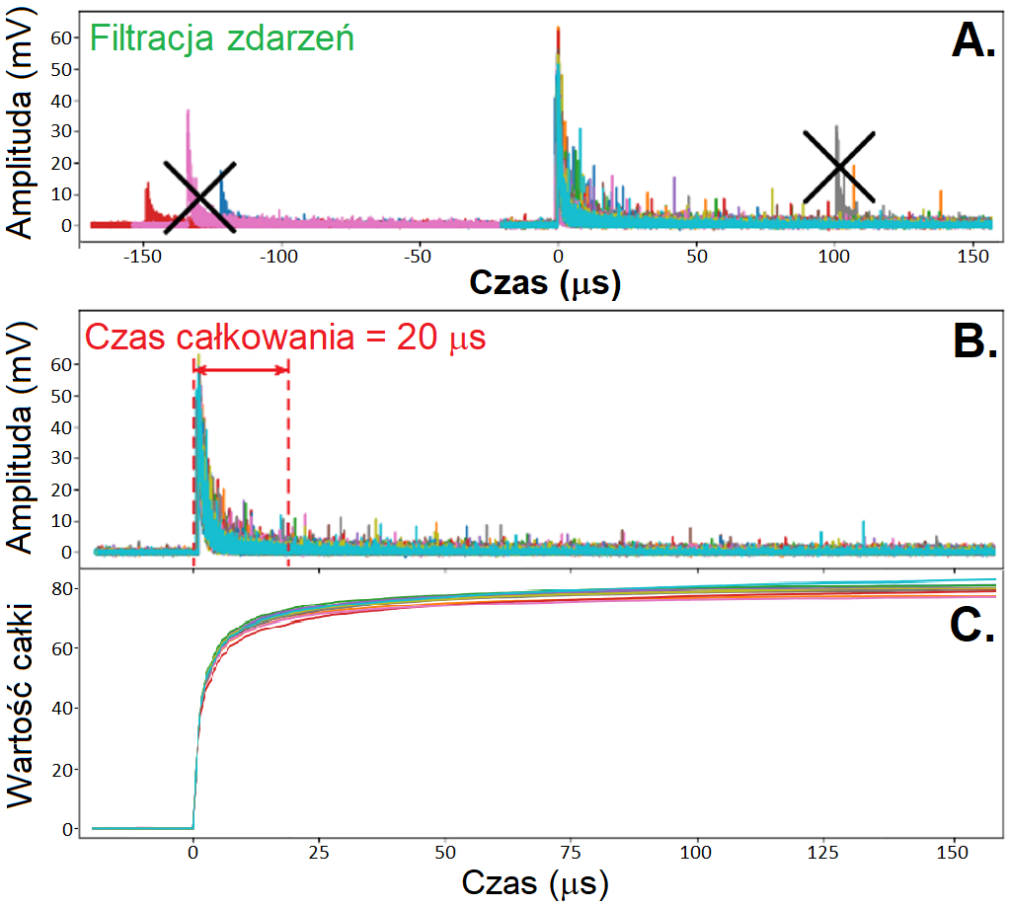
W przypadku trzeciego układu, cyfrowego, sygnały anodowe z fotopowielacza były przesyłane bezpośrednio do oscyloskopu firmy Keysight, model DSOS104A (rozdzielczość pionowa 16 bitów; 7,8 ENOB (ang. *effective number of bits*)) – schemat układu pomiarowego przedstawiono na rysunku 6.4.8. Zebrane bez kształtowania pojedyncze impulsy świetlne z zastosowaniem pasma przenoszenia 250 MHz i próbkowaniem 500 MSa/s były zapisywane na dysku twardym. Dla każdego użytego źródła promieniowania gamma liczba zarejestrowanych zdarzeń w danej temperaturze wynosiła 100 000. Wartość ta jest kompromisem pomiędzy koniecznością posiadania dużej statystyki liczby zliczeń, a dostępną przestrzenią dyskową do zapisu danych (100 tys. zdarzeń odpowiada 34 GB przestrzeni dyskowej).



Rysunek 6.4.8. Schemat cyfrowego układu pomiarowego [95].

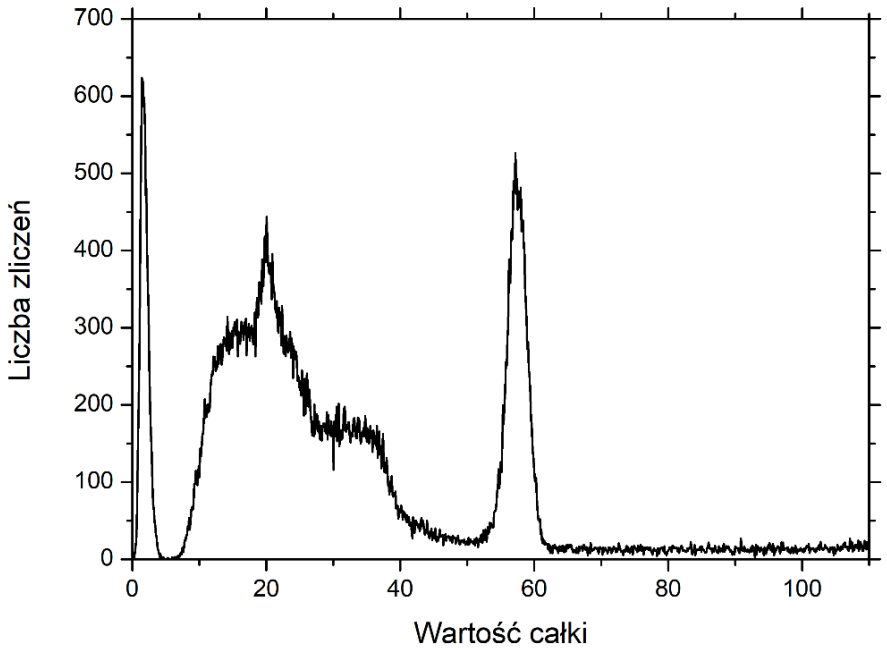
Dalsza analiza pojedynczych impulsów świetlnych odbywała się off-line z zastosowaniem przygotowanych skryptów w języku Python. Pierwszym krokiem w tej analizie było odfiltrowanie sygnałów od niepożądanych efektów, takich jak np. zdarzenia typu pile-up (patrz rysunek 6.4.9A). Krok drugi to usunięcie przesunięcia linii bazowej w osi pionowej, w oparciu o część plateau sprzed narastania impulsów świetlnych. Procedura ta eliminowała dodatkowy przyczynek do wartości całki. W kroku trzecim określano położenie początku narastania impulsów świetlnych w skali czasu (czas „zero") posługując się tu wartością progową dla pierwszej pochodnej z impulsu świetlnego (patrz rysunek 6.4.9B). W końcowym etapie tak wybrane impulsy świetlne były całkowane, efektem

czego jest wykres całki przyrastającej (ang. *cumulative integral*) wyznaczony dla każdego zdarzenia impulsu świetlnego (patrz rysunek 6.4.9C). Wykresy te umożliwiały budowę widma energetycznego dla wybranego czasu całkowania (patrz rysunek 6.4.10) poprzez odczyt wartości całki dla zadanego czasu (jednostką jest wolt razy sekunda)[4].



Rysunek 6.4.9. Analiza pojedynczych impulsów scyntylacji z zastosowaniem skryptów Python, Na rysunku pokazano (A) impulsy świetlne z obecnością pile-upów, (B) impulsy po usunięciu zdarzeń niepożądanych oraz po ich centralizacji w maksimum amplitudy i oznaczeniu poziomu linii bazowej, (C) wartości całek przyrastające względem czasu całkowania impulsów świetlnych [95].

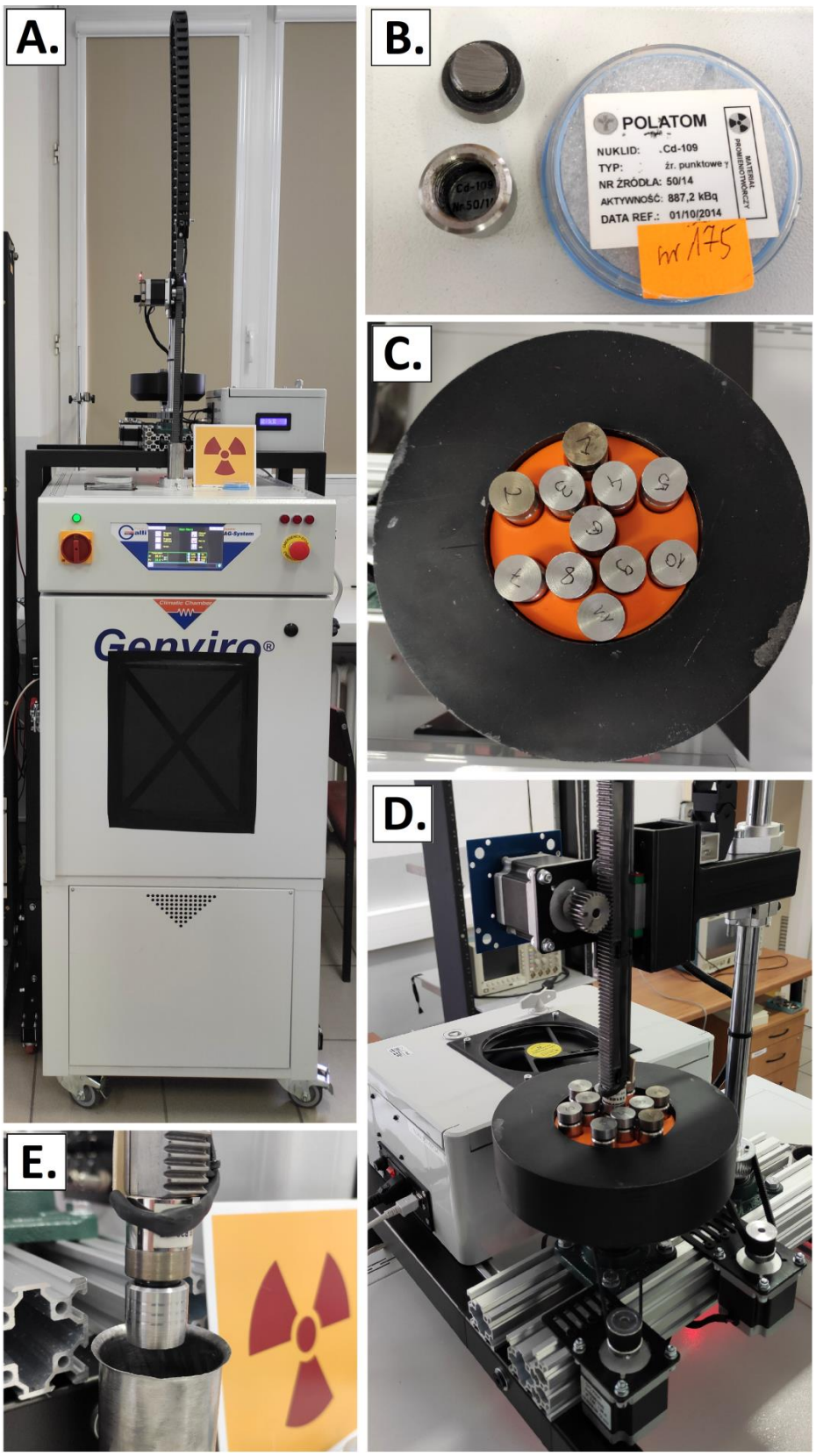
[4] Wyrażenie wartość całki, stosowane w niniejszej pracy w odniesieniu do układu cyfrowego, jest odpowiednikiem wartości kanałów na widmie energetycznym zarejestrowanym z zastosowaniem układu analogowego.



Rysunek 6.4.10. Przykładowe widmo energetyczne CsI:Tl po interakcji z promieniowaniem ze źródła ^{22}Na „zbudowane" bazując o analizę pojedynczych sygnałów scyntylacji (czas do piku równym 20 μs).

Dodatkowym unowocześnieniem układu eksperymentalnego, zastosowanym dopiero na etapie prac z trzecią techniką pomiarową, było użycie podajnika źródeł promieniotwórczych. Podajnik ten zaprezentowany na rysunku 6.4.11 składa się z ołowianej stacji na 11 źródeł promieniotwórczych i ruchomego ramienia umożliwiającego pobranie wybranego źródła ze stacji oraz jego wprowadzenie na zdefiniowaną wysokość do wnętrza komory klimatycznej. Podajnik w znacznym stopniu umożliwia poprawę ochrony radiologicznej operatora, zwiększa liczbę wykonywanych pomiarów w czasie, jak również jest ostatnim elementem układu, po wprowadzeniu którego można było prowadzić w pełni zdalną pracę[5].

[5] Zaprojektowanie i wykonanie dedykowanego podajnika źródeł promieniotwórczych było możliwe dzięki przyznanemu autorce przez NCBJ w latach 2020/2021 finansowaniu w ramach projektu dla naukowców na wczesnym etapie kariery. Projekt o temacie: „*Rejestracja impulsów świetlnych emitowanych z materiałów scyntylacyjnych z grupy jodków cezu po wzbudzeniu ich źródłami promieniowania gamma – limity i możliwości aparaturowe"*, obejmował część badań objętych tematyką niniejszej rozprawy.



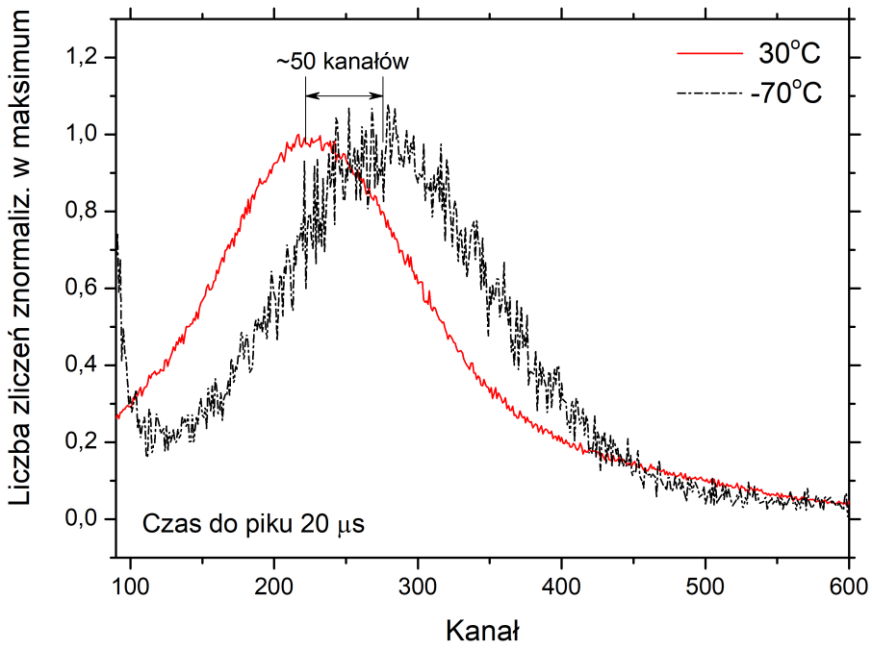
Rysunek 6.4.11. Zdjęcia podajnika źródeł promieniotwórczych, gdzie (A) podajnik sprzężony z komorą klimatyczną, (B) źródło ^{109}Cd osadzone w pojemniku podajnika, (C) ołowiana stacja na 11 źródeł promieniotwórczych, (D) zbliżenie na układ widziany od góry, (E) ramię wprowadzające pojemnik ze źródłem do wnętrza komory [96].

7. Wyniki

Wyniki badań zostały podzielone na trzy podrozdziały w nawiązaniu do zastosowanych układów pomiarowych. Jak umotywowano wcześniej, wszystkie pomiary odpowiedzi świetlnej scyntylatora CsI:Tl były poprzedzane charakterystyką wykorzystanego fotopowielacza. W kolejnym kroku zaprezentowano rezultaty dotyczące zmierzonych parametrów spektrometrycznych CsI:Tl. Tak przyjęty porządek objaśnia kolejne etapy prowadzanych prac oraz przedstawia nowe obserwacje zauważone podczas prac z daną techniką, jednocześnie ukazując momenty wymagające dalszej rewizji. Każdy z trzech podrozdziałów jest na końcu opatrzony w konkluzje dotyczące-wprowadzonej metody i uzyskanych wyników.

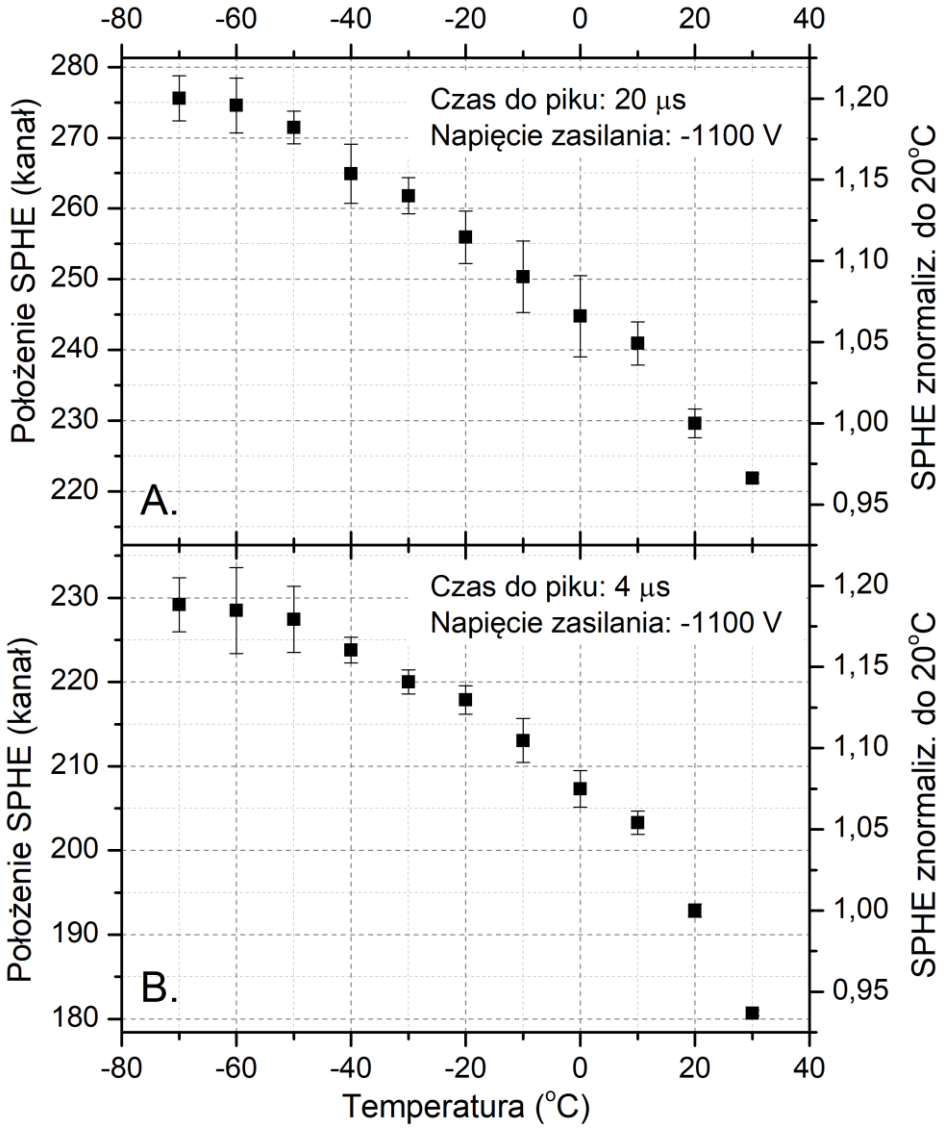
7.1. Wyniki uzyskane z zastosowaniem układu analogowego

W pierwszej części badań poddano analizie wpływ zmiany temperatury na wartość wzmocnienia fotopowielacza z zastosowaniem układu analogowego (zgodnie ze schematem przedstawionym na rysunku 6.4.2). Wyznaczono położenie piku pojedynczego fotoelektronu w funkcji temperatury w zakresie od 30°C do -70°C. Na rysunku 7.1.1 zaprezentowano dwa widma energetyczne z widocznymi pikami pochodzącymi od pojedynczego fotoelektronu, zarejestrowane w dwóch skrajnych temperaturach wybranego zakresu. Pokazano wzrost wzmocnienia samego PMT wraz ze spadkiem temperatury. Można zaobserwować, że położenie maksimum widma SPHE uległo przesunięciu z 220 kanału ADC do 275 kanału ADC (dla pełnego zakresu 4096 kanałów).



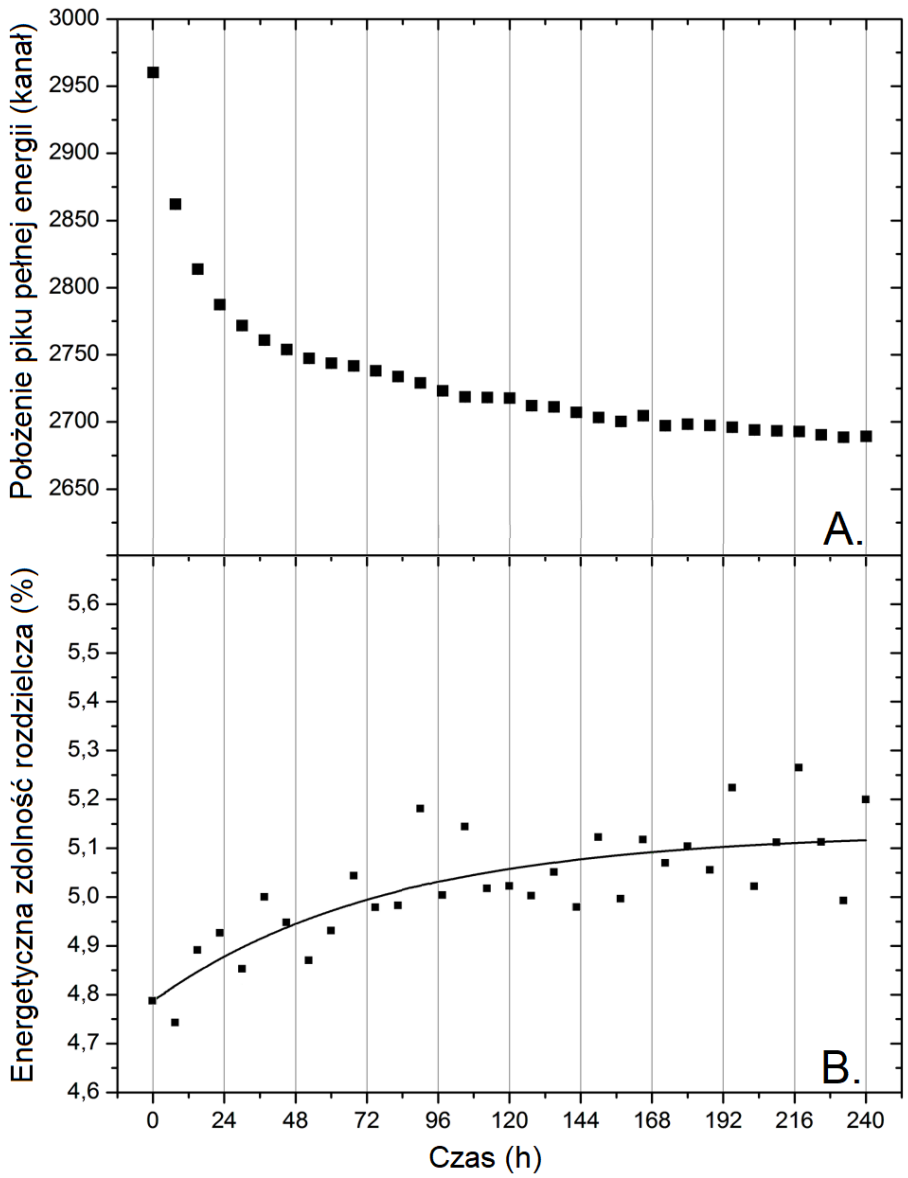
Rysunek 7.1.1. Widma pojedynczego fotoelektronu zmierzone w -70°C i 30°C i znormalizowane do maksimum amplitudy. Większe fluktuacje w -70°C odzwierciedlają spadek liczby zdarzeń pojedynczego fotoelektronu ze spadkiem temperatury (czas żywy obu pomiarów wynosi 900 s) [74].

Efekt ten w sposób systematyczny ukazuje rys. 7.1.2, gdzie wykreślono położenie piku pojedynczego fotoelektronu (opisane rozkładem Gaussa) w zakresie temperatur od 30°C do -70°C, z krokiem 10°C oraz względem zmiennej podstawy czasu do piku wynoszącej 20 μs (A) oraz 4 μs (B). Zwiększenie ostatniego parametru spowodowało wzrost wzmocnienia sygnału o około 25%. Tendencja ta jest niezależna od wybranych warunków kształtowania sygnału przez wzmacniacz spektrometryczny oraz jest zgodna z charakterystyką fotopowielacza XP2020Q dostarczoną przez firmę Photonis, zaprezentowaną w pracy [97]. Przedstawione wyniki podkreślają, że pomiary spektrometryczne przeprowadzane przy użyciu PMT w różnych warunkach temperaturowych muszą być korygowane o wzmocnienie fotodetektora, patrz również [98]. Dlatego też w dalszej części pracy odpowiedź świetlna CsI:Tl była zawsze wyznaczana w odniesieniu do położenia piku pojedynczego fotoelektronu, zarejestrowanego w tych samych warunkach temperaturowych oraz z ustaloną wartością czasu do piku.



Rysunek 7.1.2. Położenia SPHE względem zmieniającej się temperatury od 30°C do -70°C. Dane zaprezentowano dla dwóch wartości czasów do piku równych 20 μs (A) i 4 μs (B) [74].

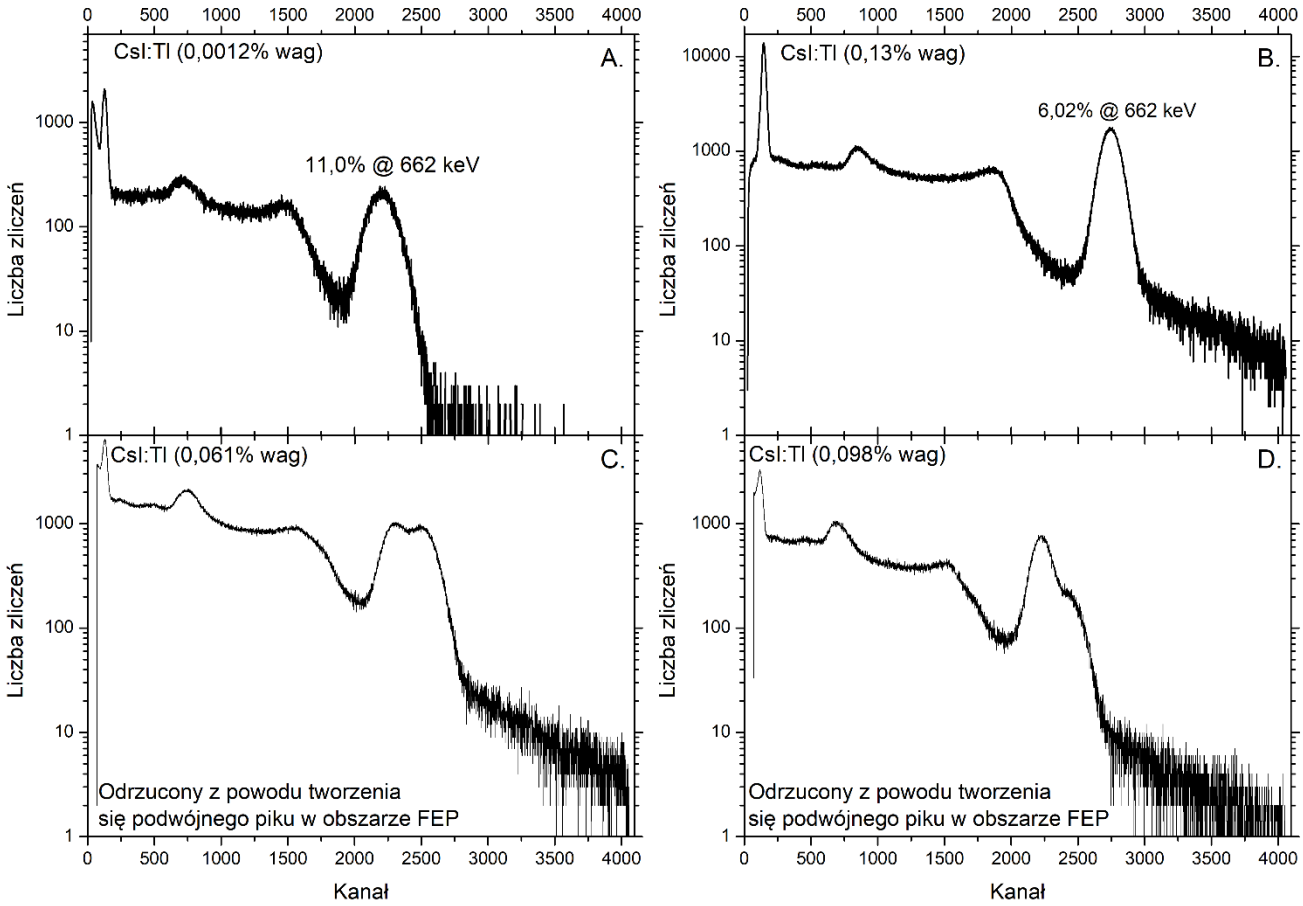
Badania właściwości spektrometrycznych CsI:Tl prowadzone w komorze klimatycznej, poprzedzono kontrolą stabilności układu pomiarowego. W tym celu zastosowano kryształ CsI:Tl od firmy Bicron i sprawdzono położenie piku pełnej energii od linii 662 keV w funkcji czasu. Rysunek 7.1.3 pokazuje początkowy wzrost odpowiedzi świetlnej CsI:Tl tuż po nałożeniu kryształu spowodowany jego ekspozycją na światło z otoczenia. Później obserwowany jest spadek odpowiedzi świetlnej i jej stabilizacja po upływie około 72-96 godzin od nałożenia kryształu. Dlatego każdy następny pomiar prowadzony z zastosowaniem CsI:Tl był prowadzony zawsze po wygaszeniu materiału scyntylacyjnego, czyli po upływie co najmniej 72 godzin.



Rysunek 7.1.3. Położenie FEP linii 662 keV (A) oraz wartości ER kryształu CsI:Tl (B) w funkcji czasu, mierzonym od momentu odizolowania kryształu od światła z otoczenia [99].

Przedmiotem niniejszej rozprawy są kryształy wyhodowane w laboratorium ISMA (kryształ firmy Bicron został tu wprowadzony jako materiał referencyjny). Początkowa praca z tymi kryształami polegała na sprawdzeniu jakości otrzymanych próbek poprzez pomiar widm energetycznych w warunkach pokojowych z zastosowaniem źródła ^{137}Cs. Spośród 20 otrzymanych próbek wyselekcjonowano 15, które odznaczały się prawidłowym rozkładem liczby zliczeń w piku pełnej energii (pojedynczy pik gaussowski dla 662 keV, bez zaciągnięć w kierunku wyższych kanałów) oraz energetyczną zdolnością rozdzielczą i ilością światła nieodbiegającą w sposób znaczący od wyznaczonej systematyki, sporządzonej dla wszystkich próbek. Widma energetyczne rejestrowano z najdłuższym dostępnym czasem do piku wynoszącym 20 μs.

Na rysunku 7.1.4 zaprezentowano przykłady dwóch widm kryształów wybranych do dalszych pomiarów (A, B) oraz przykłady dwóch widm kryształów, które zostały pominięte w dalszych badaniach (C, D) – odrzuconych kryształów nie wyszczególniono w tabeli 6.1.1.

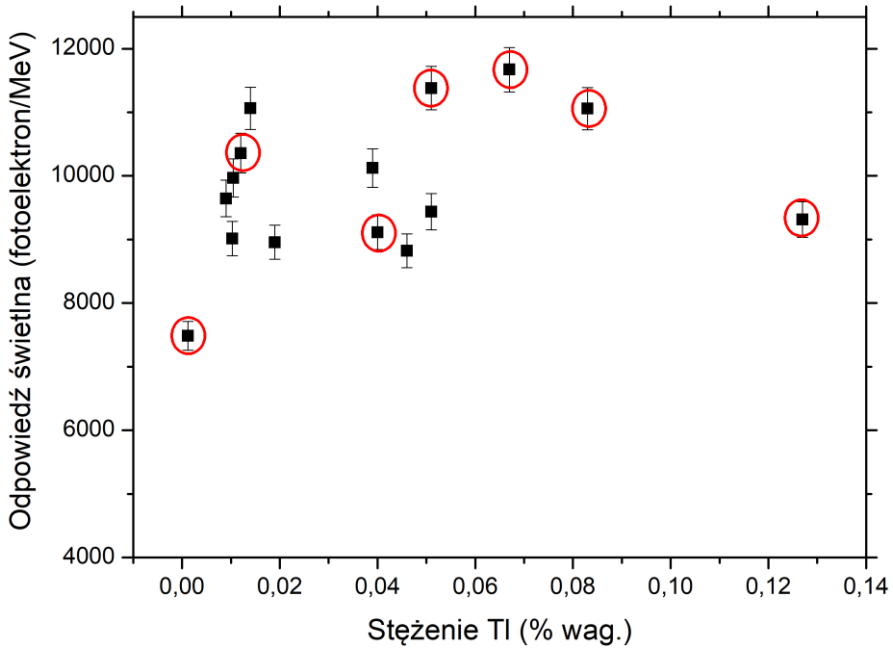


Rysunek 7.1.4. Widma energetyczne CsI:Tl o domieszce 0,0012% wag. (A); 0,13% wag. (B) oraz 0,061% wag. (C); 0,098% wag. (D) po interakcji ze źródłem ^{137}Cs zbadane w temperaturze pokojowej. Zastosowana wartość domieszki talu w badanych materiałach oraz w przypadku A i B wyznaczona energetyczna zdolność rozdzielcza zostały umieszczone przy poszczególnym widmie.

W dalszym toku badań, w oparciu o położenie piku pojedynczego fotoelektronu SPHE (X_{SPHE}) oraz położenia pików pełnej energii (X_{FEP}), wyznaczono liczbę fotoelektronów przypadającą na 1 MeV energii promieniowania gamma zdeponowanego w scyntylatorze zgodnie z zależnością 7.1.1:

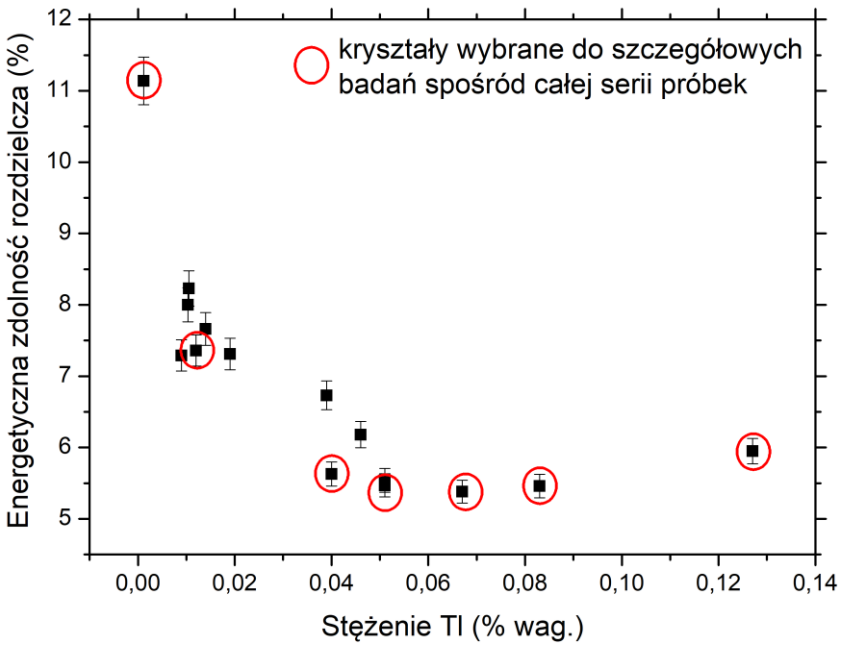
$$LO = \frac{X_{FEP}}{X_{SPHE} \cdot E_{\gamma}} \qquad (7.1.1.)$$

Na rysunku 7.1.5 przedstawiono odpowiedź świetlną testowanych kryształów odznaczających się prawidłowym widmem energetycznym (testowane kryształy wyszczególnione w tab. 6.1.1). Liczba zarejestrowanych dla badanych próbek fotoelektronów na 1 MeV energii zmieniała się w zakresie od około 7500 do 11700, ukazując tendencję wzrostową odpowiedzi świetlnej względem przyrostu domieszki talu do wartości 0,083% wag. Dla wyższych stężeń Tl spodziewano się dalszego trendu wzrostowego liczby fotoelektronów, zgodnie z rysunkiem 4.2.1 z pracy Gwin i Murray [41]. Zaobserwowano jednak spadek liczby PHE dla kryształu z domieszką Tl równą 0,13% wag..



Rysunek 7.1.5. Odpowiedź świetlna CsI:Tl wyrażona w fotoelektronach na MeV w funkcji domieszkowania talu (kryształy od ISMA), zmierzona przy użyciu źródła ^{137}Cs (662 keV) w temperaturze pokojowej [74]. Kolorem czerwonym zaznaczono kryształy wyselekcjonowane do testów temperaturowych.

Kolejnym krokiem, w ramach prowadzonym testów wstępnych, był pomiar energetycznej zdolności rozdzielczej, wyznaczonej zgodnie z równaniem 3.6.2. Na rysunku 7.1.6 wykreślono energetyczną zdolność rozdzielczą testowanych materiałów względem zawartości domieszki talowej. Najlepsze wartości ER osiągnięto dla kryształów, w których zawartość talu przekraczała 0,04 % wag.. Przy czym dla kryształów o stężeniu talu w zakresie 0,051–0,083% wag. otrzymano ER o wartości średniej dla energii 662 keV wynoszącej (5,4 ± 0,2)%. Kolorem czerwonym na wykresie otoczono kryształy, które wybrano do dalszych testów temperaturowych ze względu na dobre rozdzielenie względem domieszki talu oraz najlepszy stosunek energetycznej zdolności rozdzielczej do liczby fotoelektronów w ramach danej grupy (patrz tab. 7.1.1).



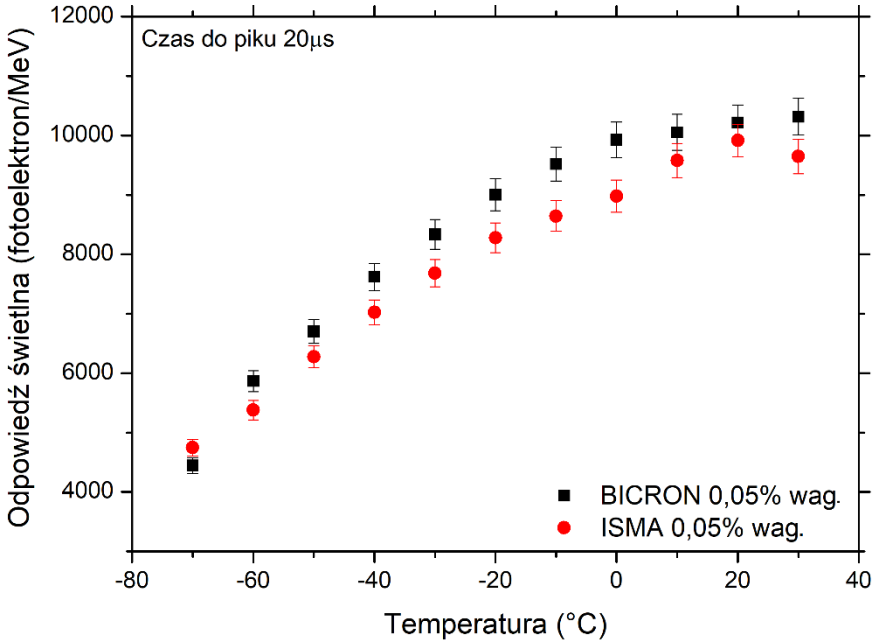
Rysunek 7.1.6. Energetyczna zdolność rozdzielcza uzyskana dla scyntylatorów CsI:Tl od ISMA z różnymi domieszkami Tl w temperaturze pokojowej [74].

Tabela 7.1.1. Wykaz kryształów z ISMA wyselekcjonowanych do badań temperaturowych ze specyfikacją zawierającą dane o wartości domieszki talu, liczbie fotoelektronów oraz energetycznej zdolności rozdzielczej.

Numer próbki	**Domieszka Tl (% wagowy)**	**Odpowiedź świetlna przy 662 keV (fotoelektron)**	**Odpowiedź świetlna (fotoelektron/MeV)**	**Energetyczna zdolność rozdzielcza (%)**
1	0,0012	4960 ± 150	7490 ± 230	11,1 ± 0,3
5	0,012	6860 ± 210	10360 ± 310	7,4 ± 0,2
9	0,040	6030 ± 180	9110 ± 270	5,6 ± 0,2
11	0,051	7530 ± 230	11380 ± 340	5,5 ± 0,2
13	0,067	7730 ± 230	11670 ± 350	5,4 ± 0,2
14	0,083	7320 ± 220	11060 ± 330	5,5 ± 0,2
15	0,13	6170 ± 190	9310 ± 280	6,0 ± 0,2

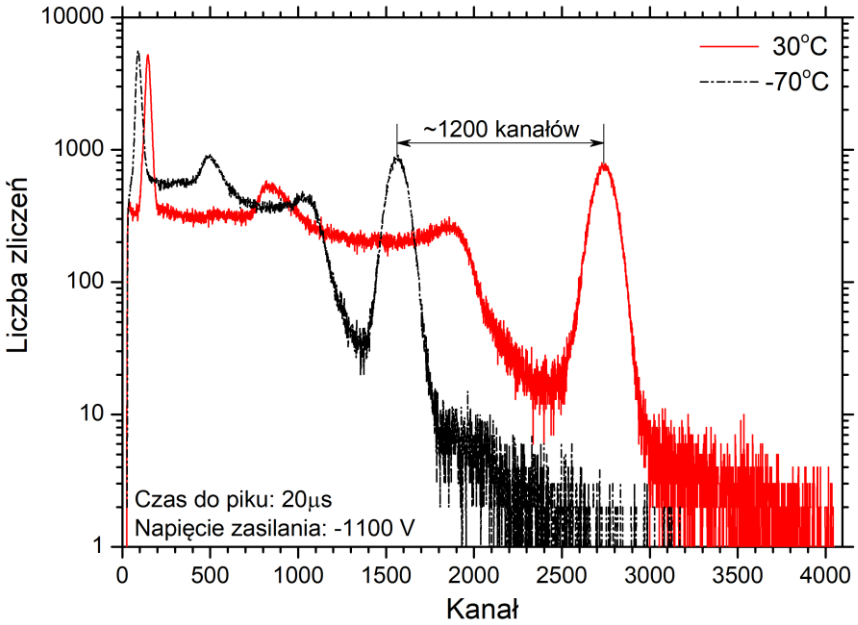
Dalszą charakterystykę wyselekcjonowanych scyntylatorów CsI:Tl rozszerzono o pomiary w zmiennych warunkach temperatury w zakresie od -70°C do 30°C. By uzyskać dodatkowy punkt odniesienia i ostatecznie zatwierdzić badaną serię do badań, porównano odpowiedź świetlną kryształu o domieszce Tl równej 0,05% wag. wyhodowanego przez firmę Bicron, z kryształem o tej samej domieszce wyhodowanej w laboratorium ISMA (oba kryształy o porównywalnej objętości).

Wynik porównania przedstawia rysunek 7.1.7, obrazując bardzo dobrą zgodność zarejestrowanych odpowiedzi świetlnych obu kryształów.



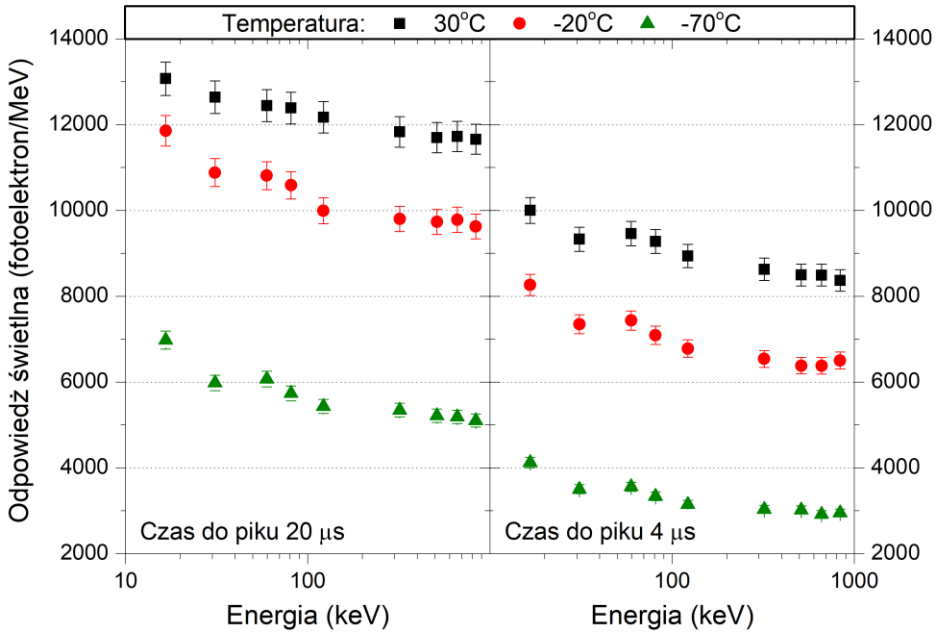
Rysunek 7.1.7. Odpowiedź świetlna w funkcji temperatury dwóch kryształów zsyntetyzowanych w dwóch niezależnych laboratoriach z domieszką Tl równą 0,05% wagowego [100].

Dla wybranych siedmiu kryształów ponownie zarejestrowano widma energetyczne. Na rysunku 7.1.8 pokazano zmianę położenia piku pełnej energii w dwóch skrajnych temperaturach z użyciem kryształu o domieszce talu równej 0,051% wag. W zastosowanych warunkach położenie FEP uległo zmianie o czynnik około 1,8. W celu ograniczenia efektu spowolnienia impulsów świetlnych (wydłużenia czasów narastania i zaniku) w niskiej temperaturze (zobacz też rys. 7.2.2) pomiary przeprowadzono z czasem do piku równym 20 µs. Był to najdłuższy dostępny czas w zastosowanym wzmacniaczu spektroskopowym ORTEC 672.



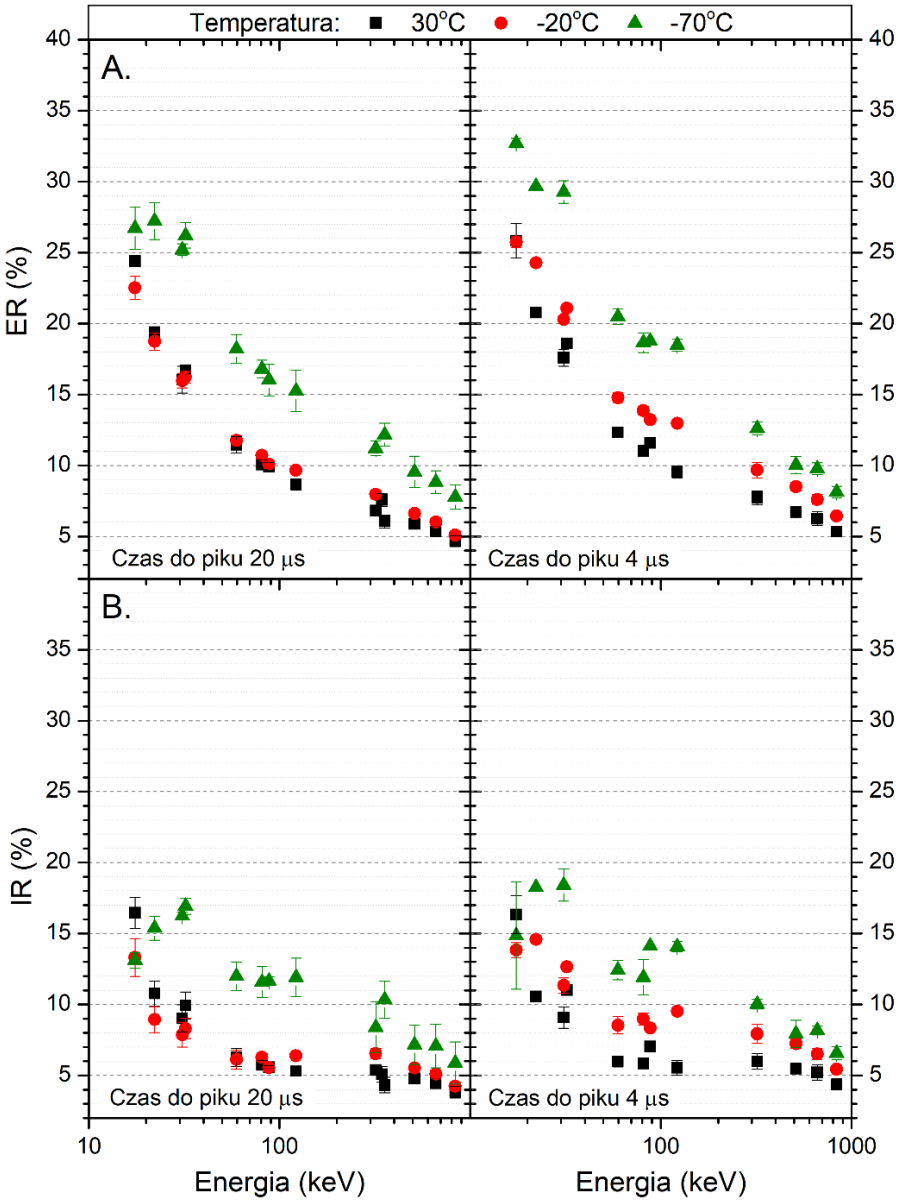
Rysunek 7.1.8. Widma energetyczne promieniowania gamma ze źródła ^{137}Cs mierzone z zastosowaniem kryształu CsI:Tl w temperaturach -70°C i 30°C. Widma zmierzono przy tych samych ustawieniach wzmocnienia (wzmocnienie = 2,5) [74].

Następnie scyntylatory wzbudzano źródłami gamma o energiach od 17 keV do 835 keV. Rysunek 7.1.9 pokazuje, że ilość światła przeliczona na 1 MeV wzrasta wraz ze spadkiem energii wzbudzenia. Przy czasie do piku równym 4 μs, zbieranie światła jest niekompletne w porównaniu z 20 μs. Liczba fotoelektronów spada o około 50% podczas przejścia od 30°C do -70°C. Spadek ilości światła z obniżeniem temperatury był prezentowany również w pracach [17, 71, 101-103].



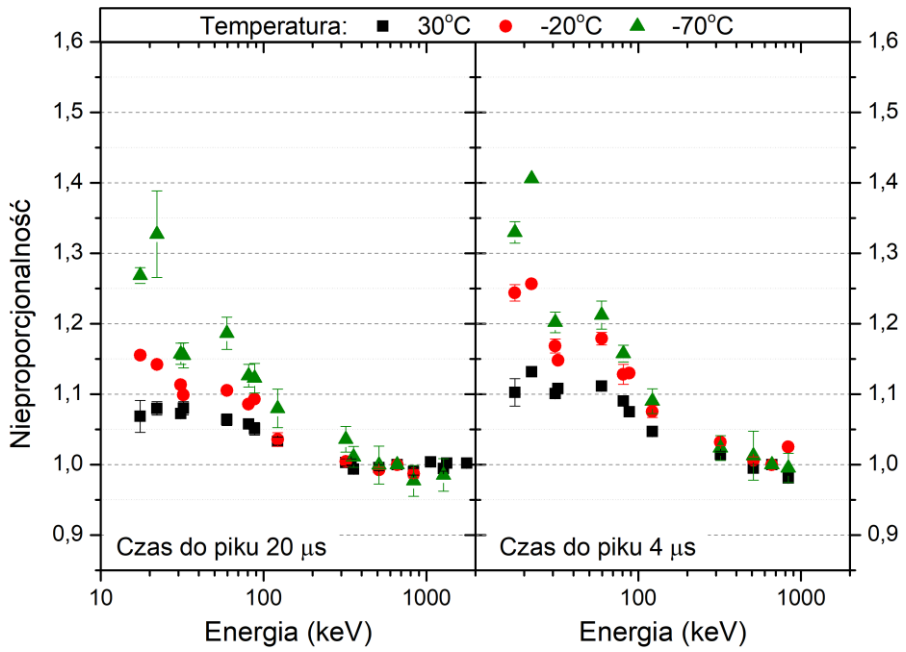
Rysunek. 7.1.9. Liczba fotoelektronów w funkcji energii dla scyntylatora CsI:Tl z domieszkowaniem 0,083% wag. Tl w 30°C, -20°C i -70°C [74].

Zarejestrowane widma energetyczne posłużyły w dalszej kolejności do wyznaczenia energetycznej zdolności rozdzielczej wraz z jej poszczególnymi wkładami (wewnętrznym i statystycznym) - zgodnie z zależnością 3.6.3. Ze względu na prace z zastosowaniem nowoczesnego fotopowielacza (XP5212/B Photonis), większy rozmiar katody PMT niż sprzężona z nim powierzchnia scyntylatora (ϕ48 mm względem 12 x 12 mm^2) oraz dobry kontakt optyczny zaniedbano wkład transferu. Możliwość zaniedbania tego wkładu została eksperymentalnie potwierdzone w pracach [9, 54]. Na rysunkach 7.1.10A i 7.1.10B pokazano krzywe energetycznej zdolności rozdzielczej i wewnętrznej energetycznej zdolności rozdzielczej uzyskane w trzech różnych temperaturach oraz z użyciem dwóch wspomnianych powyżej czasów do piku. Przedstawione poniżej wyniki opowiadają wartości średniej wyznaczonej dla czterech wybranych kryształów o stężeniu talu 0,051–0,083% wag. (dwóch z domieszką Tl równą 0,051% wag (ISMA i Bicron), jednego 0,067% wag. od ISMA i jednego 0,083% wag. od ISMA). Należy zwrócić uwagę, że wraz ze spadkiem temperatury wyznaczone wielkości pogarszają się. W przypadku pomiaru przy -70°C energetyczna zdolność rozdzielcza jest o ponad 50% gorsza niż przy 30°C. Z kolei wzrost czasu do piku z 4 μs do 20 μs poprawia ER o około 10%–15%, co jest zgodne z wcześniejszymi pracami (19; 20; 26). Dla czasu do piku równego 20 μs ER i IR przy 30°C i -20°C pokrywają się w granicach błędów. Tego samego efektu nie obserwuje się w przypadku krótszego czasu do piku. IR wyznaczona dla linii 662 keV w 30°C i czasu do piku 20 μs wynosi (4,44 ± 0,35)% względem ER wynoszącego (5,34 ± 0,35)%.



Rysunek 7.1.10. Wyznaczone wartości średnie (A) energetycznej zdolności rozdzielczej (B) wewnętrznej energetycznej zdolności rozdzielczej w funkcji energii uzyskane dla scyntylatorów CsI:Tl w trzech temperaturach: 30°C, -20°C i -70°C i przy użyciu układu analogowego [74].

Jak wspomniano wcześniej, różnice w energetycznej zdolności rozdzielczej mogą być związane z nieproporcjonalną odpowiedzią świetlną w stosunku do energii promieniowania gamma. Charakterystyki nieproporcjonalności (w odniesieniu do 1 MeV) przy 30°C, -20°C i -70°C wyznaczono zgodnie z równaniem 3.5.1. Na rysunku 7.1.11 zaprezentowano ciągły wzrost nieproporcjonalnej odpowiedzi świetlnej wraz ze spadkiem energii wzbudzenia, przy czym większa nieproporcjonalność jest widoczna dla kryształów zmierzonych w niższej temperaturze (wzrost o około 40% przy 4 µs). Z kolei całkowanie impulsów świetlnych przy użyciu czasu do piku równego 20 µs powodowało poprawę nieproporcjonalności w zakresie wszystkich stosowanych temperatur.



Rysunek 7.1.11. Charakterystyki nieproporcjonalności będące średnią dla czterech wspomnianych powyżej kryształów CsI:Tl zmierzone przy dwóch wartościach czasów do piku. Dane prezentowane w trzech temperaturach: 30°C, -20°C, -70°C i znormalizowane przy 662 keV [74].

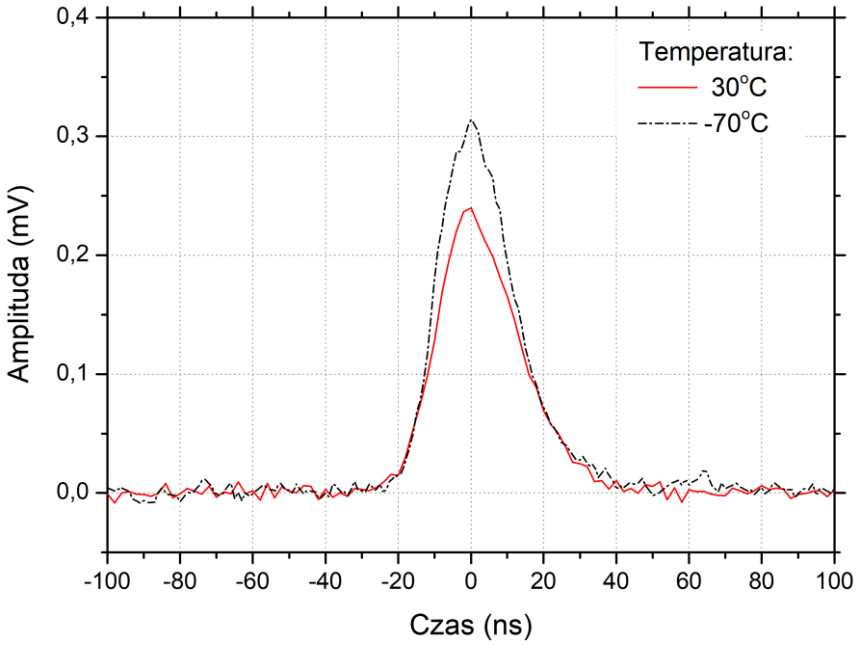
Konkluzje do podrozdziału

Pierwsza część prac dotyczyła pomiarów z zastosowaniem analogowego układu kształtowania i odczytu danych. Odpowiedź świetlną kryształów jodku cezu o zmiennej domieszce talu w zakresie od 0,0012% wag. do 0,13% wag. mierzono w temperaturach od 30°C do -70°C. Wykorzystano w tych badaniach kalibracyjne źródła promieniowania gamma o energiach od 17 keV do 835 keV. Ilość światła emitowanego przez kryształy CsI:Tl obliczono stosując poprawkę na zmiany wzmocnienia PMT spowodowanego zmianą temperatury.

W pracy pokazano, że liczba fotoelektronów CsI:Tl spada wraz z obniżaniem temperatury do -70°C. Wyznaczono zależność energetycznej zdolności rozdzielczej, wewnętrznej energetycznej zdolności rozdzielczej i zależności nieproporcjonalności od temperatury, energii wzbudzenia i czasów kształtowania impulsów świetlnych. Potwierdzono poprawę parametrów spektrometrycznych wraz z wydłużeniem wartości czasu do piku. Pokazano, że maksymalne wartości czasów kształtowania dostępne z użyciem aparatury analogowej nie są wystarczające by w pełni poznać charakterystykę odpowiedzi świetlnej w kryształach CsI:Tl. Otrzymane rezultaty pokazują, że lepsze zrozumienie odpowiedzi świetlnej jodku cezu domieszkowanego talem, łącznie z próbą osiągnięcia poprawy ER, wymagają dalszych badań umożliwiających wydłużenie podstawy czasu całkowania sygnałów scyntylacji poza zakres dostępny w układach analogowych.

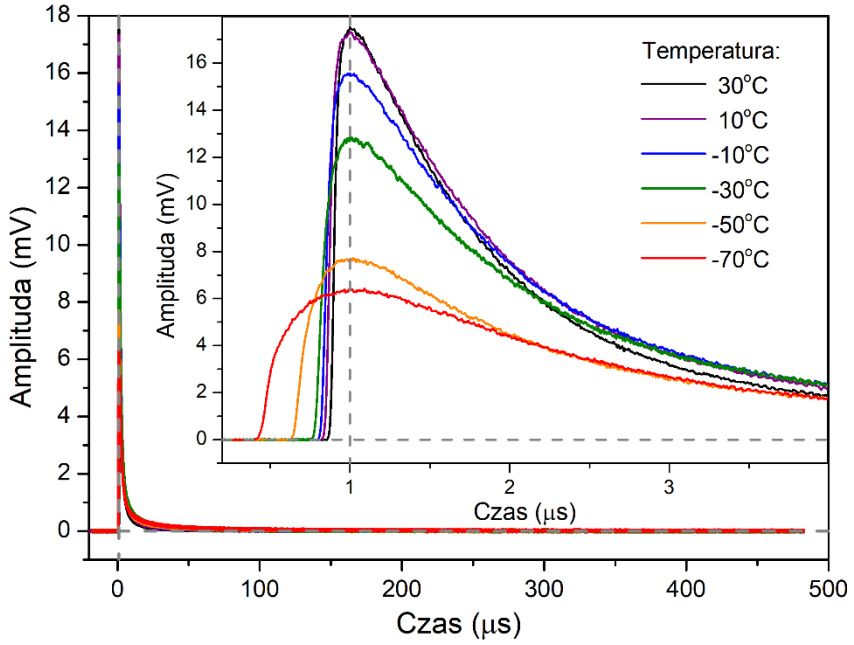
7.2. Wyniki uzyskane z zastosowaniem układu analogowo – cyfrowego

Opracowanie danych zebranych przy użyciu układu analogowo-cyfrowego (zgodnie z techniką opisaną w podrozdziale 6.4) rozpoczęto od analizy sygnałów pojedynczego fotoelektronu z PMT w warunkach zmiennej temperatury. Na rysunku 7.2.1 przedstawiono porównanie dwóch uśrednionych impulsów prądowych pojedynczego fotoelektronu, które zostały zarejestrowane w dwóch skrajnych temperaturach 30°C i -70°C. Różnica między wartością całek dla dwóch uśrednionych impulsów (dla 100 zdarzeń) jest równa (26 ± 1)%. Wartość ta jest zgodna z różnicą położenia pików pojedynczego fotoelektronu na widmie energetycznym zmierzonym za pomocą układu analogowego (patrz rys. 7.1.1).



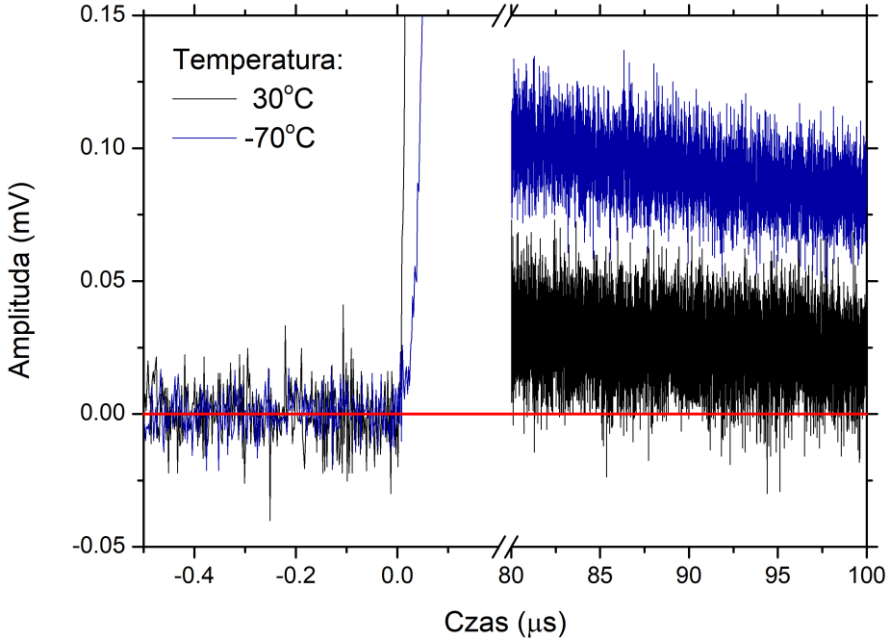
Rysunek 7.2.1. Uśrednione impulsy pojedynczego fotoelektronu zarejestrowane na oscyloskopie w temperaturze 30°C i -70°C [74].

W samym pomiarze kształtów impulsów scyntylacji oscyloskop miał za zadanie uśredniać, jak wspomniano w rozdziale 6.4, tysiąc zdarzeń pochodzących z obszaru odpowiadającego pikowi pełnej energii. Na rysunku 7.2.2 przedstawiono uśrednione impulsy świetlne zarejestrowane w zakresie temperatur od 30°C do -70°C z użyciem źródła ^{137}Cs i bramkowane energią 662 keV. Krzywe te obrazują wzrost czasu narastania i opadania wraz ze spadkiem temperatury.



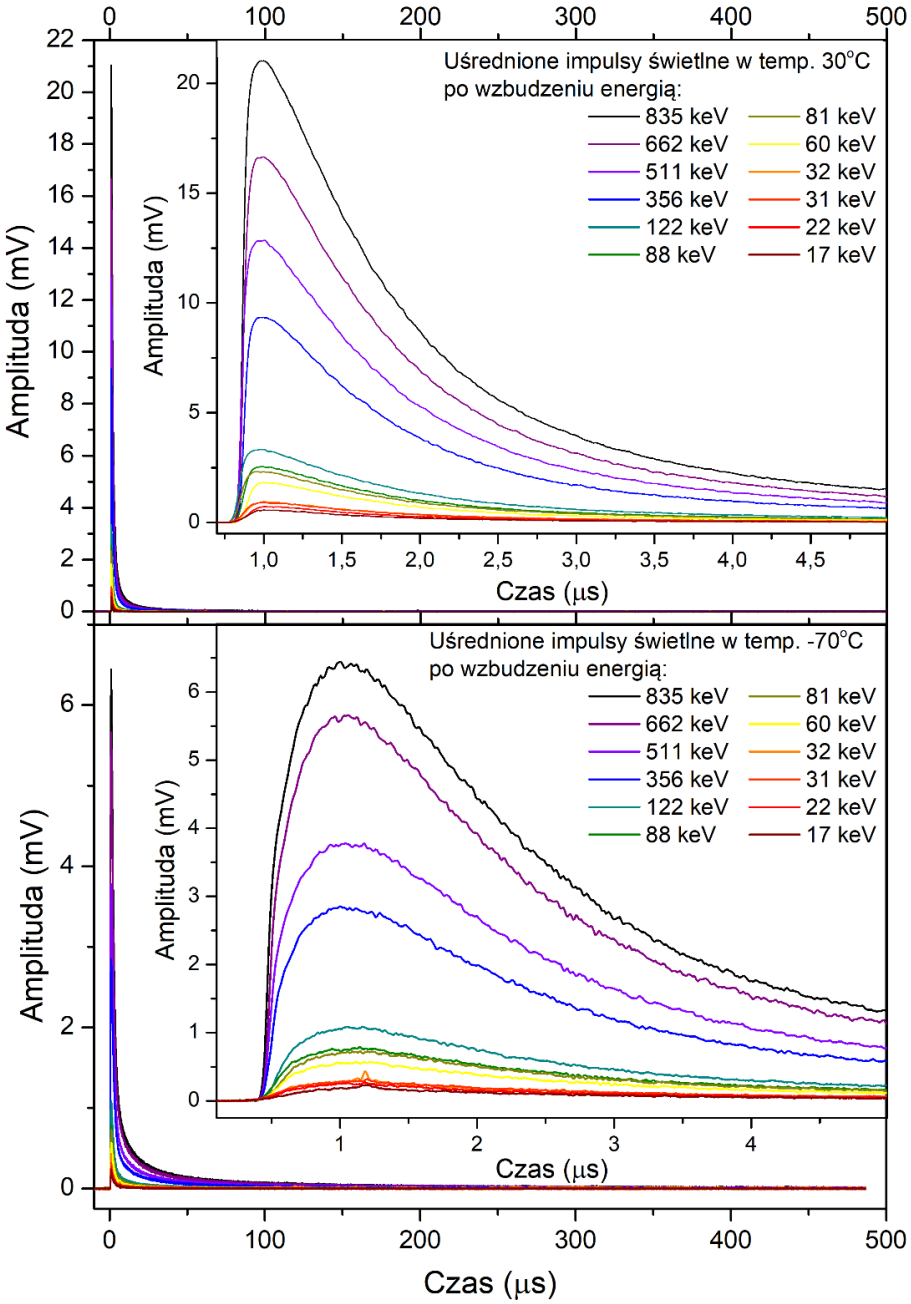
Rysunek 7.2.2. Uśrednione impulsy świetlne CsI:Tl o domieszce talu równej 0,051% wag. (ISMA) bramkowane pikiem pełnej energii (662 keV) dla temperatur w zakresie od 30°C do -70°C [74].

Na potrzeby bieżącej analizy impulsy świetlne był rejestrowane w zakresie czasowym do 500 µs, co odpowiadało, co najmniej pięciokrotnie dłuższemu zakresowi trwania impulsu niż w przypadku poprzednio prowadzonych eksperymentów [17, 28, 29, 71]. W sposób bezpośredni pokazuje to rysunek 7.2.3, gdzie dla czasu sięgającego 100 µs nie obserwuje się powrotu sygnału do poziomu linii bazowej.



Rysunek 7.2.3. Impulsy świetlne CsI:Tl z oknem na energii 662 keV w temperaturze 20°C i -70°C, z wyszczególnieniem obszaru linii bazowej (przed impulsem) oraz zaniku sygnału do 100 µs.

Na rysunku 7.2.4 pokazano zmianę intensywności sygnałów wraz ze spadkiem energii wzbudzenia oraz obniżeniem temperatury. Wydłużenie kształtów impulsów świetlnych z obniżeniem temperatury zaobserwowano w całym zakresie mierzonych energii.

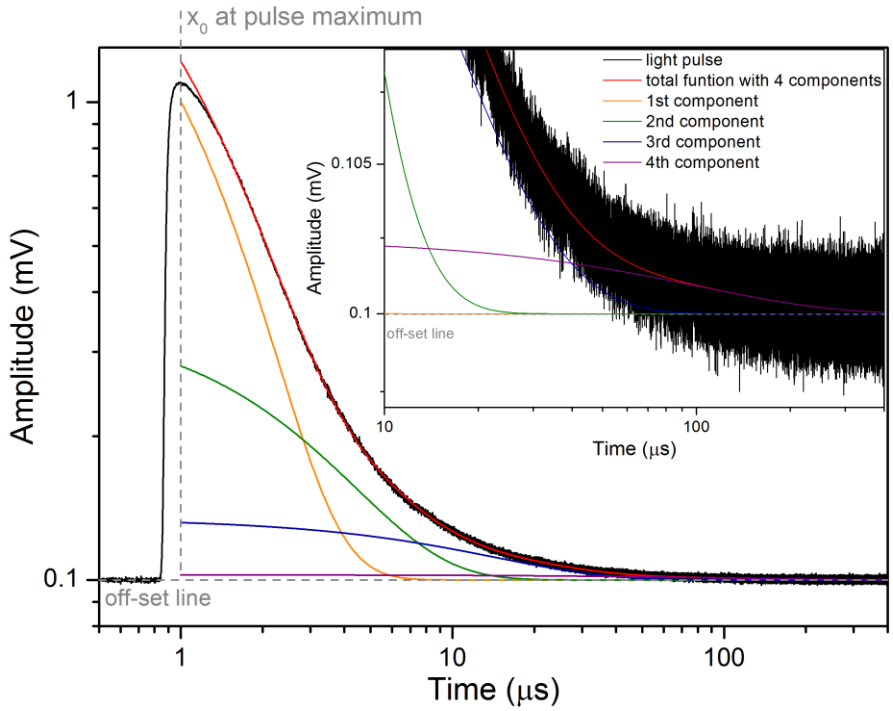


Rysunek 7.2.4. Uśrednione kształty impulsów scyntylacji kryształu CsI:Tl zmierzone dla temperatury 30°C i -70°C z zastosowaniem źródeł X i γ wybramkowanych na energiach od 17 keV do 835 keV. Scyntylator CsI:Tl o stężeniu Tl równym 0,051% wag. [74].

W kolejnym kroku prowadzonej analizy skupiono się na opisie zbocza opadającego zarejestrowanych uśrednionych impulsów świetlnych. Do jego opisu posłużono się równaniem 7.2.1, z trzema składowymi zaniku eksponencjalnego:

$$A(t) = y_0 + \sum_{i=1}^{n=3} A_i \cdot e^{\frac{-(t-t_0)}{\tau_i}} \qquad (7.2.1)$$

gdzie A_i i τ_i opisują odpowiednio amplitudę i czas zaniku i-tej składowej. Podczas procedury dopasowania, przesunięcie czasowe (t_0) i linia bazowa (y_0) były parametrami stałymi. Wartość pierwszego parametru opisywało położenie maksimum (t_0 = 1 μs) amplitudy zarejestrowanego sygnału. W przypadku parametru (y_0), jego wartość została określona przez dopasowanie stałej funkcji (y_0=const) do płaskiej części impulsu z obszaru sprzed początku narastania sygnału świetlnego (patrz rys. 7.2.5.).



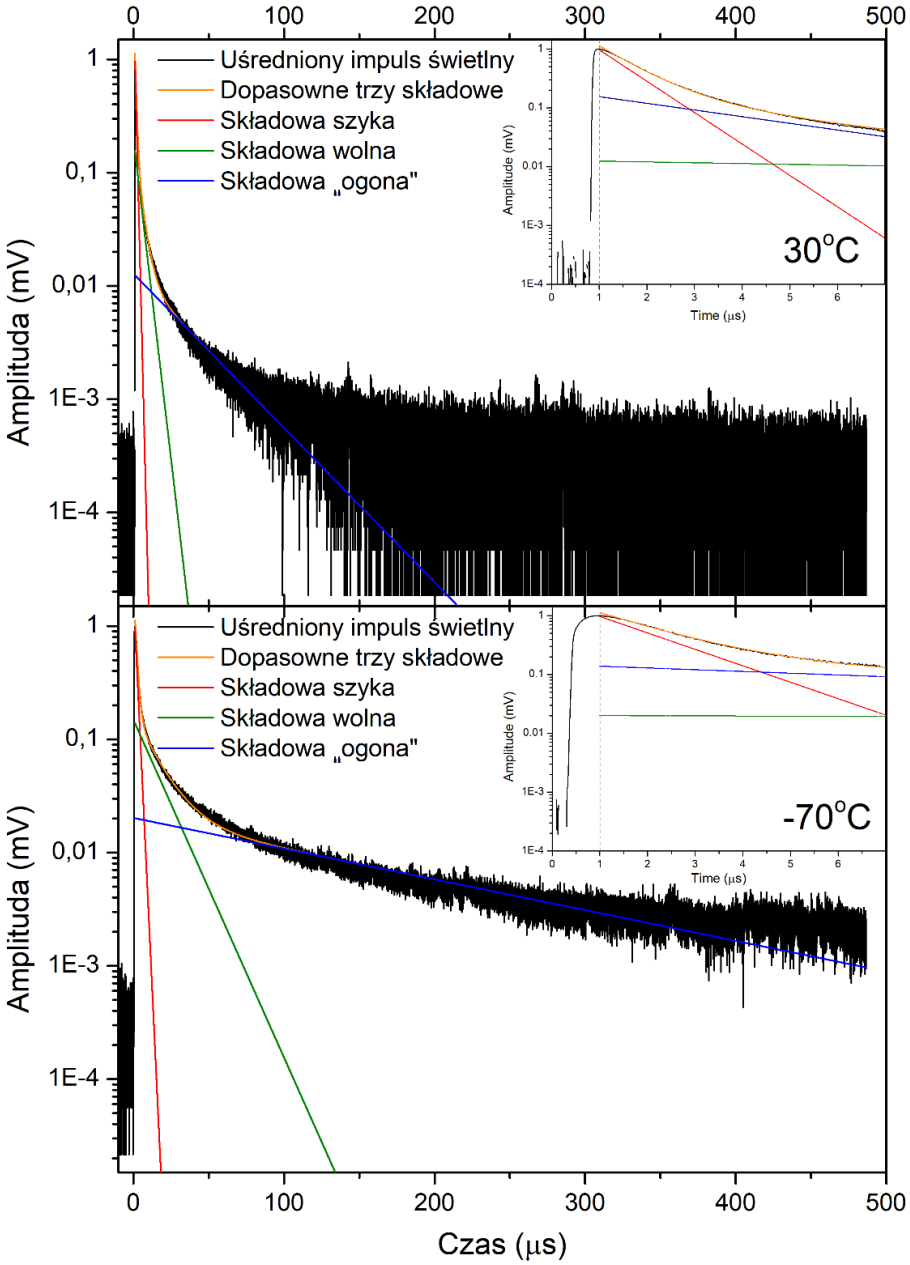
Rysunek 7.2.5. Przykład uśrednionego impuls świetlnego z dopasowanymi trzema składowymi zaniku scyntylacji [104].

W trakcie analizy rozważano zastosowanie dwóch lub czterech składowych zaniku impulsu świetlnego (n=2 lub n=4 w równaniu 7.2.1). Uznano jednak, że opis z zastosowaniem trzech składowych jest tu najbardziej trafny, ze względu na to, że:

- Dwie składowe zaniku nie opisują poprawnie „środkowej" części impulsu (środek obejmuje zakres kilku mikrosekund, licząc od początku narastania impulsu). Potwierdzono to poprzez systematyczną kontrolę różnic pomiędzy danymi zarejestrowanym sygnałem, a dopasowaną krzywą (ang. *residual distribution*).

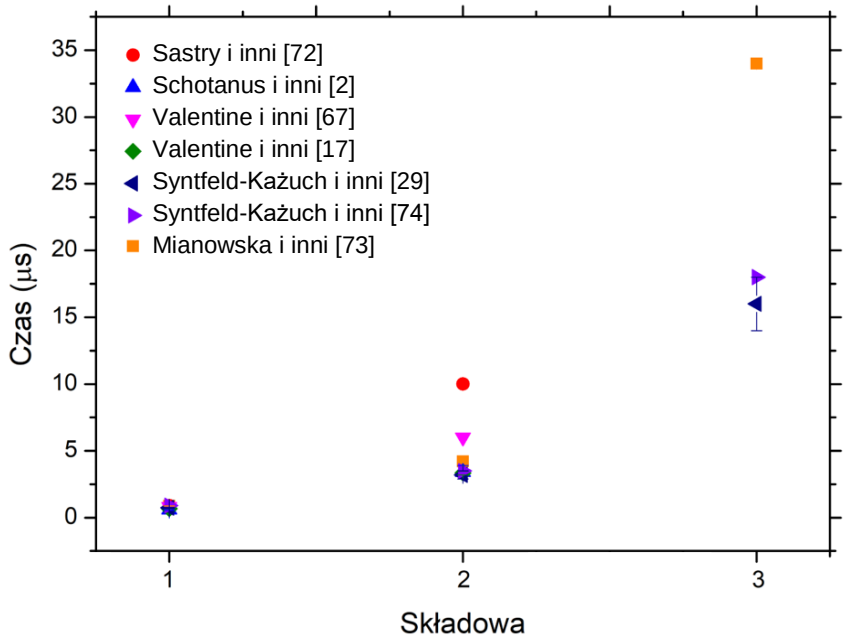
- Wartość amplitudy (A_4) dopasowane do impulsów świetlnych pochodzących od wzbudzenia energiami z zakresu 17–30 keV jest o dwa rzędy wielkości mniejsza niż wartość A_1 (osiąga wartości na poziomie 10^{-3}–10^{-4} mV). Jest to również poziom wartości odchylenia standardowego uzyskanego dla parametrów y_0 (poziom szumu).

Na rysunku 7.2.6. zaprezentowano dwa uśrednione impulsy zarejestrowane z zastosowaniem źródła ^{137}Cs w temperaturze 30°C i -70°C z zaznaczonymi wykładniczymi składowymi zaniku scyntylacji.



Rysunek 7.2.6. Uśrednione impulsy świetlne z dopasowaną krzywą opisującą zanik scyntylacji oraz jej trzema składowymi, zarejestrowane przy 30°C i -70°C dla energii 662 keV. W prawym górnym rogu pokazano początkowy obszar zaniku impulsu. W celu lepszego zaprezentowania poszczególnych składowych, dla osi amplitudy zastosowano skalę logarytmiczną [74].

Wyznaczone w temperaturze pokojowej składowe zaniku posiadają następujące wartości – składowa pierwsza (fast) 0,87 ± 0,01 μs, składowa druga (slow) 4,2 ± 0,1 μs, składowa trzecia (tail) 34,0 ± 0,2 μs. Wyniki uzyskane dla pierwszej i drugiej składowej są w dobrej zgodności z wcześniejszymi publikacjami [18, 68, 75]. Na rysunku 7.2.7 zaprezentowano zestawienie wartości składowych uzyskanych w niniejszej pracy wraz z wcześniejszymi odnośnikami literaturowymi, dotyczącymi badań w temperaturze pokojowej. Składowa trzecia w zakresie badanych temperatur jest tu co najmniej dwukrotnie większa niż ta wyznaczona w [29, 71]. Różnica ta może wynikać| z zastosowanej wydłużonej podstawy czasu zbierania sygnału świetlnego.

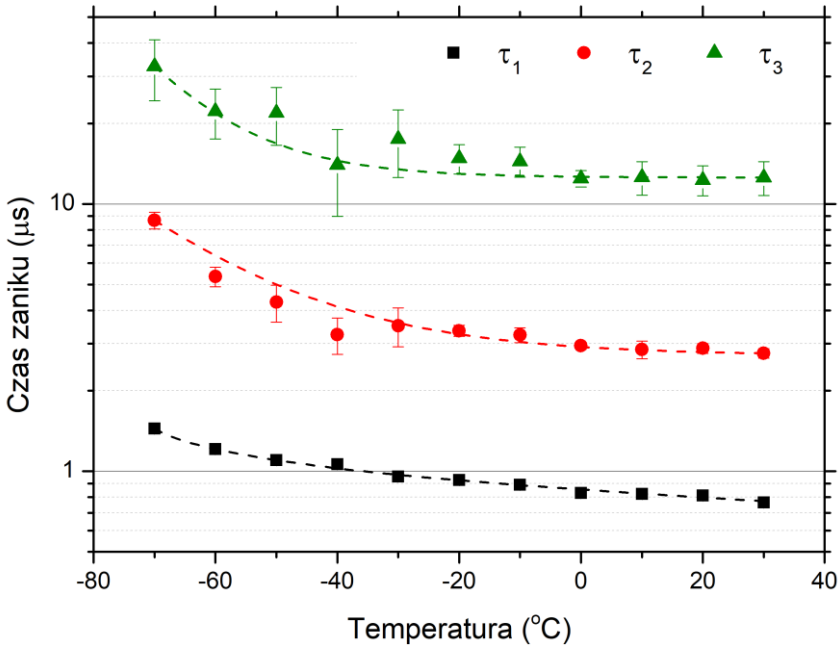


Rysunek 7.2.7. Zestawienie wartości składowych zaniku scyntylacji w CsI:Tl uzyskanych w niniejszej pracy wraz z porównaniem z wcześniejszymi odnośnikami literaturowymi.

W tabeli 7.2.1 oraz na rysunku 7.2.8 wyszczególniono czasy zaniku trzech składowych scyntylacji wraz z malejącą temperaturą, w której dokonany był pomiar. Wartości dotyczą analizy impulsów świetlnych po wzbudzeniu kwantami gamma o energii 662 keV. Zmianę wartości składowych wyrażono w procentach w odniesieniu do wartości uzyskiwanej w temperaturze 30°C.

Tabela 7.2.1. Czasy zaniku trzech składowych dla temperatur od 30°C do -70°C z procentową zmianą ich wartości względem 30°C [74].

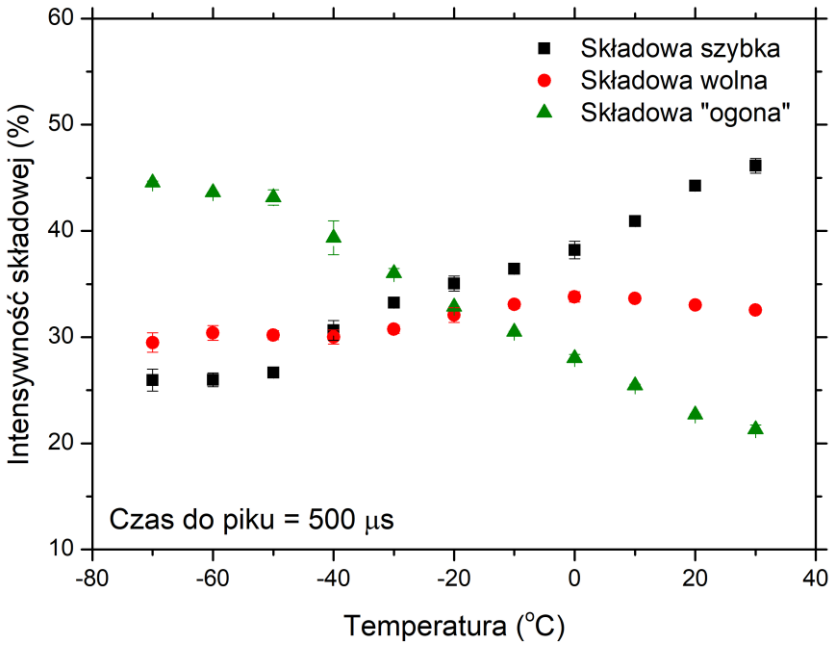
Temperatura (°C)	$\tau_1 \pm \Delta\tau_1$ (μs)	Zmiana (%)	$\tau_2 \pm \Delta\tau_2$ (μs)	Zmiana (%)	$\tau_3 \pm \Delta\tau_3$ (μs)	Zmiana (%)
30	0,84 ± 0,01	0	3,9 ± 0,1	0	31,8 ± 1,9	0
20	0,87 ± 0,01	4	4,2 ± 0,1	8	34,0 ± 0,2	7
10	0,89 ± 0,01	7	4,3 ± 0,1	9	32,8 ± 0,6	3
0	0,93 ± 0,01	11	4,6 ± 0,1	18	35,4 ± 0,6	11
-10	0,97 ± 0,01	16	5,0 ± 0,2	27	37,1 ± 3,8	17
-20	1,06 ± 0,01	27	6,0 ± 0,1	52	48,3 ± 2,7	52
-30	1,13 ± 0,01	35	6,4 ± 0,1	63	52,2 ± 1,3	64
-40	1,22 ± 0,03	46	6,8 ± 0,3	74	63,4 ± 4,7	99
-50	1,25 ± 0,01	50	7,6 ± 0,4	93	77,6 ± 8,3	144
-60	1,41 ± 0,02	68	10,3 ± 0,6	163	103,3 ± 13,5	225
-70	1,62 ± 0,03	93	14,3 ± 1,2	266	137,5 ± 30,1	332



Rysunek 7.2.8. Stałe zaniku scyntylacji w zakresie temperatur od 30°C do -70°C z krokiem, co 10°C. Dane są średnią dla kryształów z domieszką talu od 0,051% wag. do 0,13% wag., wzbudzonych energią 662 keV i z zastosowaniem czasu całkowania równego 500 μs [104].

Zarejestrowana zmiana kształtów impulsów świetlnych wraz z obniżeniem temperatury ma swoje odzwierciedlenie w wydłużających się wartościach czasów zaniku scyntylacji. W przypadku składowej szybkiej obserwujemy blisko dwukrotne wydłużenie wartości zaniku z 0,84 μs do 1,62 μs. Największe zmiany dotyczą jednak składowej wolnej (z 3,9 μs do 14,3 μs) oraz składowewj „ogona" (z 31,8 μs do 137,5 μs). Warto zwrócić uwagę, że w temperaturze poniżej -30°C wartość składowej τ_3 zaczyna przewyższać wartość 50 μs, co może wskazywać na to, że rejestracja sygnałów w niskich temperaturach może wymagać dodatkowego wydłużenia zakresu z jakim mierzone są impulsy nawet do 1 ms. W rozważaniach takich należałoby jednak wziąć pod uwagę wpływ szumów pochodzący od stosowanej elektroniki odczytu, włączając w to stosunek sygnału do szumu, szczególnie przy analizie sygnałów wzbudzonych energiami o wartościach poniżej 122 keV.

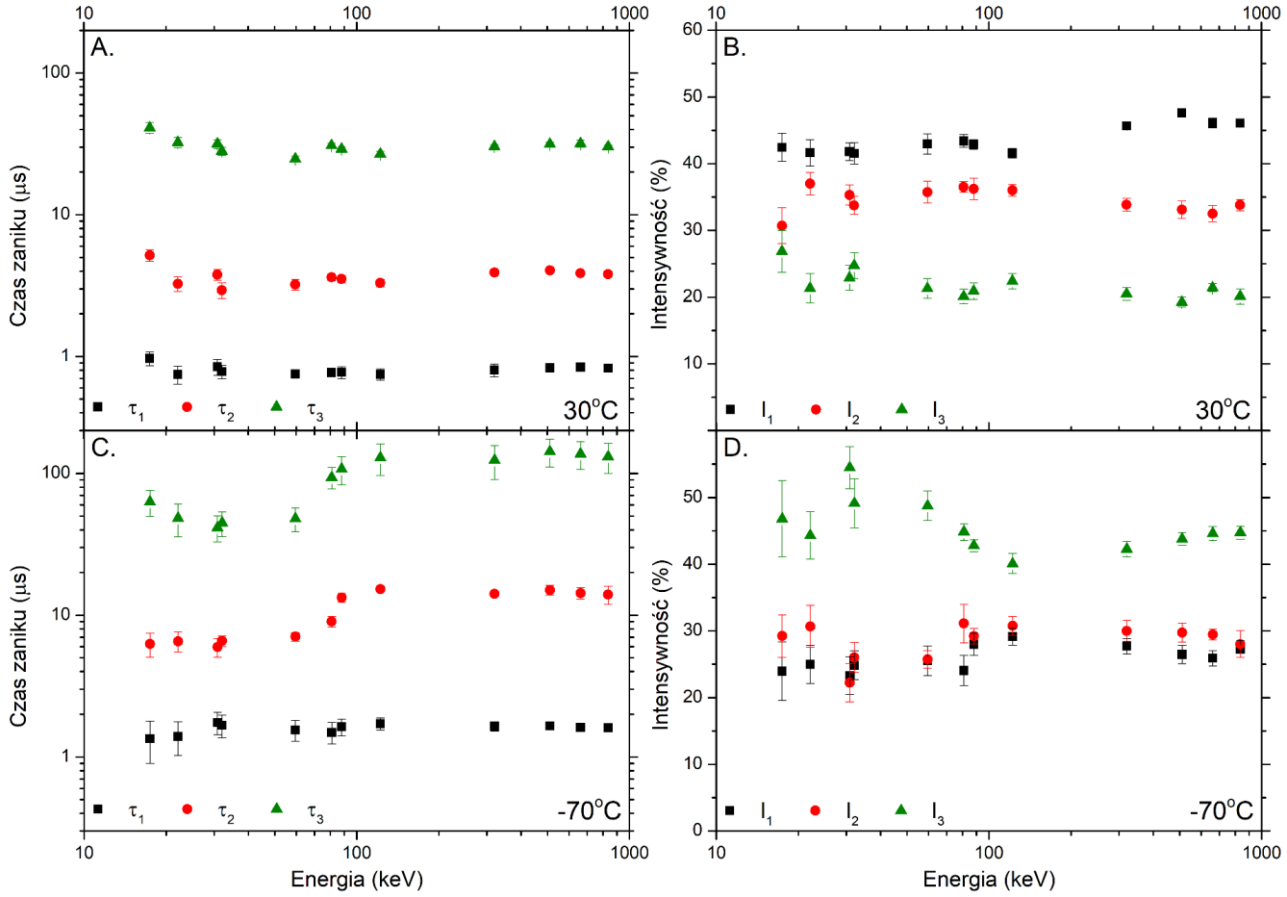
Zmiana temperatury wpływa również na intensywność składowych zaniku obliczonych zgodnie z równaniem 3.3.2. Na rysunku 7.2.9 pokazano, że chłodzenie kryształów CsI:Tl powoduje reorganizację udziału poszczególnych składowych w impulsie świetlnym. Intensywność składowej szybkiej zmniejsza się z 45% do 25%, a składowej „ogona" ulega zwiększeniu w zakresie od 20% do 45%. Udział jest składowej wolnej wydaje się nie być skorelowany ze zmianą temperatury w badanym zakresie i utrzymuje się na poziomie około 30%. W rejonie temperatur od -10°C do -30°C dochodzi do największych zmian we wzajemnym stosunku intensywności składowych.



Rysunek 7.2.9. Intensywności trzech składowych zaniku scyntylacji w funkcji temperatury [74].

W kolejnym kroku sprawdzono zależność wartości składowych zaniku scyntylacji względem energii zdeponowanej w krysztale. Na rysunku 7.2.10 zaprezentowano wartość składowych zaniku

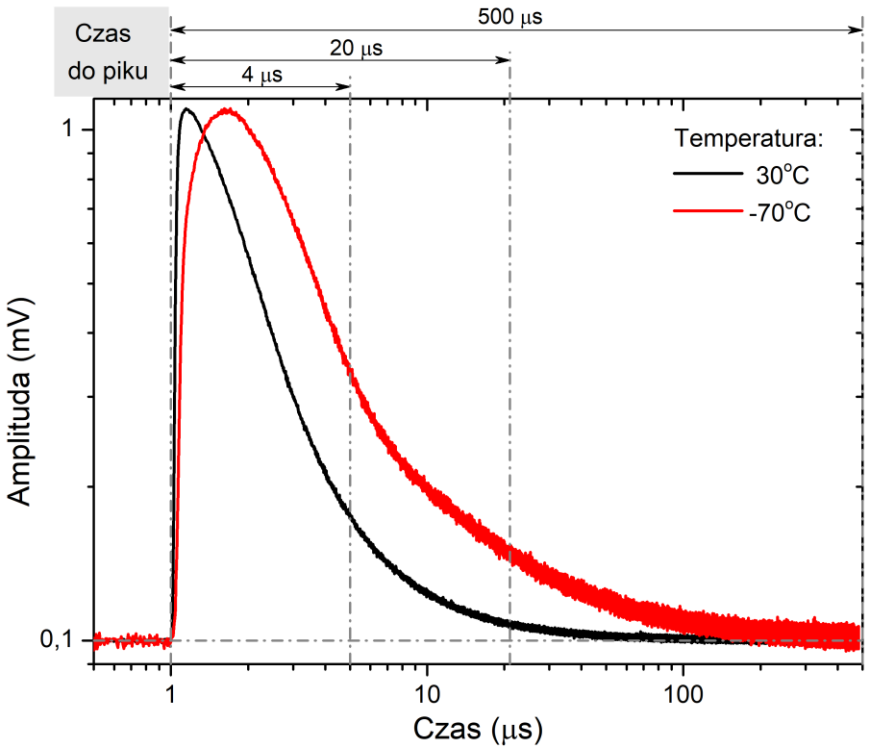
oraz ich intensywności dla dwóch skrajnych temperatur. W temperaturze 30°C stałe zaniku (rys. 7.2.10A) oraz ich intensywności (rys. 7.2.10B) wykazują stabilne zachowanie w zakresie energii 17-835 keV, a wszystkie obserwowane fluktuacje można wyjaśnić obliczonymi niepewnościami.



Rysunek 7.2.10. Składowe zaniku oraz ich intensywności w funkcji energii kwantów gamma w zakresie od 17 keV do 835 keV wyznaczone w temperaturze 30°C i -70°C. Dane uśrednion dla kryształów z domieszką Tl w zakresie od 0,051% wag. do 0,083% wag. [104].

Nieco inną sytuację obserwuje się dla -70°C, dla których w okolicach 100 keV pojawia się tendencja do spadku wartości składowych τ_2 i τ_3 dla niskich energii promieniowania (rys. 7.2.10C) oraz nieznacznej reorganizacji w intensywności składowej τ_1 i τ_3 (rys. 7.2.10D). Niemniej jednak tendencja ta powinna zostać dodatkowo przebadana ze względu na to, że impulsy świetlne dla energii poniżej 100 keV osiągają amplitudę poniżej 1 mV, a dla linii 17 – 32 keV nieznacznie przekraczają próg linii bazowej (patrz rys. 7.2.4). Z tego względu można przypuszczać, że zastosowany błąd pomiarowy będący odchyleniem średniej dla czterech kryształów o zbliżonej domieszce talu (od 0,051% wag. do 0,067% wag.) jest niedoszacowany lub że same wartości dopasowania są zakłócone wpływem szumu aparaturowego.

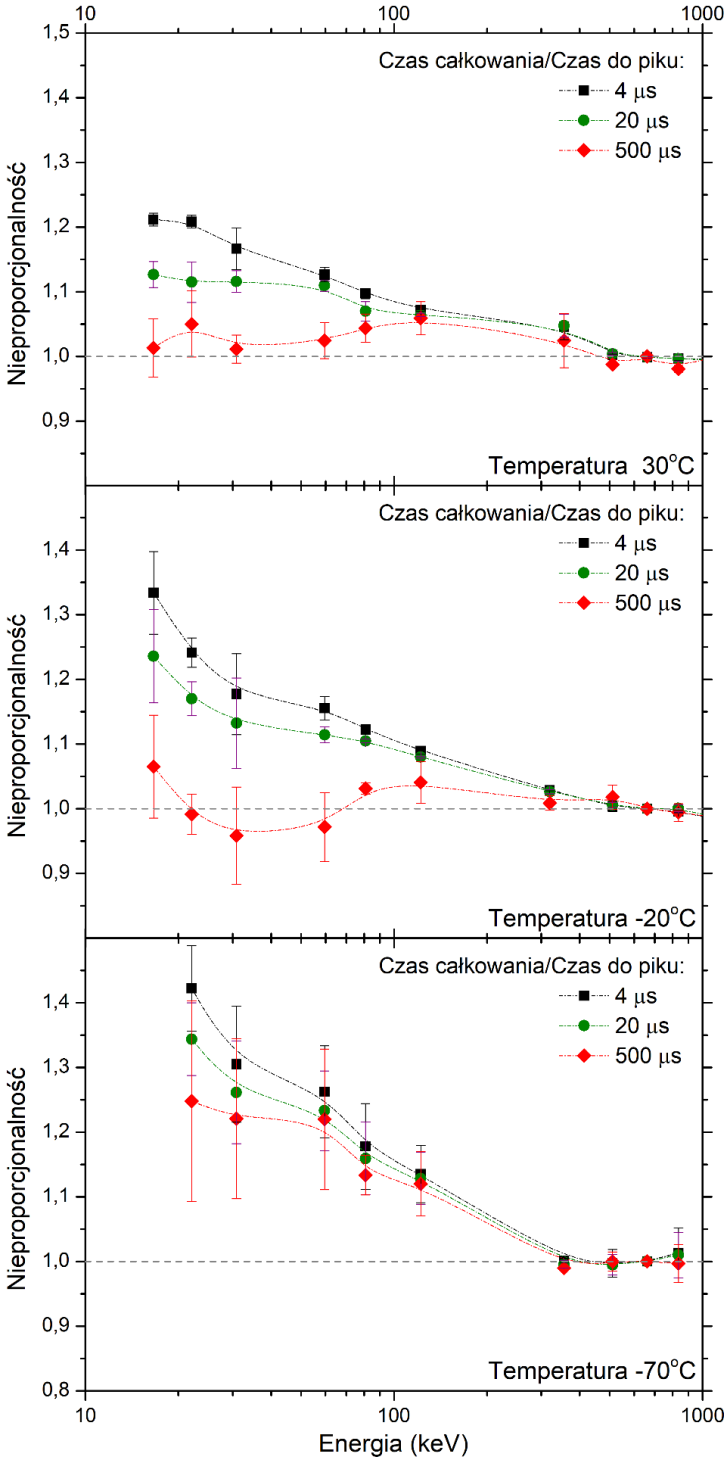
W kolejnym kroku przystąpiono do analizy charakterystyk nieproporcjonalności. W tym celu uśrednione impulsy świetlne scałkowano off-line w zakresie czasów od 4 μs do 500 μs. Na rysunku 7.2.11 pokazano przykładowe impulsy zarejestrowane w skrajnych temperaturach z zaznaczeniem wybranych obszarów całkowania, gdzie czasy całkowania równe 4 μs i 20 μs są adekwatnie do czasów do piku użytych w metodzie analogowej, 500 μs odpowiada maksymalnej długości impulsu zarejestrowanego w tej metodzie.



Rysunek 7.2.11 Prezentacja obszarów całkowania impulsów świetlnych zarejestrowanych w temperaturze 30°C i -70°C odpowiednio z czasem 4 μs, 20 μs i 500 μs [105]

Przedstawione na rysunku 7.2.12 charakterystyki NP pokazują ciągłą poprawę odpowiedzi świetlnej względem wydłużającej się podstawy czasu całkowania sygnału. Spośród nich najbardziej interesujące wydają się dane zebrane dla najdłuższego czasu całkowania (kolor czerwony) w temperaturze 30°C i -20°C. Odpowiedź kryształu CsI:Tl jest w tym przypadku prawie „płaska", niemal proporcjonalna, co można utożsamiać z pełnym „przecałkowaniem" odpowiedzi świetlnej CsI:Tl. Obserwacja ta może sugerować, że całkowita ilość światła emitowanego z CsI:Tl jest proporcjonalna do pochłoniętej energii, jednakże obecność wolnych składowych scyntylacji powoduje, że kształtowany i całkowany z zastosowaniem analogowego układu spektrometrycznego sygnał z CsI:Tl jest niedoszacowany (w szczególności dla wysokoenergetycznych impulsów). Podobnej zależności nie zaobserwowano w temperaturze -70°C. Pomiary wykonanej w tej

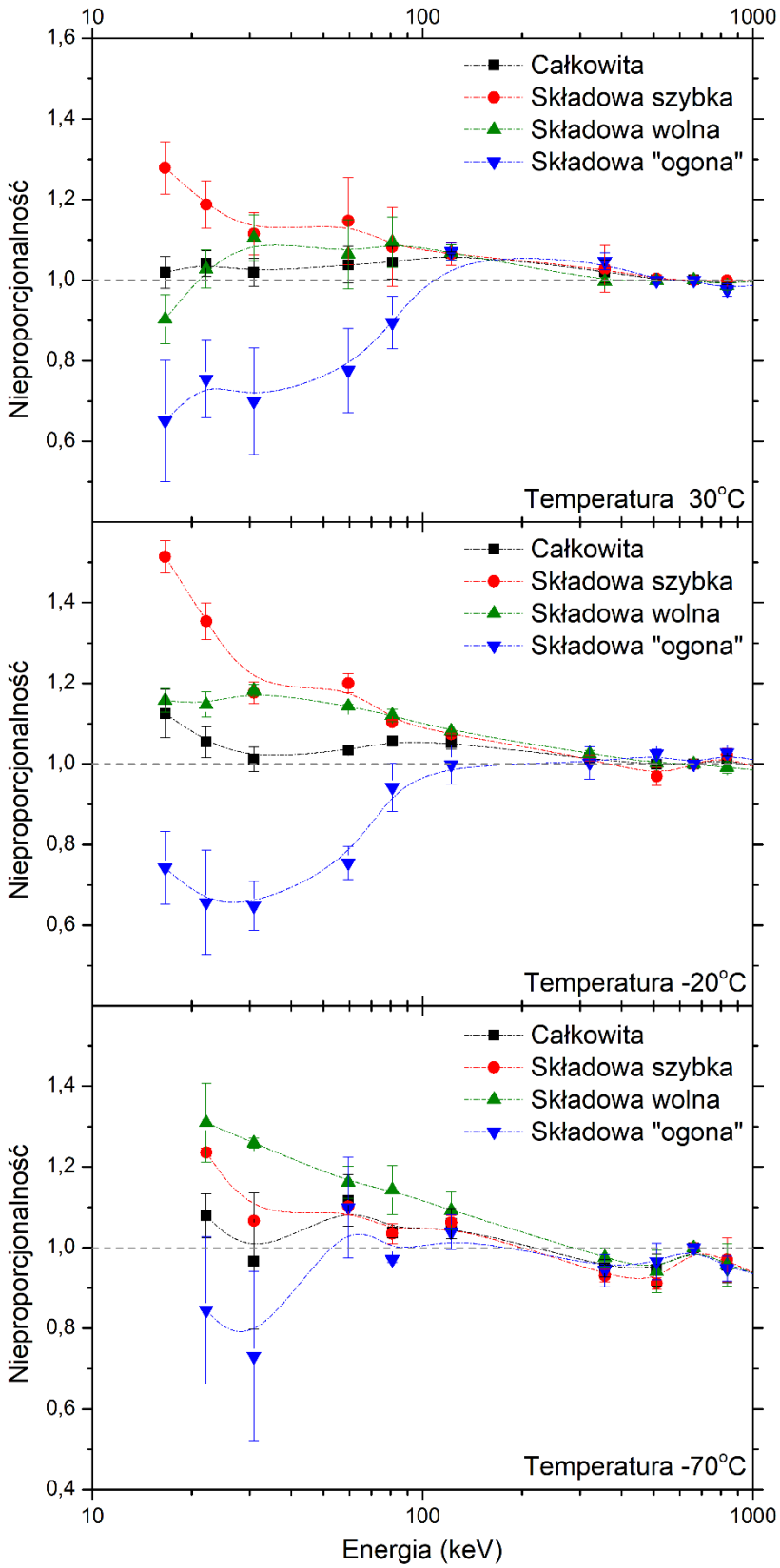
temperaturze mogą być obarczone dużymi błędami, które wynikają z ograniczeń fotopowielacza (zmniejszenie wydajność fotoelektronów w niskich temperaturach) i ograniczeń oscyloskopu (niewystarczająca rozdzielczość pionowa dla impulsów o małej amplitudzie, wewnętrzny szum oscyloskopu).



Rysunek 7.2.12. Nieproporcjonalność CsI:Tl zmierzona dla uśrednionych impulsów świetlnych w funkcji zmiennej podstawy całkowania sygnału dla trzech temperatur: 30°C, -20°C i -70°C [74].

Na rysunku 7.2.13 pokazano nieproporcjonalność trzech wyznaczonych składowych zaniku scyntylacji pochodzących z procedury dopasowania eksponencjalnych zaników do kształtu impulsów świetlnych zgodnie z równaniem 7.2.1. Wyznaczone wartości całek składowych ($A_i \cdot \tau_i$) odniesione do analogicznych wartości dla energii 662 keV przejawiają przeciwstawne trendy. W zakresie badanych temperatur składowe szybka i wolna odznaczają się położeniem krzywej NP powyżej jedności, podczas gdy składowa „ogona" wychyla się poniżej jedności. Obserwacja ta jest zgodna z pracą A. Syntfeld – Każuch i inni [28]. W przypadku składowej szybkiej i wolnej obserwujemy odwrócenie zależności nieproporcjonalności w temperaturze -70°C.

Może to być związane z reorganizacją intensywności składowych w okolicach temperatury -20°C (zgodnie z rysunkiem 7.2.9). Nieproporcjonalność składowej „ogona" jako jedyna przejawia niedomiar emitowanego światła względem ilości światła uzyskanej przy energii 662 keV i utrzymuje się na stałym poziomie w granicach błędu pomiarowego w całym zakresie stosowanych temperatur. Ponownie, całkowita ilość światła obliczona na podstawie sumy całek z poszczególnych składowych zaniku (czasu całkowania równego 500 μs) wykazuje proporcjonalną odpowiedź w zakresie temperatur od 30°C do -20°C. Należy zauważyć, że całkowita nieproporcjonalność obliczona w temperaturze -70°C przedstawiona na rysunku 7.2.12 (wyznaczona w oparciu o procedurę całkowania – cały obszar impulsu od narastania do opadania) jest nieproporcjonalna, zaś ta przedstawiona na rysunku 7.2.13 (wyznaczona w oparciu o procedurę dopasowania – całki wyłącznie z obszaru zaniku scyntylacji) odznacza się proporcjonalną odpowiedzią. Obserwacja ta może sugeruje, że sygnał narastania sygnału (obszar sprzed maksimum amplitudy) ma znaczenie dla wyliczeń proporcjonalności. Z drugiej strony można podejrzewać, że czas całkowania sygnału w przypadku niskich temperatur jest w dalszym ciągu zbyt krótki dla -70°C (τ_3 = 137,5 μs), a procedura dopasowywania, ze względu na mniejszą czułość, pozwoliła na zaobserwowanie zaniku nieproporcjonalności, jak pokazano to w wyższych temperaturach.



Rysunek 7.2.13. Nieproporcjonalność CsI:Tl zmierzona dla uśrednionych impulsów świetlnych wraz z nieproporcjonalnościami trzech składowych zaniku scyntylacji. Dane przeanalizowane dla trzech temperatur: 30°C, -20°C i -70°C oraz z czasem całkowania równym 500 μs [74].

Konkluzje do podrozdziału

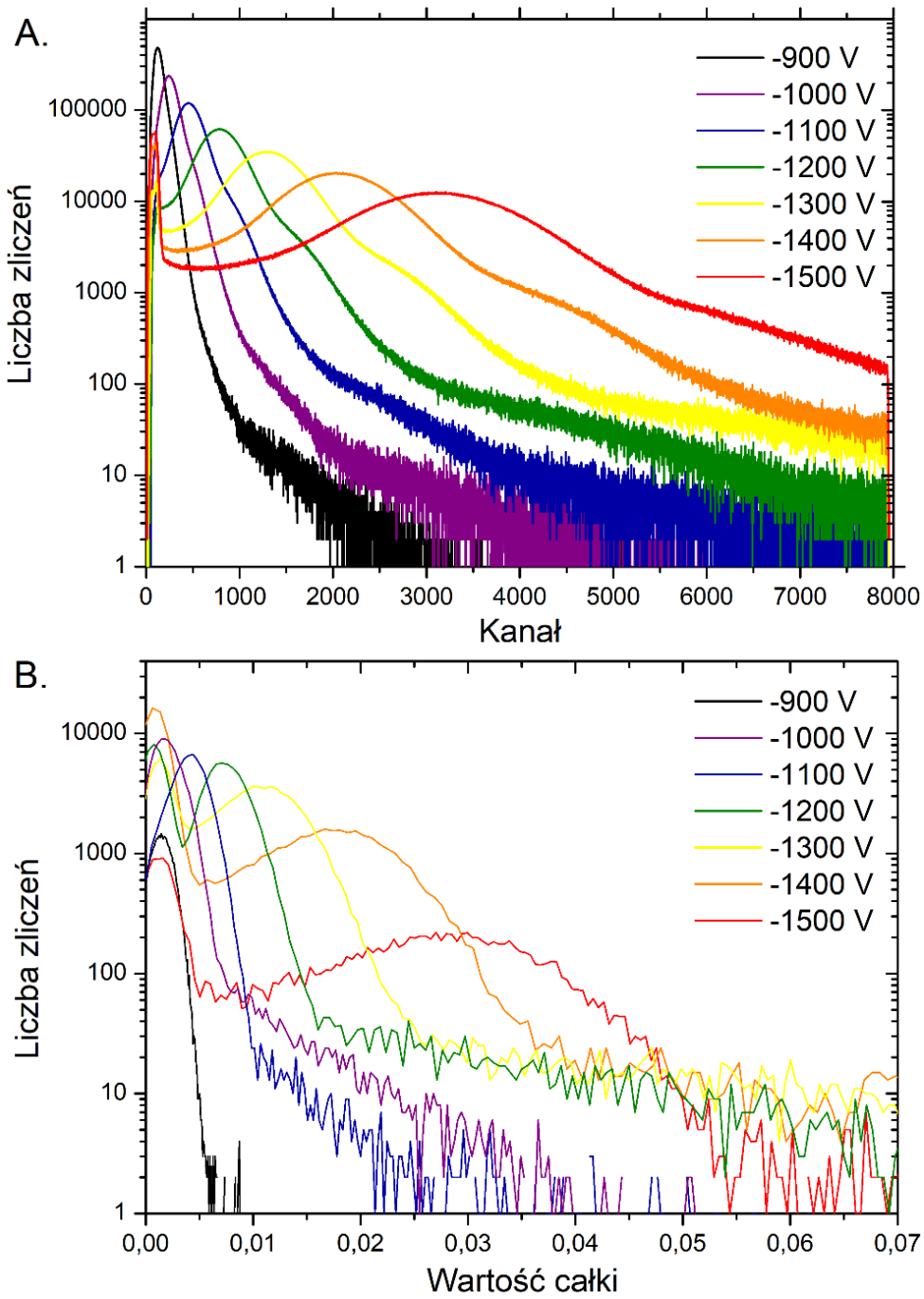
W drugim etapie badań zastosowano układ analogowo-cyfrowy umożliwiający rejestrację impulsów świetlnych scyntylacji CsI:Tl. Zarejestrowano uśrednione kształty impulsów świetlnych warunkowane zmiennymi wartościami temperatury i energi energii wzbudzenia (patrz rys. 7.2.2 i 7.2.3). Postanowiono podtrzymać tezę o istnieniu trzech składowych scyntylacji w kryształach CsI:Tl i z tym założeniem przeprowadzono analizę zaników impulsów świetlnych. Wykazano, że scyntylatory schłodzone z temperatury 30°C do -70°C odznaczają się wydłużaniem zaników ich scyntylacji, odpowiednio: τ_1 od 0,84 μs do 1,62 μs (93%), τ_2 od 3,9 μs do 14,3 μs (266%) i τ_3 od 31,8 μs do 137,5 μs (332%) – zgodnie z tabelą 7.2.1. Obserwacje te pokazują m.in. jak ważne jest prawidłowe ustawienie czasu całkowania w badaniach spektrometrycznych z zastosowaniem CsI:Tl. Krótkie podstawy czasów całkowania nie będą uwzględniać całego impulsu świetlnego, co wpłynie na niedoszacowanie wartości odpowiedzi świetlnej, ale również na otrzymywane wyniki energetycznej zdolności rozdzielczej, nieproporcjonalności, czy wyznaczane czasy zaników scyntylacji.

W podrozdziale określono również nieproporcjonalność trzech składowych scyntylacji, gdzie szybka i wolna (składowe pierwsza i druga) są dodatnie, podczas gdy „ogon" (składowa trzecia) ma charakterystykę ujemną (patrz rys. 7.2.13). Te przeciwstawne trendy zostały po raz pierwszy zaobserwowane w pracy [28]. Wykorzystanie wystarczająco długiego czasu całkowania, aby uwzględnić trendy kompensacyjne we wszystkich składnikach zaniku, mogą doprowadzić do proporcjonalnej odpowiedzi światła (patrz rys. 7.2.12 i 7.2.13). Wyniki sugerują, że dla przyszłych prac nad zachowaniem CsI:Tl i innych halogenków metali ziem alkalicznych należy zbadać odpowiedź świetlną z zastosowaniem długich podstaw czasu trwania impulsów, nawet sięgających do obszaru często związanego z poświatą. Pomiary takie będą ważne dla zrozumienia zjawiska nieproporcjonalności. Ponadto wymagana jest analiza pojedynczych sygnałów scyntylacji, by maksymalnie wyeliminować możliwość dodawania się do impulsów świetlnych zdarzeń niepożądanych. Niezbędna wydaje się również analiza wkładu szumu układu pomiarowego względem wydłużającej się podstawy czasu całkowania.

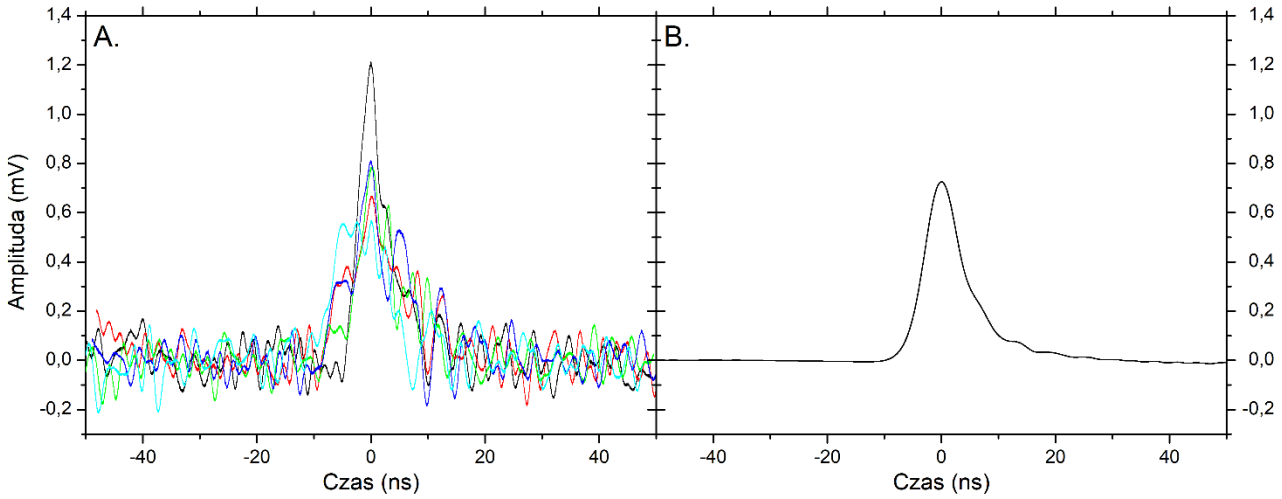
7.3. Wyniki uzyskane z zastosowaniem układu cyfrowego

Obserwacja zmiany/poprawy nieproporcjonalnej odpowiedź CsI:Tl (patrz rysunki 7.2.12, czy 7.2.13) z wykorzystaniem uśrednionych impulsów scyntylacji CsI:Tl scałkowanych z zastosowaniem długiej podstawy czasu spowodowały potrzebę rejestracji i analizy pojedynczych impulsów świetlnych z odczytem cyfrowym. Metoda pomiarowa zastosowana na tym etapie badań została przedstawiona w podrozdziale 6.4. W pierwszym etapie zarejestrowano charakterystyki pojedynczego fotoelektronu fotopowielacza XP5212/B. W drugiej części zebrano sygnały scyntylacyjne CsI:Tl w temperaturze 20°C i obliczono parametry spektrometryczne.

Jak już wspomniano wcześniej, pomiar odpowiedzi fotopowielacza (pojedynczego fotoelektronu) jest niezbędny w celu wyznaczenie ilości światła emitowanego przez materiał scyntylacyjny. Wyniki uzyskane z użyciem zaproponowanej tu techniki cyfrowej poddano weryfikacji w oparciu o metodą analogową zaprezentowaną w podrozdziale 7.1. Pomiary wykonano z zastosowaniem PMT w obszarze napięć zasilania od -900 V do -1500 V (zarówno dla układu cyfrowego, jak i analogowej). Na rysunku 7.3.1 przedstawiono widma energetyczne pojedynczego fotoelektronu zarejestrowane z zastosowaniem obu technik pomiarowych. Dla każdej wartości napięć, położenie pojedynczego fotoelektronu zostało określone przez dopasowanie sumy funkcji Gaussa i funkcji wykładniczych do widma SPHE. Rysunek pokazuje, że przy napięciu rzędu -1200 V dochodzi do jednoznacznego wydzielenia zdarzeń pojedynczego fotoelektronu z obszaru zdarzeń szumowych. Wzmocnienie sygnału PMT, wynikające ze wzrostu napięcia zasilania, porównano poprzez wyznaczenie położenia maksimów pików SPHE. W przypadku analogowym czas do piku ustawiono na 1 μs, co było najniższą dostępną wartością na wzmacniaczu spektroskopowym. W przypadku cyfrowym czas całkowania ustalono na 20 ns, co pokrywało czas trwania sygnału prądowego SPHE, co pokazano na rysunku 7.3.2, gdzie w części A przedstawiono impulsy prądowe pojedynczego fotoelektronu zarejestrowane w 20°C przy napięciu -1200 V oraz w części B - średnią z zarejestrowanych 100 prądowych zdarzeń typu SPHE.

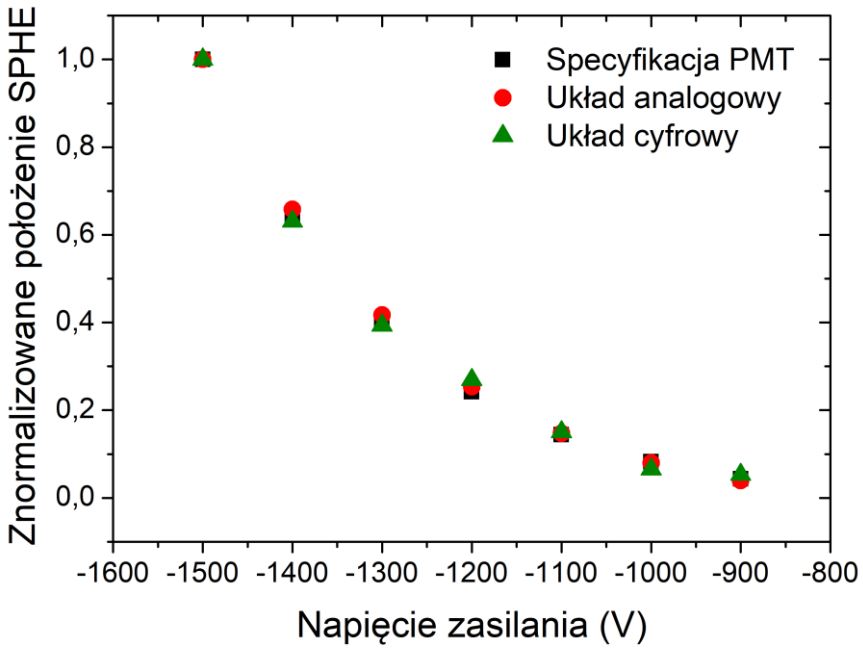


Rysunek 7.3.1. Widma pojedynczego fotoelektronu fotopowielacza XP5212/B wykonane przy użyciu (A) zestawu analogowego i (B) cyfrowego. Dane zbierano przy napięciach od -900 V do -1500 V. Różnice w poziomie fluktuacji wynikają ze statystyki (4 mln zliczeń na widmo w przypadku układu analogowego względem 100 tys. zliczeń w przypadku układu cyfrowego) [95].



Rysunek 7.3.2. Pojedyncze sygnały prądowe SPHE z fotopowielacza XP5212B zarejestrowany w 20°C (A) dla 100 sygnałów SPHE oraz (B) po ich uśrednieniu. Napięcie zasilania wynosiło -1200 V.

Na rysunku 7.3.3 przedstawiono wyniki dla obu metod oraz porównanie ich ze wzmocnieniem sygnału zaczerpniętym z karty katalogowej XP5212/B [87]. Wszystkie dane znormalizowano do wartości przy -1500 V.



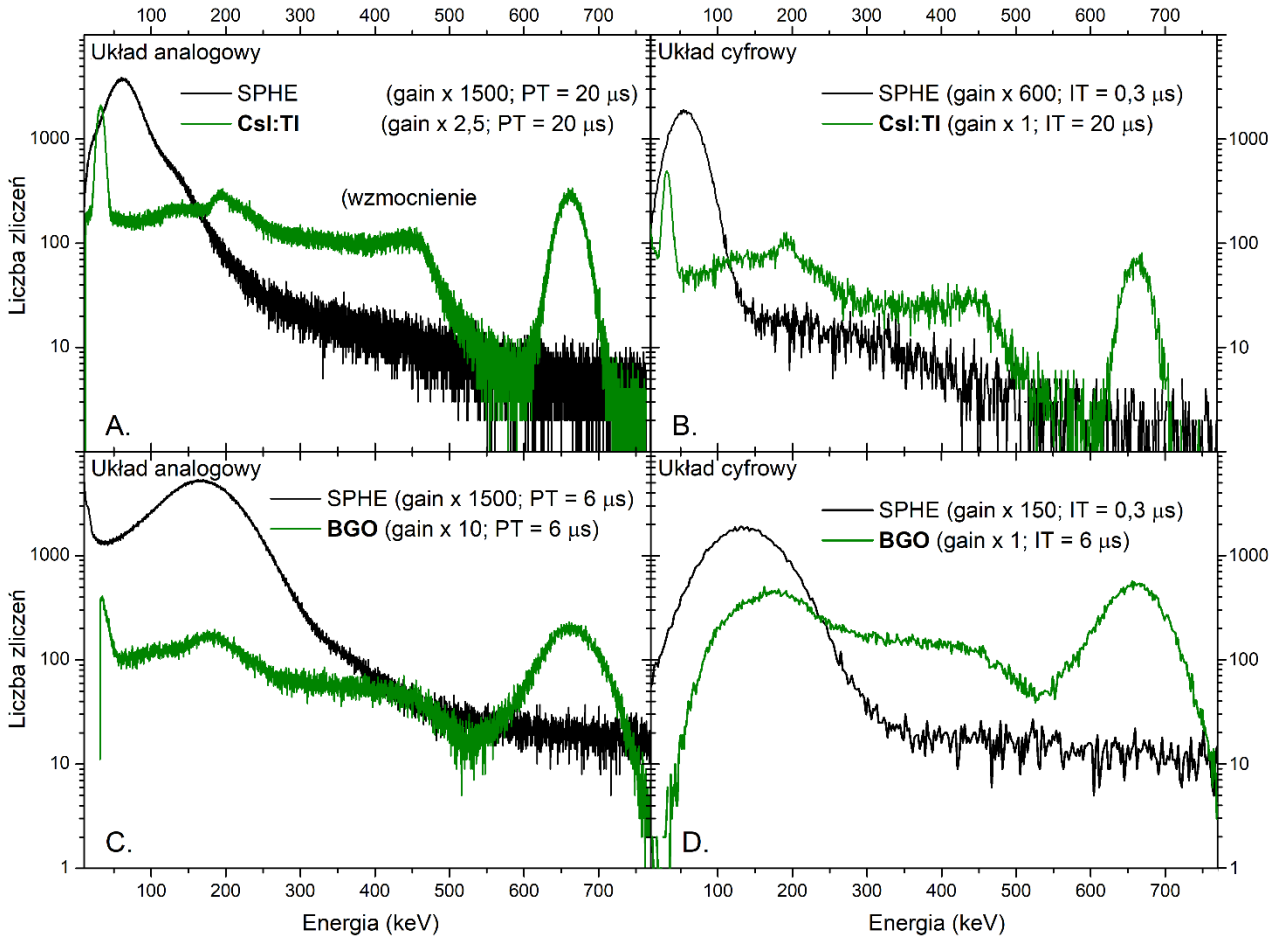
Rysunek 7.3.3. Porównanie pozycji pojedynczego fotoelektronu względem napięcia PMT dla techniki analogowej i cyfrowej w porównaniu ze specyfikacją PMT. Wszystkie dane zostały znormalizowane przy -1500 V [95].

Pozycje SPHE przedstawione na rysunku 7.3.3 pokrywają się ze wzmocnieniem sygnału ze specyfikacji PMT, niezależnie od zastosowanej metody. Przeprowadzone porównanie potwierdza, że metoda cyfrowa oparta o zebrane pojedyncze impulsy prądowe może być z powodzeniem stosowana do „budowy" właściwego widma energetycznego, co pozwala na poprawne przeprowadzenie charakteryzacji fotopowielacza.

Kolejnym krokiem było sprawdzenie, czy proponowana metoda cyfrowa jest właściwa do wyznaczania liczby fotoelektronów. W tym celu wybrano dwa klasyczne materiały scyntylacyjne CsI:Tl i BGO, a ich wartości liczby PHE zmierzono z zastosowaniem obu metod i przedstawiono w tabeli 7.3.1. Kryształ BGO został wybrany dodatkowo w eksperymencie, poza badanym CsI:Tl, by sprawdzić proponowaną technikę z użyciem scyntylatora charakteryzującego się krótszym czasem zaniku oraz pozbawionego efektu poświaty. Na rysunku 7.3.4 przedstawiono widma energetyczne CsI:Tl, BGO oraz widma pojedynczego fotoelektronu XP5212/B zmierzone techniką analogową (część A i C) oraz cyfrową (część B i D) przy napięciu -1200 V oraz z użyciem kwantów gamma o energii 662 keV i czasie całkowania (IT)/czasie do piku (PT) równym 20 μs. Widmo SPHE zostało zaprezentowane ze wzmocnieniem (ang. *gain*) odpowiednio razy czynnik 600 i 150, aby umożliwić prezentację obu widm na tym samym wykresie.

Tabela 7.3.1. Porównanie liczby fotoelektronów CsI:Tl mierzonej oscyloskopem i metodą analogową przy -1200 V z użyciem kwantów gamma o energii 662 keV i czasie całkowania/czasie do piku równym 20 μs.

Scyntylator	**Metoda analogowa**		**Metoda cyfrowa**	
	Liczba PHE (phe/MeV)	**ER przy 662keV (%)**	**Liczba PHE (phe/MeV)**	**ER przy 662keV (%)**
CsI:Tl	9900 ± 140	5,79 ± 0,23	10600 ± 300	5,64 ± 0,28
BGO	980 ± 20	12,20 ± 0,36	1080 ± 30	12,63 ± 0,38



Rysunek 7.3.4. Widma energetyczne CsI:Tl i BGO zarejestrowane po oddziaływaniu ze źródłem promieniotwórczym ^{137}Cs odpowiednio dla techniki analogowej (A i C) i cyfrowej (B i D) w porównaniu z rozkładami pojedynczego fotoelektronu fotopowielacza pomnożonymi przez współczynnik 600 i 150. Dane eksperymentalne uzyskany w 20°C [95].

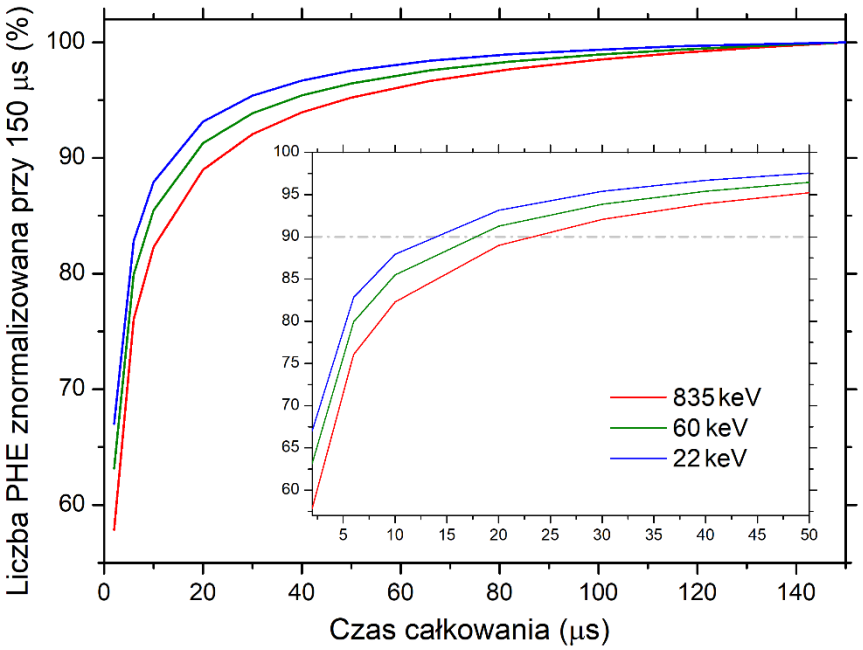
Technika cyfrowa i analogowa dają widma energetyczne o bardzo podobnych parametrach spektrometrycznych, takich jak energetyczna zdolność rozdzielcza, stosunek piku do Comptona i stosunku piku do całości zliczeń, co potwierdza przydatność techniki cyfrowej do dalszych badań kryształów CsI:Tl.

Zatwierdzoną technikę pomiarową wykorzystano następnie do pomiaru liczby fotoelektronów CsI:Tl w funkcji czasu całkowania. Tabela 7.3.2 podsumowuje wartości liczby PHE (wyrażone w fotoelektronach/MeV) uzyskane przy różnych czasach całkowania i wartości kwantów X i gamma o energiach: 22 keV, 122 keV, 356 keV i 662 keV.

Tabela 7.3.2. Liczby fotoelektronów wyrażona w fotoelektronach na MeV (phe/MeV) względem różnych czasów całkowania impulsów świetlnych [95].

Czas całkowania (μs)	**2**	**6**	**10**	**20**	**50**	**100**	**150**
CsI:Tl (phe/MeV) przy 662 keV	6240 ±160	8510 ±150	9260 ±160	10060 ±160	10790 ±180	11180 ±200	11350 ±220
CsI:Tl (phe/MeV) przy 356 keV	6350 ±200	8620 ±230	9390 ±250	10210 ±260	10980 ±290	11380 ±340	11560 ±390
CsI:Tl (phe/MeV) przy 122 keV	6740 ±310	9020 ±380	9750 ±410	10530 ±440	11290 ±480	11670 ±560	11850 ±670
CsI:Tl (phe/MeV) przy 22 keV	7580 ±460	9700 ±560	10340 ±600	10980 ±700	11550 ±1060	11810 ±1780	11900 ±2550

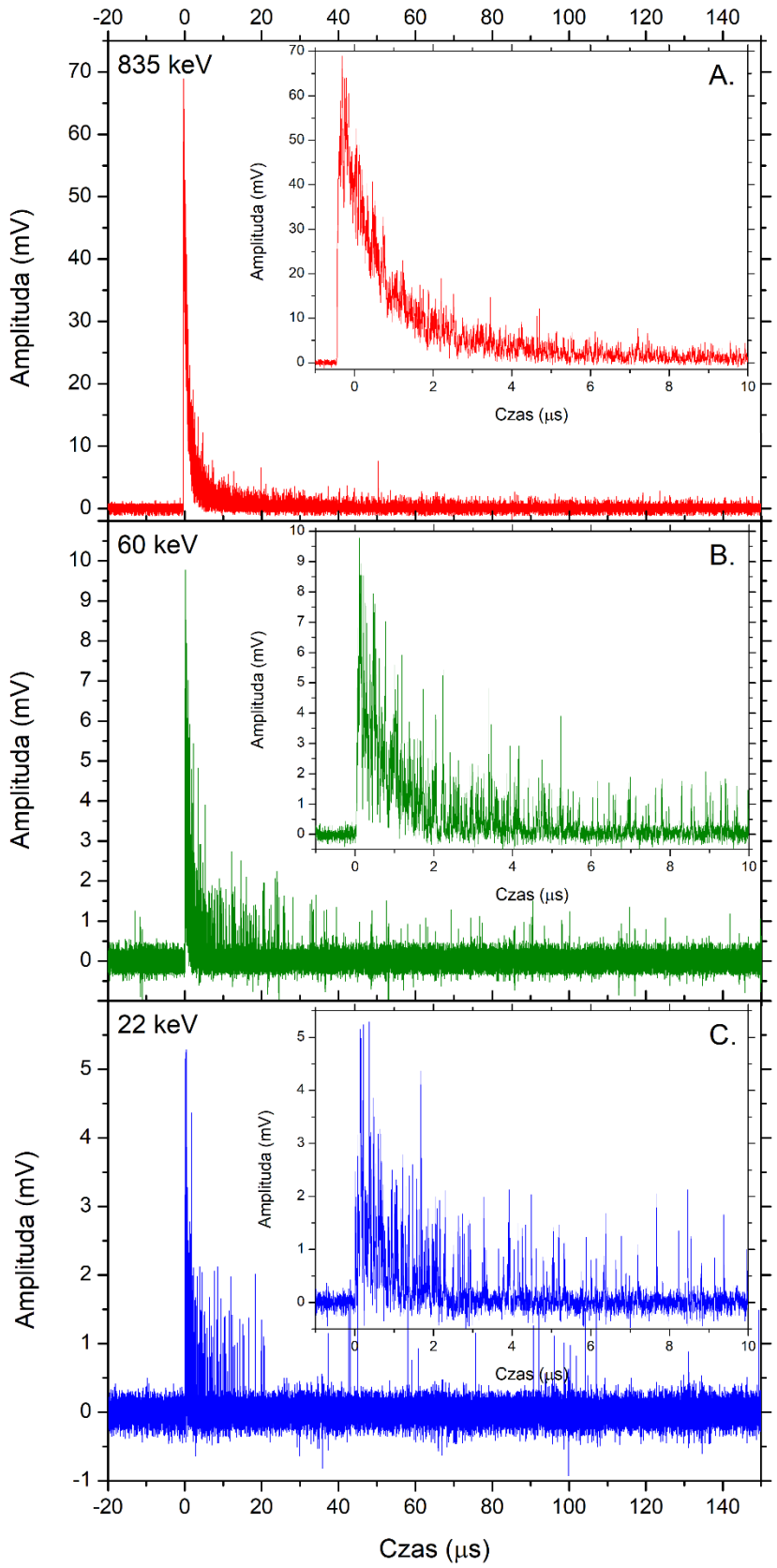
Przedstawione dane pokazują wzrost liczby PHE wraz z wydłużeniem czasu całkowania, ale także wzrost niepewności liczby fotoelektronów o około 2% dla 662 keV i 15-21% dla 22 keV przy 100-150 μs. Rysunek 7.3.5 przedstawia zmianę wzrostu ilości światła scyntylacyjnego w funkcji czasu całkowania, gdzie liczby PHE znormalizowano do wartości uzyskanej przy 150 μs, niezależnie dla każdej energii, i wyrażono w procentach. Krzywa pokazuje, że liczba PHE generowana przez niskoenergetyczne promieniowanie X lub gamma rośnie szybciej niż ta związana z absorpcją wyżej energetycznego promieniowania gamma, np. 90% wartości PHE (zaznaczonej szarą linią) jest osiągalne w czasie 14 μs w przypadku 22 keV, w 18 μs dla 60 keV oraz w 23 μs dla 835 keV. Co wydaje się być silnie skorelowane z amplitudą sygnałów i czasów zaniku scyntylacji.



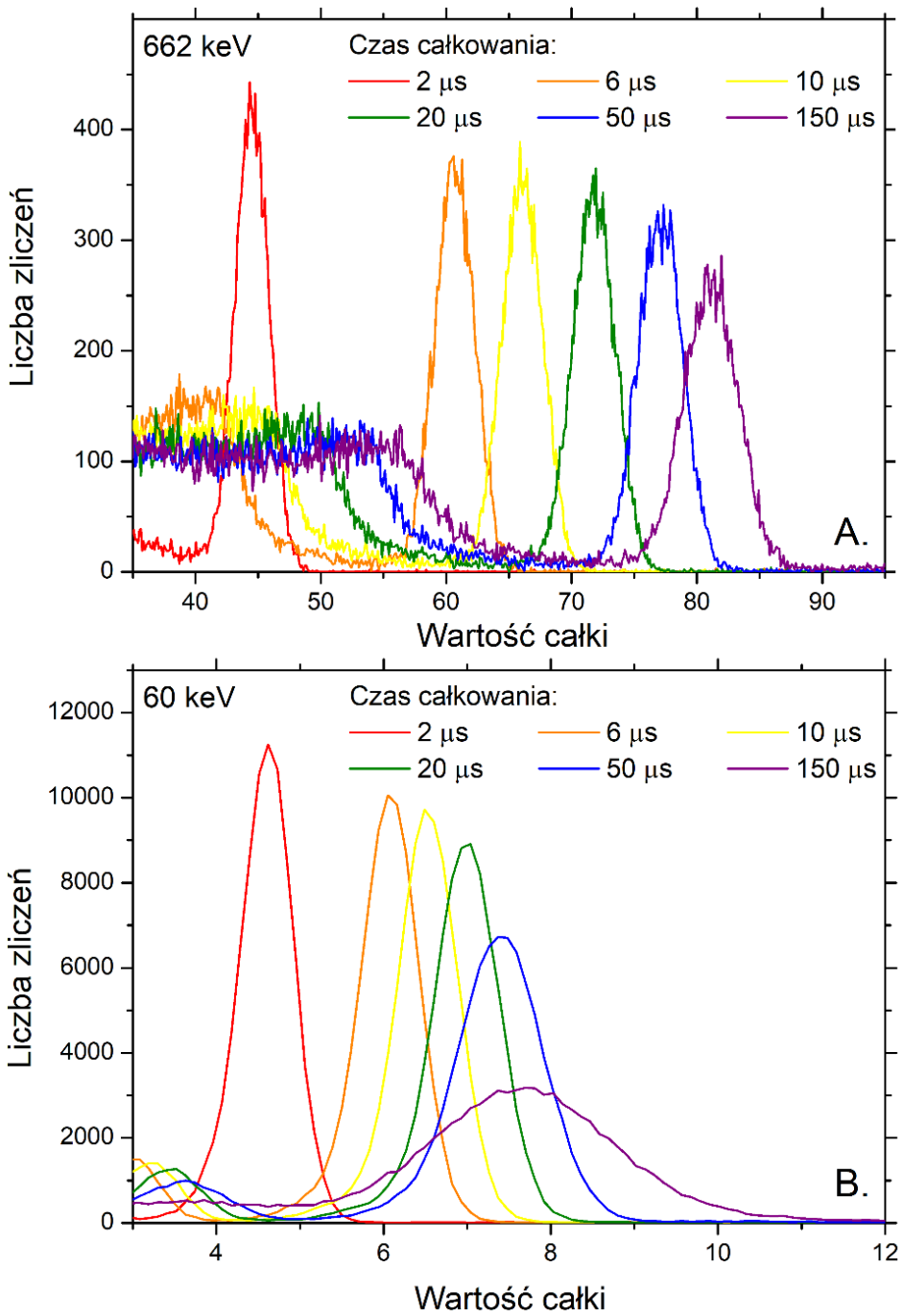
Rysunek 7.3.5. Liczba fotoelektronów w funkcji czasu całkowania i energii promieniowania gamma w zakresie 22 keV - 835 keV znormalizowane do wartości PHE uzyskanej przy 150 µs [95].

Przykłady pojedynczych sygnałów świetlnych pochodzących od wzbudzenia kwantami o energii 22 keV, 60 keV, 356 keV oraz 835 keV przedstawia rysunek 7.3.6. Obserwujemy, że im niższa wartość energii wzbudzenia tym większe fluktuacje sygnału są obserwowane. Na wykresach zaznaczono szarą przerywaną linią wartość czasu, dla której wartość całki sygnału świetlnego odpowiadała liczbie PHE równej 90% względem wartości dla 150 µs – zgodnie z rysunkiem 7.3.5.

Rejestracja 100 tys. pojedynczych zdarzeń scyntylacji dla danego źródła kalibracyjnego umożliwiała ponadto na budowę widm energetycznych w funkcji czasu całkowania. Użyta metoda pozwala przeanalizowanie położenia pików pełnej energii oraz szerokości piku w połowie wysokości maksimum. Na rys. 7.3.7 przedstawiono przykładowe widma energetyczne ^{137}Cs i ^{241}Am zmierzone w CsI:Tl dla czasów całkowania od 2 µs do 150 µs. Zaobserwowano przesunięcie położenia piku pełnej energii w kierunku wyższych kanałów wraz z wydłużeniem czasu całkowania (tak jak w przypadku techniki analogowej). Znajduje to odzwierciedlenie w rosnących wartościach liczby PHE zestawionych w tabeli 7.3.2.



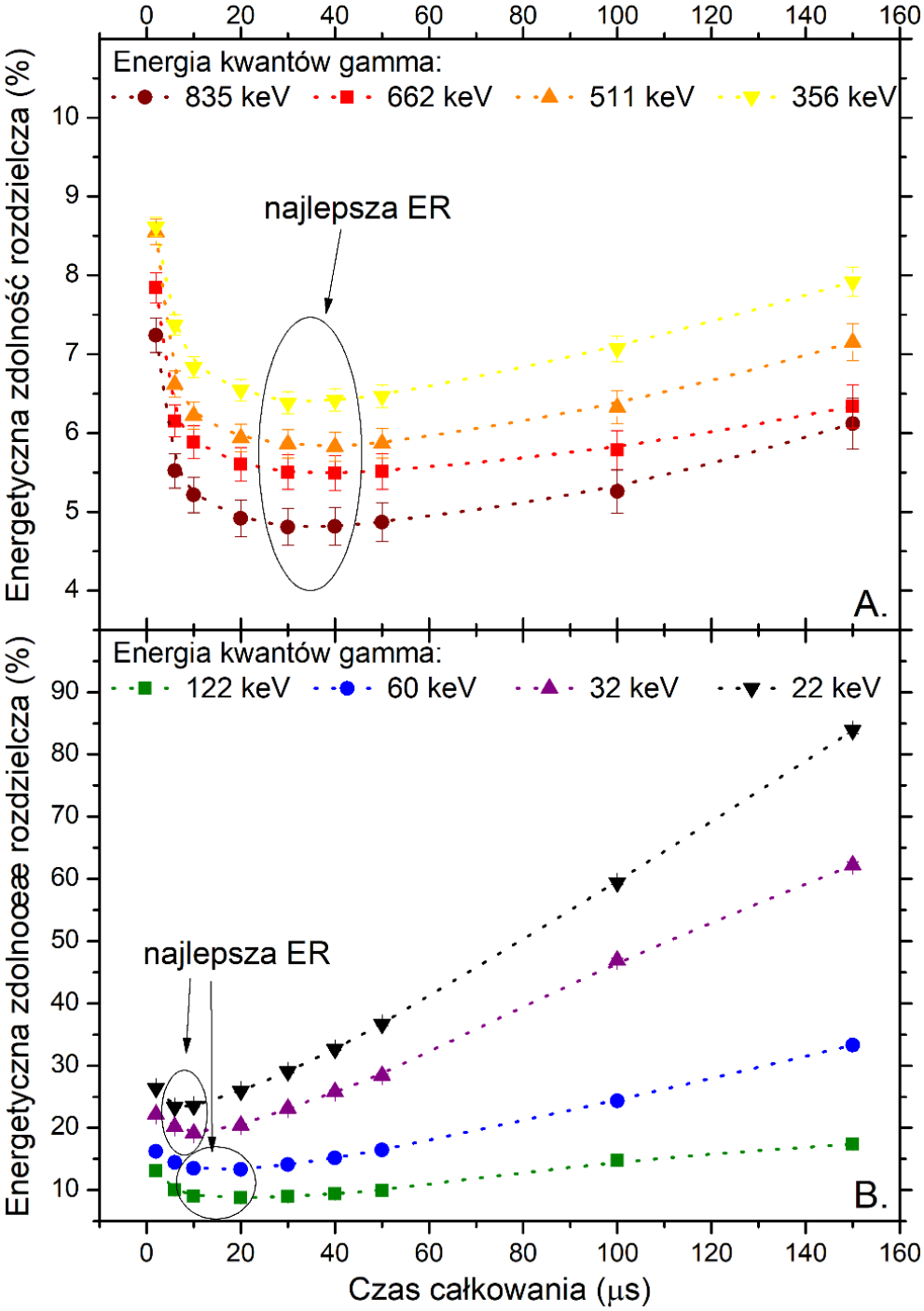
Rysunek 7.3.6. Przykłady pojedynczych sygnałów świetlnych CsI:Tl powstających po wzbudzeniu kwantami o energii 835 keV (A), 60 keV (B) oraz 22 keV (C).



Rysunek 7.3.7. Widma energetyczne CsI:Tl zmierzone za pomocą oscyloskopu i wygenerowane w analizie off-line surowych impulsów świetlnych przy użyciu czasów całkowania od 2 µs do 150 µs oraz z użyciem źródeł ^{137}Cs i ^{241}Am [95].

Analiza pokazała ponadto, że zmierzone wartości energetycznej zdolności rozdzielczej CsI:Tl prezentują optymalne wartości dla różnych czasów całkowania w zależności od energii zdeponowanej w krysztale (patrz rys. 7.3.8). ER osiąga najlepszą wartość dla czasu całkowania około 6-10 µs dla energii w zakresie od 22 keV do 32 keV, 15-20 µs przy 60-122 keV i 30-40 µs przy 356-835 keV. Przedziały czasów całkowania, w których obserwowana jest najlepsza

energetyczna zdolność rozdzielcza, odpowiadają najsilniejszemu przyrostowi całki impulsu świetlnego, zgodnie z rys. 7.3.5. Gdy liczba PHE w funkcji czasu całkowania zaczyna się stabilizować, energetyczna zdolność rozdzielcza stopniowo się pogarsza. Ta obserwacja była wcześniej niezauważona dla CsI:Tl.



Rysunek 7.3.8. Energetyczna zdolność rozdzielcza CsI:Tl wyznaczona w temperaturze 20°C w funkcji czasu całkowania oraz energii zdeponowanego promieniowania γ [95].

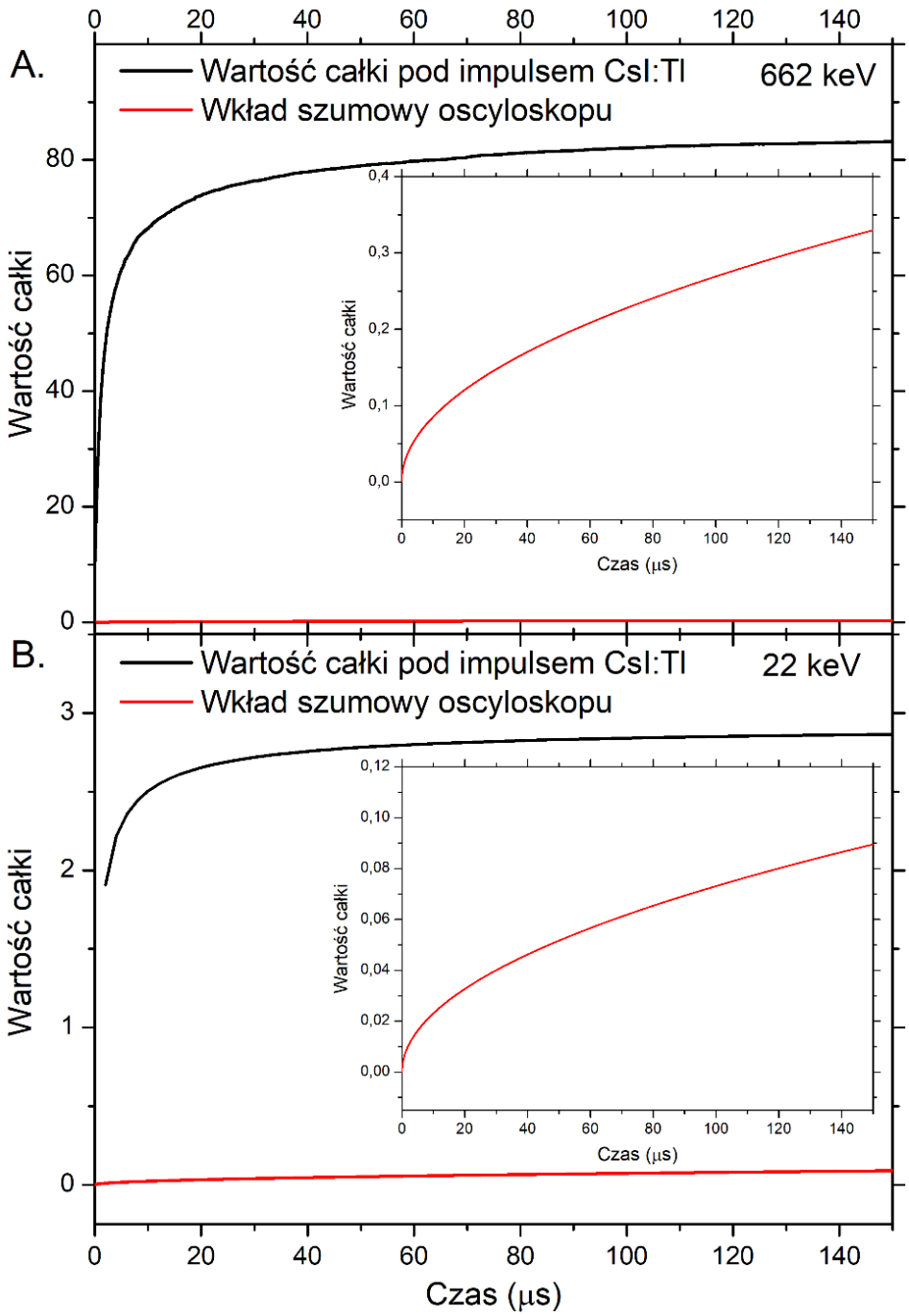
Na tym etapie badań istotne stało się określenie wpływu szumów całego toru pomiarowego (w ogólnym ujęciu: szumów elektroniki) na uzyskane wartości ER. Z tego powodu autorzy rozważyli różne wkłady, które wprowadzają swój przyczynek do końcowej wartości ER. Całkowitą rozdzielczość energii, ΔE/E, mierzoną za pomocą scyntylatora sprzężonego z fotopowielaczem określono rozszerzając definicję 3.6.3 o człon pochodzący od rozdzielczości szumu [106]:

$$ER^2 = {\delta_{sc}}^2 + {\delta_{st}}^2 + {\delta_t}^2 + {\delta_n}^2 \qquad (7.3.1)$$

Sama wartość szumów jest zwykle pomijana w typowych pomiarach analogowych ze względu na przetwarzanie impulsów świetlnych o krótkiej podstawie czasu, po etapie kształtowania i różniczkowania. W niniejszych badaniu zdecydowano jednak, że ze względu na zbieranie impulsów o długiej podstawie czasowej analiza wkładu szumowego powinna zostać przeprowadzona. Oszacowanie rozdzielczości szumowej przeprowadzono za pomocą dwóch różnych metod. Po pierwsze, udział szumu obliczono posługując się specyfikacją oscyloskopu i wyznaczono na podstawie równania 7.3.2 [107].

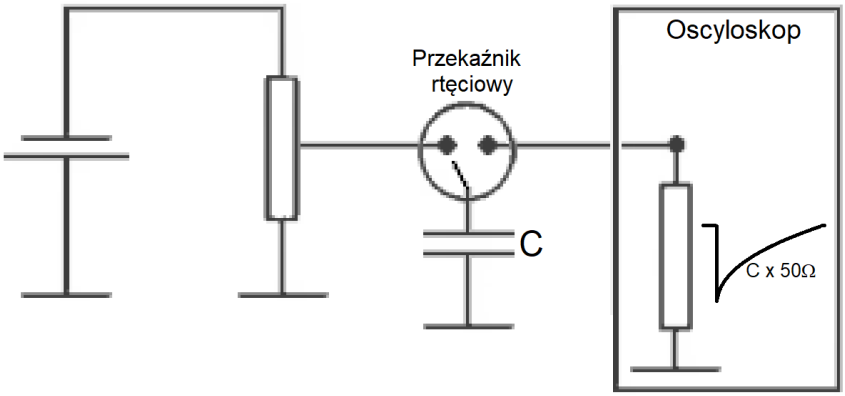
$$\delta_n^{osc} = \sqrt{r.m.s.^2 + {V_{ENOB}}^2} = \sqrt{r.m.s.^2 + \frac{(full\ voltage\ range\ for\ certain\ v/div)^2}{2^{7.8}}} \qquad (7.3.2)$$

gdzie r.m.s. to jedno odchylenie standardowe wyznaczone dla obszaru linii bazowej, V_{ENOB} to zakres pełnej skali napięcia podzielony przez efektywną liczbę bitów, czyli 7,8 dla Keysight DSOS104A. Przykłady obrazujące poziom propagacji szumu oscyloskopowego na tle uśrednionych impulsów scyntylacyjnych o energiach 662 keV i 22 keV pokazano na rysunku 7.3.9 jako czerwone linie. Szum dla energii 662 keV jest większy niż ten obserwowany przy 22 keV ze względu na zmienną czułość oscyloskopu względem zastosowanej podziałki pionowej (V/podziałkę). Widać wyraźnie, że wkłady szumowe obliczone za pomocą podstawowych parametrów oscyloskopu są praktycznie pomijalne.



Rysunek 7.3.9. Propagacja wkładu szumu oscyloskopu w uśrednionych impulsach scyntylacyjnych 662 keV (A) i 22 keV (B) wyznaczona zgodnie ze specyfikacją oscyloskopu [95].

Z tego powodu zdecydowano się na sprawdzenie wpływu szumu drugą metodą, w której do pomiaru udziału szumów elektroniki wykorzystano precyzyjny generator z przekaźnikiem rtęciowym ORTEC model 419 odznaczający się dużą liniowością impulsu w pełnym zakresie skali wynoszącą ± 0,1% [108]. Aby impuls wyjściowy ORTEC 419 bardziej odzwierciedlał kształt impulsu scyntylacyjnego, czas zaniku sygnału skrócono z początkowych 100 μs do 800 ns. Schemat układu generatora zaprezentowano na rysunku 7.3.10.

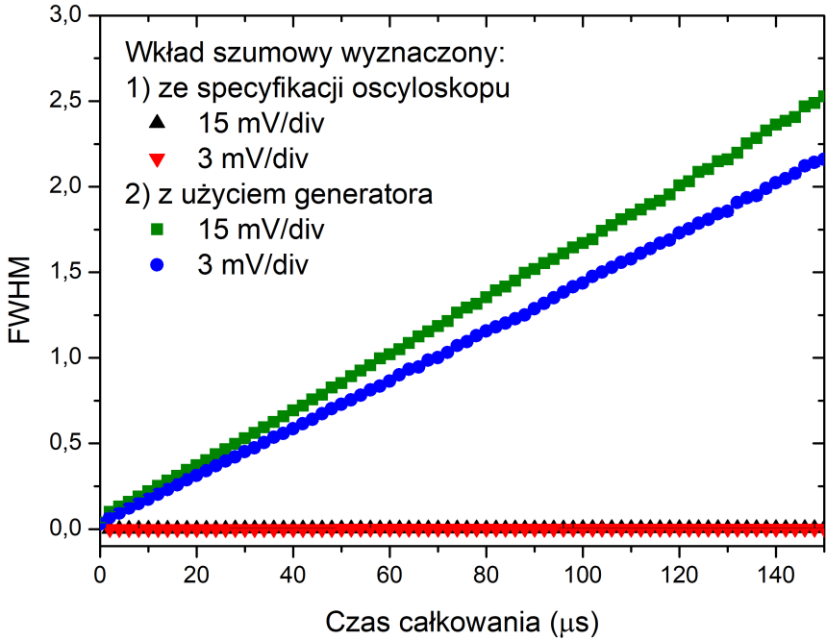


Rysunku 7.3.10. Poglądowy schemat generatora ORTEC 419, zgodnie z którym kondensator (C) naładowany do wybranego napięcia rozładowuje się ze stałą czasu C x 50 omów, generując impuls o zaniku eksponencjalnym.

Impulsy generatora były wysyłane na wejście oscyloskopu, a następnie zapisywane z różnymi ustawieniami skali V/działkę (przy tych samych ustawieniach, co przy akwizycji impulsów scyntylacyjnych) i analizowane przy różnym czasie całkowania. Wkład szumu generatora obliczono za pomocą równania 7.3.3.

$$\delta_n^{gen} = \frac{FWHM_{gen}}{x_{FEP}} \cdot 100\% \qquad (7.3.3)$$

gdzie $FWHM_{gen}$ odpowiada szerokości piku w połowie wysokości ze histogramowanych impulsów zarejestrowanych na wyjściu z generatora, a x_{FEP} jest położeniem centroidu pików pełnej energii na widmach energetycznych od zdarzeń scyntylacyjnych (analogicznie do równania 3.6.2). Należy pamiętać, że $FWHM_{gen}$ jest stały dla danej pary ustawień czasu całkowania i V/div, niezależnie od wartości wysokości impulsu świetlnego. Na rysunku 7.3.11 pokazano przyrost parametru FWHM z wydłużeniem czasu całkowania obliczonym obiema metodami przy 3 mV/działkę i 15 mV/działkę w skali pionowej. Wartości wkładu szumowego uzyskane z użyciem generatora są o około 150-500 razy wyższe niż w przypadku pierwszego scenariusza.



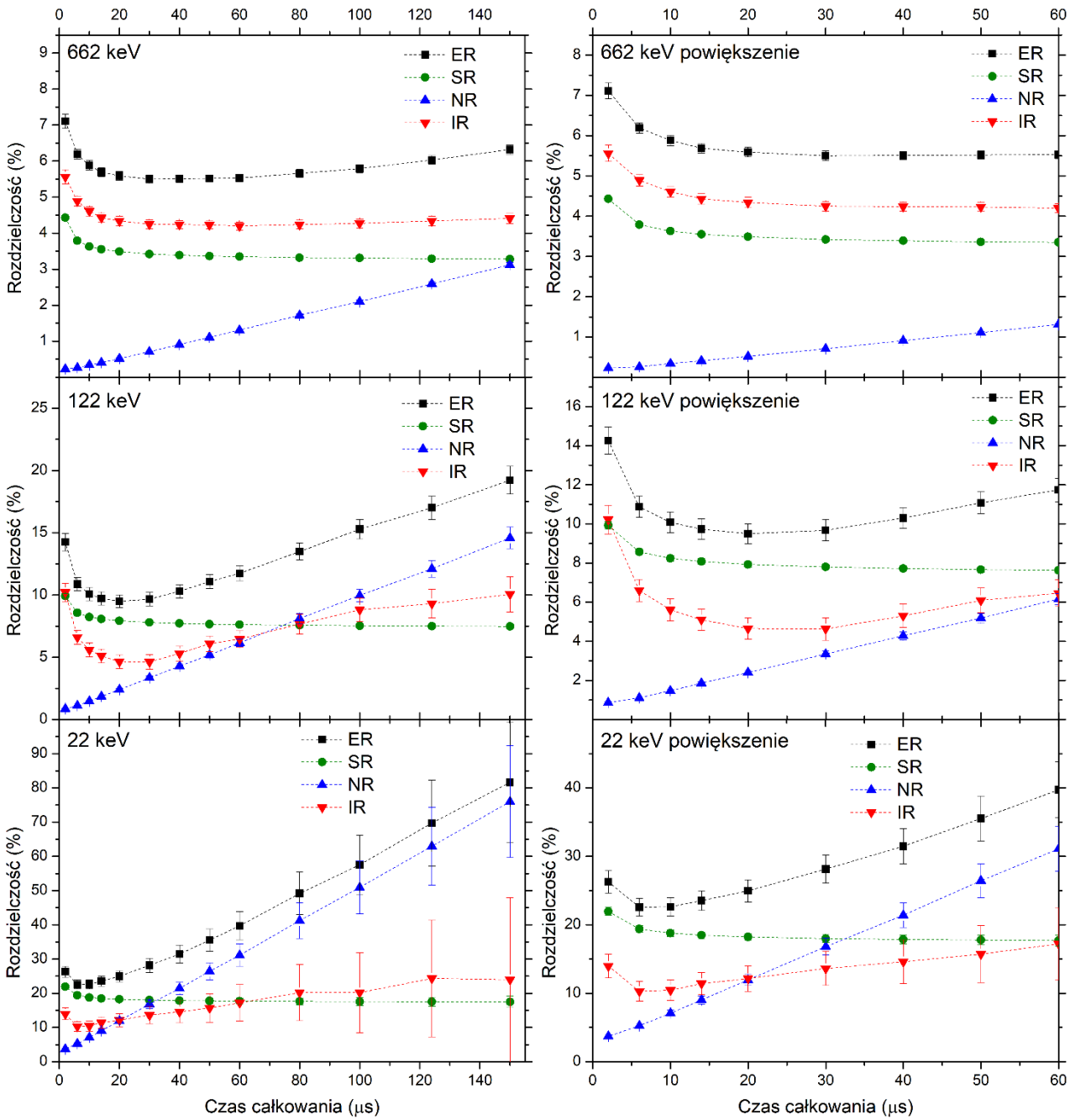
Rysunek 7.3.11. Wartości FWHM szumu w funkcji czasu całkowania przy 15 mV/działkę i 3 mV/działkę wyznaczone przy użyciu metody bazującej o specyfikację oscyloskopu i z zastosowaniem generatora [95].

W dalszej analizie zdecydowano się na wykorzystanie drugiego scenariusza szacowania wpływu szumowego, jako tego bardziej odzwierciedlającego rzeczywiste warunki pomiarowe, a zarazem maksymalnego. W związku z tym w prowadzonej analizie został on uwzględniony jako wkład szumowy δ_n^{gen}, co ostatecznie pozwoliło wyznaczyć ostateczną wartość wewnętrznej energetycznej zdolności rozdzielczej (zgodnie z równaniem 7.3.1). Wszystkie wkłady do ER przedstawiono w tabeli 7.3.3 i na rysunku 7.3.12

Wdrożenie wkładu statystycznego i szumowego spowodowało znaczną poprawę wartości IR względem początkowej zmierzonej wartości ER. Przede wszystkim widoczne jest „wypłaszczenie" charakterystyk IR ulega w zakresie długiego czasu całkowania. Niemniej jednak nadal widać, że IR osiąga swoje optymalne wartości, takie jak 4,23 ± 0,11% dla 662 keV i czasu całkowania 50 μs, 4,63 ± 0,58% dla 122 keV i czasu całkowania 30 μs oraz 10,3 ± 1,4% dla 22 keV i czasu całkowania 6 μs. Z rysunku 7.3.12 można również wywnioskować, że w przypadku impulsów świetlnych pochodzących od niskoenergetycznych kwantów gamma odpowiedź świetlna z CsI:Tl zaczyna być zaburzona wpływem układu pomiarowego już po upływie około 20 μs. Fluktuacje szumów elektroniki w mniejszym stopniu wpływają na oznaczenie parametrów spektrometrycznych dla impulsów o wyższej amplitudzie i wartościach całek (lepszy stosunek sygnału do szumu).

Tabela 7.3.3. Liczba fotoelektronów (wyrażona w fotoelektronach – phe), energetyczna zdolność rozdzielcza CsI:Tl wraz z jej wkładami po wzbudzeniu energią 662 keV, 122 keV i 22 keV, z użyciem wybranych czasów całkowania [95].

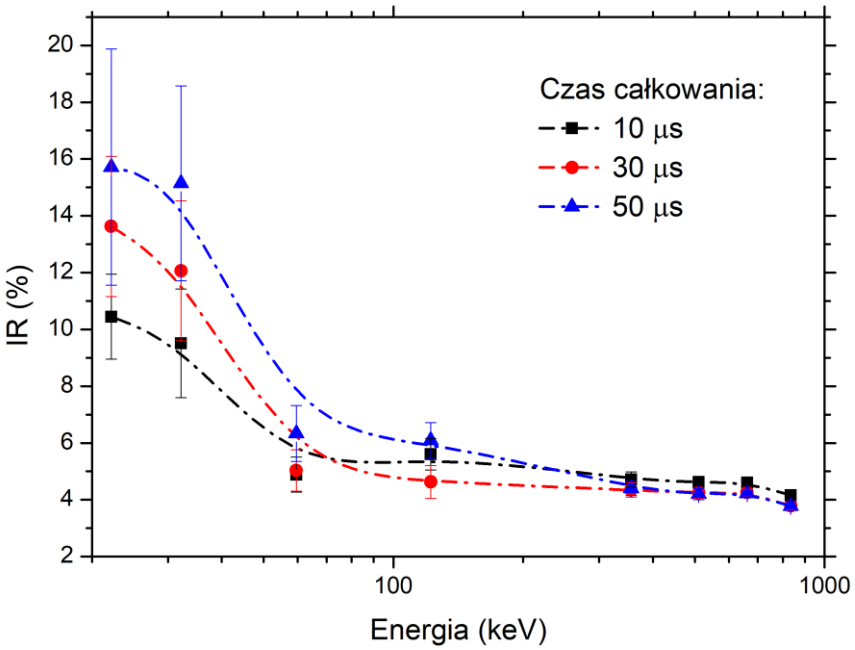
Czas całkowania (μs)	**Liczba PHE (phe)**	**ER (%)**	**SR (%)**	**NR (%)**	**IR (%)**
662 keV					
2	4130 ± 100	7,11 ± 0,20	4,425 ± 0,049	0,2254 ± 0,0060	5,56 ± 0,20
6	5630 ± 100	6,19 ± 0,13	3,790 ± 0,029	0,2621 ± 0,0053	4,89 ± 0,14
10	6130 ± 100	5,88 ± 0,13	3,633 ± 0,027	0,3351 ± 0,0070	4,61 ± 0,13
20	6650 ± 110	5,59 ± 0,12	3,486 ± 0,025	0,518 ± 0,010	4,34 ± 0,13
30	6900 ± 110	5,50 ± 0,12	3,424 ± 0,024	0,712 ± 0,015	4,25 ± 0,12
50	7140 ± 120	5,52 ± 0,10	3,365 ± 0,024	1,106 ± 0,024	4,23 ± 0,11
100	7390 ± 130	5,79 ± 0,11	3,307 ± 0,025	2,096 ± 0,047	4,27 ± 0,12
150	7510 ± 140	6,32 ± 0,13	3,282 ± 0,027	3,122 ± 0,071	4,41 ± 0,15
122 keV					
2	820 ± 40	14,26 ± 0,70	9,92 ± 0,20	0,861 ± 0,042	10,22 ± 0,73
6	1100 ± 50	10,87 ± 0,54	8,57 ± 0,16	1,114 ± 0,052	6,60 ± 0,56
10	1190 ± 50	10,08 ± 0,53	8,24 ± 0,15	1,472 ± 0,068	5,61 ± 0,56
20	1290 ± 50	9,50 ± 0,51	7,93 ± 0,14	2,40 ± 0,11	4,65 ± 0,54
30	1330 ± 60	9,67 ± 0,54	7,80 ± 0,14	3,35 ± 0,15	4,63 ± 0,58
50	1380 ± 60	11,08 ± 0,56	7,66 ± 0,14	5,19 ± 0,24	6,09 ± 0,63
100	1420 ± 70	15,29 ± 0,78	7,53 ± 0,16	9,97 ± 0,52	8,81 ± 0,95
150	1450 ± 80	19,2 ± 1,1	7,48 ± 0,18	14,59 ± 0,86	10,1 ± 1,4
22 keV					
2	170 ± 10	26,3 ± 1,6	21,95 ± 0,58	3,72 ± 0,24	14,0 ± 1,7
6	220 ± 10	22,6 ± 1,3	19,39 ± 0,48	5,26 ± 0,32	10,3 ± 1,4
10	230 ± 10	22,6 ± 1,4	18,79 ± 0,48	7,08 ± 0,44	10,5 ± 1,5
20	240 ± 20	25,0 ± 1,6	18,23 ± 0,51	11,96 ± 0,81	12,2 ± 1,9
30	250 ± 20	28,1 ± 2,1	17,99 ± 0,56	16,8 ± 1,2	13,6 ± 2,5
50	260 ± 20	35,5 ± 3,3	17,78 ± 0,71	26,4 ± 2,5	15,7 ± 4,2
100	260 ± 40	57,6 ± 8,7	17,6 ± 1,2	51,0 ± 7,7	20 ± 12
150	260 ± 60	82 ± 18	17,5 ± 1,6	76 ± 16	24 ± 23



Rysunek 7.3.12. Energetyczna zdolność rozdzielczość, rozdzielczość statystyczna, rozdzielczość szumowa i wewnętrzna energetyczna zdolność rozdzielcza CsI:Tl przy 662 keV, 122 keV i 22 keV jako funkcje czasu całkowania [95].

Na rysunku 7.3.13 przedstawiono dodatkowo zmianę wartość wewnętrznej energetycznej zdolności rozdzielczej w funkcji energii promieniowania X i gamma (od 22 keV do 835 keV). Pokazano, że odpowiedni dobór czasu całkowania może powodować zmianę otrzymywanych wartości IR w zależności od wysokości impulsów świetlnych. Stosowanie stałej wartości czasu całkowania w pomiarach z szerokim zakresem energii X i gamma (co jest standardową procedurą

w pomiarach spektrometrycznych) może powodować, że w zakresie wysokich energii kształty impulsów świetlnych CsI:Tl nie zostaną w pełni „przecałkowane”, co w konsekwencji spowoduje pogorszenie IR z powodu niedoszacowania ilości światła. Z drugiej strony, w zakresie niskoenergetycznych impulsów świetlnych zastosowanie długiej podstawy czasu może spowodować zakłócenie informacji o samym krysztale poprzez znaczący wkład szumowy elektroniki.



Rysunek 7.3.13 Wewnętrzna energetyczna zdolność rozdzielcza w funkcji energii dla różnych wartości czasu całkowania [95].

Na koniec sprawdzono charakterystyki nieproporcjonalności CsI:Tl wyznaczone w zmiennym zakresie czasów całkowania na serii 10 tys. pojedynczych impulsów świetlnych scyntylacji zarejestrowanych w 20°C (patrz rys. 7.3.14). Zebrane dane potwierdziły, że wydłużenie czasu całkowania może poprawić NP CsI:Tl [20, 74]. Wartość NP przy 22 keV poprawia się z 1,21 do 1,05 wraz ze zmianą wartości czasu całkowania kształtów impulsów świetlnych z 2 μs do 150 μs. Zestawienie tej informacji z wiedzą o pogarszającej się wartości ER w funkcji wzrastającego czasu całkowania sugeruje, że efekt poprawy proporcjonalnej odpowiedzi świetlnej CsI:Tl może być skorelowany ze wzrostem wkładu szumowego elektroniki.

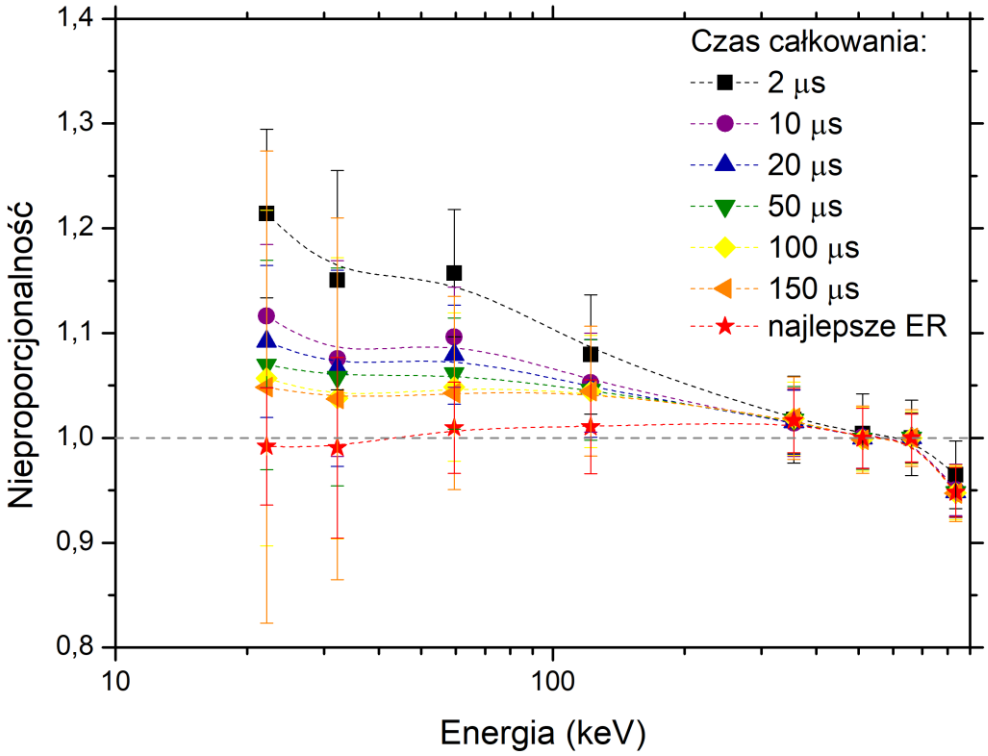
Z drugiej zaś strony badania w zakresie swobodnej możliwości zmiany czasów całkowania, przy analizie impulsów scyntylacji dały kolejną interesującą obserwację dla NP, pokazaną z użyciem czerwonych gwiazdek na wykresie 7.3.14. Wykazano, że odpowiedź scyntylacji CsI:Tl może być proporcjonalna jeżeli do jej obliczenia użyjemy liczby fotoelektronów, dla której zarejestrowano najlepsze wartości energetycznej zdolności rozdzielczej zgodnie z równaniem 7.3.4.

$$NP = \frac{PHE\ number_{energy}}{PHE\ number_{662keV}} \qquad (7.3.4)$$

gdzie liczba PHE $_{energia}$ oznacza ilość światła (wyrażoną w phe/MeV), przy której uzyskano najlepszą energetyczną zdolność rozdzielczą w funkcji czasu całkowania (patrz także rys. 7.3.6 i tab. 7.3.4), natomiast liczba PHE $_{662\ keV}$ jest wartością stałą 10422 ± 168 fotoelektronów/MeV i opisuje liczbę światła po interakcji z promieniowaniem gamma przy 662 keV i podstawie czasu całkowania równej 30 μs.

Tabela 7.3.4. Liczby fotoelektronów (PHE) wraz z odpowiadają jej wartością NP wyznaczona z zastosowaniem stałego czasu całkowania równego 30ms oraz wartości PHE oraz NP wyznaczone ze zmiennym czasem całkowania odpowiadającym czasom, przy których obserwowano najlepszą wartość ER względem energii deponowanej w krysztale CsI:Tl.

Energia (keV)	**835**	**662**	**511**	**356**	**122**	**60**	**32**	**22**
Liczba PHE przy 30μs (phe/MeV)	9880 ± 190	10420 ± 170	10420 ± 250	10600 ± 272	10880 ± 460	11160 ± 470	11120 ± 990	11270 ± 820
NP przy 30μs	0,948 ± 0,024	1,000 ± 0,023	1,000 ± 0,029	1,017 ± 0,031	1,044 ± 0,047	1,071 ± 0,048	1,067 ± 0,096	1,081 ± 0,080
Liczba PHE przy zmiennym czasie (phe/MeV)	9880 ± 190 (30 μs)	10420 ± 170 (30 μs)	10420 ± 250 (30 μs)	10600 ± 272 (30 μs)	10530 ± 440 (20 μs)	10520 ± 421 (14 μs)	10330 ± 880 (10 μs)	10340 ± 610 (6 μs)
NP przy zmiennym czasie	0,948 ± 0,024	1,000 ± 0,023	1,000 ± 0,029	1,017 ± 0,031	1,011 ± 0,045	1,010 ± 0,044	0,991 ± 0,086	0,992 ± 0,056



Rysunek 7.3.14. Nieproporcjonalność CsI:Tl zmierzona w 20°C z czasami całkowania od 2 µs do 150 µs oraz z odpowiedziami świetlnymi adekwatnymi do najlepszych wartości ER [95].

Konkluzje do podrozdziału

Zgodnie z wcześniejszymi badaniami nad wpływem wolnych składowych scyntylacji na energetyczną zdolność rozdzielczą i nieproporcjonalność CsI:Tl, jak również innych scyntylatorów nieorganicznych (podsumowane w [6]) oraz w odniesieniu do dużej poprawy nieproporcjonalności zaobserwowanej z zastosowaniem układu analogowo – cyfrowego [74] spodziewaliśmy się znacznej poprawy wartości ER wraz z wydłużeniem czasów całkowania.

Niezbadane zachowanie parametrów spektrometrycznych CsI:Tl powyżej czasów całkowania, czy czasów do piku z układów analogowych, spowodowało konieczność zaproponowania nowego podejścia bazującego na układzie cyfrowym, w tym przypadku wysokiej klasy oscyloskopu. Podejście to wymagało zbierania pojedynczych impulsów świetlnych, które można było odfiltrować od niepożądanych wkładów takich jak np. zdarzenia typu pile-up lub emisji pojedynczych fotoelektronów z PMT; zapisywania sygnałów z podstawą czasową równą co najmniej 180 µs i pasmem przenoszenia powyżej 100 MHz; pracy z dobrą rozdzielczością pionową (ze względu na konieczność rejestracji zdarzeń SPHE i akwizycji impulsów pochodzących od wzbudzenia promieniowaniem rentgenowskim); zapisu danych na ograniczonej przestrzeni dyskowej.

Zaproponowana metoda spektrometrii oparta na oscyloskopie została wykorzystana do scharakteryzowania impulsów świetlnych CsI:Tl z wykorzystaniem czasów całkowania do 150 μs, Pomiar obejmował wyznaczenie liczby fotoelektronów, energetycznej zdolności rozdzielczej (z uwzględnieniem wkładu wewnętrznego, statystycznego i szumowego) oraz pomiarów nieproporcjonalności. Aby zmierzyć liczbę fotoelektronów, wyznaczono położenie pików pojedynczego fotoelektronu i pomyślnie porównano je z dobrze znaną metodą analogową (patrz rys. 7.3.1 i 7.3.2). Dodatkowo, sprawdzono odpowiedź świetlną BGO i CsI:Tl, które zostały przetestowane w celu sprawdzenia metodologii w zaproponowanej technice cyfrowej (patrz tab. 7.3.1 i rys. 7.3.3).

Nasze badania wskazują na ciągły wzrost liczby fotoelektronów CsI:Tl wraz ze wzrostem czasu całkowania dla wszystkich badanych energii (patrz tab 7.3.2). Niemniej jednak, optymalne wartości energetycznej zdolności rozdzielczej zaobserwowano dla znacznie krótszych zakresów czasowych (patrz rys. 7.3.8). CsI:Tl uzyskuje optymalną wartość ER po 8 μs czasu całkowania przy 32 keV i 35 μs dla energii powyżej 356 keV. Odpowiada to sytuacji, gdy przyrost całek pod impulsami świetlnymi zaczyna zwalniać względem stosunkowo niskich niepewności pomiarowych iwyznaczonej liczby fotoelektronów (nie przekraczającej w zależności od energii wartości 2-7%) – patrz rys. 7.3.5.

W metodzie cyfrowej określono ponadto wkłady do mierzonej energetycznej zdolności rozdzielczej (wewnętrzny, statystyczny i szumowy). Stwierdzono, że znaczne pogorszenie wartości ER jest spowodowane wzrostem udziału szumu elektroniki i błędu statystycznego liczby PHE wraz z wydłużeniem czasu całkowania (patrz rys. 7.3.12). Współczynnik szumów oszacowano rejestrując impulsy z generatora ORTEC 419 wyposażonego w precyzyjny przekaźnik rtęciowy. Duży wkład szumów występuje dla energii 22 keV już dla czasu trwania impulsu równego 20 μs i wzrasta z wydłużeniem czasu całkowania impulsu świetlnego. Uwzględnienie wkładu szumowego spowodowało „spłaszczenie" każdej z charakterystyk wewnętrznej energetycznej zdolności rozdzielczej. Niezależnie obliczone wartości IR miały swoje optima, takie jak 4,23 ± 0,11% przy 662 keV z czasem całkowania 50 μs lub 10,3 ± 1,4% przy 22 keV i czasie całkowania 6 μs.

W przypadku testów nieproporcjonalności wykazano poprawę parametru wraz z wydłużeniem czasu całkowania (patrz rys. 7.3.12). Znacząca poprawa nieproporcjonalności dla długich czasów całkowania nie znajduje odzwierciedlenia w poprawie energetycznej zdolności rozdzielczej, a zwłaszcza IR, Może to być skorelowane z udziałem poświaty, która może zwiększyć udział ciemnego szumu i w konsekwencji zniekształcić energetyczną zdolność rozdzielczą (patrz [24]). Co ciekawe, charakterystyka nieproporcjonalności okazała się proporcjonalna jeżeli zastosujemy liczby fotoelektronów, które odpowiadają czasom całkowania, przy których obserwowano optymalne

wartości energetycznej zdolności rozdzielczej (patrz równanie 7.3.4). Obliczenia te wynikały z próby uwzględnienia zmiennej wartości czasów całkowania podyktowanych wartością energii X i γ deponowanej w materiale, a co za tym zmiennej wysokości impulsu scyntylacji.

Niewątpliwie wymagana jest dalsza analiza kształtów surowych impulsów scyntylacyjnych, w których stałe czasowe zaniku i narastania scyntylacji będą szacowane w różnych warunkach temperaturowych i energiach promieniowania gamma przy użyciu odpowiednio dobranych podstaw czasów całkowania.

8. Dyskusja wyników

Energetyczna zdolność rozdzielcza i odpowiedź świetlna są jednymi z najważniejszych parametrów materiałów scyntylacyjnych używanych w spektrometrii promieniowania gamma. Uważa się, że jedną z przyczyn, które ograniczają energetyczną zdolność rozdzielczą jest nieproporcjonalna odpowiedź świetlna, która cechuje większość scyntylatorów. Wysiłki mające na celu zrozumienie tego zjawiska podejmowane są zarówno na etapie hodowli kryształów, eksperymentalnego badania ich własności, jak i poprzez rozważania teoretyczne [1, 34].

Właściwości kryształów CsI:Tl w spektrometrii gamma są ściśle powiązane z obecnością wolnych składowych zaniku światła scyntylacyjnego. Rejestracja i analiza kształtów impulsów scyntylacji umożliwia testowanie charakterystyk nieproporcjonalności i jej składowych w warunkach zmiennej temperatury oraz energii promieniowania X i gamma.

Celem przedstawionej rozprawy było zbadanie energetycznej zdolności rozdzielczej i nieproporcjonalności scyntylatorów CsI:Tl w szerokim zakresie czasu całkowania impulsów świetlnych. Parametr ten, jak wykazano w pracy, jest kluczowy przy testowaniu właściwości scyntylacyjnych CsI:Tl. Prace z użyciem jeszcze do niedawna najpopularniejszych elektronicznych układów analogowych pokazały poprawę parametrów spektrometrycznych CsI:Tl względem wydłużającej się podstawy czasu kształtowania sygnału świetlnego. Ograniczenia w testowaniu materiałów o długich czasach zaniku scyntylacji (przedstawicielem których jest CsI:Tl) metodami analogowymi polegają na wybiórczym i odgórnie ustalonym doborze czasów kształtowania impulsów świetlnych. Dotyczy to zarówno pomiarów odpowiedzi świetlnej, energetycznej zdolności rozdzielczej, ale również rejestracji impulsów świetlnych np. z użyciem metody Bollingera – Thomasa. Wspomniane ograniczenia aparaturowe przyczyniły się do poszukiwań nowych narzędzi i metod, umożliwiających przebadanie kryształów CsI:Tl w obszarze dłuższych czasów trwania impulsów świetlnych. Takie rozwiązania w aktualnych czasach niewątpliwie dają układy cyfrowe.

Najważniejsze osiągnięcia przedstawione w ramach rozprawy doktorskiej dotyczą dwóch obszarów. Pierwszy to opracowanie metodyki pomiarów spektrometrycznych ze scyntylatorami w oparciu o rejestrację i analizę pojedynczych impulsów świetlnych. Drugi obszar dotyczy pomiaru liczby fotoelektronów, nieproporcjonalności, energetycznej zdolności rozdzielczej i korekty na wkład szumów elektronicznych oscyloskopu z zastosowaniem szerokiego zakresu czasów całkowania, zmiennych warunków temperaturowych oraz energii promieni X i gamma. Pomiary te stanowią kompleksowe badania w dotychczasowej literaturze przedmiotu.

Początkowo, w trakcie pomiarów zaobserwowano poprawę nieproporcjonalnej odpowiedzi scyntylatora CsI:Tl wraz ze wzrostem czasu całkowania, nawet do 500 μs, co sugerowało możliwość poprawy energetycznej zdolności rozdzielczej przy tak długim zbieraniu światła z kryształu. Jednakże, precyzyjne pomiary energetycznej zdolności rozdzielczej, możliwe z zastosowaniem pomiaru pojedynczych impulsów scyntylacji, w zakresie czasu całkowania do 150 μs i dla szerokiego zakresu energii kwantów gamma, przyniosły przeciwną obserwację. Po początkowej poprawie ER, dla całkowań sięgających około 30 μs, znanej z wcześniejszych badań metodami analogowymi, następuje znaczące pogorszenie rozdzielczości pomimo poprawy nieproporcjonalności. Początkową poprawę energetycznej zdolności rozdzielczej z czasem całkowania można kojarzyć z analizą całkowitego impulsu świetlnego opisywanego trzema eksponencjalnymi składowymi CsI:Tl sięgającymi 34 μs. Źródłem dłuższego wyświecania (poświaty) są defekty sieci i pułapki, odpowiedzialne za pogorszenie ER. W zaprezentowanej pracy pokazano, że poprawa NP może być efektem związanym z dodawaniem się wkładu szumowego w obszarze składowej „ogona". Podobnie należy z większą ostrożnością prowadzić analizę impulsów powstałych po wzbudzeniu niskoenergetycznym promieniowaniem X. Impulsy te odznaczają się amplitudą sygnału porównywalną z poziomem szumu oscyloskopowego generowanego przez elektronikę oscyloskopu (sytuacja dotyczy również analizatorów cyfrowych typu digitizer). Przeprowadzone badania pokazują, że w zastosowanym układzie w przypadku energii 22 keV po upływie 20 μs mierzony sygnał jest już zakłócany wpływem elektroniki. Informacja taka jest szczególnie istotna w pomiarach nieproporcjonalności.

Przedstawione w rozprawie wyniki nie wyczerpują złożoności zagadnienia. W dalszym etapie badań należałoby przeprowadzić analizę składowych narastania oraz zaniku scyntylacji z użyciem pojedynczych sygnałów świetlnych CsI:Tl. Analizę tę należałoby przeprowadzić w szerokim zakresie temperatur i w funkcji energii promieniowania X i γ. Jest to powiązane z niezrozumiałym skróceniem wartości stałych zaniku scyntylacji dla niskich energii padającego promieniowania, obserwowanych w temperaturze -70°C (patrz rys. 7.2.10C). Przedstawioną w tej pracy analizę kształtów impulsów świetlnych można rozszerzyć poprzez charakterystykę sygnału świetlnego z użyciem gaussowskiej charakterystyki pojedynczego fotoelektronu (splot funkcji Gaussa i członów wykładniczych – narastania i zaniku sygnału). Analizę składowych należałoby rozszerzyć dla pojedynczych sygnałów scyntylacji zarejestrowanych również w obniżonej temperaturze celem prześledzenia wydłużania się składowych zaniku scyntylacji.

Analiza z zastosowaniem wyłącznie układów do spektrometrii gamma wydaje się niewystarczająca, by w pełni zrozumieć i w konsekwencji móc wpłynąć na osiągalne wartości odpowiedzi świetlnej oraz energetycznej zdolności rozdzielczej. W tym obszarze należałoby podjąć

próbę połączenia informacji płynących z impulsu świetlnego i składowych zaniku scyntylacji z konkretnymi procesami emisji światła z centrów luminescencji. Eksperyment taki można byłoby przeprowadzić poprzez rejestrację światła skierowanego na szerokopasmowe filtry wybierające zakresy długości fal zgodne z widmem emisyjnym CsI:Tl oraz niedomieszkowanego CsI. Charakterystyki takie warto byłoby przeprowadzić w funkcji zmieniającej się temperatury, szczególnie w obszarze reorganizacji intensywności składowych zaniku scyntylacji zaprezentowanej na rysunku 7.2.9.

Dodatkową informację mogą również przynieść testy z zastosowaniem innych halogenków alkalicznych typu CsI:A oraz niedomieszkowanego CsI. Ważne jest przy tym, by przeprowadzone badania szeregu scyntylatorów zostały wykonane z zastosowaniem jednej techniki pomiarowej. Nakłada to konieczność pewnej standaryzacji poprzez określenie chociażby warunków określających optymalny czas całkowania sygnałów świetlnych, zapewniający pełne zebranie światła scyntylacji i możliwość porównania osiągalnych parametrów spektrometrycznych różnych kryształów względem siebie. Tu warto dodatkowo podjąć próbę odejścia od utrzymywania stałych czasów całkowania dla wszystkich badanych energii i przetestować możliwość wprowadzenia zmiennej podstawy całkowania sygnałów świetlnych uwarunkowanej wartością amplitudy sygnału na wyjściu anodowym PMT i w zgodności z wartościami stałych zaniku scyntylacji.

W przypadku eksperymentalnego wyznaczania nieproporcjonalnej odpowiedzi świetlnej CsI:Tl należy pamiętać, że poruszamy się wśród wyników, które mogą być obarczone dużym błędem pomiarowym. Zwykle przeprowadzana jest normalizacja wartości ilości światła wyznaczonej po zaabsorbowaniu niskoenergetycznego kwantu X (wartość o dużym błędzie pomiarowym) względem ilości światła dla linii o wyższej energii (np. 662 keV, dla której określenie liczby fotonów jest dokładniejsze). Obie wartości wyrażone są na jednostkę energii (1 MeV). Można przypuszczać, że pomiary przeprowadzane w tym zakresie z użyciem układów analogowych wymagają mniejszej uwagi użytkownika związanej z tym, że impulsy scyntylacji w pierwszym przybliżeniu zamieniane są na ładunek (ładowanie kondensatora) a następnie podlegają kształtowaniu i różniczkowaniu – procedurze, która w znaczny sposób redukuje wpływ szumu elektroniki. Jak pokazano w niniejszej pracy pomiar długich zaników scyntylacji z zastosowaniem układów cyfrowych wymagał dodatkowo oszacowania rzeczywistego wkładu szumowego z zastosowaniem generatora o niskim szumie wewnętrznym (tu zapewnionym przez przekaźnik rtęciowy). Obserwacje dotyczące dodawania się wkładu szumowego do impulsu świetlnego pokazują, że dodatkowym pomysłem na kontynuację przedstawionych w rozprawie badań mogłoby być przeprowadzenie analizy umożliwiającej zastosowanie logiki układu analogowego do kształtowania zgromadzonych pojedynczych impulsów świetlnych, np. zgodnie z pracą Jordanov i inni [109]. Procedura ta umożliwiałaby zniesienie

ograniczeń szumowych poprzez wzmocnienie i wyniesienie sygnałów z poziomu szumów, jednocześnie umożliwiałaby płynną zmianę parametru czasu całkowania impulsów scyntylacji.

Na zakończenie warto podkreślić, że w niniejszej pracy zaproponowano nowe podejście do rejestracji i analizy sygnałów z fotodetektora tj. analizę pojedynczych impulsów scyntylacji, w sposób w pełni cyfrowy oraz zaproponowano uzależnienie czasu całkowania od jego kształtu (amplitudy i zaniku).

Bibliografia

[1] **M. Moszyński,** Energy resolution of scintillation detectors, *Proc. SPIE,* 5922 (2005) 1-14.

[2] **G. F. Knoll,** Radiation Detection and Measurement, *John Wiley & Sons*, Nowy Jork 2010.

[3] **P. Schotanus, R. Kamermans, P. Dorenbos,** Scintillation characteristics of pure and Tl-doped CsI crystals, *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 37 (1990) 177-182.

[4] **A. Abashian, K. Gotow, N. Morgan i inni.** The Belle detector, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A,* 479 (2002) 117–232.

[5] **W. B. Atwood, A. A. Abdo, M. Ackermann i inni.** The Large Area Telescope on the Fermi gamma-ray space telescope mission, *ApJ,* 697 (2009) 1071-1102.

[6] **M. Moszyński, A. Syntfeld-Każuch, Ł. Świderski, M. Grodzicka, J. Iwanowska, P. Sibczyński, T. Szczęśniak,** Energy resolution of scintillation detectors, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A,* 805 (2016) 25-35.

[7] **C. Dujardin, E. Auffray, E. Bourret-Courchesne, P. Dorenbos, P. Lecoq, M. Nikl, A. N. Vasil'ev, A. Yoshikawa, R. Y. Zhu,** Needs, Trends, and Advances in Inorganic Scintillators, *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 65 (2018) 1977-1997.

[8] **M. Moszyński, A. Syntfeld-Każuch, Ł. Świderski, P. Sibczyński, M. Grodzicka, T. Szczęśniak, A. V. Gektin, P. Schotanus, N. Shiran, R. T. Williams,** Energy Resolution and Slow Components in Undoped CsI Crystals, *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 63 (2016) 459-466.

[9] **M. Moszyński, M. Balcerzyk, W. Czarnacki, M. Kapusta, W. Klamra, P. Schotanus, A. Syntfeld, M. Szawłowski, V. Kozlov,** Energy resolution and non-proportionality of the light yield of pure CsI at liquid nitrogen temperatures, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A,* 537 (2005) 357-362.

[10] **G. Bizarri,** Scintillation mechanisms of inorganic materials: From crystal characteristics to scintillation properties, *J. Cryst.Growth,* 312 (2010) 1213–1215.

[11] **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.

[12] **W. W. Moses, S. A. Payne, W. S. Choong, G. Hull, B. W. Reutter,** Scintillator Non-Proportionality: Present Understanding and Future Challenges, *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 55 (2008) 1049-1053.

[13] **S. A. Payne, W. W. Moses, S. Sheets, L. Ahle, N. J. Cherepy, B. Sturm, S. Dazeley, G. Bizarri, W. S. Choong,** Nonproportionality of Scintillator Detectors: Theory and Experiment II, *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 58 (2011) 3392-3402.

[14] **W. W. Moses, G. A. Bizarri, R. T. Williams, S. A. Payne, A. N. Vasil'ev, J. Singh, Q. Li, J.Q. Grim, W. S. Choong,** The Origins of Scintillator Non-Proportionality, *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 59 (2012) 2038-2044.

[15] **P. R. Beck, S. A. Payne, S. Hunter, L. Ahle, N. J. Cherepy, E. L. Swanberg,** Nonproportionality of Scintillator Detectors. V. Comparing the Gamma and Electron Response, *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 62 (2015) 1429-1436.

[16] **S. A. Payne,** Nonproportionality of Scintillator Detectors. IV. Resolution Contribution from Delta-Rays, *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 62 (2015) 372 - 380.

[17] **J. D. Valentine, W. W. Moses, S. E. Derenzo, D. K. Wehe, G. F. Knoll,** Temperature dependence of CsI(Tl) gamma-ray excited scintillation characteristics, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A,* 325 (1993) 147-157.

[18] **J. D. Valentine, D. K. Wehe, G. F. Knoll, C. E. Moss,** Temperature Dependence of CsI(Tl) Absolute Scintillation Yield, *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 40 (1993) 1267-1274.

[19] **M. Moszyński, M. Kapusta, J. Zalipska, M. Balcerzyk, D. Wolski, M. Szawłowski, W. Klamra,** Low energy gamma-rays scintillation detection with large area avalanche photodiodes, *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 46 (1999) 880-885.

[20] **A. Syntfeld-Każuch, Ł. Świderski, W. Czarnacki, M. Gierlik, W. Klamra, M. Moszyński, P. Schotanus,** Non-proportionality and energy resolution of CsI(Tl), *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 54 (2007) 1836-1841.

[21] **A. Syntfeld-Każuch, P. Sibczyński, M. Moszyński, A. V. Gektin, W. Czarnacki, M. Grodzicka, J. Iwanowska, M. Szawłowski, T. Szczęśniak, L. Świderski,** Energy resolution of CsI(Na) scintillators, *Radiat. Meas.,* 45 (2010) 377-379.

[22] **S. Gridin, A. Belsky, M. Moszyński, A. Syntfeld-Każuch, N. Shiran, A. V. Gektin,** Scintillation properties of CsI:In single crystals, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A,* 761 (2014) 13-18.

[23] **M. Balcerzyk, W. Klamra, M. Moszyński, M. Kapusta, M. Szawłowski,** Energy resolution and light yield non-proportionality of ZnSe:Te scintillator studied by large area avalanche photodiodes and photomultipliers, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A,* 482 (2002) 720-727.

[24] **M. Moszyński, W. Czarnacki, A. Syntfeld-Każuch, A. Nassalski, T. Szczęśniak, Ł. Świderski, F. Kniest, A. Iltis.** A Comparative Study of Undoped NaI Scintillators With Different Purity, *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 56 (2009) 1655-1660.

[25] **Ł. Świderski, M. Moszyński, W. Czarnacki, A. Syntfeld-Każuch, M. Gierlik,** Non-proportionality and energy resolution of NaI(Tl) at wide temperature range (-40 degrees C to +23 degrees C), *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 54 (2007) 1372-1377.

[26] **M. Moszyński, A. Nassalski, A. Syntfeld-Każuch, Ł. Świderski, T. Szczęśniak,** Energy resolution of scintillation detectors - New observations, *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 55 (2008) 1062-1068.

[27] **Ł. Świderski, M. Moszyński, A. Syntfeld-Każuch, M. Szawłowski, T. Szczęśniak.** Measuring the scintillation decay time for different energy depositions in NaI:Tl, LSO:Ce and CeBr3 scintillators, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, 74*9 (2014) 68-73.

[28] **A. Syntfeld-Każuch, Ł. Świderski, M. Moszyński, A. V. Gektin,** Non-proportionality components in doped CsI (materiały pokonferencyjne), *IEEE NSS/MIC Conf. Records* 2014.

[29] **A. Syntfeld-Każuch, M. Moszyński, Ł. Świderski, W. Klamra, A. Nassalski,** Light pulse shape dependence on gamma-ray energy in CsI(Tl), *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 55 (2008) 1246-1250.

[30] **A. Gektin, A. N. Vasil'ev, V. Suzdal, A. Sobolev,** Energy Resolution of Scintillators in Connection with Track Structure, *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 67 (2020) 880-887.

[31] **A. N. Vasil'ev, A. V. Gektin,** Multiscale Approach to Estimation of Scintillation Characteristics, *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 61 (2013) 235 - 245.

[32] **J. B. Birks,** The Theory and Practice of Scintillation Counting, *Pergamon Press*, Oxford 1964.

[33] **J. Dereń, J. Haber, R. Pampuch,** Chemia Ciała Stałego, *PWN*, Warszawa 1977.

[34] **J. Głodo,** Procesy rekombinacji promienistej w kryształach $YAI0_3$ i $LuAI0_3$ aktywowanych jonami ceru (rozprawa doktorska), *Instytut Fizyki Uniwersytet Mikołaja Kopernika*, Toruń 2000.

[35] **P. Lecoq, A. Annenkov, A. Gektin, M. Korzhik, C. Pedrini,** Inorganic Scintillators for Detector Systems, *Springer*, Berlin Heidelberg 2006.

[36] **C. Grupen, I. Buvat,** Handbook of Particle Detection and Imaging, *Springer*, Berlin Heidelberg 2012.

[37] **S. Gridin, A. Belsky, C. Dujardin, A. Gektin, N. Shiran, A. Vasil'ev,** Kinetic Model of Energy Relaxation in Csl:A (A = TI and In) Scintillators, *J. Phys. Chem. C,* 119 (2015) 20578-20590.

[38] **J. K. Shultis, R. E. Faw,** Fundamentals of nuclear science and engineering, *CRC Press Taylor & Francis Group*, Boca Raton 2017.

[39] **K. Brylew,** Własności scyntylacyjne i luminescencyjne kryształów o strukturze granatu aktywowanych jonami Ce^{3+} i Pr^{3+} (rozprawa doktorska), *Uniwersytet Mikołaja Kopernika*, Toruń 2016.

[40] **S. Gridin,** Channels of Energy Loss and Relaxation in CsI:A (A=Tl, In) Scintillation Crystals (rozprawa doktorska) *Universite Claude Bernard*, Lyon 2014.

[41] **R. Gwin, R. B. Murray,** Scintillation Process in CsI(Tl). I. Comparison with Activator Saturation Model, *Phys. Rev. B,* 131 (1963) 501-508.

[42] **S. Kubota, S. Sakuragi, S. Hashimoto, J.-Z. Ruan,** A new scintillation material: pure CsI with 10 ns decay time, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A,* 268 (1988) 275-277.

[43] **L. Trefilova, B. Grinyov, V. Alekseev, A. Mitichkin, V. Yu. Yakovlev, A. Meleshko,** Photo- and radiation-stimulated processes in CsI(Tl) crystals, *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 55 (2008) 1263–1269.

[44] **S. Kerisit, K. M. Rosso, B. D. Cannon,** Kinetic Monte Carlo model of scintillation mechanisms in CsI and CsI(Tl), *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 55 (2008) 1251-1258.

[45] **Z. Wang, Y. Xie, B. D. Cannon, L. W. Campbell, F. Gao, S. Kerisit,** Computer simulation of electron thermalization in CsI and CsI(Tl), *J. Appl. Phys.,* 110 (2011) 064903.

[46] **Z. Wang, Y. Xie, L. W. Campbell, F. Gao, S. Kerisit,** Monte Carlo simulations of electron thermalization in alkali iodide and alkaline-earth fluoride scintillators, *J. Appl. Phys.,* 112 (2012) 014906.

[47] **X. F. Lu, Q. Li, G. A. Bizarri, K. Yang, M. R. Mayhugh, P. R. Menge, R. T. Williams,** Coupled rate and transport equations modeling proportionality of light yield in high-energy electron tracks: CsI at 295 K and 100 K; CsI:Tl at 295 K, *Phys. Rev. B.,* 92 (2015) 115207.

[48] **X. Lu, S. Gridin, R. T. Williams, M. R. Mayhugh, A. Gektin, A. Syntfeld-Każuch, Ł. Świderski, M. Moszyński.** Energy-Dependent Scintillation Pulse Shape and Proportionality of Decay Components for CsI:Tl: Modeling with Transport and Rate Equations, *Phys. Rev. Appl.,* 7 (2017) 014007.

[49] **C. Tian, S. Liu, Y. Xie, L. Guo, D. Chen, Y. Liu, Z. Zhong,** Study on the mechanism of afterglow in CsI: Tl and the afterglow suppression in CsI:Tl, Eu, *J. Radioanal. Nucl. Chem.,* 320 (2019) 123-128.

[50] **V. Yakovlev, L. Treflova, A. Karnaukhova, A. Shpilinskaya,** Intracenter processes induced by electron beam and 337 nm laser light in CsI:Tl, *Funct. Mater.,* 3 (2019) 454–461.

[51] **V. Yakovlev, L. Treflova,** Kinetic properties of infrared and visible luminescence induced by electron beam in CsI:Tl crystal, *J. Lumin.,* 223 (2020) 117183.

[52] **P. A. Rodnyi,** *Physical processes in inorganic scintillators,* CRC Press, Boca Raton 1997.

[53] **A. Lempicki, A. J. Wojtowicz, E. Berman,** Fundamental limits of scintillator performance, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A.,* 333 (1993) 304–311.

[54] **M. Moszyński, M. Kapusta, M. Mayhugh, D. Wolski, S. O. Flyckt,** Absolute Light Output of Scintillators, *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 44 (1997) 1052-1061.

[55] **J. I. Hopkins,** The Response of the Anthracene Scintillation Counter to Monoenergetic Electrons, *Phys. Rev.,* 77 (1950) 406-407.

[56] **D. Engelkemeir,** Nonlinear Response of NaI(TI) to Photons, *Rev. Sci. Instrum.,* 27 (1956) 589-591.

[57] **W. Mengesha, T. D. Taulbee, B. D. Rooney, J. D. Valentine,** Light yield nonproportionality of CsI(Tl), CsI(Na), and YAP, *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 45 (1998) 456-461.

[58] **Ł. Świderski, M. Moszyński, A. Nassalski, A. Syntfeld-Każuch, W. Czarnacki, W. Klamra, V. A. Kozlov,** Scintillation Properties of Undoped CsI and CsI Doped With CsBr, *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 55 (2008) 1241-1245.

[59] **National Nuclear Data Center (NNDC), Brookhaven National Laboratory,** Mapa nuklidów, *https://www.nndc.bnl.gov/nudat2/.*

[60] **M. Moszyński, J. Zalipska, M. Balcerzyk, M. Kapusta, W. Mengesha, J.D. Valentine,** Intrinsic energy resolution of NaI(Tl), *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A.,* 484 (2001) 259–269.

[61] **M. Kapusta, M. Balcerzyk, M. Moszyński, J. Pawelke,** A high-energy resolution observed from a YAP : Ce scintillator, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A,* 421 (1999) 610–613.

[62] **K. Yang, P. Menge,** Improving γ−ray energy resolution, nonproportionality, and decay time of NaI:Tl^+ with Sr^{2+} and Ca^{2+} codoping, *J. Appl. Phys.,* 118 (2015) 213106.

[63] **A. V. Gektin, A. Vasil'ev,** Scintillator energy resolution and a way to improve it by kinetic waveform analysis, *Radiat. Meas.,* 122 (2019) 108-114.

[64] **A. Shpilinskaya, A. Kudin, L. Trefilova, D. Zosim,** Scintillation characteristics of heavily doped CsI:Tl, IO_3 crystals, *Probl. At. Sci. Technol.,* 4 (2019) 191–197.

[65] **L. Stand, D. Rutstrom, M. Koschan, M.-H. Du, C. Melcher, U. Shirwadkar, J. Glodo, E. Van Loef, K. Shah, M. Zhuravleva,** Crystal growth and scintillation properties of pure and Tl-doped $Cs_3Cu_2I_5$, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A,* 991 (2021) 164963.

[66] **R. Hawrami, A. Farsoni, H. Sabet, D. Szydel.** Growth and Evaluation of Improved CsI:Tl and NaI:Tl Scintillators, *Opt. Mater., (*2021).

[67] **I. Holl, E. Lorenz, G. Mergas,** A measurement of the light yield of common inorganic scintillators, *IEEE Trans. on Nucl. Sci.,* 35 (1988) 105-109.

[68] **J. D. Valentine, D. K. Wehe, G. F. Knoll, C. E. Moss,** Temperature dependence of absolute CsI(Tl) scintillation yield, *IEEE NSS/MIC Conf. Records* 1991.

[69] **L. N. Trefilova, A. M. Kudin, L. V. Kovaleva, B. G. Zaslavsky, D. I. Zosim, S. K. Bondarenko.** Concentration dependence of the light yield and energy resolution of NaI:Tl and CsI:Tl crystals excited by gamma, soft X-rays and alpha particles. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A,* 486 (2002) 474–481.

[70] **C. Fiorini, A. Longoni, F. Perotti, C. Labanti, P. Lechner, L. Struder,** Gamma Ray Spectroscopy with CsI(Tl) Scintillator Coupled to Silicon Drift Chamber, *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 44 (1997) 2553-2560.

[71] **M. Grodzicka, M. Moszyński, T. Szczęśniak, W. Czarnacki, M. Szawłowski, Ł. Świderski, Ł. Kaźmierczak, K. Grodzicki,** Characterization of CsI:Tl at a wide temperature range (-40 degrees C to +22 degrees C), *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A,* 707 (2013) 73–79.

[72] **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.

[73] **N. P. Sastry, B. V. Thosar,** Decay-time of scintillations in CsI(Tl) crystal, *Proc. Math. Sci.,* 54 (1961) 140-145.

[74] **Z. Mianowska, M. Moszyński, A. Dziedzic, A. Gektin, S. Gridin, X. Lu, M. R. Mayhugh, S. Mianowski, P. Sibczyński, Ł. Świderski, A. Syntfeld-Każuch, T. Szczęśniak, R.T. Williams, S. Vasyukov.** The light response of CsI: Tl scintillators with Tl concentrations of 0.05wt% to 0.13wt% for a temperature range of 303 K to 203 K, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A,* 914 (2019) 165-172.

[75] **A. Syntfeld-Każuch, Ł. Świderski, M. Moszyński, A. V. Gektin,** Non-proportionality components in doped CsI (prezentacja ustna), *IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference – IEEE NSS/MIC*, Seattle 2014.

[76] **S. A. Payne, S. Hunter, L. Ahle, N. J. Cherepy, E. Swanberg,** Nonproportionality of Scintillator Detectors. II Temperature Dependence Studies, *IEEE Trans. Nucl. Sci.,* 61 (2014) 2771-2777.

[77] **G. Bizarri, W. W. Moses, J. Singh, A. N. Vasil'ev, R. T. Williams,** The role of different linear and non-linear channels of relaxation in scintillator non-proportionality, *J. Lumin.,* 129 (2009) 1790–1793.

[78] **A. Syntfeld-Każuch,** Temperature dependence of non-proportionality components in doped CsI (prezentacja ustna), *International Conference on Scintillating Materials and their Applications – SCINT*, Berkeley 2015.

[79] **S. Gridin, D. R. Onken, R. T. Williams, L. Świderski, Z. Mianowska, A. Syntfeld-Każuch, M. Moszyński, V. Gayshan, S. Vasiukov, A. V. Gektin,** Pulse shape analysis of individual gamma events-Correlation to energy resolution and the possibility of its improvement, *J. Appl. Phys.,* 124 (2018) 154504.

[80] **ET Enterprices, Electron tubes,** Understanding photomultipliers, *https://et-enterprises.com/images/brochures/Understanding_Pmts.pdf.*

[81] **V. K. Zworykin, J. A. Rajchman,** The Electrostatic Electron Multiplier, *Proc. IRE,* 27 (1939) 558 –566.

[82] **Hamamatsu Photonics K. K,** Photomultiplier tubes Basics and Applications, 2007.

[83] **S. O Flyckt, C. Marmonier,** Photomultiplier tubes principles & applications, *Photonis*, Brive.

[84] **M. Bertolaccini, S. Cova, C. Bussolati,** A technique for absolute measurements of the effective photoelectron yield in scintillation counters (materiały pokonferencyjne), *Proc. Nucl. Electronics Symp.,* Versailles 1968.

[85] **M. Moszyński, C. Gresset, J. Vacher, R. Odru,** Properties of CsF, a fast inorganic scintillator in energy and time spectroscopy, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A,* 179 (1981) 271-276.

[86] **A. V. Gektin, B. G. Zaslavsky,** Halogenide Scintillators: Crystal Growth and Performance, [aut. książki] H. J. Scheel, T. Fukuda, Crystal Growth Technology, *John Wiley & Sons*, Chichester 2003, strony 511-528.

[87] **Photonis,** Photomultiplier tubes (katalog specyfikacji fotopowielaczy), Brive Cedex 2000.

[88] **Canberra Industries,** Model 2005 Scintillation Preamplifier – User's Manual, 2003.

[89] **Advanced Measurement Technology,** Model 672 Spectroscopy Amplifier - Operating and Service Manual, 2002.

[90] **Z. Guzik, S. Borsuk, K. Traczyk, M. Płomiński,** TUKAN—An 8K Pulse Height Analyzer and Multi-Channel Scaler With a PCI or a USB Interface. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 53 (2006) 231-235.

[91] **Advanced Measurement Technology,** Model 460 Delay Line Amplifier - Operating and Service Manual, 2002.

[92] **Advanced Measurement Technology**, Model 551 Timing Single-Channel Analyzer - Operating and Service Manual, 2002.

[93] **Advanced Measurement Technology**, Model 416A Gate and Delay Generator - Operating and Service Manual, 2002.

[94] **Tektronix Inc,** DPO7000 Series, Digital Phosphor Oscilloscopes, Quick Start User Manual, Beaverton.

[95] **Z. Mianowska, M. Moszyński, K. Brylew, M. Chabera, A. Dziedzic, A. V. Gektin, T. Krakowski, S. Mianowski, A. Syntfeld-Każuch, T. Szczęśniak, K. Zezuliński,** The light response of CsI:Tl crystal after interaction with gamma radiation study using analysis of single scintillation pulses and digital oscilloscope readout, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A,* 1031 (2022) 166600.

[96] **Z. Mianowska,** Rejestracja impulsów świetlnych emitowanych z materiałów scyntylacyjnych z grupy jodków cezu po wzbudzeniu ich źródłami promieniowania gamma – limity i możliwości aparaturowe (raport z realizacji projektu dla naukowców na wczesnym etapie kariery), Otwock 2022.

[97] **M. Moszyński, A. Nassalski, A. Syntfeld-Każuch, T. Szczęśniak, W. Czarnacki, D. Wolski, G. Pausch, J. Stein,** Temperature dependences of $LaBr_3$(Ce), $LaCl_3$(Ce) and NaI(Tl) scintillators, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A,* 568 (2006) 739–751.

[98] **J. Silva, E. Fiori, J. Isaak, B. Löher, D. Savran, M. Vencelj, F. Wamers,** Temperature gain correction for CsI(Tl) detection systems based on digital pulse shape analysis, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res A,* 776 (2015) 98-106.

[99] **Z. Mianowska, M. Moszyński, A. Syntfeld-Każuch.** Set-up optimization for measurements of CsI:Tl scintillation properties (plakat i prezentacja ustna), *School on Advanced Scintillator Materials – ASCIMAT*, Mediolan 2016.

[100] **Z. Mianowska, M. Moszyński, P. Sibczyński, Ł. Świderski, A. Syntfeld-Każuch, T. Szczęśniak, A. Gektin, S. Vasyukov, R. T. Williams, S. Gridin, X. Lu, M. R. Mayhugh,** Study of CsI:Tl scintillators with different concentration of Tl at the temperature range from +30°C to -70°C (prezentacja ustna), *IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference – IEEE NSS/MIC*, Strasburg 2016.

[101] **M. Kobayashi, P. Carlson,** Temperature dependence of CsI(Tl) scintillation yield for cosmic muons, 5 and 1.25 MeV γ-rays, *Nucl. Instrum. Methods A,* 281 (1989) 192-196.

[102] **J. D. Valentine,** Temperature dependence of CsI(Tl) gamma-ray excited scintillation characteristics (rozprawa doktorska), *The University of Michigan*, 1993.

[103] **Ł. Świderski, M. Moszyński, W. Czarnacki, K. Brylew, M. Grodzicka-Kobyłka, Z. Mianowska, T. Sworobowicz, A. Syntfeld-Każuch, T. Szczęśniak, W. Klamra, R. T. Williams, S. Gridin, X. Lu, M. R. Mayhugh i inni,** Scintillation response to gamma-rays measured at wide temperature range for Tl doped CsI with SiPM readout, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res A,* 916 (2019) 32-36.

[104] **Z. Mianowska, M. Moszyński, A. Gektin, S. Gridin, X. Lu, M.R. Mayhugh, S. Mianowski, Ł. Świderski, A. Syntfeld-Każuch, T. Szczęśniak, R.T. Williams, S. Vasyukov,** Light pulse decays and non-proportionality characteristics of CsI:Tl at temperatures down to -70°C (plakat), *International Conference on Scintillating Materials and their Applications – SCINT*, Chamonix 2017.

[105] **Z. Mianowska, M. Moszyński, A. Dziedzic, A. Gektin, S. Gridin, X. Lu, M. R. Mayhugh, S. Mianowski, P. Sibczyński, Ł. Świderski, A. Syntfeld-Każuch, T. Szczęśniak, R. T. Williams, S. Vasyukov,** Non-proportionality phenomenon of CsI:Tl scintillators – new observations (prezentacja ustna), *Europhysical Conference on Defects in Insulating Materials - EURODIM*, Bydgoszcz 2018.

[106] **M. Moszyński, M. Szawłowski, M. Kapusta, M. Balcerzyk,** Large area avalanche photodiodes in scintillation and X-rays detection, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A,* 485 (2002) 504–521.

[107] **Keysight,** Evaluating Oscilloscope Vertical Noise Characteristics, https://www.keysight.com/

zz/en/assets/7018-01295/white-papers/5989-3020.pdf..

[108] **Advanced Measurement Technology,** Model 419 Precision Pulse Generator - Operating and Service Manual, 2002.

[109] **V. T. Jordanov, G. F. Knoll,** Digital synthesis of pulse shapes in real time for high resolution, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A,* 345 (1994) 337-345.