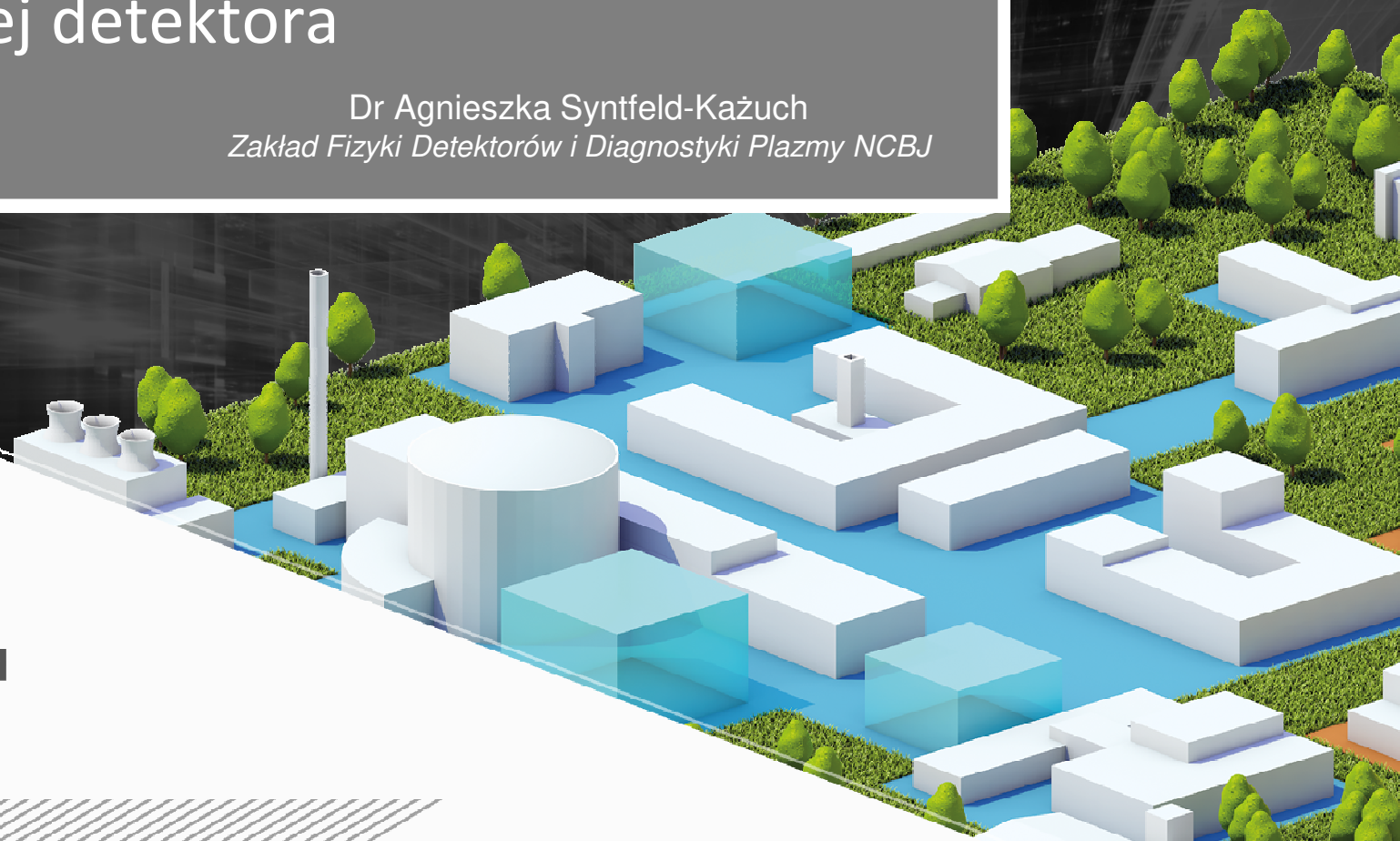


Udział wolnych składowych scyntylacji w mierzonej energetycznej zdolności rozdzielczej detektora

Dr Agnieszka Syntfeld-Każuch
Zakład Fizyki Detektorów i Diagnostyki Plazmy NCBJ



**NARODOWE
CENTRUM
BADAŃ
JĄDROWYCH
ŚWIERK**



Plan prezentacji

1. Luminescencja vs. scyntyłacja
2. Zjawisko scyntyłacji w kryształach nieorganicznych
3. Parametry detektora scyntyłacyjnego
4. Energetyczna zdolność rozdzielcza
5. Profil czasowy scyntyłacji, poświata (*afterglow*)
6. Wpływ wolnej składowej scyntyłacji na energetyczną zdolność rozdzielcza detektora
7. Podsumowanie

Luminescencja vs. scyntyłacja

W fizyce ciała stałego spontaniczna emisja „widzialnego” lub ultrafioletowego światła przez substancję, niewynikająca z podgrzania jej do wysokiej temperatury, to **luminescencja**. Każda luminescencja wymaga włożenia do układu (substancji) pewnej ilości energii.

Ze względu na czynnik wzbudzający do świecenia rozróżniamy:

fotoluminescencja
(minerały)

termoluminescencja
(dawkomierze)

chemiluminescencja
(światlik świętojański)



źródło zdjęcia: Wikipedia

radioluminescencja
= scyntyłacja
(promieniowanie α , β , γ ,
kosmiczne, fragmenty
rozszczeplenia jąder
atomowych – **detektory**
promieniowania)

inne ...

Ze względu na czas świecenia rozróżniamy:

fluorescencja ($10^{-9} - 10^{-7}$ s)
opóźniona fluorescencja (10^{-6} s i dłużej)
fosforescencja ($10^{-4} - 10^2$ s)

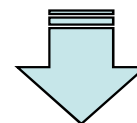


źródło zdjęcia: Wikimedia Commons

Scyntyłacja w kryształach nieorganicznych

Scyntyłatory: **organiczne** (kryształy, plastiki, ciecze) i **nieorganiczne** (pojedyncze kryształy, ceramiczne)

Idealny scyntyłator to kryształ przezroczysty dla światła, które emituje

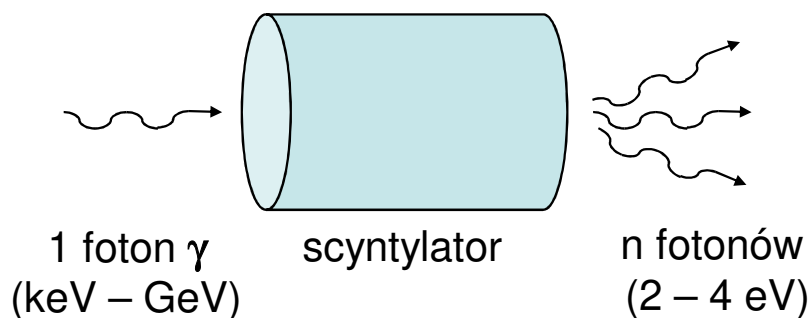


Kryształy jonowe z szeroką przerwą między pasmem walencyjnym a pasmem przewodnictwa (izolator)

Nal: 5,9 eV

CsI: 6,1 eV

Si: 1,14 eV



Padający kwant γ oddziałuje z ośrodkiem:

- zjawisko fotoelektryczne
- efekt Comptona
- produkcja par e^+e^-

Mechanizm scyntyłacji jest procesem złożonym

W ogólnym opisie wyróżniamy trzy etapy procesu:

- konwersja energii
- transfer energii
- luminescencja

Scyntylacja w kryształach nieorganicznych

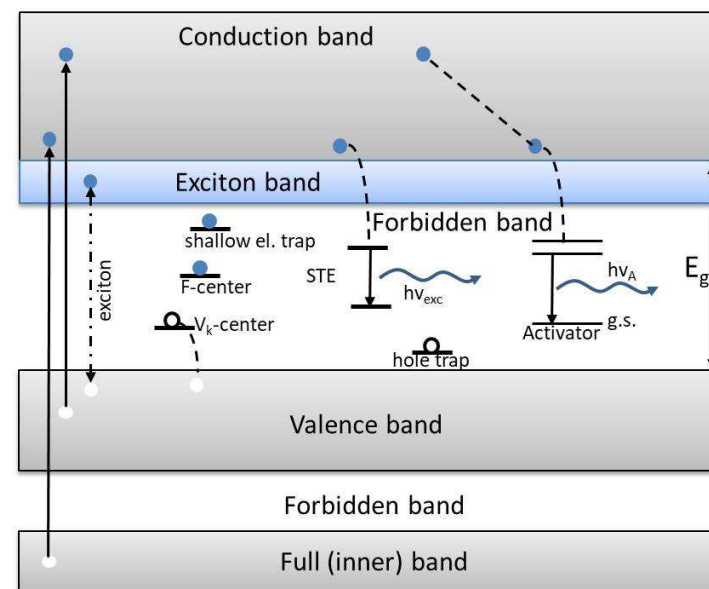
Model pasmowy – ilustracja zjawiska luminescencji

[P.A. Rodnyi – *Physical Processes in Inorganic Scintillators*, CRC Press 1997]

- produkcja pierwotnym wolnych elektronów i dziur w wyniku oddziaływania promieniowania w scyntylatorze (1)
- relaksacja pierwotnych elektronów poprzez produkcję kaskady wtórnych elektronów (δ -rays), fotonów, dziur, plazmonów* (2)
- termalizacja wtórnych elektronów i dziur; produkcja par e-h o energii zbliżonej do przerwy energetycznej (3)
- transfer energii pary e-h do centrum luminescencji** (4)
- emisja fotonu przez centrum luminescencji (5)

* elektrony walencyjne oscylujące kolektywnie w polu elektrycznym szybkiego elektronu pierwotnego

** aktywator (domieszka) albo niedoskonałości w postaci defektów sieci lub zanieczyszczeń, tworzą one dodatkowe poziomy energetyczne w obszarze przerwy energetycznej



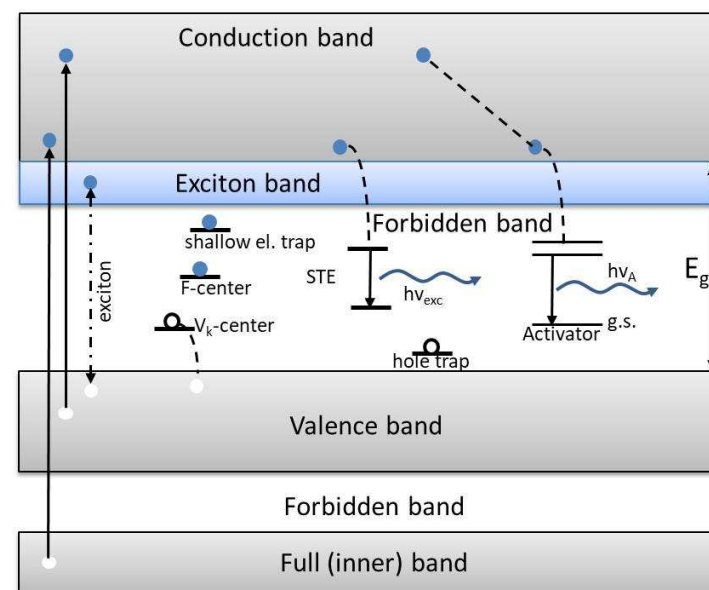
Scyntyllacja w kryształach nieorganicznych

Etap (1) - foton γ wybija (wysokoenergetyczny) elektron pierwotny do pasma przewodzenia, powstaje dziura w paśmie walencyjnym. Oba rodzaje nośników są mobilne w czystej sieci krystalicznej.

Etap (2) - najbardziej zmienny i złożony. Ścieżki relaksacji dla elektronów i dziur są różne. Elektron pierwotny inicjuje kaskadę wtórnych elektronów (promieniowanie δ) – produkcja dalszych e-h. Przy energiach niewystarczających do dalszej jonizacji – produkcja *ekscytonów* migrujących razem jako neutralna kwazicząstka.

Szybki elektron oddziałuje również z elektronami walencyjnymi – kolektywne wibracje, krótkożyciowe *plazmony*.

Relaksacja elektronów $10^{-15} - 10^{-13}$ s

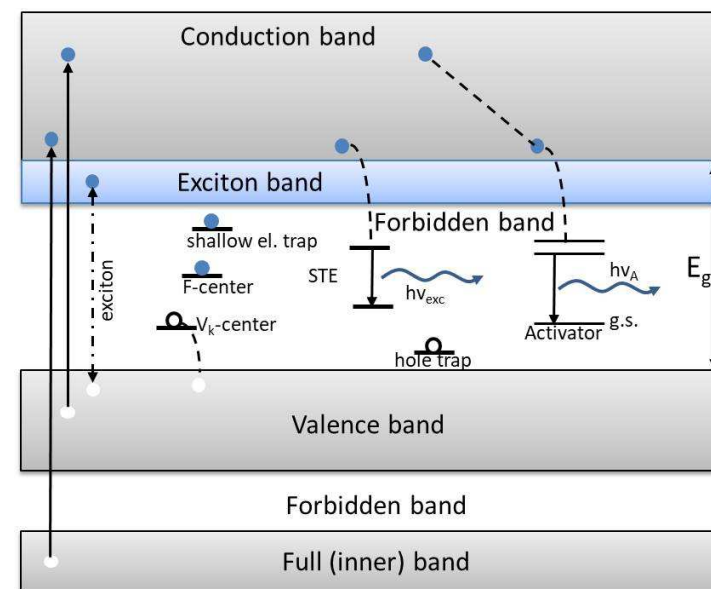


Scyntyllacja w kryształach nieorganicznych

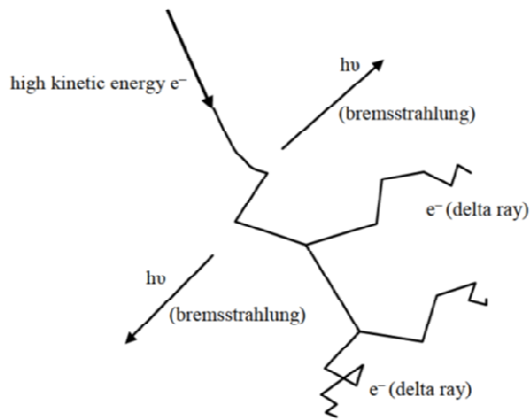
Etap (3) - termalizacja (spowolnienie) elektronów gdy energia elektronów (w którejś generacji) spada poniżej progu jonizacji atomów. Związana para e-h o energii poniżej pasma przewodzenia. Skala czasowa $10^{-11} - 10^{-12}$ s.

Etap (4) to transfer energii elektronów, dziur, ekscytonów do centrów luminescencji (zanieczyszczenia lub defekty sieci w czystych kryształach a także atomy domieszek – stanowią głębokie pułapki dla elektronów i dziur).

Etap (5) – emisja fotonów (luminescencja). W czystych kryształach w wyniku rekombinacji samopułapkowanych ekscytonów (STE) głównie w niskich temperaturach, w domieszkowanych kryształach jodków metali alkalicznych w wyniku przejść elektronowych w aktywatorze



Scyntyllacja w kryształach nieorganicznych



Life history of a fast electron

Przy przejściu cząstki przez materię zachodzi proces jonizacji - tworzenie par elektron-dziura.

Średnie straty energii naładowanej cząstki w wyniku jonizacji na jednostkę przebytej drogi opisuje wzór Bethego-Blocha (silna zależność od ładunku i energii), zaś rozkład wokół wartości średnich – rozkład Landau'a.

Produkcja optycznych fotonów w scyntylnatorze, $N_{photons}$:

$$N_{e-h} = \frac{E_{\gamma}}{E_{ion}} = \frac{E_{\gamma}}{\beta \cdot E_g} \quad \beta \approx 2,5 \quad E_g \text{ kilka eV}$$

$$N_{photons} = S \cdot Q \cdot N_{e-h}$$

S – wydajność transferu energii

Q – wydajność kwantowa luminescencji

Idealny scyntylnator $S = Q = 1$

Parametry scyntylatora - spektrometria γ

Luminescencyjne

- wydajność świetlna (*scintillation yield or relative light yield*, L_R) $L_R = \frac{N_{ph}}{E_\gamma}$ [photons/MeV]
- długość fali fotonu optycznego (dopasowana do istniejących fotodetektorów: PMT, APD, SiPM, SDD)
- proporcjonalność odpowiedzi (L_R stałe w funkcji energii promieniowania γ)
- **energetyczna zdolność rozdzielcza** (@ 662 keV)
- **wyświecanie** (składowa szybka \sim ns)
- odporność radiacyjna (fizyka wysokich energii)

Fizyczne

- wysoka wydajność detekcji (duża gęstość oraz wysokie Z_{eff})
- detekcja neutronów: ${}^6\text{Li}$, ${}^{10}\text{B}$, ${}^{157}\text{Gd}$
- stabilność przy zmianach temperatury
- nieczuły na wilgotność otoczenia
- koszt wytworzenia kryształu (technologia)

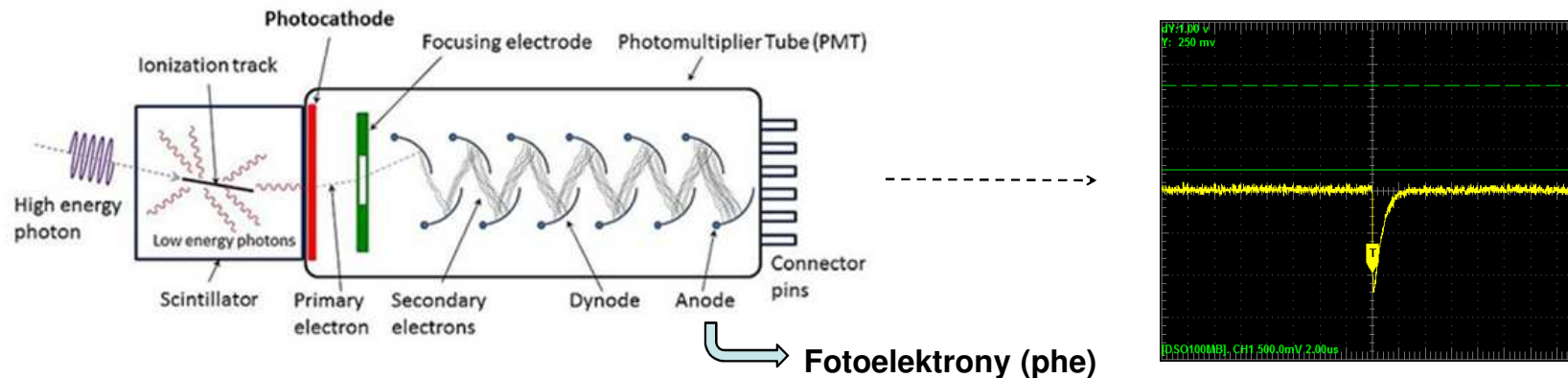


Źródło: SCIONIX Holland

$\text{SrI}_2(\text{Eu})$

115 000 – 120 000 fotonów/MeV 😊
2,8% - 3,0% @ 662 keV 😊
wyświecanie \sim kilka μs 😊
cena wysoka 😊

Energetyczna zdolność rozdzielcza, $\Delta E/E$ [%]



Energetyczna zdolność rozdzielcza, $\Delta E/E$, dla danej energii promieniowania γ :

$$(\Delta E/E)^2 = (\delta_{sc})^2 + (\delta_{st})^2 + (\delta_p)^2 + (\delta_n)^2$$

δ_{sc} wewnętrzna zdolność rozdzielcza scyntylatora (intrinsic resolution)

δ_{st} wkład statystyczny zależny od liczby optycznych fotonów

δ_p wkład zależny od „jakości” transferu (*zaniedbywalny*)

δ_n wkład od szumów/prądu ciemnego fotodetektora – w przypadku PMT **zaniedbywalny**

Energetyczna zdolność rozdzielcza, $\Delta E/E$ [%]

$$(\Delta E/E)^2 = (\delta_{sc})^2 + (\delta_{st})^2 + (\delta_p)^2 + (\delta_n)^2$$

wkład
scyntylatora

pochłanianie promieniowania γ ,
jonizacja,
wtórne elektrony, fotony X,
elektrony Augera,
promieniowanie δ ,
produkcja fotonów optycznych

**nie-proporcjonalność
&
wolne składowe
impulsu świetlnego**

wkład
statystyczny

$$\delta_{st} = 2,35 \cdot \frac{1}{\sqrt{N_{phe}}} \cdot \sqrt{(1 + \varepsilon)}$$

N_{phe} - liczba fotoelektronów (PMT)

ε - wariancja wzmocnienia fotopowielacza,
0,1 – 0,2

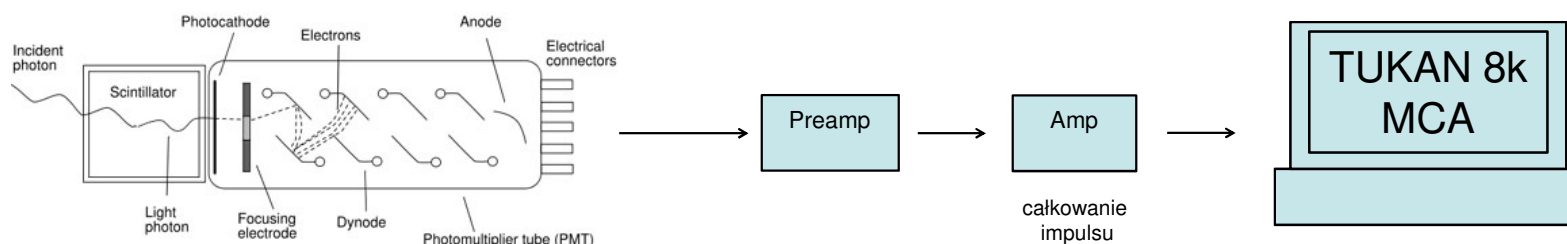
wkład
„transferowy”

foton optyczny, który dotarł do fotokatody,
wybił elektron i trafia on do pierwszej dynody
(kontakt optyczny, jednorodna wydajność
kwantowa fotokatody, zbieranie elektronów
na pierwszej dynodzie)
zaniedbywalny w nowoczesnych PMT

pomijany w przypadku PMT

Techniki pomiarowe

Pomiar widm prostych - nieproporcjonalność i energetyczna zdolność rozdzielcza

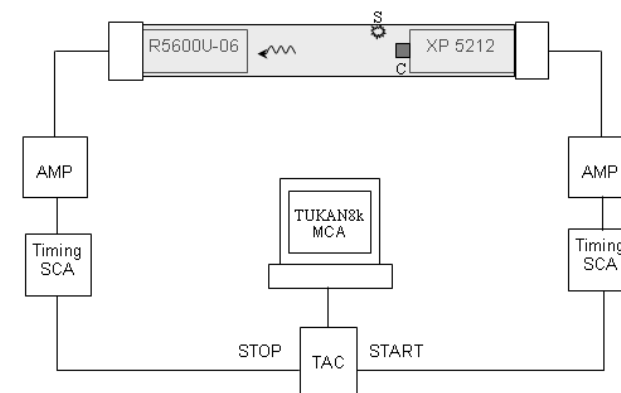


Źródło: <https://web.stanford.edu/group/scintillators/scintillators.html>

Pomiar impulsu świetlnego – zmodyfikowana* (1977) metoda Böllingera-Thomasa (1961) pomiaru opóźnionej koincydencji, ang. *delayed coincidence single photon counting method (single photon method)*

Pomiar rozkładu różnicy czasu pomiędzy wzbudzeniem kryształu a pojedynczym fotonem (zakres kilkaset ns i μ s)

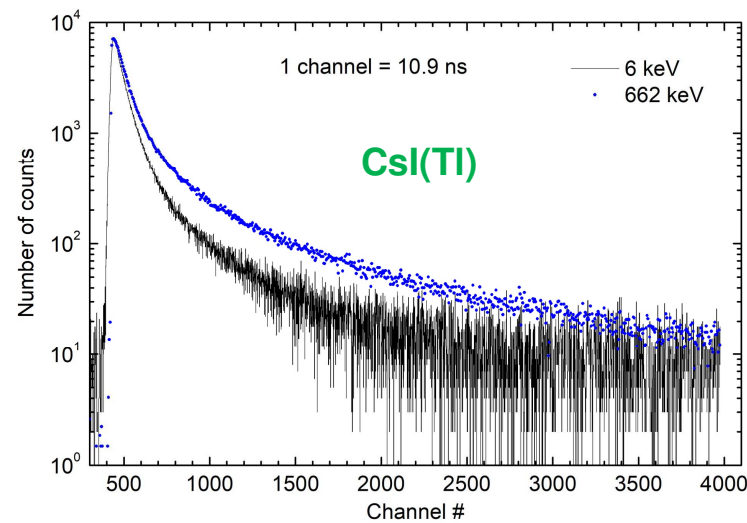
* M. Moszyński and B. Bengtson, "Light pulse shape from plastic scintillators," Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res., vol. 142, pp. 417-434, 1977



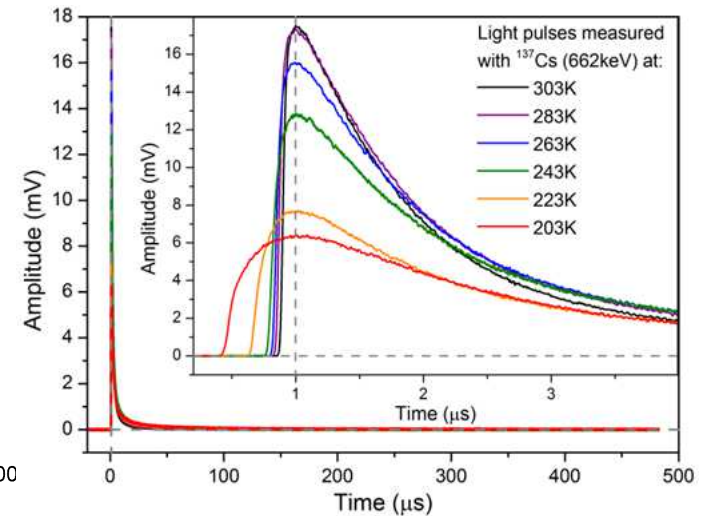
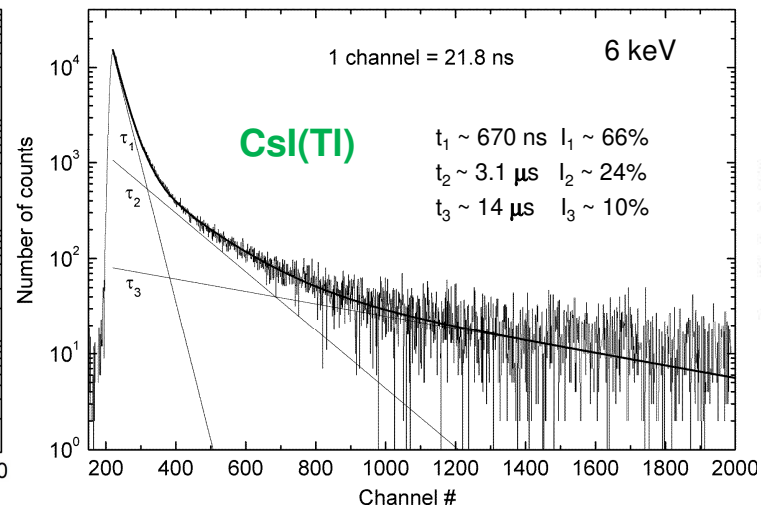
slow-slow coincidence

Impuls świetlny – CsI(Tl)

Kształt krzywej luminescencji odzwierciedla procesy transferu i deekscytacji energii w kryształach scyntylatora.



A. Syntfeld-Każuch et al. IEEE TNS 55 (2008) 1246



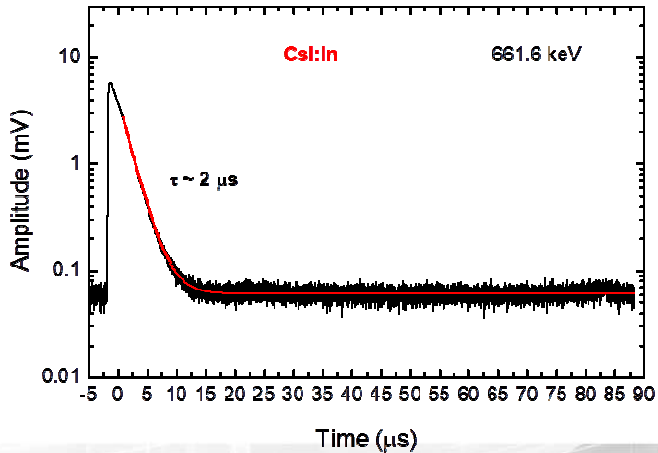
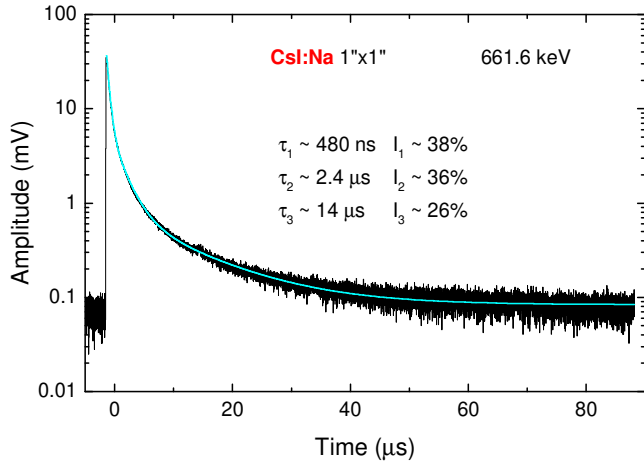
Z. Mianowska et al. NIM A 914 (2019) 165

Tektronix Digital Oscilloscope DPO7254

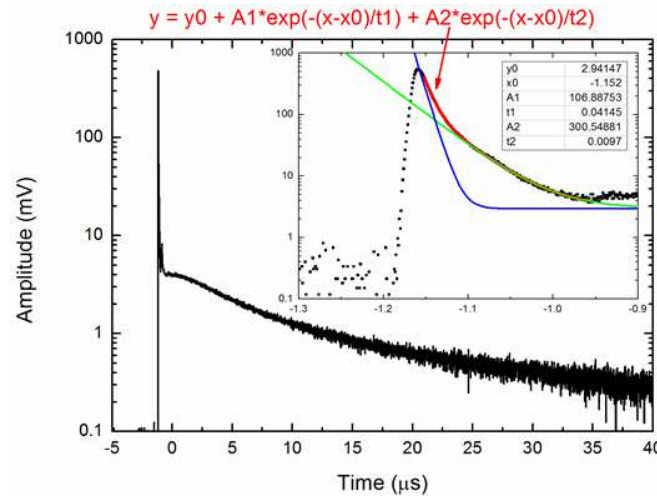
CsI(Tl): czasy zaniku i intensywności składowych scyntylacji zależą od energii zdeponowanej w kryształach, rodzaju promieniowania (gęstość jonizacji) i temperatury kryształu.

Impuls świetlny – jodki cezu

W czystych (niezdomieszkowanych) kryształach CsI w temperaturze pokojowej, obok kilku szybkich komponentów, obserwowana jest wolna składowa rzędu kilku μ s.



M. Moszyński, A. Syntfeld-Każuch et al. IEEE TNS 63 (2016) 459



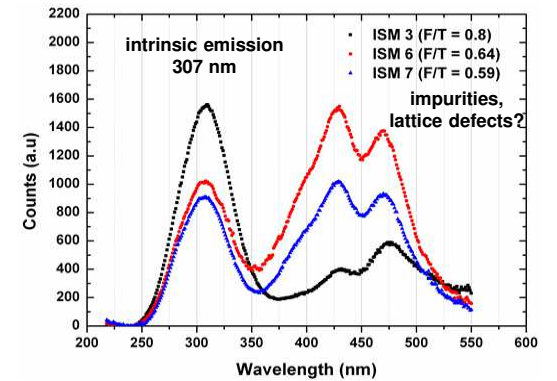
szybka emisja:

$\tau_1 \sim 10$ ns

$\tau_2 \sim 40$ ns

„Czysty” kryształ CsI

nie domieszkowany, ale...
z zanieczyszczeniami
pojawiającymi się w trakcie
procesu wzrostu kryształu

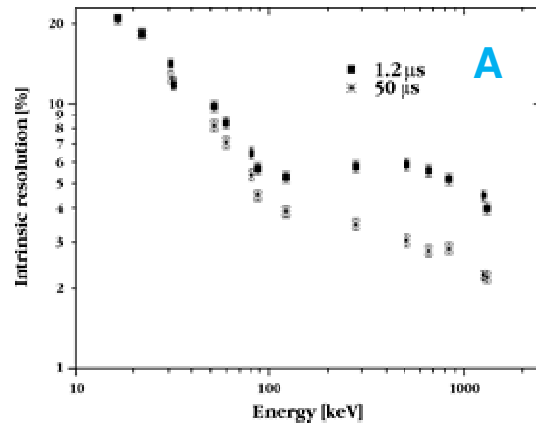


Czysty jodek sodu

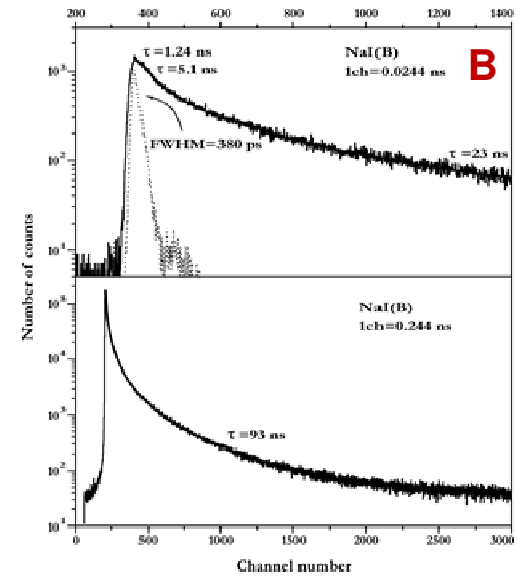
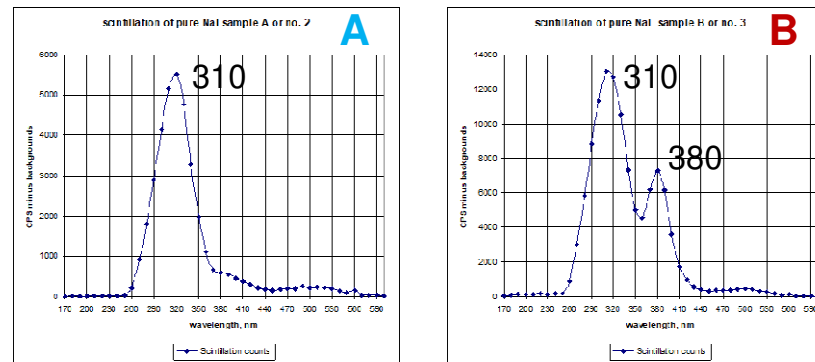
NaI – scyntylator ($\lambda_{em} = 310$ nm) w niskich temperaturach (LN) \rightarrow **70 000 – 80 000 ph/MeV**
(4 000 ph/MeV RT)

LAAPD – fotodetektor (QE = 60% @ 300 nm)

2003 – M. Moszyński et al. NIM A 505, p. 63



2003 – M. Moszyński et al. IEEE TNS 50, p. 767



^{137}Cs : $\Delta E/E = 3.76\%$!

Widma emisyjne po wzbudzeniu kryształów silnym ^{241}Am (0,37 GBq)
 310 nm – emisja wewnętrzna NaI
 380 nm – pasmo satelitarne (?) NaI-próbka B

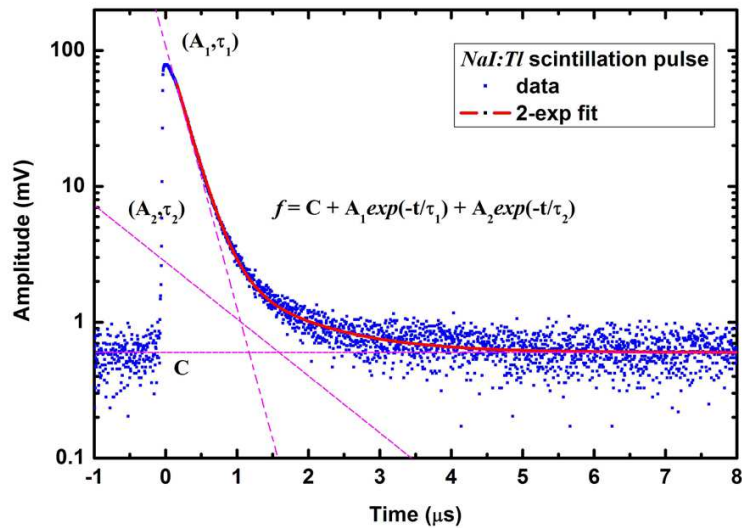
szybka emisja:

$\tau_1 = 1,24$ ns $\tau_2 = 5,1$ ns
 $\tau_3 = 23$ ns $\tau_4 = 93$ ns

Impuls świetlny – NaI(Tl)

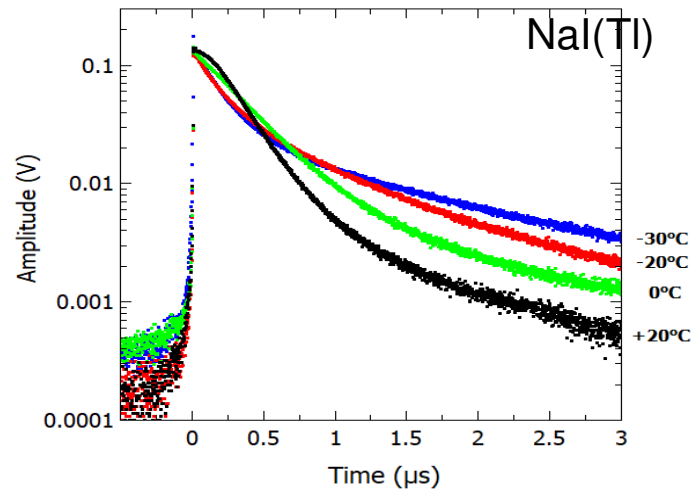
Klasyczny scyntylator – NaI(Tl) ~40 000 ph/MeV $\Delta E/E \sim 7\%$

L. Swiderski et al. NIM A 749 (2014) 68



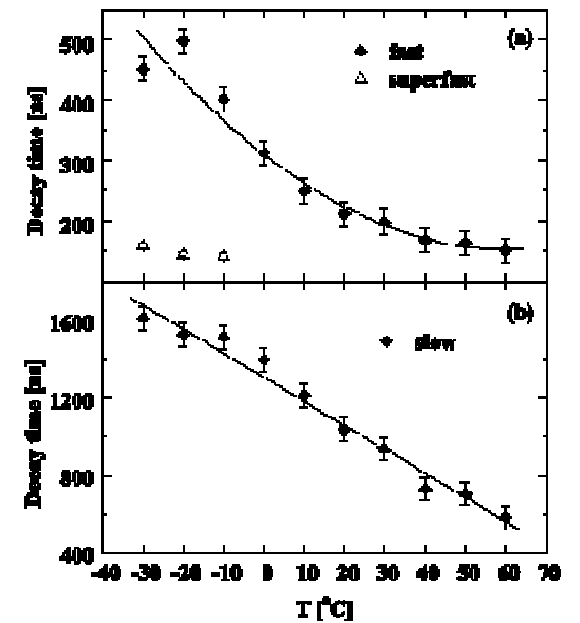
$\tau_1 = 225(10) \text{ ns}$ $\tau_2 = 1,04(10) \mu\text{s}$
9:1

M. Moszyński et al. NIM A 568 (2006)
modyfikacja rysunku - L. Świderski



Tektronix Digital Oscilloscope TDS5034B

M. Moszyński et al. NIM A 568 (2006)

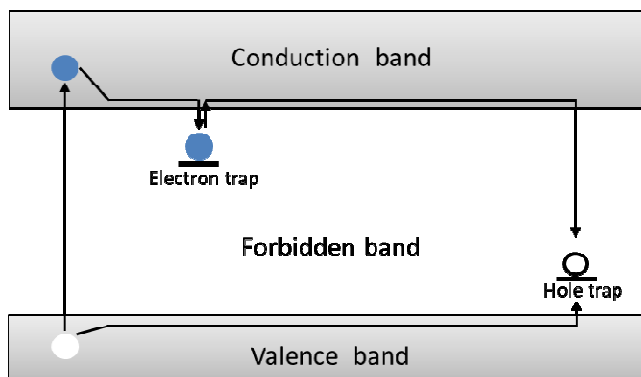


Impuls świetlny – poświata (*afterglow*)

Opóźniona emisja fotonów świetlnych, trwająca **milisekundy** lub dłużej, określana jest mianem **poświaty** (ang. *afterglow*)

Proces pułapkowania elektronów, czyli „wskoczenia” na stan metatrwały (przejście e.s. → g.s. wzbronione)

Medycyna nuklearna (scyntylatory pracujące w trybie prądowym- skanery CT; high speed imaging), skanery cargo/bagażu, eksperymenty z wysokimi ilościami zliczeń (high counting rate) – obecność poświaty zakłóca wynik pomiaru



Scyntylatory wykazujące poświatę (po 2-3 ms):

CsI, CsI(Tl), Gd₂O₂S (GOS), Lu₂SiO₅ (LSO), LGSO

Poświata w większości halogenków metali alkalicznych jest na poziomie 5-10 % po czasie 3 ms. To długie wyświecanie jest uważane za wewnętrzną (intrinsic) cechę kryształu i jest korelowane z obecnością defektów siatki krystalicznej.

Kryształy BGO, CeBr₃ czy CdWO₄ są przykładami materiałów scyntylnych o niskim *afterglow*.

Redukcja poświaty – LSO(Ce) domieszkowany wapniem

Chuck Melcher – **1992** – publikacja
 $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ (LSO) jako scyntylator X, γ
Skanery PET (początek XXI w.)

$\Delta E/E$ **9 – 11%**
w kolejnych latach -
8,2%

2007 –Effects of calcium co-doping on charge traps in LSO:Ce

K. Yang, C.K. Melcher et al., IEEE NSS MIC 2007

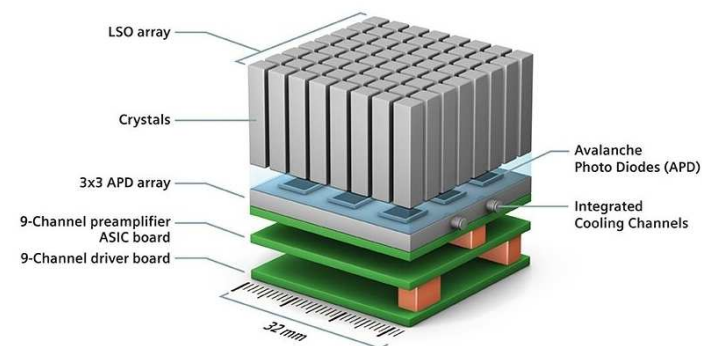
Dodatkowa domieszka w kryształach obniża liczbę pułapek → skracanie czasu wyświecania, redukcja *afterglow*

2008 –Effects of Ca Co-Doping on the Scintillation Properties of LSO:Ce

M.A. Spurrier et al. IEEE TNS 55

Ilość światła (ph/MeV) wzrosła ok. 25%, czas zaniku scyntylacji krótszy ok. 28%, $\Delta E/E = 7,7\%$ @0,1% Ce i 0,1%Ca

<https://www.siemens-healthineers.com/pl/obrazowanie-mr/mr-pet-scanner>



Redukcja poświaty – LSO(Ce) domieszkowany wapniem

2972

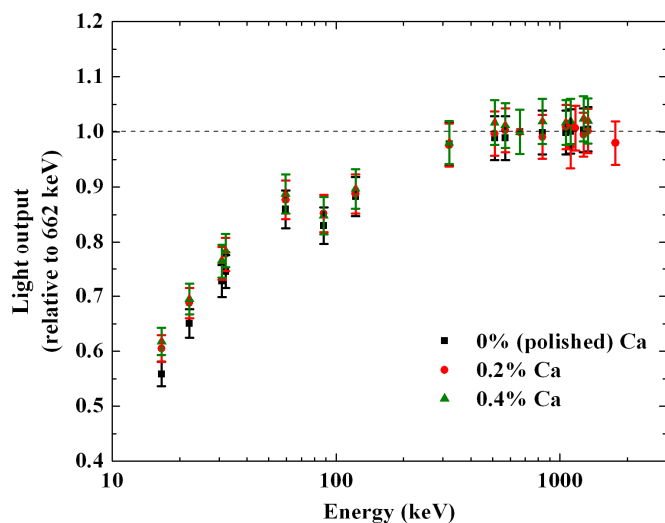
IEEE TRANSACTIONS ON NUCLEAR SCIENCE, VOL. 56, NO. 5, OCTOBER 2009

2009

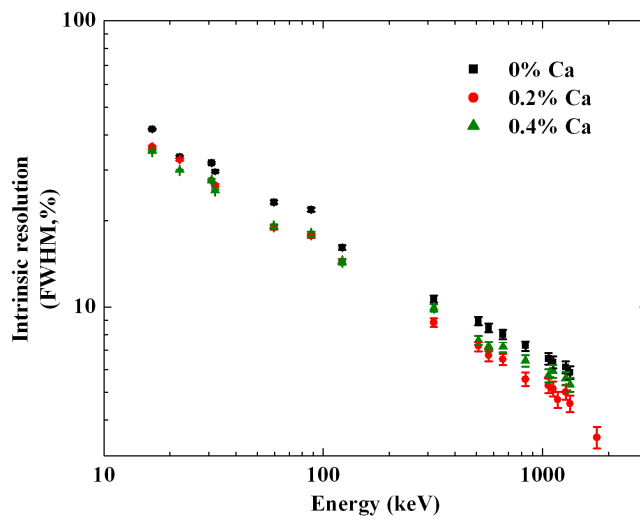
Energy Resolution of Calcium Co-Doped LSO:Ce Scintillators

Agnieszka Syntfeld-Kazuch, *Member, IEEE*, Marek Moszyński, *Fellow, IEEE*, Łukasz Świdorski, *Member, IEEE*, Tomasz Szczęśniak, *Member, IEEE*, Antoni Nassalski, *Member, IEEE*, Charles L. Melcher, *Senior Member, IEEE*, Merry A. Spurrier, Bartosz Goliszek, Przemysław Kamiński, and Mateusz Nowaczyk

$\Delta E/E$ 7.35% @ 0,2% Ca

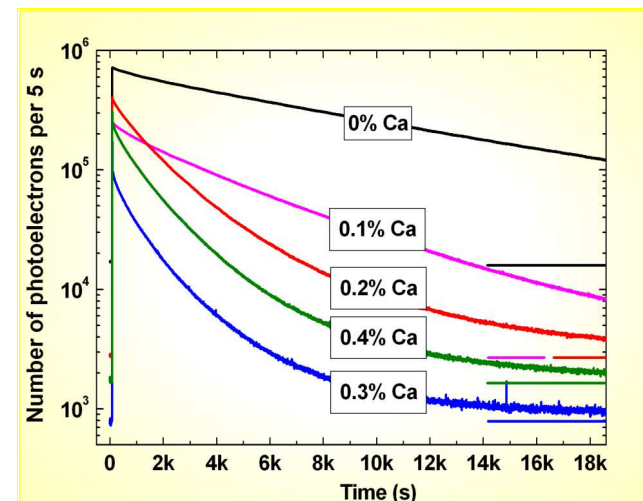


Krzywe nieproporcjonalności



Wewnętrzne zdolności rozdzielcze

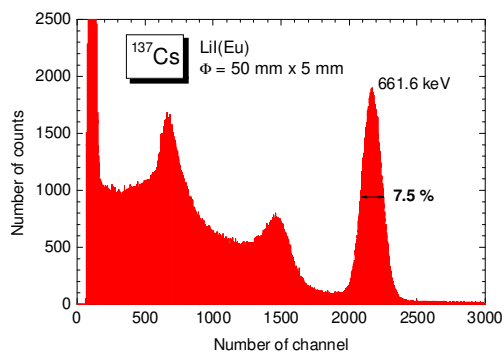
13,9 GBq ^{241}Am 14 cm od scyntylatora. Naświetlanie 1830 s.



Krzywe zaniku *afterglow*

Wpływ wolnej składowej scyntylacji na energetyczną zdolność rozdzielczą detektora

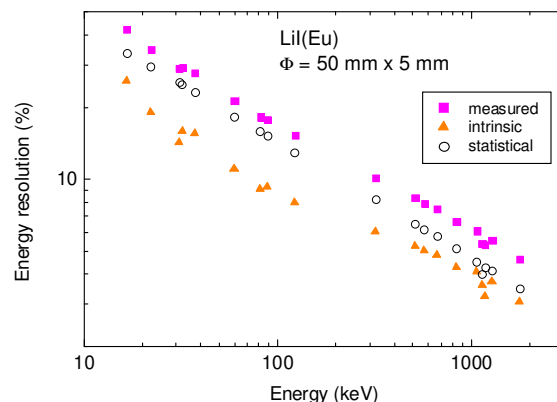
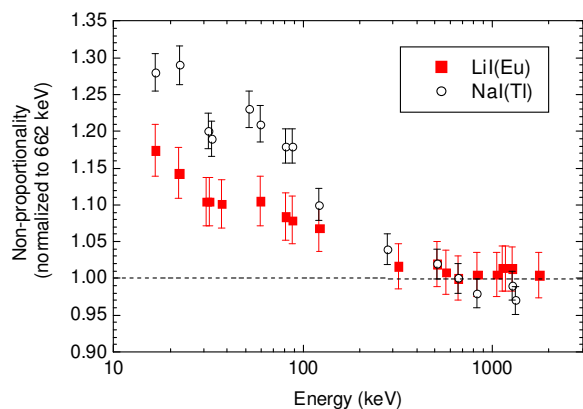
${}^6\text{LiI}(\text{Eu})$



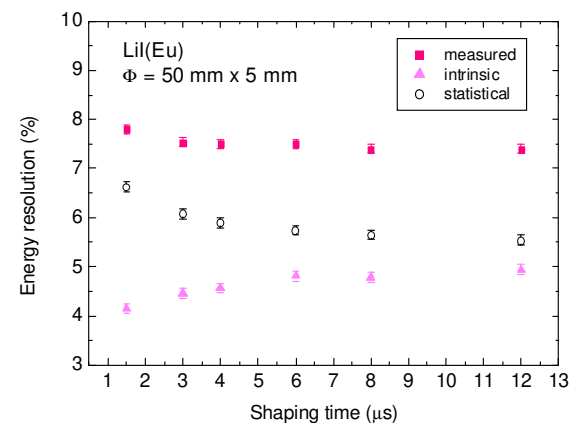
ρ [g/cm ³]	Z	λ_{em} [nm]	τ [μs]	L.O. [fotony/MeV]	$\Delta E/E$ [%] at 662 keV
4,08	3 53	475	1,4	15 000	7,5

2005 – A. Syntfeld et al. *${}^6\text{LiI}(\text{Eu})$ in Neutron and γ -ray Spectrometry – a Highly Sensitive Thermal Neutron Detector*, IEEE TNS 52, p. 3151

Ilość mierzonych fotoelektronów rośnie z czasem całkowania impulsu (1,5 – 12 μs), energetyczna zdolność rozdzielcza poprawia się w stopniu niewielkim



/shaping time 6 μs /



Wpływ wolnej składowej scyntylacji na energetyczną zdolność rozdzielczą detektora

CsI(Tl)

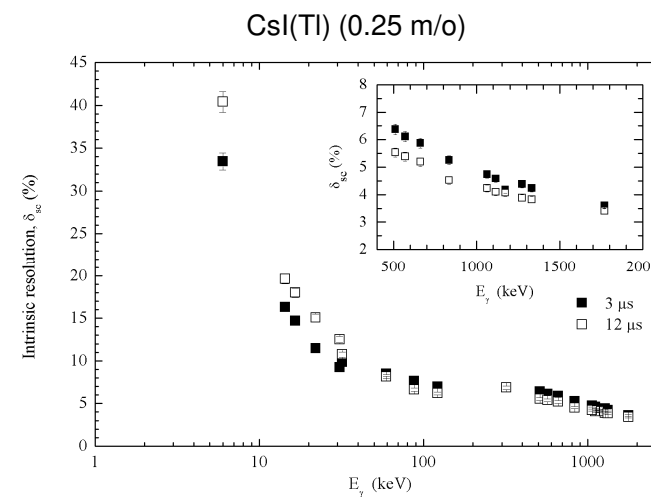
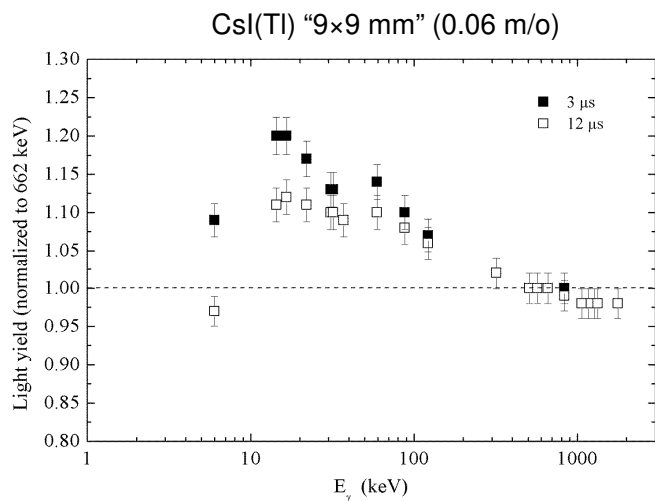
Sześć kryształów CsI(Tl) o różnym rozmiarze i różnej zawartości aktywatora Tl:

- nieproporcjonalność
- energetyczna zdolność rozdzielcza dla dwóch różnych stałych całkowania: 3 i 12 μ s

ρ [g/cm ³]	Z	λ_{em} [nm]	τ [μ s]	L.O. [fotony/MeV]	$\Delta E/E$ [%] at 662 keV
4,51	55 53	550	szybka: 0,73 wolna_1: 3,2 wolna_2: 16	50 000 – 60 000	5,8

2006 – A. Syntfeld-Każuch et al. *Non-proportionality and Energy Resolution of CsI(Tl)*, IEEE TNS 54, p. 1836

CsI(Tl)	N _{phe} (phe/MeV- γ) E _{γ} = 6 keV		$\Delta E/E$ (FWHM, %) 3 μ s/12 μ s	N _{phe} (phe/MeV- γ) E _{γ} = 662 keV		$\Delta E/E$ (FWHM, %) 3 μ s/12 μ s
	3 μ s	12 μ s		3 μ s	12 μ s	
	0.01 m/o "standard"	7580 ± 300		9040 ± 360	50/53	
0.05 m/o	10210 ± 410	12000 ± 480	41/43	9750 ± 290	12990 ± 390	6.1/5.3
0.06 m/o "9x9 mm"	10380 ± 420	12240 ± 490	39/42	9500 ± 290	12640 ± 380	5.8/5.2
0.1 m/o	11170 ± 450	13360 ± 530	37/38	9860 ± 300	13220 ± 400	6.0/5.2
0.11 m/o "special"	10250 ± 410	12200 ± 490	38/39	9590 ± 290	12780 ± 380	5.9/5.2
0.25 m/o	10240 ± 410	12560 ± 500	39/41	8780 ± 260	12030 ± 360	6.1/5.3



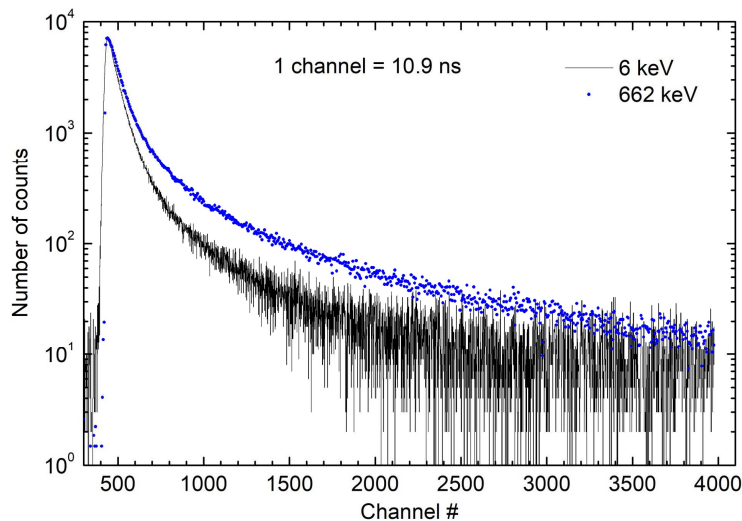
12 μ s: pogorszenie wewnętrznej zdolności rozdzielczej dla niższych energii!
Jak zatem zachowuje się impuls świetlny w funkcji energii promieniowania γ ?

Wpływ wolnej składowej scyntylacji na energetyczną zdolność rozdzielczą detektora

Impuls świetlny zależy od energii zdeponowanej w kryształ

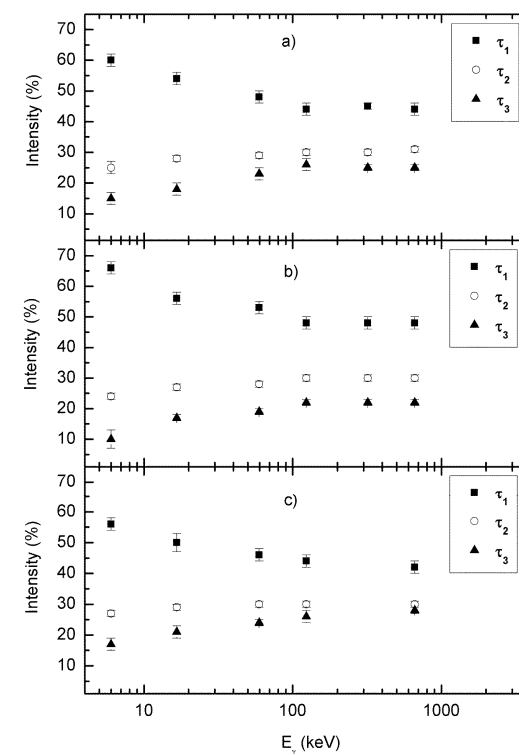
Dla energii rzędu kilku keV ma kształt podobny do impulsu świetlnego dla cząstek α (większa gęstość jonizacji)

2007 – A. Syntfeld-Każuch et al. *Light Pulse Shape Dependence on γ -Ray Energy in CsI(Tl)*, IEEE TNS 55, p. 1246



Wraz ze zmniejszaniem energii promieniowania γ intensywność składowej szybkiej rośnie, zaś wolnych składowych – maleje (wygaszanie)

Intensywności składowych impulsu świetlnego zmieniają się także z temperaturą – otwarty przewód doktorski: „Badanie zjawiska nieproporcjonalności materiałów scyntylacyjnych z grupy halogenków alkalicznych metodą analizy impulsów świetlnych”
mgr Zuzanna Mianowska, NCBJ



Wpływ wolnej składowej scyntylacji na energetyczną zdolność rozdzielczą detektora

CsI(Na)

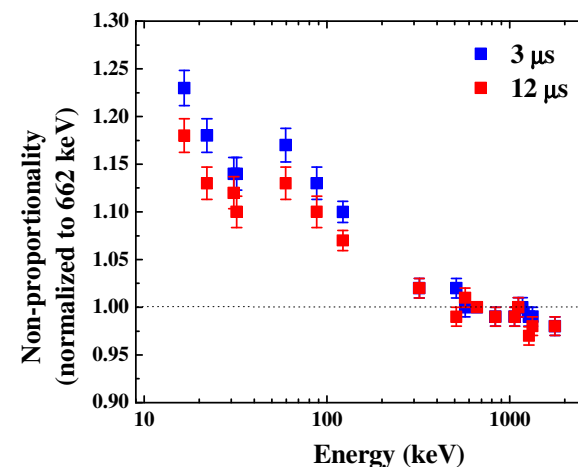
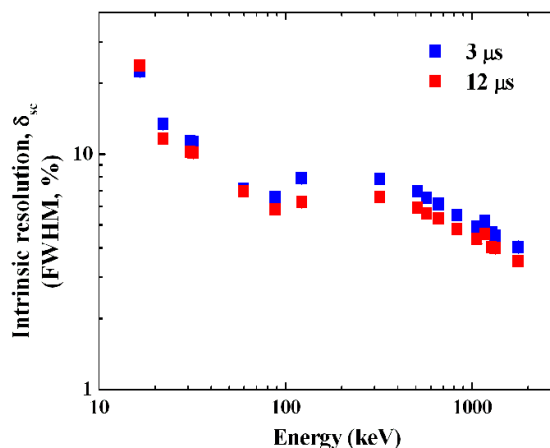
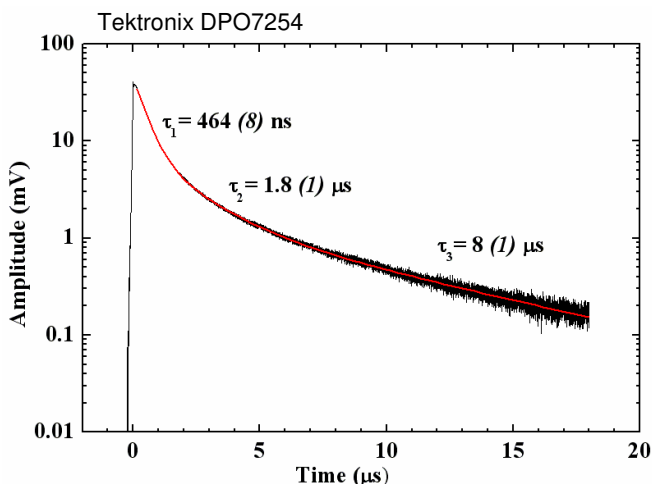
Ø 1" × 1"

ρ [g/cm ³]	Z	λ_{em} [nm]	τ [μ s]	L.O. [fotony/MeV]	$\Delta E/E$ [%] at 662 keV
4,51	55 53	420	szybka: 0,464 wolna_1: 1,8 wolna_2: 8	41 000 – 49 000	5,8

Crystal size	Number of photoelectrons [N_{pe}/MeV]		Total energy resolution, $\Delta E/E$ [FWHM, %]		Intrinsic energy resolution, $\Delta E/E$ [FWHM, %]	
	3 μ s	12 μ s	3 μ s	12 μ s	3 μ s	12 μ s
Ø10×10 mm	10 800±300	14 100±400	7.1±0.1	6.1±0.1	6.5±0.2	5.5±0.2
Ø1"×1"	12 400±400	16 400±500	6.7±0.1	5.8±0.1	6.1±0.2	5.3±0.2

2009 – A. Syntfeld-Każuch et al. *Performance of CsI(Na) Scintillators in γ -Ray Spectrometry*, materiały konferencyjne IEEE NSS MIC Conference, Orlando, USA

2010 – A. Syntfeld-Każuch et al. *Energy resolution of CsI(Na) scintillators*, Rad. Meas. 45, p. 377



Podsumowanie

Kryształy scyntylacyjne (nieorganiczne) ze względu na dużą przerwę energetyczną między pasmem walencyjnym a pasmem przewodzenia charakteryzują się większą wydajnością świetlną w porównaniu z materiałami organicznymi – są przezroczyste dla własnej emisji.

Dodanie domieszek (aktywatorów np. Tl^+ , Na^+ , Eu^{2+} , Ce^{3+}) wprowadza dodatkowe stany energetyczne w paśmie wzbronionym i jednocześnie zwiększa luminescencję.

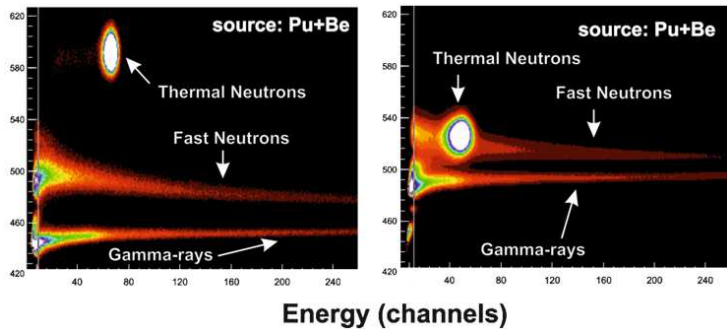
Jodki metali alkalicznych takie jak $CsI(Tl)$, $CsI(Na)$, NaI w LN_2 wykazujące kilka składowych impulsu świetlnego wykazują lepszą nieproporcjonalność, a co za tym idzie lepszą wewnętrzną zdolność rozdzielczą przy dłuższej stałej całkowania impulsu.

Bardzo wolne składowe typu poświaty (afterglow) pogarszają mierzoną energetyczną zdolność rozdzielczą. Pogarszają także jakość obrazu w urządzeniach skanujących (medycyna nuklearna, ochrona granic).

Pomimo ogromnego wysiłku wkładanego w badania i rozwój nowych scyntylatorów, nadal jest brak odpowiedzi na pytanie: co powoduje ich skończoną energetyczną zdolność rozdzielczą.

Działalność grupy fizyki detektorów

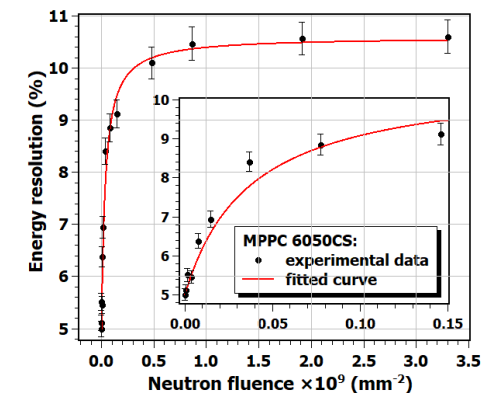
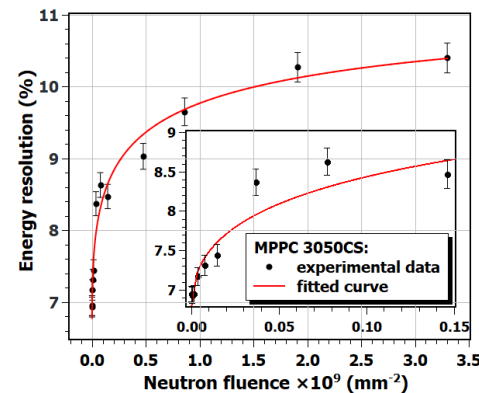
Fotopowielacze krzemowe (SiPM) w spektrometrii gamma z scyntylatorami – zastosowanie SiPM do odczytu światła z 2-calowych scyntylatorów LaBr₃ i NaI:TI oraz z długich scyntylatorów plastikowych (NICA - Dubna)



Detekcja neutronów scyntylatorami plastikowymi z rozróżnianiem n/gamma



Niszczanie radiacyjne fotopowielaczy krzemowych naświetlanych neutronami i protonami; protony 170 MeV ZIBJ Dubna, neutrony ze źródła Pu-Be



Dziękuję za uwagę



**NARODOWE
CENTRUM
BADAŃ
JĄDROWYCH
ŚWIERK**

www.ncbj.gov.pl

