



ČESKÉ VYSOKÉ UČENÍ TECHNICKÉ V PRAZE

FAKULTA BIOMEDICÍNSKÉHO INŽENÝRSTVÍ

Katedra přírodovědných oborů

**Analýza a optimalizace systému pro časově rozlišená měření luminiscence
scintilátorů**

Diplomová práce

Studijní program: Biomedicínská a klinická technika
Studijní obor: Přístroje a metody pro biomedicínu
Vedoucí práce: Ing. Dalibor Pánek, Ph.D.

Bc. Vojtěch Košelja

Kladno, květen 2016

Katedra přírodovědných oborů

Akademický rok: 2015/2016

Z a d á n í d i p l o m o v é p r á c e

Student: **Bc. Vojtěch Košelja**
Studijní obor: Přístroje a metody pro biomedicínu
Téma: **Analýza a optimalizace systému pro časově rozlišená měření luminescence scintilátorů**
Téma anglicky: Analysis and optimization of system for time-resolved luminescence spectroscopy of scintillators

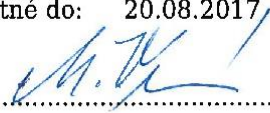
Z á s a d y p r o v y p r a c o v á n í :

1. Provedte shrnutí metod používaných v současnosti pro časově rozlišená měření dosvitu luminescence.
2. Změřte časovou odezvu detekční části aparatury na přímou excitaci modrým pikosekundovým laserem a porovnejte odezvu se scintilační odezvou naměřenou se ZnO. Na základě výsledků experimentu navrhnete vhodný postup pro změření časové odezvy aparatury (instrument response function, IRF) pro rekonvoluci luminescenčních dat.
3. Diskutujte původ a vliv šumu a parazitního signálu na naměřené dosvity. Stanovte optimální parametry pro měření a navrhnete správné určení vah pro fitovaná data.
4. Naměřte dosvit SXR-excitované luminescence vybraných vzorků monokrystalu Ce:GGAG (cerem dopovaný gadolinium gallium aluminum granát) ko-dopovaný Li a Mg. Naměřené dosvity luminescence nafitujte vhodným modelem a diskutujte výsledky experimentu.

Seznam odborné literatury:

- [1] M. Nikl, Scintillation detectors for x-rays, Measurement Science and Technology, Vol. 17, No. 4, 2006, R37-R54 s., doi:10.1088/0957-0233/17/4/R01
- [2] M. Nikl, A. Yoshikawa, K. Kamada, K. Nejezchleb, C.R. Stanek, J.A. Mares, K. Blazek, Development of LuAG-based scintillator crystals - A review, Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials, Vol. 59, No. 2, 2013, 47-72 s., doi:10.1016/j.pcrysgrow.2013.02.001
- [3] P. Bruza, V. Fidler, M. Nikl, Table-top instrumentation for time-resolved luminescence spectroscopy of solids excited by nanosecond pulse of soft X-ray source and/or UV laser, Journal of Instrumentation, Vol. 6, No. 09, 2011, P09007 s., doi:10.1088/1748-0221/6/09/P09007
- [4] M. Nikl, K. Kamada, V. Babin, J. Pejchal, K. Pilarova, Eva Mihokova, Alena Beitlerova, Karol Bartosiewicz, Shunsuke Kurosawa, and Akira Yoshikawa, Defect Engineering in Ce-Doped Aluminum Garnet Single Crystal Scintillators, Crystal Growth & Design, Vol. 14, No. 9, 2014, 4827-4833 s., doi:10.1021/cg501005s

Vedoucí: Ing. Dalibor Pánek, Ph.D.
Konzultant: doc. Ing. Martin Nikl, CSc.
Zadání platné do: 20.08.2017


vedoucí katedry / pracoviště


děkan

V Kladně dne 12.12.2015

Prohlášení

Prohlašuji, že jsem diplomovou práci s názvem Analýza a optimalizace systému pro časově rozlišená měření luminiscence scintilátorů vypracoval samostatně a použil k tomu úplný výčet citací použitých pramenů, které uvádím v seznamu přiloženém k diplomové práci.

Nemám závažný důvod proti užití tohoto školního díla ve smyslu §60 Zákona č.121/2000 Sb., o právu autorském, o právech souvisejících s právem autorským a o změně některých zákonů (autorský zákon).

V dne

.....

Vojtěch Košelja

Poděkování

Na tomto místě bych rád poděkoval především svému vedoucímu diplomové práce Ing. Daliboru Pánkovi, Ph.D. za cenné rady, které mi poskytl při jejím vypracování a za trpělivost vloženou do vedení této práce. Dále bych rád poděkoval Ing. Tomáši Parkmanovi za pomoc při měření s digitálním osciloskopem Agilent DSO7104, Ing. Jaroslavu Hrubému za udělení cenných rad ohledně programovacího prostředí LabView a Ing. Tomáši Fidlerovi ze společnosti CRYTUR, spol. s.r.o. za pomoc s orientací v chemickém složení a procesu výroby scintilačních krystalů.

Název diplomové práce:

Analýza a optimalizace systému pro časově rozlišená měření luminiscence scintilátorů

ABSTRAKT

Teoretická část této diplomové práce je zaměřena na problematiku scintilačních krystalů a na aparaturu pro měření jejich fotoluminiscenční a scintilační odezvy. K měření dohasínání fotoluminiscence byla využita soustava optických elementů s excitačním zdrojem UV dusíkovým laserem. Dohasínání procesu scintilace vyžadovalo na měření mnohem přísnější podmínky (vakuum), protože byl pro excitaci scintilátorů použit laserem produkováný plazmatický zdroj měkkého rentgenova záření (SXR).

Experimentální část této diplomové práce byla zaměřena zejména na charakterizaci detekční části aparatury a na změřenou scintilační odezvu vzorků scintilátoru Ce:GGAG (cerem dopovaný galium gadolinium aluminium granát, ko-dopovaný lithiem a magnesiem) vyvolané excitací zdrojem SXR záření. Jeden ze vzorků byl přímo excitován UV dusíkovým laserem a takto vyvolaný proces fotoluminiscence byl porovnán s jeho scintilační odezvou.

Klíčová slova:

Scintilační odezva, fotoluminiscence, detekční část, zdroj SXR, funkce IRF

Diploma's Thesis title:

Analysis and optimization of system for time-resolved luminescence spectroscopy of scintillators

ABSTRACT

The theoretical part of this thesis is focused on problems of scintillator single crystals and the apparatus for its measurements of photoluminescence and scintillation response. For the measurement of luminescence decay the system of the optical elements was used with the UV nitrogen laser as an excitation source. The measurement of scintillation decay was more exacting, e.g. because of vacuum. It is needful there in the apparatus, because the laser produce plasma source of SXR radiation, which is used like an excitation source.

The experimental part of this thesis is focused on characterization of the detection part of apparatus for measurement and on measurement of scintillation response of single crystal samples Ce:GGAG (gallium, gadolinium, aluminium, garnet doped by cerium and co-doped by lithium and magnesium) on excitation by plasma source of SXR radiation. One of the samples was excited by UV nitrogen laser source to challenge photoluminescence process and this measurement was compared with excitation by SXR source of the same sample.

Key words

Scintillation response, photoluminescence, detection part, SXR source, IRF function

Obsah

1. Úvod	1
2. Teoretická část	3
2.1 Proces fotoluminiscence	3
2.1.1 Fluorescence	3
2.1.2 Fosforescence	3
2.2 Spektrum	4
2.2.1 Emisní spektrum	4
2.3 Proces scintilace	5
2.3.1 Konverze	6
Fotoelektrický jev	6
Comptonův jev	6
2.3.2 Transport	7
2.3.3 Luminiscence	7
2.4 Časově rozlišená luminiscence	8
2.4.1 Metoda zobrazení přímé časové odezvy	8
2.4.2 Metoda fázového posuvu	9
2.4.3 Metoda TCSPC	10
2.5 Scintilační krystaly	11
2.5.1 Czochralskiho metoda pěstování krystalů	11
2.5.2 Micropulling down metoda pěstování krystalů	13
2.5.3 Dopování krystalu	14
2.5.4 Krystal Ce:GGAG	15
2.5.5 Scintilátor ZnO	16
3. Instrumentace a metodika experimentu	17
3.1 Detekční části aparatury	17

3.1.1	Fotonásobič	17
3.1.2	Digitální osciloskop	18
3.2	Popis experimentů.....	18
3.2.1	Experiment pro měření fotoluminiscence.....	19
3.2.2	Experiment pro měření scintilace	20
3.2.3	Umístění vzorku.....	21
	Vzorky scintilačních krystalů Ce:GGAG a ZnO	21
	Kyveta s roztokem destilované vody a mléka	23
3.2.4	Charakteristika excitačních zdrojů.....	23
3.2.5	Analýza detekční části aparatury.....	25
3.3	Zaznamenání, ukládání a analýza dat.....	25
3.3.1	Ovládání osciloskopu	26
3.3.2	Skládání signálu	27
3.3.3	Vliv šumu a parazitního signálu	28
3.3.4	Rekonvoluce dat	29
3.3.5	Určení fitu metodou nejmenších čtverců.....	30
3.3.6	Vážená rezidua	30
4.	Analýza detekční části aparatury.....	32
4.1	Výběr triggeru pro měření.....	32
4.1.1	Trigger pro měření s SXR excitačním zdrojem.....	32
	Trigger signálem z IR diody.....	33
	Trigger signálem, který je synchronní s IR laserem pro triggerování CCD pinhole kamery	34
	Trigger signálem z XUV diody	35
4.1.2	Trigger pro měření s přímým excitačním zdrojem	37
	Časový průběh impulsu UV dusíkového laseru měřený Si diodou	37
	Časový průběh modrého pikosekundového laseru měřený Si diodou.....	39
4.2	Měření odezvy detekční části aparatury	41
4.2.1	Měření rozptýleného světla roztokem vody a mléka.....	41

4.2.2	Měření odezvy detekční části aparatury na náhodné fotony	43
4.3	Srovnání fotoluminiscenční a scintilační odezvy scintilátoru ZnO	44
5.	Scintilátory Ce:GGAG.....	47
5.1	Scintilační odezva krystalů Ce:GGAG na SXR-excitaci	47
5.2	Fotoluminiscenční odezva vzorku GGAG_81 na přímou excitaci	54
6.	Diskuze výsledků.....	56
6.1	Výběr triggeru.....	56
6.2	Odezva detekční části aparatury	57
6.3	Luminiscenční a scintilační odezva práškového ZnO.....	58
6.4	Scintilátory Ce:GGAG.....	60
7.	Závěr	63
	Seznam použité literatury	64
	Seznam obrázků	68
	Seznam grafů.....	70
	Seznam tabulek	72
	Seznam příloh.....	73

Seznam zkratk

CP	Celkový poměr
CT	Počítačová tomografie (computed tomography)
FWHM	Šířka peaku v polovině výšky (full width half maximum)
FZU	Fyzikální Ústav Akademie Věd České republiky
GDMS	Hmotnostní spektrometrie na bázi svítivých výbojů (glow discharge mass spektrometry)
IR	Infračervená oblast spektra
IRF	Funkce odezvy detekční části (instrument response function)
IZ	Ionizující záření
PET	Pozitronová emisní tomografie (positron emission tomography)
RTG	Rentgenovská oblast spektra
SNR	Poměr signál-šum (signal to noise ration)
SPECT	Jednofotonová emisní počítačová tomografie (single photon emission computed tomography)
STD	Standard měření
SXR	Měkké rentgenovo záření (soft X-ray)
TCSPC	Časově korelované čítání fotonů (time-correlated single photon counting)
UV	Ultrafialová oblast spektra
VIS	Viditelná oblast spektra

1. Úvod

V současné moderní medicíně se stále častěji můžeme setkat s lékařskými přístroji, které využívají ionizující záření (IZ). Ionizujícím zářením se rozumí takové záření, které je schopno látku, se kterou přijde do styku, ionizovat. Mezi nejnámější IZ patří záření rentgenovo (RTG), za jehož objevem stál v roce 1895 německý fyzik Wilhelm Conrad Röntgen a za což dostal v roce 1901 vůbec první Nobelovu cenu za fyziku.

Dnešní moderní lékařské přístroje využívají IZ z diagnostického i terapeutického hlediska, čímž se velmi zvýšila efektivita zdravotní péče. Tyto přístroje dokážou odhalit patologické změny v lidské tkáni, následně je lékaři vyhodnotí, určí diagnózu a posléze stanoví odpovídající léčbu. Během několika posledních desetiletí pokročil výzkum a vývoj přístrojů, které využívají RTG, do takové míry, že je možné určit (a následně odstranit) přesnou polohu nádoru v mozku o velikosti makového zrnka nebo zjistit neprůchodnost sebeužší cévní kapiláry, která zabraňuje plynulosti toku krve. Aby bylo něco takového možné, musel jít pokrok ve vývoji ruku v ruce i v jiných odvětvích, ze kterých je pro tuto práci nejdůležitější odvětví zobrazovací techniky, konkrétně z hlediska detekce a vyhodnocení ionizujícího záření (např. RTG).

Detekce RTG záření může být realizována různými metodami. Dříve se k detekci využívalo fotochemické reakce RTG záření s bromidem stříbrným (AgBr), při které dochází k rozpadu AgBr. To se projeví ztmavnutím fotochemického filmu v místě dopadu RTG záření, tedy v místě, kde tkání pacienta záření prošlo. Tato metoda se dnes již téměř nevyužívá, mimo jiné z důvodu náročnosti na uskladnění RTG snímků. Modernější možností detekce RTG záření je pomocí scintilačních detektorů, při kterém jsou světelné signály luminiscence převedeny na signály elektrické a ty jsou následně digitalizovány. Hlavní součástí scintilačního detektoru je tzv. scintilátor, který je často zhotoven z krystalického materiálu obsahujícího určité množství dopantu. Scintilátor je látka, která dokáže vyvolat luminiscenci na základě dopadajících rentgenovských fotonů konverzí na fotony vlnové délky z oblasti UV, popř. viditelného spektra (VIS). Tento proces je nazýván scintilace.

Hlavním cílem této práce je provést důkladnou analýzu aparatury na měření scintilační odezvy vyvolanou excitací měkkým rentgenovým zářením (SXR), a výsledky této analýzy promítnout do experimentálně naměřené scintilace vzorků Ce:GGAG (cerem dopovaný galium gadolinium aluminium granát) ko-dopovaných lithiem a hořčíkem. SXR-excitovaná časově rozlišená luminiscence využívá Bremsstrahlungova plazmatu jako excitačního zdroje SXR. V experimentech této práce bylo plazma vyvoláno ionizací plynu argonu ve vakuové komoře vysoce-energetickým infračerveným (IR) Nd:YAG laserem. K vyhodnocení průběhu dohasínání scintilace použitých vzorků byla využita metoda časově

rozlišeného měření. Velká výhoda této metody spočívá v možnosti získání detailního průběhu scintilačního dohasínání takto měřených vzorků. Samotný proces měření, analýzy a interpretace výsledků dosažených měření touto metodou vyžaduje přesný postup.

2. Teoretická část

Monokrystalické scintilační materiály, se využívají k detekci vysokoenergetických fotonů. V současné době se scintilátory využívají zejména v medicíně, konkrétně pro medicínské zobrazování, můžeme se s nimi ale setkat v mnoha dalších oblastech (např. v elektronové mikroskopii – YAG:Ce, LuAG:Ce). Tato diplomová práce se zabývá procesy fotoluminiscence a scintilace vyvolanými různými excitačními zdroji. K fotoluminiscenci dochází tzv. přímou excitací luminiscenčního centra. Ve scintilačních krystalech jsou pojmem luminiscenční centrum označovány ionty přidávaných dopantů (v našem případě ionty Ce^{3+} , Mg^{2+} a Li^+). Proces scintilace je vyvolán působením vysoko-energetického ionizujícího záření (detailně je tento jev popsán v kapitole 2.3 této práce). [1]

2.1 Proces fotoluminiscence

Luminiscence je spontánní záření látek, které vzniká jako přebytek světelného záření tělesa nad úrovní jeho tepelného záření v dané spektrální oblasti při dané teplotě. Z termodynamického pohledu se jedná o nerovnovážné záření, což znamená, že musíme látce dodat excitační energii. Vznik luminiscence je podmíněn excitováním elektronového obalu atomu a následným návratem elektronu do základního stavu, při čemž dojde k uvolnění energie ve formě vyzářeného fotonu. Podle způsobu excitace atomu dělíme luminiscenci do několika podskupin - fotoluminiscence, elektroluminiscence, termoluminiscence, katodoluminiscence, chemoluminiscence apod. Podle doby dohasínání dělíme luminiscenci na fluorescenci a fosforescenci. [2] [3]

2.1.1 Fluorescence

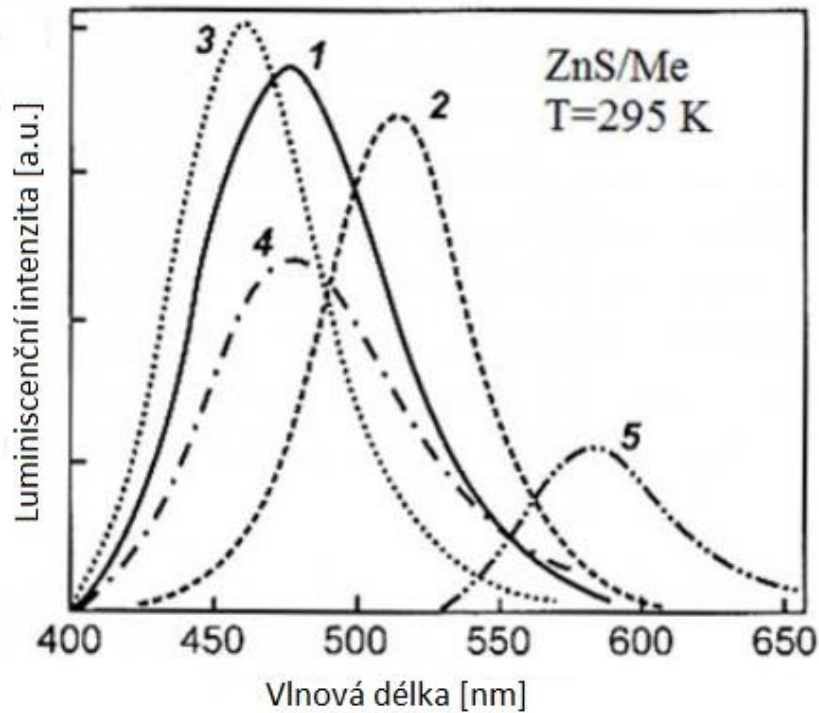
Při fluorescenci dochází v látce k tzv. dovolenému přechodu z vyšší energetické hladiny do nižšího energetického stavu se stejnou multiplicitou ($S_1 \rightarrow S_0$). Doba trvání fluorescence se řádově pohybuje v intervalu od 10^{-9} s do 10^{-6} s. Fluorescence je pozorovatelná v běžném životě např. osvětlením bílé tkaniny zdrojem UV světla, prosvícením nápoje tonice zdrojem UV světla (díky přítomnosti látky chininu) nebo například při kontrole padělaných bankovek. Název tohoto jevu je odvozen od minerálu fluoritu (kazivec, fluorit vápenatý), u kterého byl tento jev poprvé pozorován. [2] [3]

2.1.2 Fosforescence

Světelné záření vyvolané přechodem mezi hladinami s rozdílnou multiplicitou ($T_1 \rightarrow S_0$) – spinově zakázaný zářivý přechod. Doba trvání fosforescence je podstatně delší, než v případě fluorescence (řádově 10^{-2} s), což je způsobeno excitací elektronů do takových hladin, ze kterých se není snadné vrátit zpět do základního stavu. [2] [3]

2.2 Spektrum

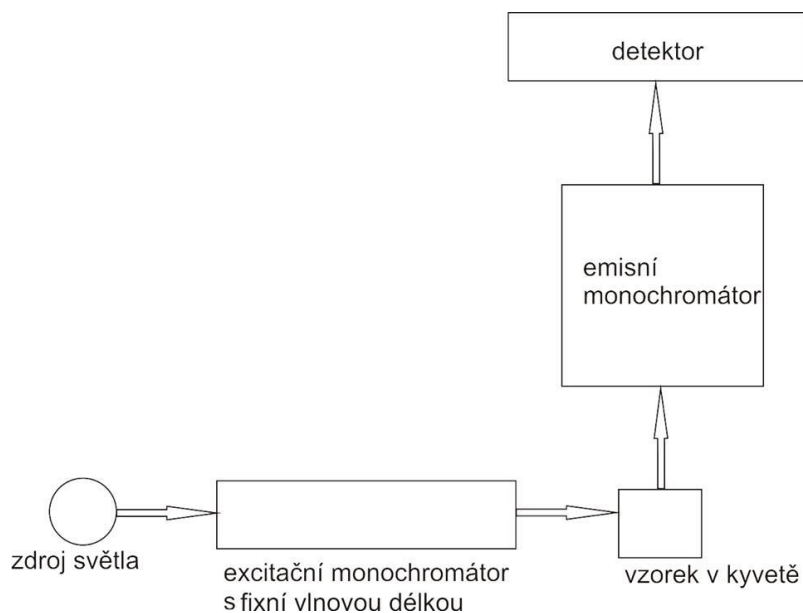
Důležité informace o scintilátorech se vyskytují v jejich spektru. Spektrum lze popsat jako grafickou vizualizaci závislosti luminiscenční intenzity na vlnové délce, přičemž luminiscenční záření se označuje jako spektrum emisní. Příklad emisního spektra luminiscence scintilátoru, který obsahuje různé dopanty, je znázorněn na Obrázku 1. [3]



Obrázek 1 - Emisní spektrum ZnS dopovaný různými kovy; 1 – ZnS/Zn, 2 – ZnS/Cu, 3 – ZnS/Ag, 4 – ZnS/Au, 5 – ZnS/Mn při pokojové teplotě (25°C/295K), převzato z [3]

2.2.1 Emisní spektrum

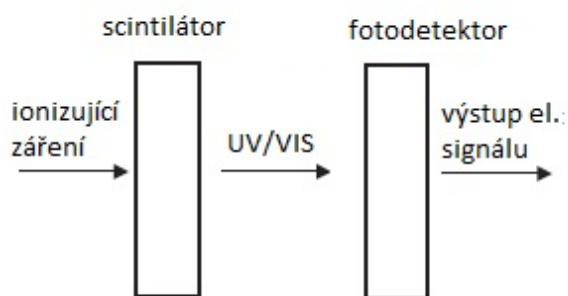
Emisní spektrum ZnS dopovaného různými kovy bylo naměřeno při pokojové teplotě (Obrázek 1). Intenzita emise luminiscence u většiny pevných látek roste s klesající teplotou, a proto bývá mnohdy označována jako „studené světlo“. Měření emisního spektra lze provést pomocí dvou monochromátorů, emisního a excitačního, přičemž se měří proměnlivá emisní vlnová délka a nastavení vlnové délky na excitačním monochromátoru je konstantní (Obrázek 2). Kromě emisního spektra lze měřit i spektrum excitační, které je ale v rámci scintilačních procesů irelevantní, protože u nich dochází k excitaci ionizujícím zářením, nikoli zářením z oblasti UV/VIS. Z tohoto důvodu není excitační spektrum v této práci popsáno podrobněji. [2]



Obrázek 2 - Blokové schéma aparatury pro měření emisního spektra vzorku

2.3 Proces scintilace

Scintilátory jsou látky schopné vyvolat luminiscenci na základě excitace atomu dopadajícím ionizujícím zářením, a to přeměnou na záření oblasti vlnových délek odpovídající UV nebo VIS. Luminiscenční záření scintilátoru poté dopadá na fotodetektor a nakonec je zaznamenáno (např. osciloskopem) ve formě elektrického signálu vycházejícího z fotodetektoru. Zařízení, ve kterém jsme schopni zaznamenat celý proces, tj. od detekce po získání elektrického výstupního signálu, se nazývá scintilační detektor. Princip scintilačního detektoru je znázorněn na Obrázku 3. [4] [5]



Obrázek 3 - Princip scintilačního detektoru, převzato z [4]

Materiály, které mají široký zakázaný pás, se používají k transformaci rentgenových fotonů na fotony UV/VIS, a jsou proto vhodné pro výrobu scintilátorů. Scintilační konverze je relativně komplikovaný proces, který můžeme rozdělit do tří základních podprocesů – konverze, transport a luminiscence. [4]

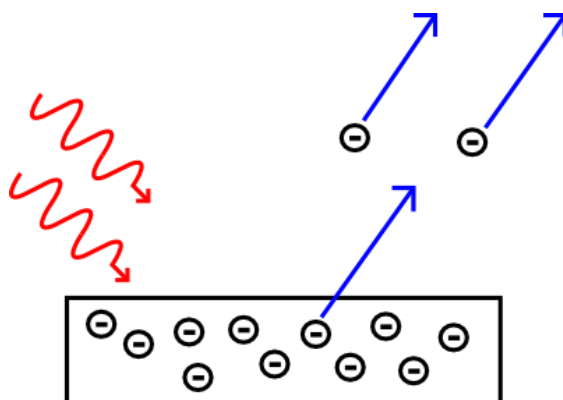
2.3.1 Konverze

Během počáteční fáze, konverze, dochází k vícestupňové interakci vysokoenergetických fotonů s mřížkou scintilačního materiálu, při čemž dochází k fotoelektrickému jevu a Comptonovu rozptylu. To má za následek, že se díky termálním změnám ve valenčním a vodivostním pásu tvoří značné množství párů elektron-díra. Doba trvání této počáteční fáze není delší než 1 ps. [4] [5]

Fotoelektrický jev

Fotoelektrický jev nebo také fotoefekt byl poprvé teoreticky popsán Henrichem Hertzem, který pozoroval nevysvětlitelné chování elektromagnetického vlnění při dopadu na kov. Kvantově byl popsán až Albertem Einsteinem, který za tento objev získal v roce 1921 Nobelovu cenu za fyziku.

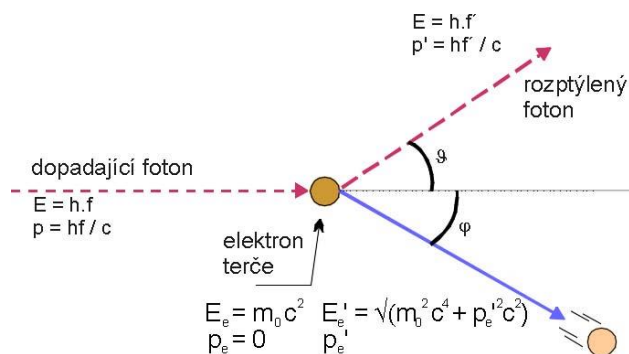
Jedná se o jev, při kterém dochází k uvolnění (emisi) elektronů, tzv. fotoelektronů, z povrchu látky při absorpci elektromagnetického záření. V případě, že tento jev probíhá na povrchu látky, tj. působením vnějšího elektromagnetického záření, a elektrony se uvolňují do okolí látky, hovoříme o tzv. vnějším fotoelektrickém jevu (vnějším fotoefektu). Tento jev ovšem může probíhat i uvnitř látky, kdy elektrony neopouštějí její povrch a stávají se z nich vodivostní elektrony - vnitřní fotoelektrický jev (vnitřní fotoefekt). Princip fotoelektrického jevu je znázorněn na Obrázku 4. [2] [6]



Obrázek 4 - Princip fotoelektrického jevu, převzato z [6]

Comptonův jev

Jako první, kdo teoreticky popsal Comptonův jev (nebo také Comptonův rozptyl) byl americký fyzik Arthur Holly Compton, který za jeho teoretické objasnění obdržel v roce 1927 Nobelovu cenu za fyziku. Jedná se o fyzikální jev, při kterém dochází, v důsledku interakce elektromagnetického záření s atomy látky, ke změně vlnové délky záření díky předání části své kinetické energie atomům látky. Tento jev je jedním ze základních stavebních kamenů korpuskulárně-vlnové teorie světla a teorie elektromagnetického charakteru záření. Princip Comptonova jevu (rozptylu) je znázorněn na Obrázku 5. [7]



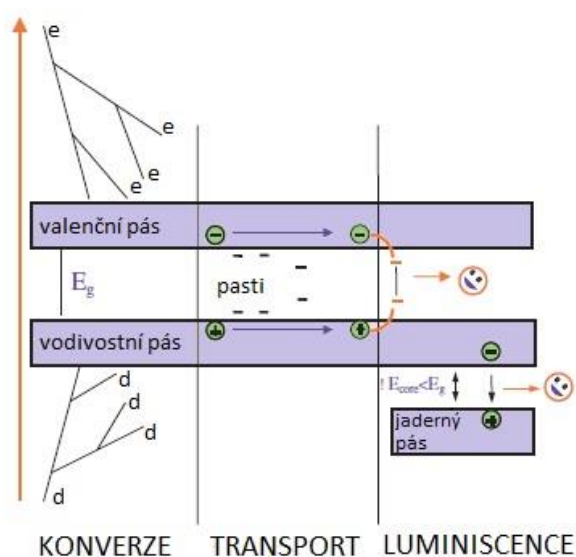
Obrázek 5 - Princip Comptonova jevu (rozptylu), převzato z [7]

2.3.2 Transport

Ve fázi transportu migrují elektrony a díry (eventuálně vytvořené excitony) napříč materiálem, přičemž dochází ke ztrátám energie, které jsou způsobeny přítomností energetických pastí a defektů v krystalické mřížce materiálu. Tyto pasti a defekty v krystalové mřížce mohou na čas pozastavit nosiče náboje v transportní fázi, a tím způsobit významné zpoždění výsledné zářivé rekombinace. Doba zdržení nosiče náboje na defektech krystalové mřížky je závislá na energetické hloubce pasti a okolní teplotě. Šířka všech možných energetických hloubek je obvykle označována E_g a značí velikost zakázaného pásu daného materiálu. [4] [5]

2.3.3 Luminiscence

Aby mohlo docházet k samotné luminiscenci, je nezbytná přítomnost tzv. luminiscenčních center v materiálu scintilátoru. Na luminiscenčních centrech dochází k zářivé rekombinaci mezi elektrony a děrami. U některých materiálů může dojít ke generaci luminiscence díky radiačnímu přechodu mezi valenčním pásem a prvním jaderným pásem (tzv. core band). [1] [4]



Obrázek 6 - Průběh mechanismu scintilace, převzato z [4]

V této diplomové práci jsou velmi důležité pojmy *fotoluminiscence* a *scintilace*. Pojmem fotoluminiscence je označen proces přímé excitace luminiscenčních center např. zářením ze spektrální oblasti VIS. Pojmem scintilace je označen proces, kdy je látka excitována ionizujícím zářením a kdy se toto záření přemění na záření ve spektrální oblasti UV/VIS. [4] [5]

2.4 Časově rozlišená luminiscence

„Údaje o časovém průběhu luminiscenčního signálu, tj. zejména o tvaru křivky dohasínání luminiscence po vypnutí excitačního působení, jsou cennou informací – společně s analýzou emisních a excitačních spekter a závislostí intenzity luminiscence na amplitudě budícího signálu – k identifikaci luminiscenčního centra, popř. příslušného zářivého rekombinačního procesu.“ [3]

V současné době se využívají tři hlavní možnosti měření časově rozlišené luminiscence – metoda zobrazení přímé luminiscenční odezvy, metoda fázového posuvu a metoda časově korelovaného čítání fotonů označovaná zkratkou TCSPC (time-correlated single photon counting). [3]

2.4.1 Metoda zobrazení přímé časové odezvy

Principiálně je tato metoda nejjednodušší variantou časově rozlišené luminiscence, kdy je luminiscenční signál scintilátoru přiveden z fotonásobiče na obrazovku osciloskopu. Pro zachycení exponenciálního poklesu luminiscenčního signálu v čase po ukončení budícího působení je důležité excitovat vzorek co nejkratším časovým pulzem, který se limitně blíží Diracově delta funkci. Smysl využití co nejkratšího excitačního pulzu je mimo jiné ten, že při následné analýze naměřených dat je nutno analyzovat i chování detekční části aparatury – Instrument Response Function (IRF), k čemuž může být využit právě tento krátký excitační pulz. Vlastní doba dohasínání τ je definována jako čas, za který poklesne intenzita luminiscenčního záření na hodnotu $1/e$ původní hodnoty. Protože mohou být průběhy dohasínání fotoluminiscenční a scintilační odezvy silně závislé na emisní vlnové délce, je obvykle před detektor zařazen monochromátor, díky němuž lze luminiscenční signál scintilačního materiálu měřit jako monochromatický. Pokud vykazuje scintilační materiál luminiscenci o konkrétní vlnové délce, je možné použít místo monochromátoru optický bandpass filtr, který propustí pouze světlo o dané vlnové délce (v závislosti na šířce propustnosti). [3] [8]

Nejjednodušší případ pro analýzu dohasínání luminiscenčního signálu je pro jedno-exponenciální funkce (mohou ale být i složitější, např. dvou-exponenciální, hyperbolické apod.). Průběh jedno-exponenciální funkce dohasínání lze psát jako

$$i_{\lambda}(t) = i_{\lambda}(0) * e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (1)$$

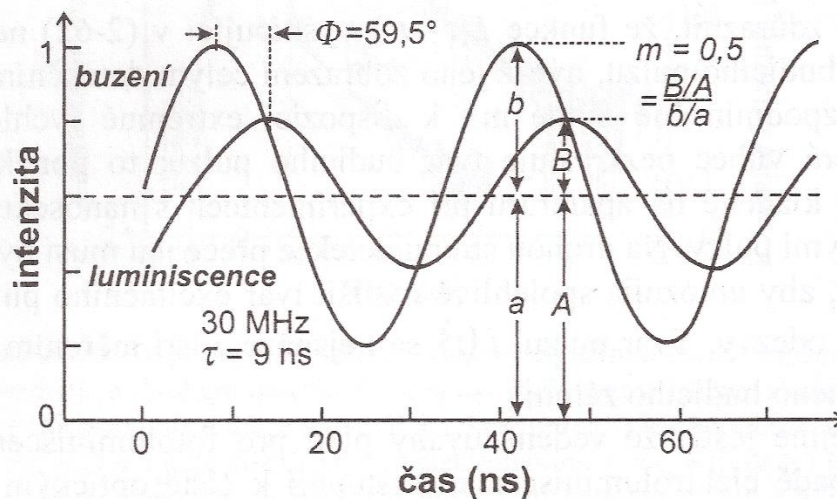
kde τ je rovno době dohasínání. Střední dobu dohasínání lze obecně definovat statisticky jako hodnotu střední náhodné veličiny výrazem

$$\bar{t} = \frac{\int_0^{\infty} [t * i_{\lambda}(t)] dt}{\int_0^{\infty} [i_{\lambda}(t)] dt} \quad (2)$$

Ačkoli je princip přímé metody poměrně jednoduchý, je kladen velký nárok na její experimentální realizaci, zejména pak na přístrojové vybavení a znalost obsluhy. Všechny části aparatury by měly být dostatečně rychlé jak v produkci rychlých excitačních pulzů a jejich přenosu, tak v jejich detekci. Luminiscenční odezva musí být ve své podstatě vždy pomalejší než délka excitačního pulzu, a systém pro měření přímé časové odezvy musí s jistotou rozlišit tyto dva signály. Dodatečné matematické zpracování (dekonvoluce/rekonvoluce) je popsáno v dalších kapitolách této práce. [3] [8]

2.4.2 Metoda fázového posuvu

Tato metoda využívá buzení vzorku světlem o takové intenzitě, která je sinusově modulována v čase s úhlovou frekvencí ω . Odezva luminiscenčního dohasínání na takové světlo bude sledovat sinusový průběh se stejnou frekvencí, ale konečná doba dohasínání τ způsobí dvě změny – posun luminiscenční odezvy o úhel φ vůči excitační funkci a zmenšení její hloubky modulace. [3]



Obrázek 7 - Modulace excitačního záření a luminiscenční odezvy při metodě fázového posuvu, převzato z [3]

Obrázek 10 dokazuje, že platí

$$\operatorname{tg} \varphi = \omega \tau \quad (3)$$

a

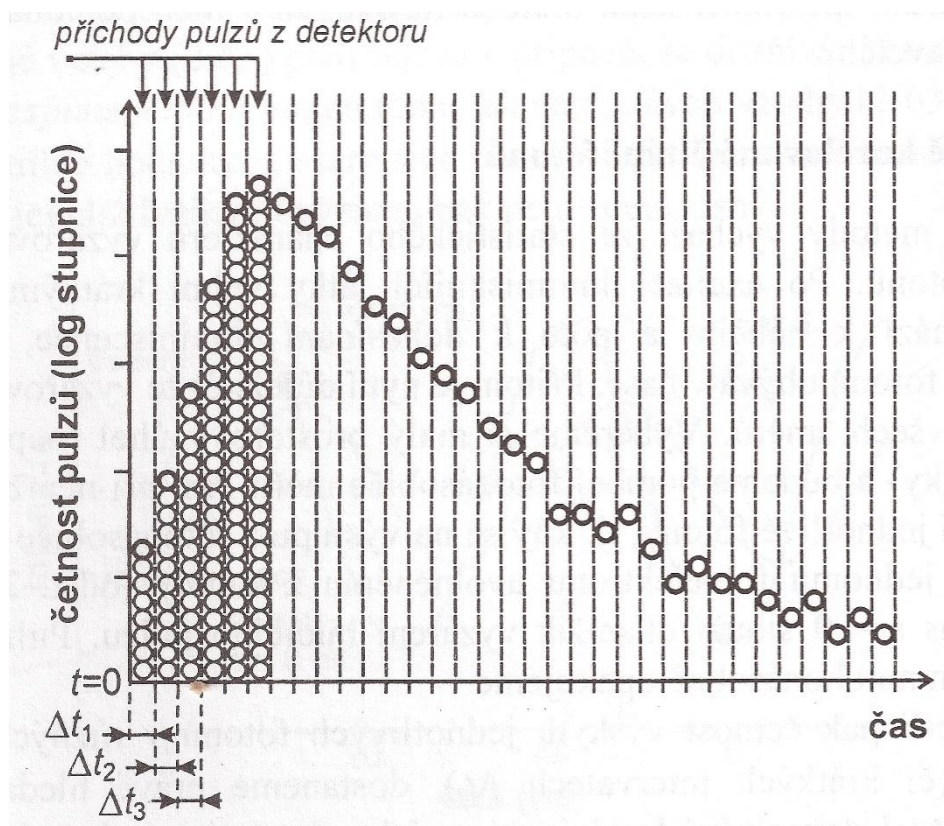
$$m = \frac{1}{\sqrt{1 + \omega^2 \tau^2}} = \cos \varphi \quad (4)$$

kde m je poměr hloubek modulační budícího záření a luminiscence: $m = \frac{B/A}{b/a}$. Všechny tyto vztahy platí pouze v případě jedno-exponenciálního dohasínání luminiscenčního signálu, což může být velmi limitující. [3]

Aby bylo možné tuto metodu vhodně aplikovat, je nutné, aby velikost úhlové frekvence ω byla srovnatelná s $\frac{1}{\tau}$, protože pokud bude výrazně větší, tak nestačí luminiscence sledovat modulaci buzení a $m \rightarrow 0$, což znamená, že fázový úhel posuvu φ nelze s jistotou určit. Pokud naopak bude ω výrazně menší než $\frac{1}{\tau}$, pak rychlá luminiscence bez problému sleduje budící signál, což znamená, že $m \rightarrow 1$ a úhel fázového posuvu φ je nulový. V praxi je tato metoda použitelná pro frekvence v intervalu 1-30 MHz, což umožňuje měřit doby dohasínání luminiscenční odezvy až do řádu nanosekund. [3]

2.4.3 Metoda TCSPC

Tato metoda časově rozlišené luminiscence je založena na statistickém charakteru vyzářených luminiscenčních fotonů. Zkratka TCSPC znamená časově-korelované čítání fotonů (z anglického Time-Correlated Single Photon Counting). Při excitaci látky schopné fotoluminiscence vhodným světelným zdrojem dochází k náběhu a následnému luminiscenčnímu dohasínání, kdy světelné fotony emitují do všech stran. Při měření luminiscence metodou TCSPC je důležitý předpoklad, že intenzita záření je přímo úměrná pravděpodobnosti emise. Vzorek je ozařován velkou sérií pulzů, při čemž po každém pulzu je detekován maximálně jeden foton. Časové okamžiky detekování jednotlivých fotonů jsou zaznamenány a vyneseny do histogramu. Při velkém počtu zaznamenaných pulzů, resp. jim odpovídajících fotonů, je na histogramu patrná křivka dohasínání luminiscence jako závislost četnosti událostí na čase. Výhody této metody jsou vysoké rozlišení, možnost měření více-exponenciálního dohasínání, malá náchylnost k systematickým artefaktům, fitovaný model lze porovnat s teoretickou předpovědí apod. Obecně platí, že čím větší je účinnost detekce, tím lepší jsou výsledky, což ovšem platí jen do určité míry – nežádoucí je tzv. pile-up efekt. K pile-up efektu dochází v případě, kdy je časový interval mezi příchodem dvou různých fotonů tak krátký, že je detekční část neschopna rozlišit, a zaznamená je jako jeden (dojde ke spojení dvou pulzů v jeden). Eliminace pile-up efektu je možné dosáhnout dodržením pravidla, že rychlost čítání fotonů musí být menší než 1 % všech detekovatelných událostí (např. při opakovací frekvenci 10 MHz je možno detekovat maximálně 10^5 fotonů za jednu sekundu). Na Obrázku 8 je zachycen princip měření metodou TCSPC. [3] [8] [9]



Obrázek 8 - Příklad možného výsledku experimentu měřeného metodou TCSPC, převzato z [3]

2.5 Scintilační krystaly

Scintilační detektory jsou základem detekčních částí všech zdravotnických přístrojů, které pracují s ionizujícím zářením – CT, PET, SPECT. Scintilační krystaly jsou hlavním stavebním prvkem scintilačních detektorů, protože dokáží převést ionizující záření na záření viditelné (VIS), případně ultrafialové (UV).

Proces pěstování scintilačních krystalů podléhá přísným kritériím, která musí být dodržena v laboratorních podmínkách za dozoru specializovaného personálu. V současné době je řada způsobů pěstování krystalických materiálů, z nichž pravděpodobně nejpoužívanější je metoda dle Czochralskiho. [10] [11]

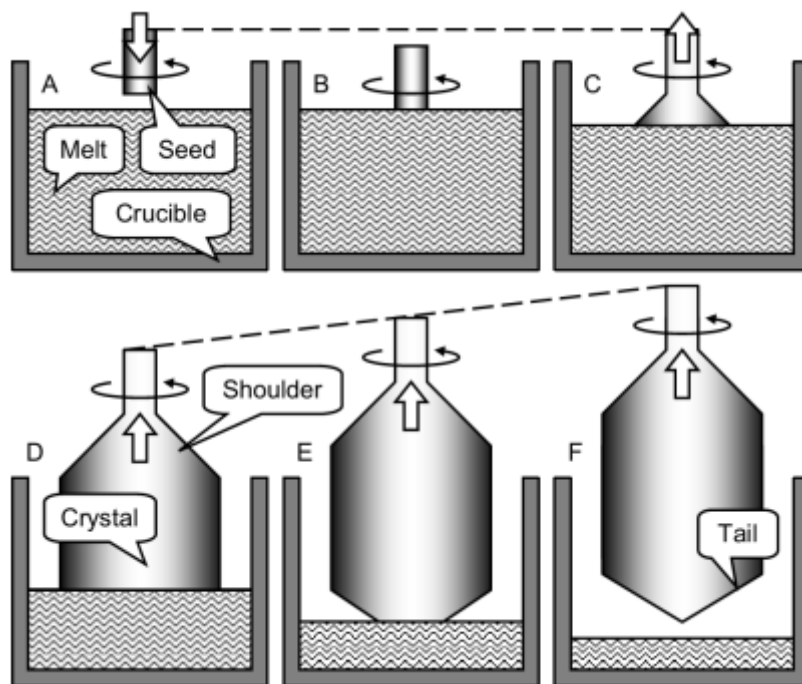
2.5.1 Czochralskiho metoda pěstování krystalů

Proces růstu krystalů Czochralskiho metodou, která byla vyvinuta zejména pro růst krystalických kovů, je stará téměř celé století, ale stále je jednou z nejpoužívanějších metod pěstování krystalů. Tato technika umožňuje kontrolované formování monokrystalických „válečků“, přičemž lze dle potřeby měnit složení anorganických scintilačních materiálů (je ovšem možné tuto techniku použít i pro materiály organické). Tento proces pěstování je vhodný kromě kovů také pro polovodiče, oxidy, fluoridy a jiné halogenidové krystaly. Ačkoli je proces růstu krystalu relativně jednoduchý, vyžaduje

pozorný výběr konkrétních faktorů, které mohou ovlivnit kvalitu a vlastnosti krystalu, a tím pádem i jeho komerční využití. [11]

Czochralskiho metoda růstu krystalů lze rozdělit do několika fází, které popisuje Obrázek 9. Ve fázi A se pomalu rotující zárodek krystalu (seed) zčásti ponoří do taveniny (melt) o vysoké teplotě, která je umístěna v tavícím kelímku (crucible). Takto ponořený zárodek krystalu rotuje v tavenině, během čehož se na něm usazují jednotlivé atomy z taveniny tak, aby dodržovaly přísnou krystalickou strukturu (fáze B a C). Zprvu probíhá růst rychleji, a tvoří se tzv. ramena krystalu (shoulder). Po ustálení růstu je formován již samotný krystal, což probíhá až do chvíle, kdy se v tavícím kelímku nachází dostatek taveniny (fáze D). Když v tavícím kelímku není dostatečné množství taveniny, velice pomalu dochází k vytažení formovaného krystalu z tavícího kelímku a tím dojde k vytvoření koncových ramen krystalu (tail) (fáze E a F). [11]

Scintilační krystaly bývají obohaceny o určité množství nějakého prvku (dopantu), které tvoří a zároveň vyplňují defekty v krystalové mřížce. Tyto defekty se ve scintilačním krystalu nazývají luminiscenční centra a velmi efektivně dokáží měnit optické vlastnosti látky oproti čistému materiálu. Jsou odpovědní mimo jiné za schopnost procesu fotoluminiscence, popř. scintilace krystalického materiálu. Dopovaný prvek musí být přítomen již v tavenině při vzniku krystalu a jeho množství musí být předem přesně spočítáno. Obecně platí, že koncentrace dopovaného prvku není konstantní v celém objemu krystalu – koncentrace u zárodku krystalu (seed) je menší než na konci krystalu (tail). Také je koncentrace vyšší blízko centrální osy krystalu, protože se při růstu vytváří tzv. šlír a ta obsahuje větší množství dopantu. Tato skutečnost je důležitá v experimentální části této práce, protože pracuje se vzorky krystalu se stejným složením i koncentrací dopantu, ale s různou pozicí (seed a tail). [11]



Obrázek 9 - Princip Czochralskiho metody pěstování krystalů, převzato z [11]

Důležité parametry pro jednotlivé části Czochralskiho metody pěstování krystalů jsou vypsány v následující Tabulce 1.

Tabulka 1 - Příklady změny konkrétních parametrů Czochralskiho metody pěstování krystalů, převzato z [11]

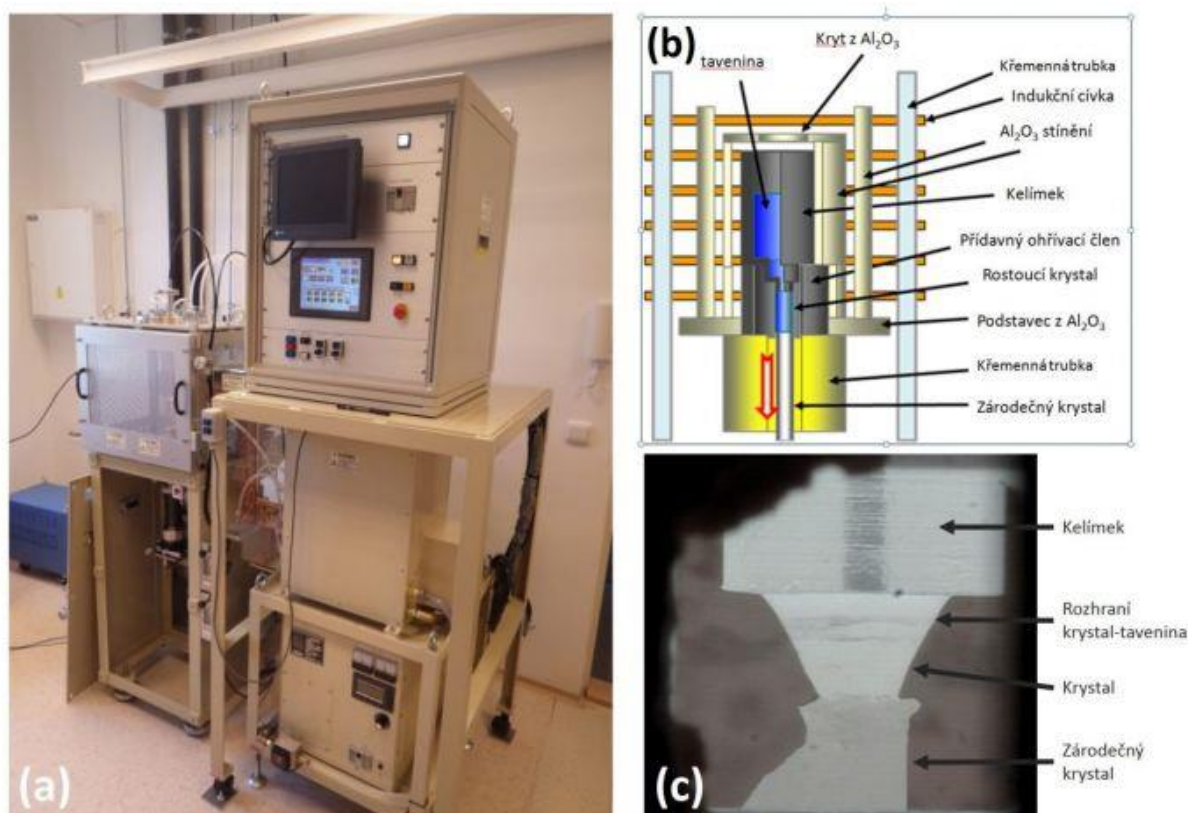
předmět nastavení	parametr
tavící kelímek	materiálové složení, koroze, teplota tání, tvar a rozměr, kontaminace, otáčení apod.
atmosféra	složení, tlak, průtoková rychlost apod.
tavenina (melt)	složení, počáteční opracování materiálu, odpaření složek, koroze apod.
zárodek (seed)	struktura, složení, orientace, rozměry, tvar apod.
táhnutí krystalu z taveniny	rychlost táhnutí, rotace (rychlost, akcelerace, směr) apod.
tepelný aspekt	tepelný zdroj a jeho výkon, design tepelné zóny a izolace materiálu, teplotní gradient, automatická kontrola průměrné teploty apod.
cenová efektivita	tuhnutí frakcí taveniny, cena tavícího kelímku a složek taveniny, cena aparatury, čas potřebný pro přípravu materiálů, celkový čas potřebný pro proces růstu krystalu

2.5.2 Micropulling down metoda pěstování krystalů

Metoda micropulling down je další možnou technologií pro růst krystalů z taveniny, která byla v České republice zavedena teprve v roce 2015, a to v laboratoři FZU (Fyzikální Ústav Akademie Věd

ČR). Velká výhoda oproti Czochralskiho metodě spočívá v rychlém růstu malých krystalických struktur, což je vhodné k produkci testovacích vzorků pro laboratorní účely (nikoli ke komerční výrobě). Touto metodou jsou produkovány monokrystaly oxidů o průměru 3-5 mm v délce několika centimetrů v celkovém trvání řádově několika hodin až desítek hodin. Obrovskou výhodou použití této metody pro laboratorní účely je v úspoře výchozích materiálů a energie. [12] [13]

Indukční cívka, která obklopuje růstovou komoru, zahřívá kelímek produkovaním vysokofrekvenčního magnetického pole. Tavenina proudí ve dně kelímku ven, kde se díky nastavení vhodného teplotního gradientu a rychlosti posuvu tvoří fázové rozhraní krystal-tavenina, čímž dochází k růstu nové krystalické fáze. Rychlost posuvu nově vytvořené krystalické fáze bývá obvykle nastavena na 10 – 100 $\mu\text{m}/\text{min}$ a probíhá směrem dolů ven z kelímku (micropulling down). [12] [13]



Obrázek 10 - Micropulling down metoda pěstování krystalů, a) pohled na celou aparaturu, b) schéma jednotlivých částí aparatury, c) snímání procesu růstu CCD kamerou, převzato z [13]

2.5.3 Dopování krystalu

Jeden z nejčastějších dopantů, které se používají ve scintilačních krystalech, je dopant ceru, konkrétně iont Ce^{3+} . Scintilační detektory používané ve zdravotnických přístrojích založených na ionizujícím záření (PET, SPECT aj.) obsahují velmi často právě cerem dopované krystaly. Experimentálně bylo zjištěno, že pokud je krystal kromě ceru dopován navíc i ionty jiných prvků (ko-dopance), často se zvýší jeho efektivita detekce záření a zároveň je krácena doba života scintilační odezvy. Mezi ionty,

kteřé vykazovaly zvýšení světelného výtěžku a zkrácení doby života scintilační odezvy v ko-dopanci s iontem ceru, patří Mg^{2+} , Li^+ a Ca^{2+} . [14] [15]

2.5.4 Krystal Ce:GGAG

V experimentální části této diplomové práce byla naměřena scintilační odezva pěti vzorků krystalů cerem dopovaného galium gadolinium aluminium granátu (Ce:GGAG), ko-dopovaného lithitem (Li) nebo hořčíkem (Mg). Množství ceru bylo ve všech vzorkách stejné (1%) a v jednom vzorku nebyl kromě ceru přítomen žádný další dopant, proto se tento vzorek považoval za referenční – standard. Zbylé čtyři vzorky obsahují vždy dva stejné dopanty o stejném množství, načež se liší pouze v místě krystalu, ze kterého konkrétní vzorek pochází (seed nebo tail). Všechny vzorky se ve svém identifikačním čísle liší pouze v posledním dvojčíslí, a z tohoto důvodu byly vzorky značeny GGAG_79 až GGAG_83. Scintilační krystal Ce:GGAG o průměru dva palce a délce devět centimetrů vypěstovaný Czochralskiho metodou je zachycený na Obrázku 11. [10] [16]



Obrázek 11 - Scintilační krystal Ce:GGAG vypěstovaný Czochralskiho metodou, převzato z [10]

Výhoda scintilátoru Ce:GGAG v praktickém použití spočívá zejména ve vysokém světelném výtěžku, který experimentálním měřením přesáhl hodnotu 50 000 fotonů/MeV. Hustota tohoto materiálu je přibližně 6.63 g/cm^3 . Výborné scintilační vlastnosti a relativně vysoká hustota monokrystalu Ce:GGAG z něj dělají potenciálně vhodný materiál do scintilačních detektorů.

Vzorky scintilačních krystalů GGAG, jejichž scintilační a luminiscenční odezva byla měřena v rámci této diplomové práce, byly ve formě malých kousků o velikosti přibližně $4 \times 4 \text{ mm}$. Před provedeným měřením bylo analyzováno jejich složení metodou GDMS (Glow Discharge Mass Spectroscopy). Vzorky krystalů byly následně seříznuty tak, aby na jedné straně byla rovná plocha, a mohly být tak analyzovány pomocí optických metod jako krystaly z přirozeného lomu, bez jakýchkoli dalších úprav (broušení, leštění).

2.5.5 Scintilátor ZnO

Velmi rychlý polovodičový scintilátor ZnO:Ga je znám již od šedesátých let minulého století, ale kvůli jeho nízké brzdné schopnosti pro gama záření a poněkud velké náročnosti na pěstování nebyl nikdy využíván ve scintilačních detektorech. Nedopovaný krystalický materiál ZnO má velmi krátkou dobu života, řádově sub-nanosekundy (0.8 ns), avšak jeho světelný výtěžek je téměř zanedbatelný. Pokud se k tomuto materiálu přidá příměs galia, jeho doba života se sice zvýší řádově na jednotky nanosekund (2.5 ns), ale také se několikanásobně zvýší jeho světelný výtěžek. Spektrální maximum fotoluminiscence ZnO:Ga je při pokojové teplotě na vlnové délce 389 nm. [17]

V experimentální části této práce byla jako funkce IRF charakterizující detekční část aparatury použita křivka dohasínání fotoluminiscenční a scintilační odezvy na příslušnou excitaci krystalu ZnO:Ga.

3. Instrumentace a metodika experimentu

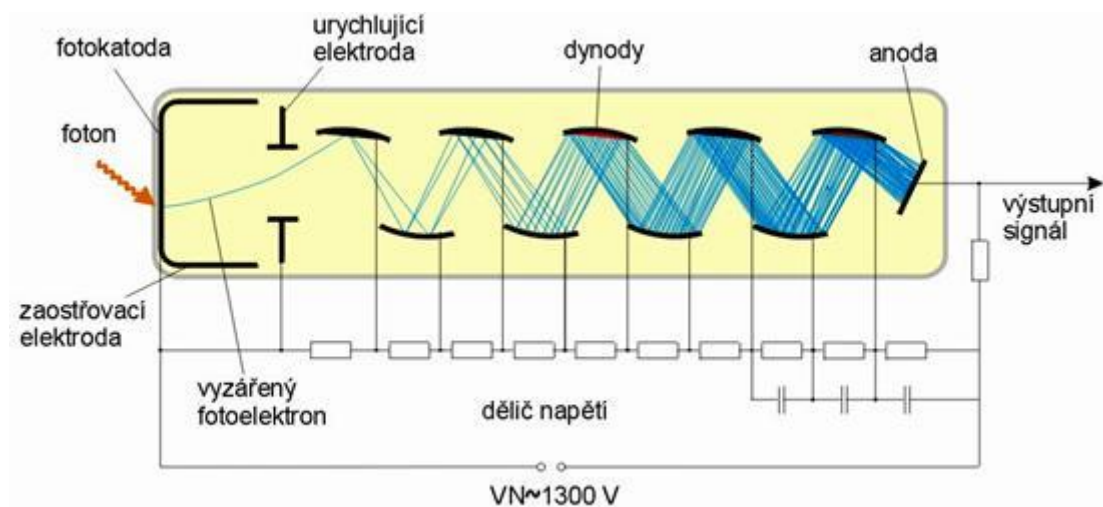
V této části diplomové práce jsou nejprve popsány hlavní segmenty detekční části aparatury, následně je schematicky popsáno uspořádání experimentů, a na jakém principu fungují excitační zdroje pro vyvolání procesu fotoluminiscence a scintilace. Pozornost je věnována popisu laserových zdrojů, které hrají důležitou roli v procesu excitace scintilačních vzorků. V další části této kapitoly se čtenář podrobně seznámí s programem na ovládání osciloskopu a s analýzou a vyhodnocením naměřených luminiscenčních dat.

3.1 Detekční části aparatury

Nejdůležitějšími segmenty detekční části aparatury provedených experimentů byl fotonásobič a digitální osciloskop. Jejich hlavním úkolem bylo převést fotoluminiscenční nebo scintilační odezvu na příslušnou excitaci na měřitelný elektrický signál a ten následně zaznamenat pro další zpracování. Kromě těchto segmentů byly součástí detekční části aparatury i vláknové vlnovody a optický či tlumicí filtr.

3.1.1 Fotonásobič

Úkolem fotonásobiče je zesílit fotoluminiscenční nebo scintilační signál natolik, aby byl digitální osciloskop schopen detekovat dostatečně velký signál rozeznatelný od šumu a ostatních parazitních signálů okolí. Luminiscenční fotony dopadají na fotokatodu, ve které generují fotoelektrony. Tyto fotoelektrony jsou následně zrychleny urychlující elektrodou a zesíleny a usměrněny soustavou dynod na anodu. Odtud je sbírán výsledný výstupní zesílený fotoluminiscenční nebo scintilační signál digitálním osciloskopem. Citlivost fotonásobiče hraje velkou roli při analýze výstupního signálu, kdy je nutné odlišit vnější vlivy od skutečně naměřených hodnot luminiscenčního signálu. Princip fotonásobiče je znázorněn na Obrázku 12. [18]



Obrázek 12 - Princip fotonásobiče, převzato z [19]

V detekční části aparatury na měření dohasínání luminiscence scintilátorů byl pro zesílení signálu použit fotonásobič R7056 vyrobený japonskou firmou Hamamatsu. Spektrální odezva tohoto fotonásobiče je na vlnovou délku od 185 do 650 nm s tím, že maximální odezva je přibližně 420 nm. Minimální efektivní plocha fotokatody je o průměru 25 mm, maximální zesílení činí 10^5 a minimální citlivost fotokatody na dopadající záření (při teplotě 2856 K) je $70 \mu\text{A}/\text{lm}$. [18]

3.1.2 Digitální osciloskop

Úkolem digitálního osciloskopu je zaznamenat průběhy luminiscenčního dohasínání scintilátorů. Protože byly vzorky scintilačních materiálů excitovány velmi krátkými pulzy (řádově jednotkami ns), musel být v experimentální části této práce použit digitální osciloskop, jehož parametry dovolily takto krátké časové úseky snímat. [20] [21]

K tomuto účelu byl využit čtyř-kanálový digitální osciloskop Agilent Technologies DSO7104 o frekvenční šířce 1000 MHz, maximální vzorkovací frekvenci 4 GSa/s a dvanáctipalcovém TFT (Thin Film Transistor) monitoru s rozlišením 1024x768. [20] [21]



Obrázek 13 - Digitální osciloskop Agilent Technologies DSO7104

3.2 Popis experimentů

Časově rozlišená luminiscenční spektroskopie je vhodnou metodou pro charakteristiku scintilačních materiálů. Vzorky jsou obvykle excitovány zdrojem UV/VIS záření a ionizujícího γ /RTG/SXR záření. [1]

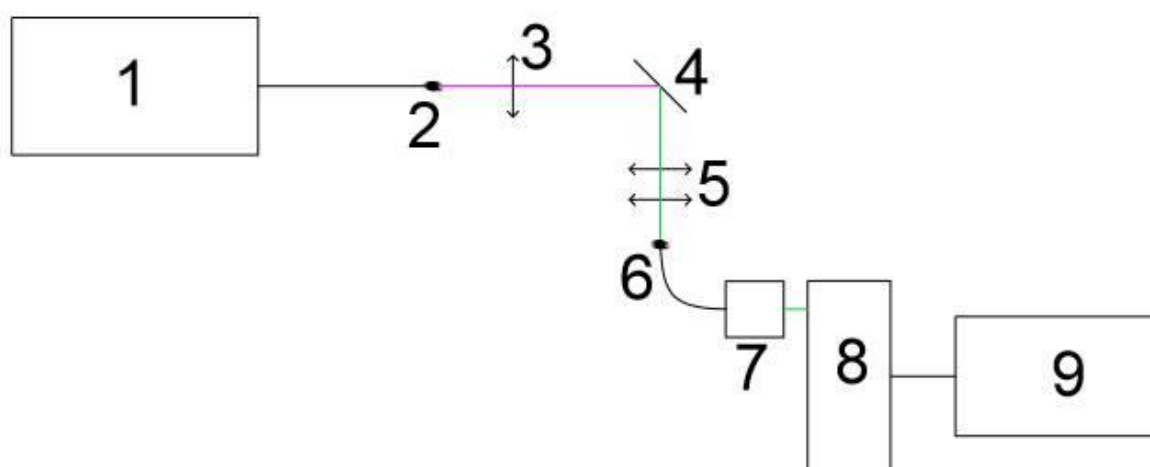
V případě nízkoenergetického zdroje UV/VIS dochází k absorpci vlastního záření na luminiscenčních centrech, resp. na jejich specifických absorpčních pásech. Díky tomu lze usoudit, že vyvolaná fotoluminiscence, je charakteristická pro vlastní luminiscenční centra. [1]

V případě využití SXR-záření jako excitačního zdroje je veškerá energie ionizujícího záření uložena v krystalové mřížce scintilátoru. Samotná doba dohasínání luminiscence je mimo jiné ovlivněna zpožděním procesu scintilace v transportní fázi, kterému odpovídá materiálový charakter scintilátoru. [1]

Pro uskutečnění měření dohasínání luminiscence ve vzorku scintilátoru jako celku musí být splněna přísná kritéria pro detekci rozsahu luminiscenční intenzity a rozsahu časové dynamiky v rámci detekční části aparatury - zařízení by mělo být schopno detekovat jak rychlé časové úseky (v řádu ns), tak i pomalejší časy dohasínání luminiscence (řádově μs). V případě experimentů této diplomové práce byly tyto požadavky vyřešeny měřením luminiscenční intenzity po částech o různém rozlišení napěťové a časové osy, a následným složením částí průběhů měření o těchto rozlišení do výsledné podoby.

3.2.1 Experiment pro měření fotoluminiscence

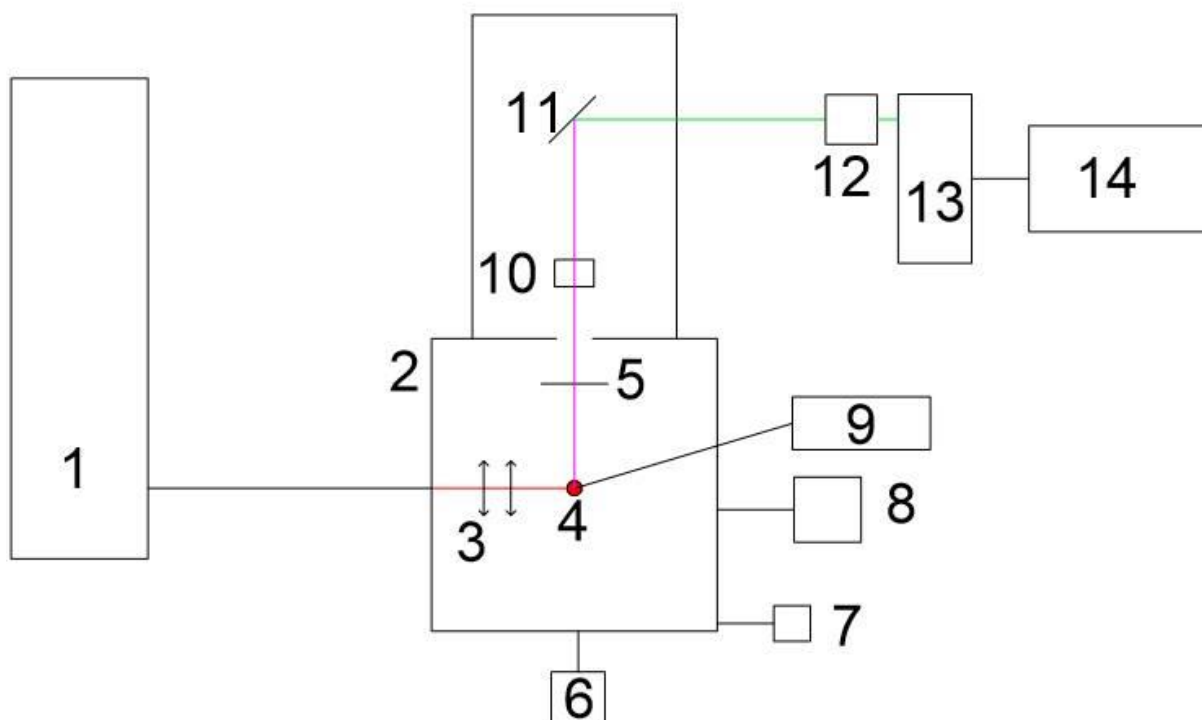
Pro měření fotoluminiscence scintilátorů byla aparatura sestavena podle vzoru na Obrázku 14. Světlo UV dusíkového laseru bylo vyvedeno optickým vláknem na fokusační čočku, která světelný svazek fokusovala přímo na vzorek scintilátoru. Dopadající laserové záření způsobilo excitaci luminiscenčních center vzorku, a následně fotoluminiscenci. Luminiscenční záření bylo „sebráno“ a fokusováno soustavou dvou čoček na optické vlákno, kterým bylo přivedeno skrze optický, příp. tlumící filtr do fotonásobiče. Následně bylo luminiscenční záření zesíleno soustavou dynod a zaznamenáno osciloskopem.



Obrázek 14 - Blokové schéma experimentu pro měření fotoluminiscence způsobené přímou excitací luminiscenčních center UV dusíkovým laserem (1 – UV dusíkový laser, 2 – laserové světlo vedené optickým vláknem, 3 – fokusační čočka, 4 – umístěný vzorek scintilátoru, 5 – soustava dvou čoček na sběr a fokusaci luminiscence, 6 – luminiscence vedená optickým vláknem, 7 – držák na umístění optického a tlumícího filtru, 8 – fotonásobič, 9 – digitální osciloskop)

3.2.2 Experiment pro měření scintilace

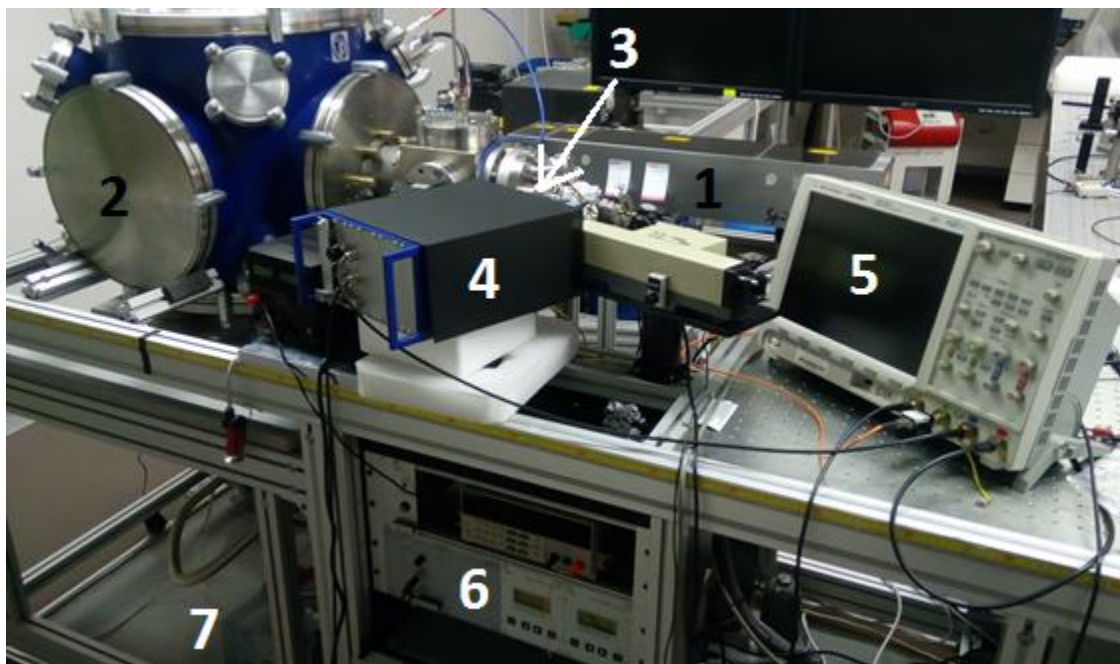
Zdroj SXR záření použitý pro měření procesu scintilace v experimentální části této práce funguje jako argonové plazma vytvořené inverzní Bremsstrahlungovou absorpcí fokusovaného paprsku infračerveného laseru. [1]



Obrázek 15 - Blokové schéma experimentu pro měření scintilace způsobené excitací vzorku SXR zářením (1 – IR Ng:YAG laser, 2 – vakuová komora, 3 – čočky fokusující laserový paprsek na oblaček plynu argonu, 4 – terčík plynu argonu, 5 – titanová folie 400 nm, 6 – scroll pumpa, 7 – membránová pumpa, 8 – turbo-molekulární pumpa, 9 – zásobní láhev plynu argonu, 10 – kondenzor na fokusaci SXR záření, 11 – vzorek scintilátoru, 12 – držák na umístění optického a tlumícího filtru, 13 – fotonásobič, 14 – digitální osciloskop)

Na Obrázku 15 je zachyceno blokové schéma experimentu pro měření kinetiky luminiscenčního dohasínání vyvolaného scintilačním procesem. Jako zdroj ionizujícího záření bylo v této práci použito měkké rentgenovo záření (SXR) produkované vysokoenergetickým plazmatem. Vybuzení plazmatu bylo způsobeno urychlením přirozeně se vyskytujících iontů plynu argonu elektrickým polem IR laseru. Takto vybuzené plazma vyzařuje do všech směrů záření o velkém množství vlnových délek, proto musí být použit filtr (např. titanový), aby se nežádoucí záření odstranilo a prošlo pouze požadované SXR. Celý tento proces musel probíhat za vysokého vakua (v podmínkách naší laboratoře až 10^{-4} Pa), protože SXR je ve vzduchu velmi snadno absorbováno. Po excitování vzorku byla scintilační odezva dále přivedena skrze optický, popř. tlumící filtr do fotonásobiče, kde byl signál zesílen soustavou dynod

a zaznamenán digitálním osciloskopem jako závislost napětí na čase. Na Obrázku 16 je zachycena aparatura pro měření scintilace materiálů excitovaných SXR zářením.



Obrázek 16 - Uspořádání experimentu pro měření scintilace způsobené excitací vzorku SXR zářením (1 - IR Nd:YAG laser, 2 - vakuová komora, 3 - optický filtr, 4 - fotonásobič, 5 - digitální osciloskop, 6 - ovládání dvou turbomolekulárních pumt, 7 - membránová pumpa)

3.2.3 Umístění vzorku

Umístění vzorku se lišilo v závislosti na prováděném měření nebo typu struktury vzorku. Pro měření fotoluminiscence scintilačních krystalů bylo nutné vytvořit univerzální držák pro pevné krystaly (Ce:GGAG) a vymyslet, jak umístit práškové scintilátory (ZnO) bez použití různých lepidel, které by mohly ovlivnit luminiscenční signál. Měření rozptýleného světla modrého pikosekundového laseru (které bylo provedeno v rámci analýzy detekční části aparatury) bylo realizováno pomocí roztoku mléka a vody v kyvetě. Pro umístění kyvety bylo potřeba zvolit jiný způsob než v případě pevných scintilačních krystalů.

Vzorky scintilačních krystalů Ce:GGAG a ZnO

Umístění scintilačních krystalů Ce:GGAG a ZnO se liší pouze v samotném přichycení vzorku na držák. Uchycení držáku se vzorkem krystalu na magnetickém stojanu a zbylé komponenty (pro přívod excitačního svazku na vzorek a pro detekci luminiscenčního záření) byly pro oba typy materiálu stejné. Na Obrázku 17 a 18 je zachyceno provedení obou držáků vzorků krystalů s přibližným měřítkem.

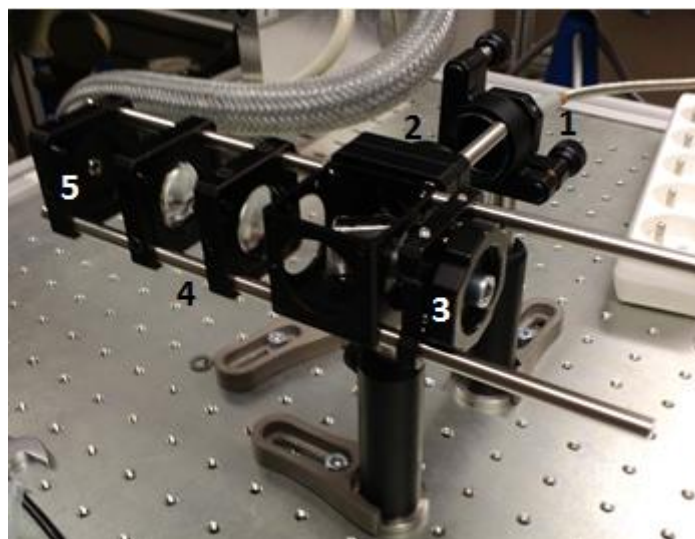


Obrázek 17 - Držák vzorku GGAG uchycený na magnetickém stojanu



Obrázek 18 - Držák vzorku práškového ZnO

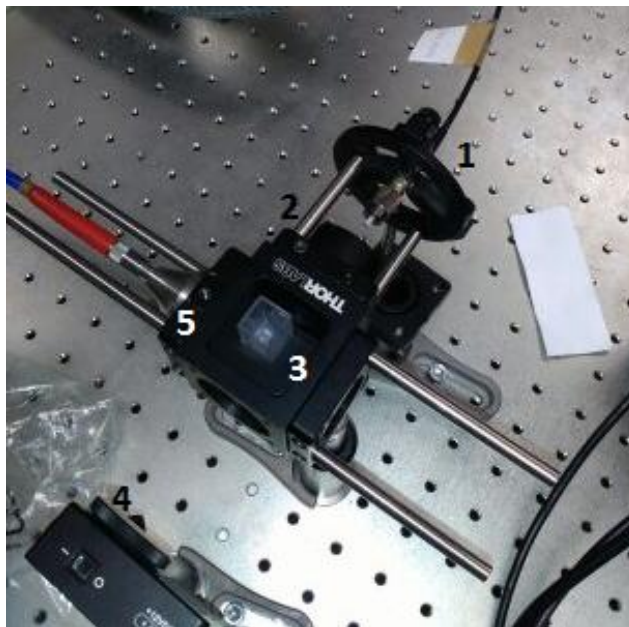
Magnetický stojan s uchyceným vzorkem scintilačního krystalu v držáku byl umístěn do soustavy optických elementů, kam bylo přivedeno optické vlákno excitačního zdroje. Odtud bylo vyvedeno optické vlákno nesoucí luminiscenční signál do detekční části aparatury. Konstrukce optických elementů pro přímou excitaci vzorků (Obrázek 19) byla konstruována po vzoru soustavy optických elementů ve vakuové komoře, která slouží pro měření dohasínání scintilační odezvy vyvolané SXR zářením.



Obrázek 19 - Soustava čoček se vzorkem scintilačního krystalu pro přímou excitaci (1 – optické vlákno nesoucí laserový paprsek pro excitaci vzorku, 2 – čočka fokusující paprsek na vzorek, 3 – magnetický stojan s držákem vzorku, 4 – soustava dvou čoček fokusujících luminiscenci ze vzorku na optické vlákno, 5 – optické vlákno nesoucí luminiscenční záření do detekční části aparatury)

Kyveta s roztokem destilované vody a mléka

Pro měření laserového paprsku rozptýleného roztokem destilované vody a mléka musela být soustava optických elementů pro umístění vzorku poskládaná jinak, protože v tomto případě byl vzorek v centimetrové kyvetě (Obrázek 20).



Obrázek 20 - Umístění vzorku roztoku destilované vody a mléka (1 - optické vlákno nesoucí laserový paprsek, 2 – čočka fokusující paprsek na vzorek, 3 – vzorek v kyvetě, 4 – Si dioda, 5 - optické vlákno nesoucí luminiscenční záření do detekční části aparatury)

3.2.4 Charakteristika excitačních zdrojů

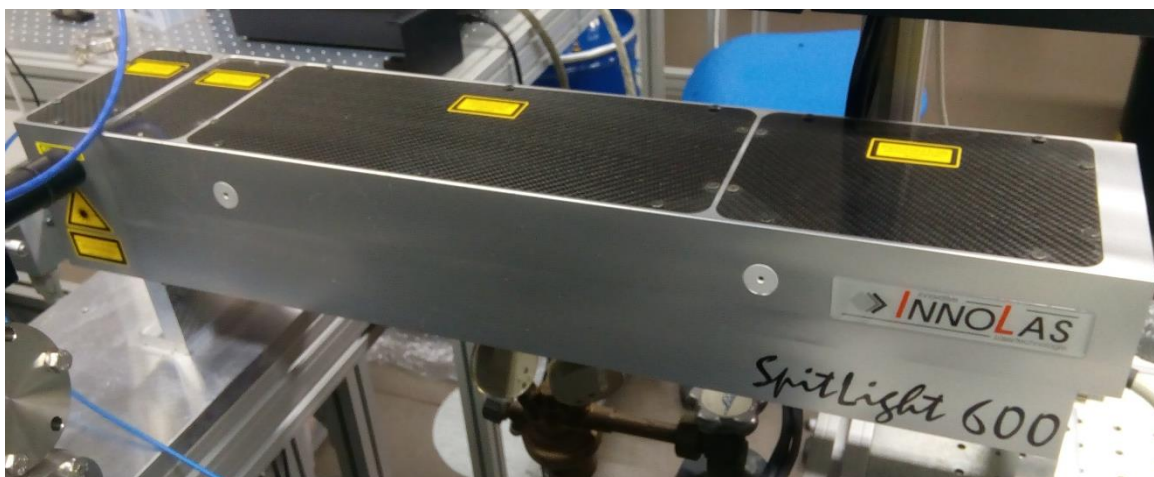
Experimentální část této diplomové práce je věnovaná srovnání fotoluminiscenční a scintilační odezvy různých scintilačních materiálů. Vzhledem k tomu, že proces fotoluminiscence je vyvolaný relativně jednoduchou procedurou přímé excitace luminiscenčních center, není nutné žádného speciálního vybavení ani zajištění konkrétních podmínek měření. Oproti tomu proces scintilace, který je v látce způsoben dopadajícím ionizujícím zářením, toto vybavení i podmínky vyžaduje.

Měření fotoluminiscence bylo v této práci založeno na přímém osvitě scintilačního materiálu zdrojem monochromatického koherentního záření o vlnové délce 337.1 nm pulzního laseru MNL 100 vyrobeného německou firmou Laser Technik Berlin (LTB). Střední délka pulzu (FWHM) tohoto laseru udávaná výrobcem je 3 ns a spektrální šířka paprsku se pohybuje v rozmezí ± 0.1 nm. [19]



Obrázek 21 - UV dusíkový laser MNL 100 firmy Laser Technik Berlin použitý jako zdroj pro přímou excitaci luminiscenčních center

Jako zdroj SXR ionizujícího záření pro vyvolání procesu scintilace ve zkoumaném materiálu bylo využito vysokoenergetického plazmatu vybuzeného infračerveným Nd:YAG laserem. Do vakuové komory s odsátým vzduchem na tlak přibližně 10^{-4} Pa byl přiveden piezoelektrickým ventilem plyn argon. Svazek infračerveného Nd:YAG laseru byl fokusován na obláček po malých objemech vypouštěného plynu, čímž mu dodal energii, a tím ho ionizoval (vytvořil plazma). Plazma jako takové vyzařuje elektromagnetická vlnění o všech různých vlnových délkách ve všech směrech. Je proto nutné odfiltrout nevhodné vlnové délky před excitováním vzorku scintilátoru, aby v látce nedocházelo k přímé excitaci fotoluminiscenčních center, a tím k vyvolání fotoluminiscence. K tomu slouží v aparatuře tenká titanová folie, která odfiltruje vlnové délky VIS oblasti a propustí záření o vyšších energiích (tedy kratších vlnových délkách – SXR záření použité v této práci pro vyvolání procesu scintilace má vlnovou délku v rozmezí od 1 do 10 nm, čemuž odpovídá energie 1240 až 124 keV). Takto odfiltrovanému záření byl vystaven vzorek, v němž byl vyvolán proces scintilace. Celý tento proces musel proběhnout ve vakuu, protože SXR záření o těchto vlnových délkách je ve vzduchu absorbováno na velmi malých vzdálenostech. Na Obrázku 22 je zachycen infračervený Nd:YAG laser, který byl použit k ionizaci plynu argonu pro vybuzení plazmatu. [20]



Obrázek 22 – Nd:YAG laser Spitlight 600 firmy Innolas z Velké Británie (vlnová délka 1064 nm, energie jednoho pulzu >800 mJ, střední délka pulzu (FWHM) 6-7 ns, nastavitelná frekvence pulzů od 1 do 100 Hz)

3.2.5 Analýza detekční části aparatury

Aby mohly být výsledky měření experimentů správně interpretovány, bylo zapotřebí vědět, jak se chová detekční část aparatury v reakci na signál, který se blíží Diracově delta funkci. K analýze detekční části aparatury byl použit modrý diodový pikosekundový laser LDH-D-C-470 průmyslově vyroben německou firmou PicoQuant, který ovládá driver PDL-800-b. Tento modrý pikosekundový laser pracuje s vlnovou délkou 470 nm, s frekvencí 40 MHz a šířka pulzu je menší než 70 ps. [21] [22]



Obrázek 23 – Modrý pikosekundový laser PicoQuant, 1 – driver k laseru, 2 – odnímatelná hlava samotného modrého laseru, 3 – výstup laserového paprsku optickým vláknem

3.3 Zaznamenání, ukládání a analýza dat

Nejprve bylo nutné získat naměřená data z osciloskopu, což bylo provedeno automaticky díky programu napsanému v softwaru LabView. Tento program byl vytvořen v rámci diplomové práce

studenta FBMI Petra Benedikta [26]. Následná analýza naměřených dat byla rozdělena do dvou kroků. Protože se jedná o časově rozlišená měření, bylo nutné v prvním kroku „poskládat“ signál tak, aby na sebe jednotlivá časová rozlišení plynule navazovala. V druhém kroku byla provedena rekonvoluce dat, jejíž výsledek byl proložen vhodnou křivkou reprezentující samotné dohasínání luminiscenční odezvy. Všechny výpočty nutné pro správnou analýzu dat byly provedeny ve skriptu napsaném v prostředí MATLAB, který byl poskytnut s laskavým dovolením vedoucího této diplomové práce Ing. Dalibora Pánka, Ph.D.

3.3.1 Ovládání osciloskopu

Pro zaznamenání dat byt použit čtyř-kanálový osciloskop Agilent DSO 7104 s frekvenční šířkou pásma 1GHz a vzorkovací frekvencí 4 GSamples/s.

Pro ovládání osciloskopu byl použit program vytvořený v prostředí LabView (kvůli větším počtu měření), který propojil uživatelský počítač s osciloskopem. Díky tomuto programu může uživatel nastavit všechny parametry měření, a po spuštění programu, resp. změření dat, se všechny výsledky uloží do předem určené složky v počítači ve formě textových souborů. Kromě cílové složky musí uživatel vybrat kanál měření, kanál triggerovacího signálu, nastavit velikost triggerovacího napětí (*trigger level*) a počet měření pro jednotlivá rozlišení (*range*). Tato rozlišení jsou pro měření časově rozlišené luminiscence velmi důležitá, protože zpětnou projekcí naměřených dat, je možné získat konkrétní úseky křivky dohasínání luminiscence v detailnější podobě.

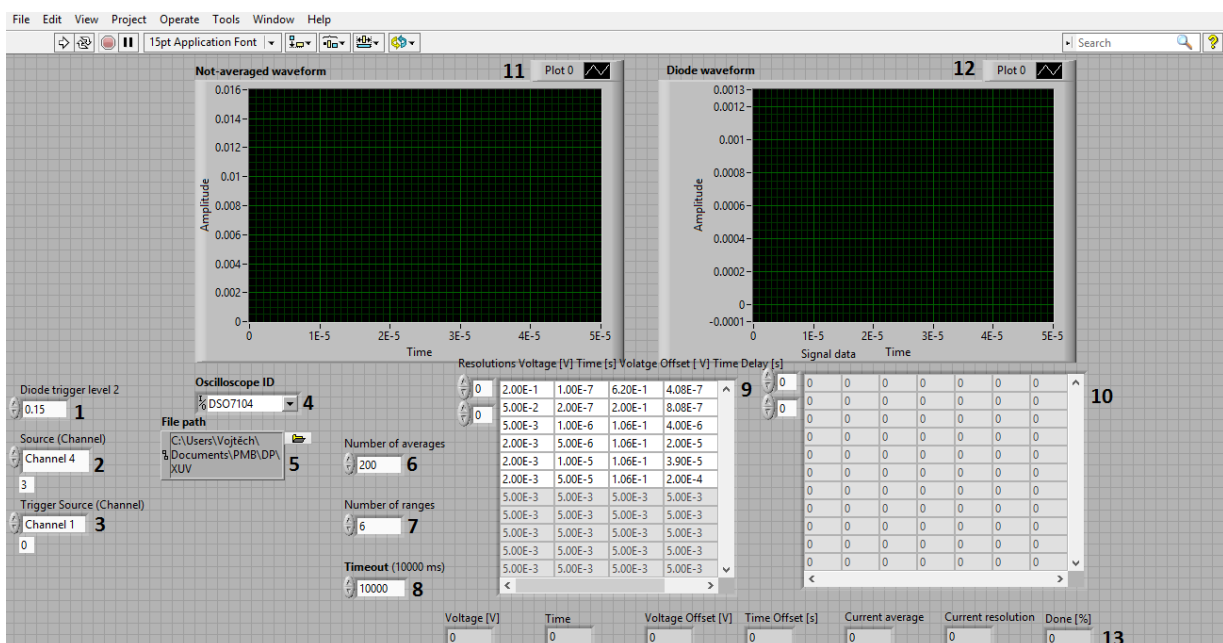
Nejprve je nutné nastavit rozlišení osciloskopu v ose x , která představuje čas v sekundách, a v ose y , která představuje napětí ve voltech. Oba parametry rozlišení mají v osciloskopu význam „na divizi“. Dalšími parametry, které musí uživatel nastavit, jsou posuny v obou osách – napěťový offset a časové zpoždění (*delay*). Tyto čtyři parametry vyplní uživatel do tabulky programu do sloupců ve stejném pořadí, jako je popsáno výše, a každý řádek představuje jednotlivé rozlišení.

V případě, že by se při měření vyskytl problém v podobě velké prodlevy mezi dvěma měřeními, je program schopen měření zastavit. Tato prodleva je defaultně nastavena na 10 sekund a označena Timeout.

Aktuální průběhy grafů měřených signálů luminiscence a triggeru může uživatel sledovat „online“ buď na osciloskopu nebo přímo v programu LabView, který tyto signály zobrazuje na ovládacím panelu. Konkrétní hodnoty aktuálního měření se zobrazují ve spodní části ovládacího panelu a ukládají se do tabulky v pravé části ovládacího panelu (Obrázek 24).

Pro vyhodnocení výsledků měření je důležité znát pozadí (*background*), které snímá osciloskop, když do něho nepřichází luminiscenční signál. K něčemu takovému slouží tzv. shutter, který „propustí“

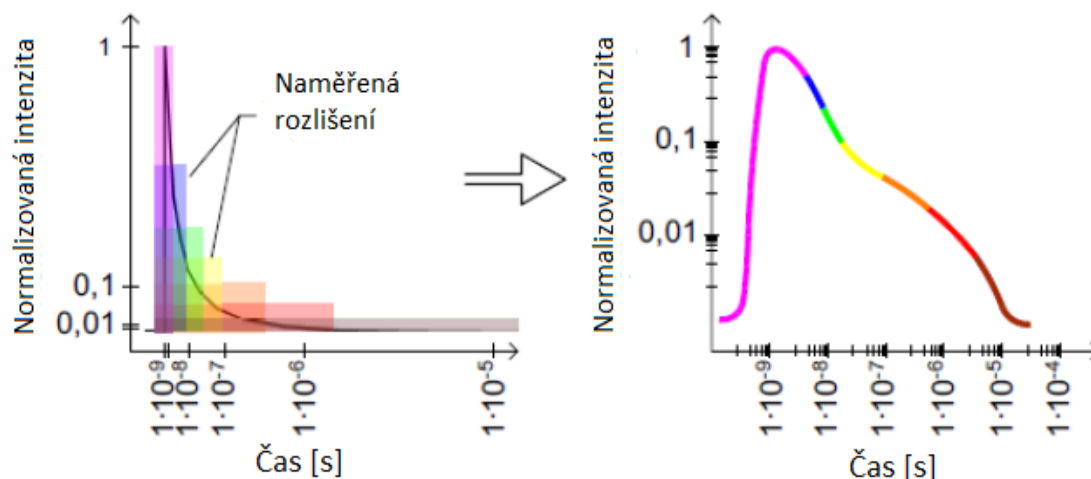
do osciloskopu luminiscenční signál, jen když je otevřený, a díky němuž snímá osciloskop background v případě, že je zavřený. Program vytvořený v softwaru LabView na ovládání osciloskopu je navržený tak, že každé liché měření je shutter zavřený a změří se background, a každé sudé měření je shutter otevřený a změří se luminiscenční signál. Výsledky měření se uloží do určené cílové složky vždy ve čtyřech textových souborech pro každé rozlišení – *averaged*, *background*, *diode* a *measurement*. Nejdůležitějším souborem pro následné vyhodnocení dat je soubor *averaged*, ve kterém se nacházejí data měření po odečtení pozadí. V souboru *background* se dále nacházejí data pozadí, v souboru *diode* jsou data triggerovacího signálu a v souboru *measurement* data naměřené luminiscence před odečtením pozadí. Ovládací panel programu LabView na ovládání osciloskopu je zobrazen na Obrázku 24.



Obrázek 24 – Ovládací panel softwaru LabView (1 – trigger level, 2 – kanál signálu luminiscence, 3 – kanál triggerovacího signálu, 4 – výběr osciloskopu, 5 – cílová složka pro uložení měření, 6 – počet měření pro jednotlivá rozlišení, 7 – počet rozlišení, 8 – čas prodlevy, po kterém se signál zastaví, 9 – tabulka nastavení rozlišení, 10 – tabulka naměřených hodnot, 11 – graf měřeného signálu, 12 – graf triggerovacího signálu, 13 – aktuální výsledek měření)

3.3.2 Skládání signálu

Pro měření časově rozlišené luminiscence bylo potřeba naměřit vzorky scintilátorů v různém časovém a napěťovém rozlišení, protože digitální osciloskop je schopen v každém rozlišení uložit maximálně tisíc hodnot. Z toho vyplývá, že z každého měřeného rozlišení byla použita jen část na složení křivky dohasínání luminiscence, a každá tato část měla jinou váhu na průběh výsledného signálu. Při analýze naměřených dat bylo důležité zahrnout nežádoucí vnější vlivy, jako jsou šum a parazitní signály. V experimentální části této diplomové práce byla pro měření použita napěťová rozlišení od 2 do 200 mV a časová rozlišení od 50 ns do 200 μ s. Příklad skládání obdobného časově rozlišeného měření luminiscence ukazuje Obrázek 25.



Obrázek 25 - Proces skládání různě rozlišených úseků dohasínání luminiscence, převzato z [1]

3.3.3 Vliv šumu a parazitního signálu

Všechna měření elektrických signálů, což zahrnuje i měření provedená v experimentální části této diplomové práce, vykazují šum. Je-li měřený signál definován jako hlavní informace vypovídající o přítomnosti a vlastnostech měřené látky, pak je šum vedlejší nežádoucí informací, která může signál určitým způsobem měnit a deformovat. Neexistuje měření signálu, ve kterém by byl šum zcela odstraněn, ale může být minimalizován. Při analýze a vyhodnocení signálu musí být zohledněn vliv šumu. K tomu se využívají dvě základní techniky – absolutní hodnota šumu a poměr signál-šum. Technika absolutní hodnoty šumu není příliš přesná, protože se šum uvažuje konstantní v celém průběhu signálu. Téměř výhradně se využívá technika poměru signál-šum ($SNR = \text{signal to noise ratio}$). [27] [28]

$$SNR = \frac{\text{signál}}{\text{šum}} = \frac{\bar{X}}{\sigma} \quad (5)$$

kde \bar{X} je aritmetický průměr signálu a σ značí směrodatnou odchylku šumu. Výsledek SNR je bezrozměrná veličina, a obvykle je akceptovatelné minimum tohoto poměru stanovené na $SNR = 3$. [27]

Při měření časově rozlišené luminiscence scintilátorů hraje určitou roli parazitující signál, který se chťe nechtě vyskytuje vždy. Velmi častým parazitním signálem mohou být světelné výboje pocházející z osvětlení laboratoře, které mohou ovlivnit výstupní signál z fotonásobiče. Hlavním úkolem fotonásobiče je zesílení měřeného signálu (v případě experimentálního měření této diplomové práce signálu fotoluminiscence a scintilace) a jejich citlivost bývá tak vysoká, že jsou většinou schopny detekovat jednotlivé fotony. Proto je důležité dbát na co nejlepší odstínění experimentu. [29]

Dalším vyskytujícím se parazitním signálem je šum samotného fotonásobiče (případně zesilovacích elektronických obvodů), který vzniká v důsledku kvantových fluktuací pohybu elektrických nábojů. Tento parazitní signál lze výrazně snížit například ochlazením detektoru na teplotu kapalného dusíku (77K) nebo dokonce až helia (4K), čehož v podmínkách použité laboratoře nebylo možné dosáhnout. [29]

Digitální osciloskop Agilent DSO7104 použitý v této práci pro zobrazení měřeného luminiscenčního (scintilačního) signálu pracuje s frekvenční šířkou pásma 1000 MHz. Protože v horní hranici tohoto frekvenčního pásma (přibližně 800 – 900 MHz) se pohybuje i frekvenční pásmo mobilních operátorů, bylo nutné mít mobilní telefon buď vypnutý, nebo ho nechat v dostatečné vzdálenosti od měřící aparatury, aby nemohlo dojít k ovlivnění výsledného signálu na obrazovce osciloskopu. [21]

3.3.4 Rekonvoluce dat

Nejjednodušší případ dohasínání luminiscence popisuje mono-exponenciální funkce (rovnice 6). Často je však popis procesu dohasínání komplikovanější, kdy je nutno situaci popsat multi-exponenciálním modelem nebo dokonce neexponenciálním.

$$\begin{aligned} f(t) &= 0 && \text{pro } t < 0 \\ f(t) &= \frac{1}{\tau} e^{-\frac{t}{\tau}} && \text{pro } t \geq 0 \end{aligned} \quad (6)$$

Vhodně zvolený model popisující dohasínání luminiscence musí zahrnovat kromě vlastních naměřených dat i vliv pozadí měření a tzv. funkci IRF (instrument response function). IRF charakterizuje rychlost odezvy detekční části aparatury. Pozadí všech měření byla zahrnuta pro všechna rozlišení v uložených souborech *averiging.txt* díky programu na ovládání osciloskopu v softwaru LabView. [23]

V experimentální části této diplomové práce byl pro fitování dat použit čtyř-exponenciální model popsaný rovnicí

$$I = \sum_{i=1}^4 a_i * e^{-\left(\frac{t}{\tau_i}\right)} \quad (7)$$

kde pro danou exponenciálu i představuje a_i amplitudu a τ_i dobu života. Souhrn koeficientů a_i a τ_i jednotlivých exponenciál definuje parametry fitu.

Pro získání relevantní křivky dohasínání luminiscence bylo nutné provést diskrétní konvoluci funkce IRF a funkce dohasínání luminiscence podle Rovnice 8

$$F(n) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} P(n-m)f(m) \quad (8)$$

kde $P(n)$ je diskretní IRF a $f(m)$ diskretní funkce dohasínání luminiscence. Měřená data jsou tedy rovna konvoluci průběhu dohasínání luminiscence a IRF, což je popsáno rovnicí 9

$$F(n) = P(n) * I \quad (9)$$

kde $P(n)$ reprezentuje IRF a I je zvolený čtyř-exponenciální model pro fitování dat.

3.3.5 Určení fitu metodou nejmenších čtverců

Pro stanovení vhodné aproximace vypočtených dat byla využita metoda nejmenších čtverců. Princip této metody spočívá v tom, že se snaží minimalizovat odchylky mezi naměřenými daty a zvolenou aproximační funkcí. Metoda nejmenších čtverců je popsána Rovnicí 10

$$\chi^2 = \sum_N \left[\frac{Y(i) - F_D(i)}{\sigma(i)} \right]^2 \quad (10)$$

kde $Y(i)$ jsou data dohasínání luminiscence, $F_D(i)$ představuje aproximační funkci a $\sigma(i)$ je směrodatná odchylka měření. [30]

Skript v programu MATLAB je navržen tak, aby pro jednotlivé hodnoty měření dohasínání luminiscence našel takové hodnoty χ^2 , aby byly co nejmenší, tedy aby byly vhodnou aproximací zašuměných dat. Pro správné určení fitu je důležité znát hodnoty parametrů jednotlivých exponenciálních komponent zvoleného modelu (amplitudu a a dobu života τ). Celkový podíl jednotlivých exponenciál na výsledném fitu byl z rovnice 7 vypočítán jako

$$CP_i = \frac{a_i * \tau_i}{\sum_{i=1}^4 (a_i * \tau_i)} \quad (11)$$

3.3.6 Vážená rezidua

K analýze věrohodnosti aproximace průběhu dohasínání luminiscence slouží metoda vážených reziduí. Jedná se o křivku, která znázorňuje oscilace skutečných naměřených hodnot od hodnot vypočtené aproximace měření. Čím větší je vychýlení, tím je větší nepřesnost aproximace v daném místě. [30]

Vážená rezidua jsou definována jako

$$R(i) = \left(\frac{F(i) - F_D(i)}{\sigma(i)} \right) = \left(\frac{\text{aktuální odchylka}}{\text{předpokládaná odchylka}} \right) \quad (12)$$

Každé rozlišení použité v experimentální části této práce pro měření luminiscenčního a scintilačního signálu nastavené na osciloskopu mělo svůj podíl (váhu) na celkové křivce dohasínání. Hodnota vah konkrétního rozlišení je závislá na přítomnosti parazitního signálu kvantových fluktuací pohybujících se elektrických nábojů ve fotonásobiči. Váhy $w(i)$ jednotlivých rozlišení v čase $t > 0$, tedy po příchodu triggeru, vypočteny jako

$$w(i) = \frac{1}{\sigma(i)} \quad (13)$$

kde index i značí konkrétní rozlišení a σ je směrodatná odchylka. Vážená rezidua takto spočítanými vahami však vykazovaly příliš velké oscilace (zejména u prvního rozlišení, kdy je parazitní signál z fotonásobiče největší), a proto byly vynásobeny empiricky získaným koeficientem pro příslušné rozlišení (Pro $R_1=1/5$, $R_2=1.5$, $R_3=2$, $R_4=4$ a $R_5=4$). Křivky vážených reziduí reprezentující váhy rozlišení byly získány právě tímto postupem. [30]

4. Analýza detekční části aparatury

Experimentální část této diplomové práce byla zaměřena zejména na analýzu detekční části aparatury pro měření časově rozlišené luminiscence. Různými postupy měření bylo zjištěno, jaký trigger je nejvhodnější pro všechna měření, jak se chová detekční část v odezvě na náhodné fotony či jak vypadá detekovaný signál mlékem rozptýleného modrého laserového svazku.

Výsledky všech měření byly zaznamenány digitálním osciloskopem a jejich uložení bylo možno provést dvěma způsoby. V prvním případě se výsledky ukládaly na disk USB přímo z osciloskopu. Tento způsob získání dat byl vhodný pro měření např. statistiky Si diody, kdy se zaznamenalo pouze deset průběhů signálu. Tímto postupem však nebylo možné zaznamenat příslušný signál pozadí. Pokud bylo měření závislé na větším počtu záznamů signálu, byl použit program vytvořený v prostředí LabView, díky němuž bylo možno propojit uživatelský počítač s osciloskopem a data ukládat automaticky.

4.1 Výběr triggeru pro měření

Jedna z hlavních otázek, které bylo potřeba vyřešit, než mohlo začít samotné měření, bylo najít vhodný spouštěč signálu – trigger. Tento spouštěč je signál přicházející do osciloskopu, který v případě zaznamenání konkrétně nastavené hladiny elektrického napětí (trigger level) tohoto signálu spustí měření a zaznamená všechny signály, které přicházejí do ostatních kanálů osciloskopu. Vhodný trigger musí být neměnný v čase, protože celková doba probíhající fotoluminiscence nebo scintilace se pohybuje v řádu nanosekund a sebemenší výchylka v čase spuštění triggeru by mohla způsobit ztrátu, popř. zkreslení luminiscenčního signálu ze vzorku.

Pro měření scintilace vzorků excitovaných laserem produkovaným plazmatickým zdrojem měkkého RTG záření (SXR) byly uvažovány tři možnosti způsobu triggeru – signál ze samotného laseru, signál na diodě a signál synchronní s IR laserem pro triggerování pinhole CCD kamery, která umožňuje sledovat plasma ve vakuové komoře.

V případě přímé excitace scintilačních krystalů a následného měření fotoluminiscence byla jako trigger zvolena křemíková fotodioda.

4.1.1 Trigger pro měření s SXR excitačním zdrojem

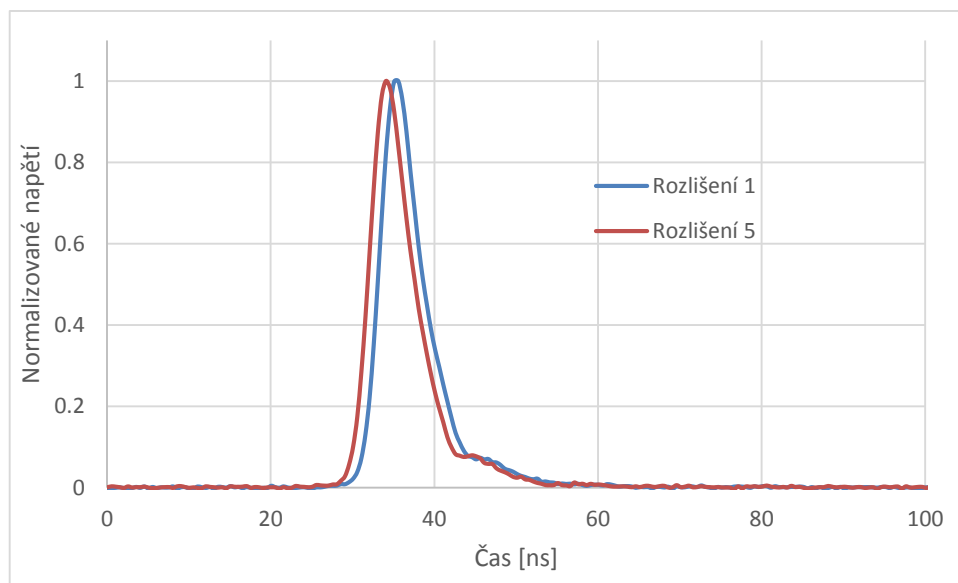
Měření jednotlivých způsobů triggeru byla provedena a vyhodnocena za stejných podmínek. V prvním a pátém rozlišení a druhém a šestém rozlišení byly nastaveny stejné parametry měření, aby jejich vyhodnocení mohlo prokázat případné odchylky v časové ose. Celkem bylo pro každé rozlišení zaznamenáno dvě stě průběhů a výsledné křivky reprezentují jejich zprůměrované hodnoty. Nastavení parametrů měření jsou vyplněny v Tabulce 2. V jednotkách napětí a času má symbol „/“ význam na divizi.

Tabulka 2 - Parametry měření nastavené pro volbu vhodného triggerovacího signálu

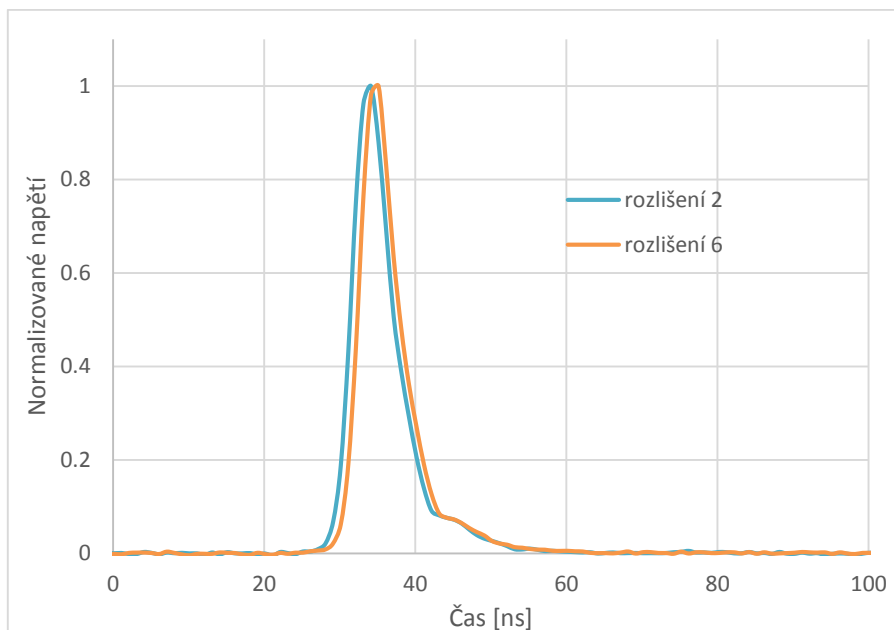
Rozlišení	Napětí [mV/]	Čas [ns/]	Napěťový offset [mV]	Časové zpoždění [ns]
R1	200	100	620	200
R2	200	100	620	200
R3	5	100	54	400
R4	2	500	27	2000
R5	200	100	620	200
R6	200	100	620	200

Trigger signálem z IR diody

Pro měření časově rozlišené luminiscence scintilátorů byla jedna z možností triggerování signálu použít polovodičovou InGaAs diodu (DET01CFC, ThorLabs), která by zaznamenávala rozptýlený laserový infračervený paprsek. Graf 1 představuje průběhy zaznamenané na GaAs diodě při rozlišení 1 a 5 a Graf 2 představuje průběhy laseru při rozlišení 2 a 6 měření za stejných podmínek.



Graf 1 – Naměřené průběhy signálu z IR diody při rozlišení 1 a 5

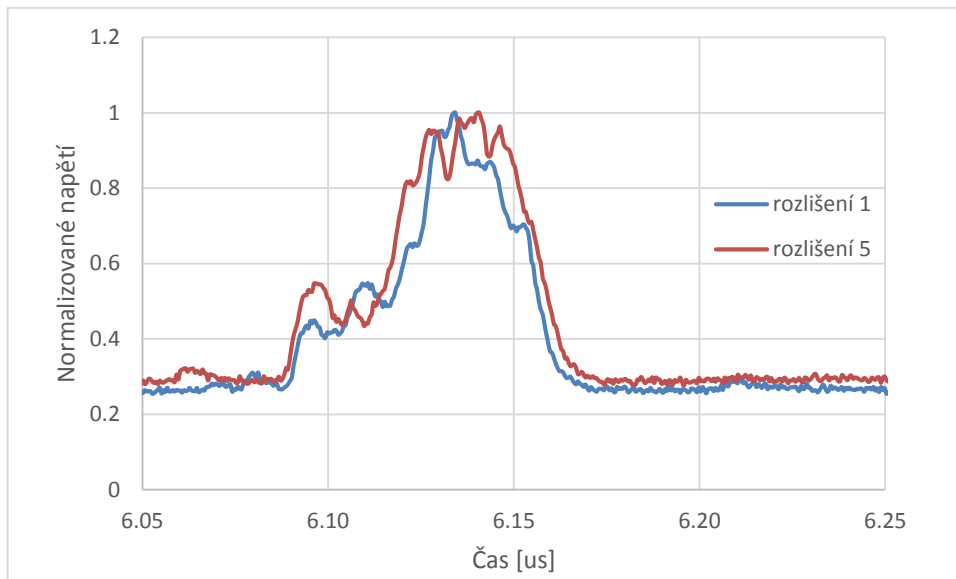


Graf 2 - Naměřené průběhy signálu z IR diody při rozlišení 2 a 6

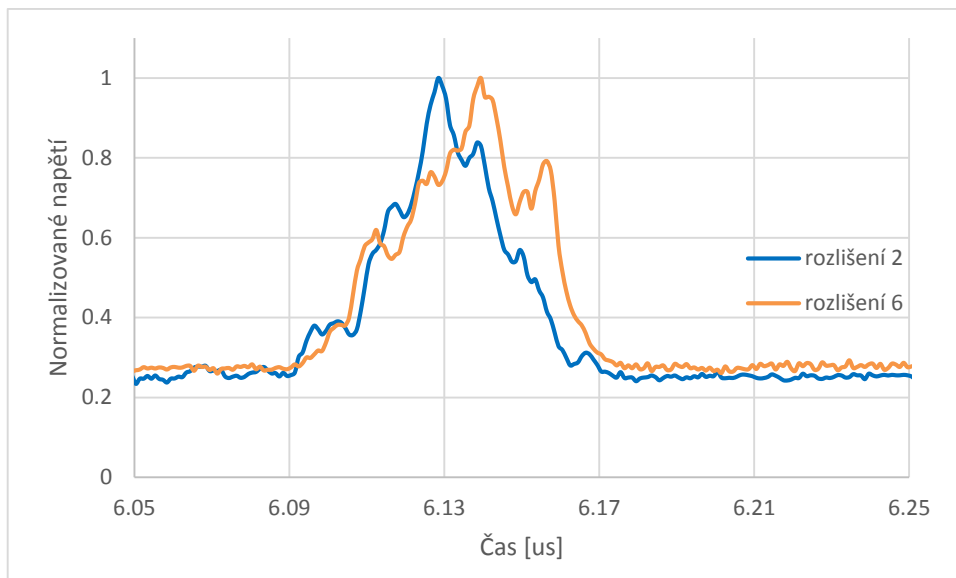
V obou grafech je patrný posun amplitudy signálu v ose x, tedy v časové ose. V případě Grafu 1 je posun 1,5 ns a v Grafu 2 je posun 1 ns. Samotné plazma se nevytvoří pouhou přítomností elektrického pole z laserového svazku. Účel tohoto pole je urychlit přirozeně se vyskytující ion v plynu, který je díky tomuto urychlení schopen samotný plyn ionizovat a tím vytvořit plazma. Posun amplitudy signálu je tedy způsoben rozdílným okamžikem urychlení iontu a vytvořením plazmatu. Při použití tohoto způsobu triggeru u měření luminiscenčního dohasínání by hrozilo, že se změřený posun signálu projeví v celém průběhu dohasínání.

Trigger signálem, který je synchronní s IR laserem pro triggerování CCD pinhole kamery

CCD pinhole kamera, která zobrazuje vzniklé plazma ve vakuové komoře, je triggerována synchronním signálem s infračerveným Nd:YAG laserem. Tento signál lze také použít jako trigger pro měření luminiscenčního dohasínání vzorků scintilačních krystalů. Průběh signálů při stejném rozlišení 1 a 5 je vyneseno v Grafu 3 a průběh signálů při stejném rozlišení 2 a 6 představuje Graf 4.



Graf 3 – Naměřené průběhy signálu z pinhole kamery při rozlišení 1 a 5

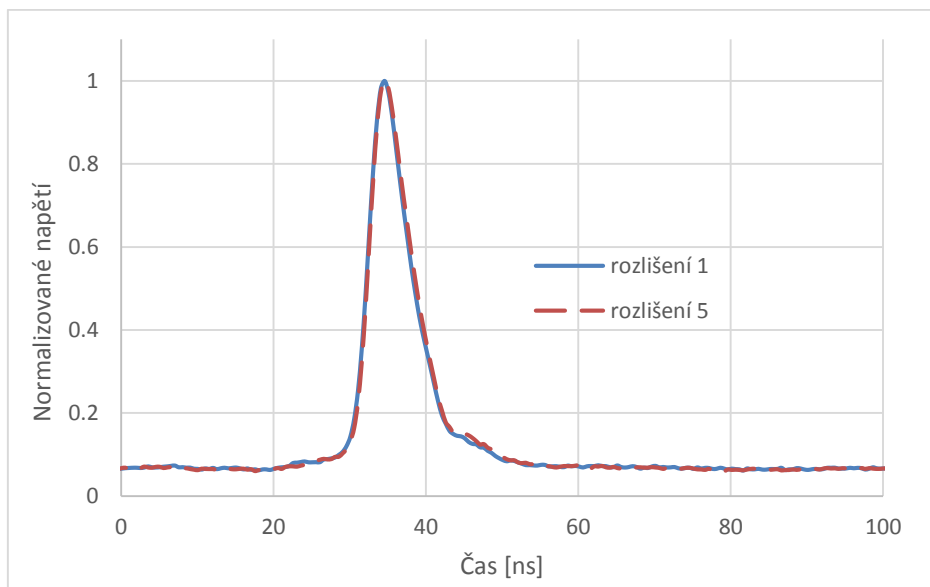


Graf 4 - Naměřené průběhy signálu z pinhole kamery při rozlišení 2 a 6

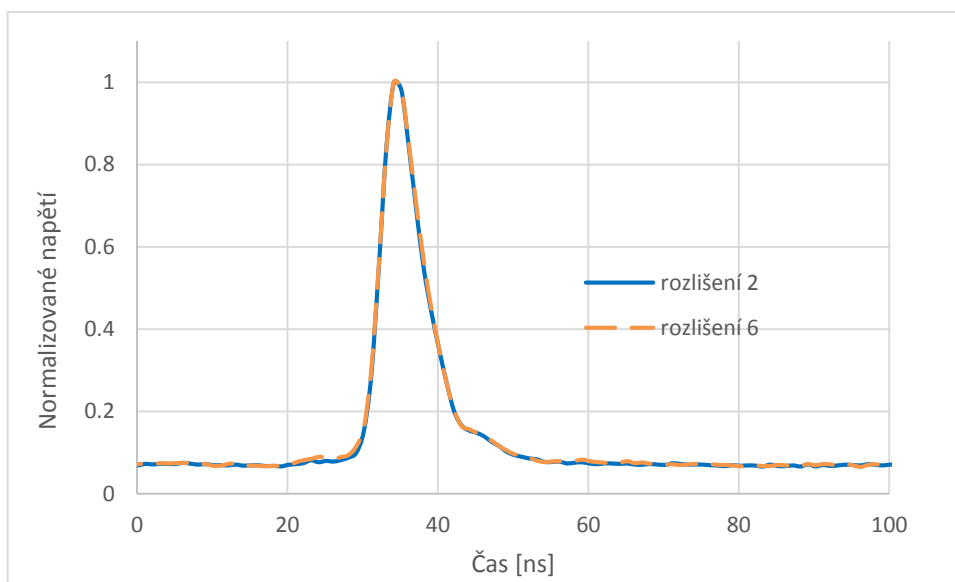
Z grafu 4 a 5 je zjevné, že výběr pinhole kamery jako triggeru je pro měření časově rozlišené luminiscence scintilátorů absolutně nevhodný. Nejen že signál nemá jasnou amplitudu a celý průběh je velmi zašuměný, ale i časová oblast, ve které se signál měřil, je o celé řády zpožděná.

Trigger signálem z XUV diody

Poslední možností, jak triggerovat časově rozlišený signál scintilátorů, je použít fotodiodu, která reaguje na dopadající světlo o vlnové délce odpovídající měkkému RTG záření, tedy ve stejné oblasti vlnových délek, kterými se scintilátory excitují. Průběhy signálů při stejném rozlišení (rozlišení 1 a 5 a rozlišení 2 a 6) jsou vyneseny v Grafech 5 a 6.



Graf 5 – Naměřené průběhy signálu z XUV diody při rozlišení 1 a 5



Graf 6 - Naměřené průběhy signálu z XUV diody při rozlišení 2 a 6

Z obou průběhů naměřených signálů fotodiodou je zjevné, že v případě jejího použití není patrný žádný posun v časové ose, jako tomu bylo v případě IR diody, takže i celý průběh dohasínání luminiscence nebude nijak posunutý. Z tohoto důvodu byla XUV fotodioda vybrána jako vhodný trigger pro měření časově rozlišené luminiscence scintilátorů vyvolané excitací vzorků měkkým RTG zářením. Její specifikace, kterou udává výrobce, je obsažena v Tabulce 3.

Tabulka 3 - Specifikace SXR diody použité jako trigger při časově rozlišené luminiscenci scintilátorů [28]

výrobce	Digi-Key electronics
sériové číslo	AXUVHS
aktivní oblast	1 mm ²
náběžná hrana	700 ps
provozní teplota	-10°C ~ 40°C
obrázek	

4.1.2 Trigger pro měření s přímým excitačním zdrojem

Jako trigger pro měření fotoluminiscence přímo excitovaných scintilátorů Ce:GGAG a ZnO byla použita Si dioda. Na základě měření signálu UV dusíkového laseru a modrého pikosekundového laseru na diodě byla spočtena statistika diody. Specifikace Si diody, kterou udává výrobce, je obsažena v Tabulce 4.

Tabulka 4 - Specifikace Si diody [29]

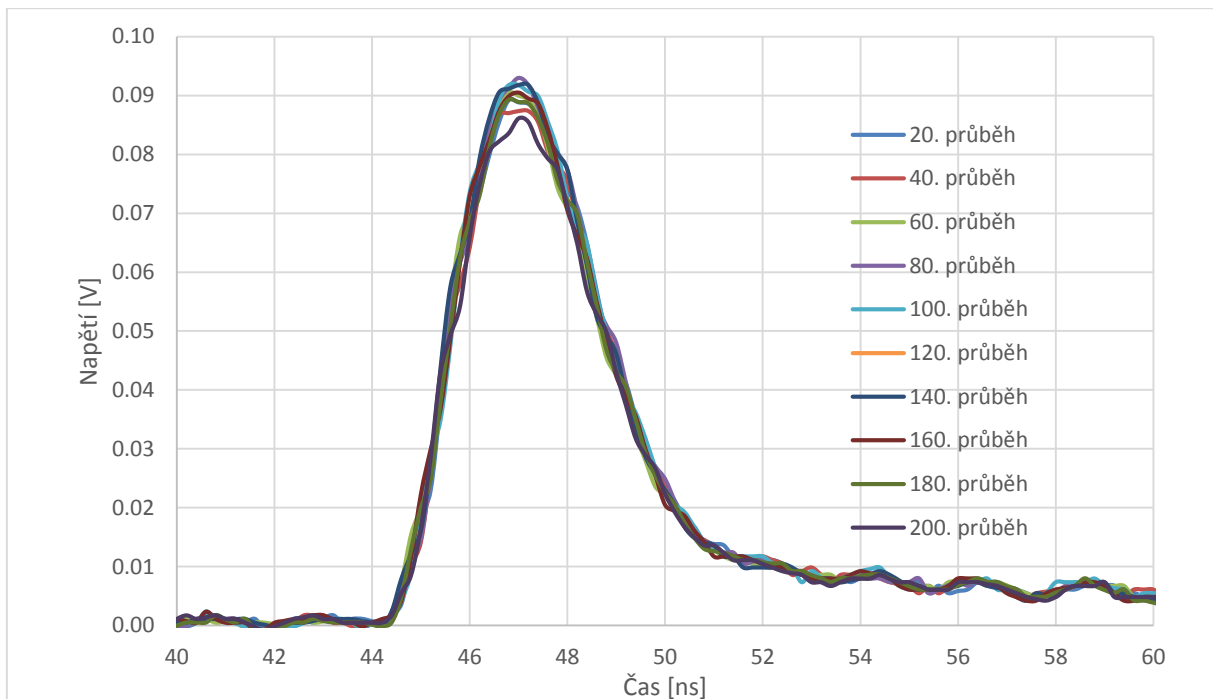
Výrobce	ThorLabs
sériové číslo	DET10A/M
aktivní oblast	0.8 mm ²
náběžná hrana	1 ns
oblast vlnových délek	200 - 1100 nm
obrázek	

Časový průběh impulsu UV dusíkového laseru měřený Si diodou

Na křemíkové fotodiodě bylo naměřeno celkem deset průběhů signálu (každý desátý) z UV dusíkového laseru. Byla spočtena maximální kladná a maximální záporná výchylka od střední hodnoty

amplitudy v čase a ve svém maximu. Všech deset průběhů bylo vyneseno přes sebe do grafu. Při dvoustém průběhu byla zaznamenána hodnota směrodatné odchylky na osciloskopu a porovnána s vypočtenou směrodatnou odchylkou z naměřených dat (s přibývajícím počtem měření by měla klesat). Rovnice 12 vyjadřuje výpočet směrodatné odchylky.

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (x_i - \mu)^2} \quad (12)$$



Graf 7 - Průběhy deseti zaznamenaných signálů UV dusíkového laseru na Si diodě

Tabulka 5 - Naměřené a vypočtené hodnoty signálu UV dusíkového laseru na Si diodě

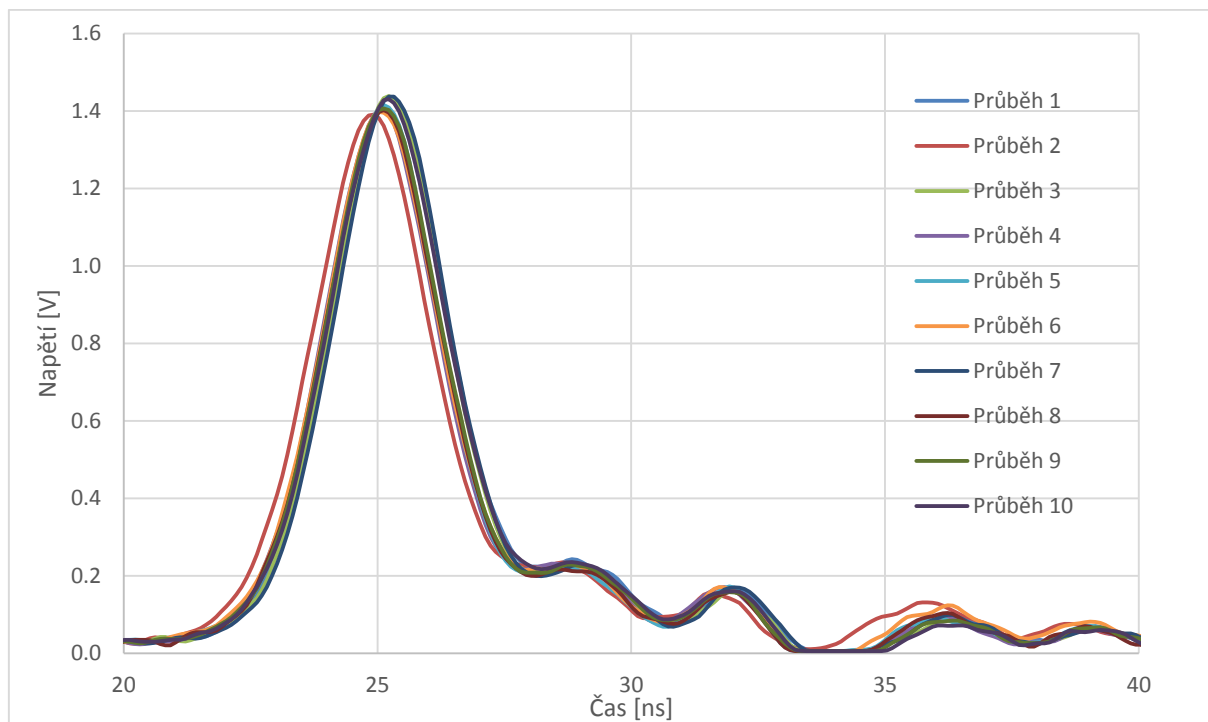
	Amplituda v čase [ns]	Amplituda v maximu napětí [mV]	Výchylka v čase [%]	Výchylka napětí [%]	Směrodatná odchylka			
					V čase [ps]		Napětí [mV]	
					Osciloskop 200. průběh	Vlastní výpočet	Osciloskop 200. průběh	Vlastní výpočet
10.	46.8	89.25	-0.32	-0.35	103.2	111.8	2.032	2.275
20.	47.1	87.38	0.32	-2.44				
30.	46.8	90.50	-0.32	1.05				
40.	47.0	93.00	0.11	3.84				
50.	46.9	91.75	-0.11	2.44				
60.	47.0	86.13	0.11	-3.84				
70.	47.1	91.75	0.32	2.44				
80.	47.0	90.50	0.11	1.05				
90.	46.8	89.25	-0.32	-0.35				
100.	47.0	86.13	0.11	-3.84				

Aritmetický průměr amplitudy napětí deseti zaznamenaných průběhů činil po zaokrouhlení 89.56 mV. Časová výchylka napěťové amplitudy od aritmetického průměru byla přibližně $\pm 0.32\%$ a v maximální hodnotě se blížila $\pm 4\%$. Vzhledem k relativně malé časové výchylce amplitudy napětí UV dusíkového laseru lze uvažovat, že by byl tento laser vhodný k použití pro přímou excitaci scintilačních krystalů pro následná měření jejich fotoluminiscence za použití Si diody jako triggeru.

Z naměřených dat byla vypočtena směrodatná odchylka a porovnána s hodnotou odečtenou na osciloskopu. Pro deset zaznamenaných průběhů činila směrodatná odchylka napěťové amplitudy v čase 111.8 ps a ve svém maximu 2.275 mV. Hodnoty odečtené z osciloskopu po zaznamenání dvou set průběhů byly 103.2 ps a 2.032 mV. Tento fakt koresponduje s teoretickým předpokladem, že by směrodatná odchylka měla s počtem měření klesat.

Časový průběh modrého pikosekundového laseru měřený Si diodou

Bylo zaznamenáno celkem deset průběhů signálu (každý desátý), přičemž byla vypočtena maximální procentuální výchylka amplitudy signálu v čase a ve svém maximu, a jejich příslušná směrodatná odchylka. Je zřejmé, že čím více průběhů se uskuteční, tím menší by měla směrodatná odchylka být. Pro ověření této skutečnosti byla podobně jako v předchozím případě zaznamenána hodnota směrodatné odchylky vypočítaná osciloskopem po dvoustém průběhu a porovnána s hodnotou směrodatné odchylky vypočítané pro naměřených deset průběhů.



Graf 8 - Průběhy deseti zaznamenaných signálů modrého pikosekundového laseru na Si diodě

Tabulka 6 - Naměřené a vypočtené hodnoty signálu modrého pikosekundového laseru na Si diodě

průběh	Amplituda v čase [ns]	Amplituda v maximu napětí [V]	Výchylka času [%]	Výchylka napětí [%]	směrodatná odchylka			
					V čase [ps]		Napětí [mV]	
					Osciloskop 200. průběh	vlastní výpočet	Osciloskop 200. průběh	vlastní výpočet
10	25.2	1.435	0.34	1.38	102.36	100.23	18.23	16.99
20	24.9	1.391	-0.86	-1.74				
30	25.2	1.438	0.34	1.60				
40	25.1	1.404	-0.06	-0.83				
50	25.1	1.415	-0.06	-0.03				
60	25.0	1.397	-0.46	-1.30				
70	25.3	1.437	0.54	1.49				
80	25.1	1.402	-0.06	-0.94				
90	25.1	1.407	-0.06	-0.64				
100	25.2	1.430	0.34	1.02				

Výchylka napěťové amplitudy od aritmetického průměru v čase byla přibližně $\pm 0.7\%$ a ve svém maximu přibližně $\pm 1.67\%$. Z naměřených dat byla vypočtena směrodatná odchylka a porovnána s hodnotou odečtenou z osciloskopu po dvoustém průběhu. Pro deset zaznamenaných signálů činila

směrodatná odchylka napěťové amplitudy v čase 100.23 ps a ve svém maximu 16.99 mV. Hodnoty odečtené z osciloskopu u dvoustého průběhu byly 102.36 ps a 18.23 mV. Směrodatné odchylky po zaznamenání dvou set průběhů byly v obou případech větší s přibývajícím počtem měření, což je v rozporu s teoretickým předpokladem. Za tuto skutečnost jsou pravděpodobně zodpovědné nedokonalé podmínky měření, konkrétně špatně odstíněné parazitní světlo či signály radiových vln mobilní sítě a signálu wifi. Po odeznívání signálu jsou patrné oscilace, které byly pravděpodobně způsobené oscilacemi elektrických obvodů ve fotonásobiči (ringing oscilace).

4.2 Měření odezvy detekční části aparatury

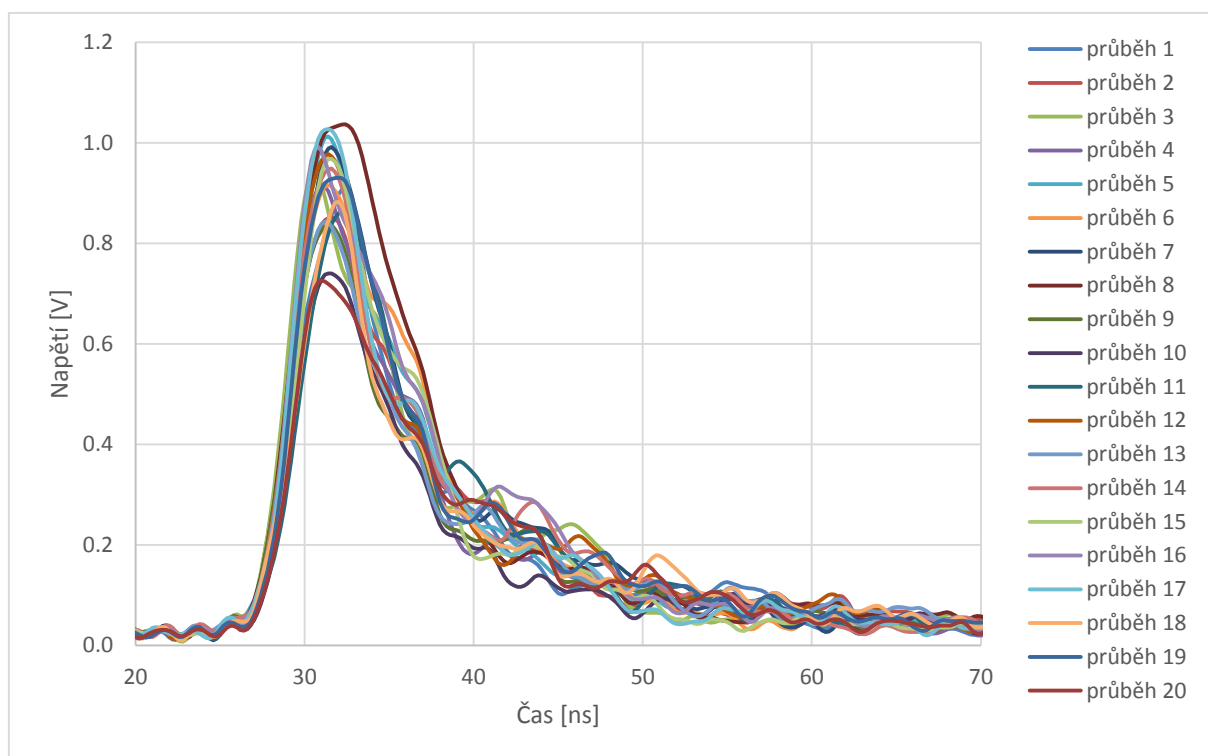
V experimentální části této diplomové práce byly naměřeny luminiscenční doby dohasínání scintilátorů, a k tomu bylo potřeba zjistit, jak se chová detekční část aparatury v reakci na jednotkový impulz (IRF). Nejlepším simulátorem takového skoku (nejkratší délka pulzu, která byla k dispozici) byl pulzní modrý diodový pikosekundový laser DLH-D-C-470 vyrobený německou firmou PicoQuant. Měřeným signálem byl v tomto případě rozptýl laserového svazku v kyvetě s roztokem mléka a vody. Pro analýzu detekční části byla dále změřena odezva na náhodné fotony, která by teoreticky měla být nejkratším signálem, jež je aparatura schopna změřit (nejlépe odpovídající Diracově delta funkci). I v případě potvrzení tohoto faktu není ovšem možné takto změřený signál použít jako funkci IRF při analýze dohasínání scintilátorů, protože se nejedná o stejný excitační zdroj (navíc to není jasně definovaný signál).

4.2.1 Měření rozptýleného světla roztokem vody a mléka

Při tomto měření byl jako zdroj použit modrý pikosekundový laser. Jeho paprsek byl fokusován na centimetrovou kyvetu s roztokem mléka ve vodě. Modrý pikosekundový laser jako excitační zdroj detekční části byl vybrán proto, že délka jednoho pulzu laseru je uvedena výrobcem na menší než 70 ps při frekvenci pulzů 40 MHz. Díky takto krátkým pulzům je možné stanovit minimální časovou odezvu detekční části aparatury na konkrétně definovaný signál.

Jako trigger byla použita Si dioda, která snímala rozptýlené světlo vycházející z kyvety. Vzorek byl umístěn v soustavě optických elementů, která je znázorněna na Obrázku 20. Měřený signál rozptýleného světla byl vyveden optickým vláknem a zesílen ve fotonásobiči. Aby světelný signál vstupující do fotonásobiče nebyl příliš velký, prošel nejprve tlumícím filtrem NDUV10B průmyslově vyrobeným firmou ThorLabs.

Celkem bylo na osciloskopu zaznamenáno a uloženo dvacet průběhů signálu, které byly vyhodnoceny podobným způsobem, jako signály v předchozích dvou případech, nebyla ovšem zaznamenána hodnota směrodatných odchylek z osciloskopu. Křivky všech dvaceti průběhů jsou vyneseny v Grafu 9.



Graf 9 - Dvacet průběhů modrého pikosekundového laserového pulzu rozptýleného roztokem mléka ve vodě

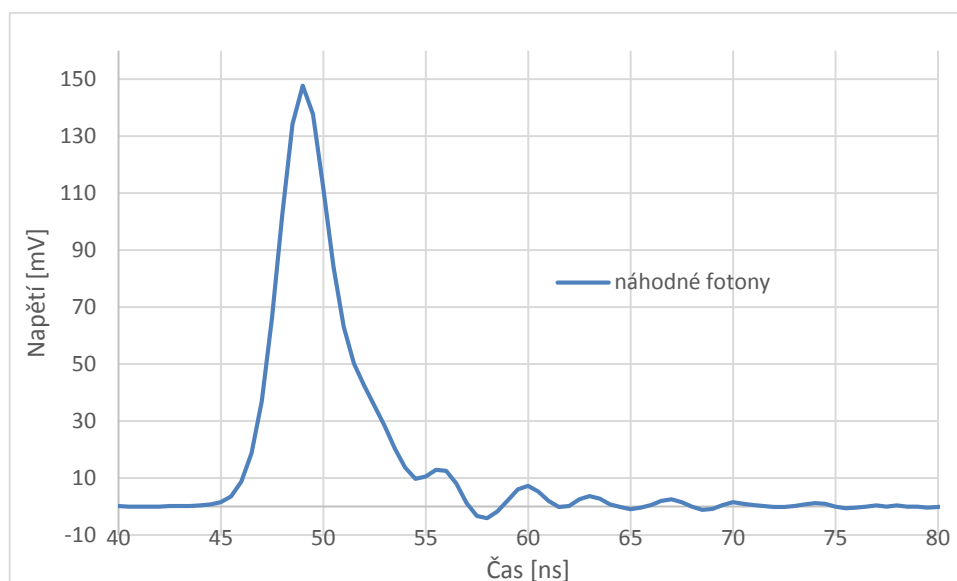
Tabulka 7 - Naměřené a vypočtené hodnoty amplitudy a směrodatné odchytky laserového paprsku rozptýleného roztokem mléka a destilované vody

průběh	Amplituda v čase [ns]	Amplituda v maximu napětí [V]	Výchylka času [%]	Výchylka napětí [%]	Směrodatná odchytka času [ps]	Směrodatná odchytka napětí [mV]
10	32.2	0.906	2.2%	-1.0%	461.1	84.68
20	31.6	0.852	0.3%	-7.0%		
30	30.6	0.940	-2.9%	2.7%		
40	31.0	0.916	-1.6%	0.0%		
50	31.4	1.013	-0.4%	10.7%		
60	31.4	0.916	-0.4%	0.1%		
70	31.6	0.992	0.3%	8.3%		
80	32.4	1.037	2.8%	13.3%		
90	31.5	0.836	-0.1%	-8.6%		
100	31.5	0.740	-0.1%	-19.2%		
110	32.2	0.864	2.2%	-5.6%		
120	31.4	0.978	-0.4%	6.8%		
130	31.2	0.844	-1.0%	-7.9%		
140	31.6	0.949	0.3%	3.7%		
150	31.6	0.969	0.3%	5.8%		
160	30.8	0.992	-2.3%	8.4%		
170	31.4	1.027	-0.4%	12.2%		
180	32.0	0.883	1.5%	-3.6%		
190	32.0	0.931	1.5%	1.6%		
200	31.0	0.726	-1.6%	-20.8%		

Aritmetický průměr amplitudy deseti zaznamenaných průběhů činil v čase 32.51 ns a v maximu napětí přibližně 915.5 mV. Výchylka napěťové amplitudy byla v čase zhruba $\pm 3\%$ a v maximu napětí přibližně $\pm 17\%$. Směrodatná odchytka napěťové amplitudy v čase činila 461.1 ps a v maximu napětí 84.7 mV.

4.2.2 Měření odezvy detekční části aparatury na náhodné fotony

Při tomto měření byla zaznamenána detekční částí aparatury odezva na signál náhodných fotonů detekovaných fotonásobičem. Při měření byl otevřený shutter a hodnota trigger levelu byla nastavena na 125 mV (trigger level musel být dostatečně velký, aby byla skutečně měřena odezva na náhodné fotony, nikoli na tepelný elektron z dynod fotonásobiče – temný proud). Při tomto měření nebylo možné odečíst vliv pozadí, ale bylo možno odečíst konstantní offset zesilovače.



Graf 10 - Odezva detekční části aparatury na náhodné fotony

Byly jasně pozorovatelné oscilace v obvodu transimpedančního zesilovače fotonásobiče (ringing oscilace), které mohou mít vliv na měření dohasínání scintilátorů. Od naměřeného signálu byl odečten konstantní offset zesilovače (odečtení pozadí vzhledem k povaze měření nebylo možné). Střední délka pulzu FWHM byla 3.5 ns.

4.3 Srovnání fotoluminiscenční a scintilační odezvy scintilátoru ZnO

Fotoluminiscenční a scintilační odezva práškového scintilátoru ZnO hrála důležitou roli při zpracování měření dohasínání scintilátorů GGAG. Doba dohasínání prášku ZnO je kratší, než v případě pevného krystalu GGAG (viz kapitola 2.5.4 a 2.5.5), a proto bylo použití ZnO vhodné jako funkce IRF při následném zpracování měření.

Protože měření dosvitu luminiscence vzorků GGAG bylo provedeno jak přímou excitací fotoluminiscenčních center, tak excitací SXR zářením, byly pro vyhodnocení naměřených dat potřeba i odpovídající funkce IRF změřené stejným excitačním zdrojem.

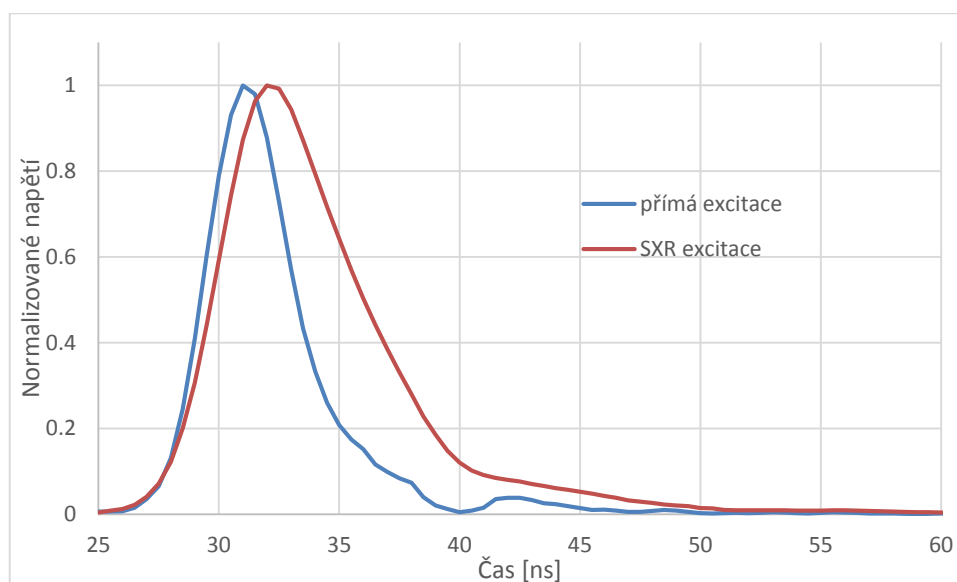
Pro fotoluminiscenci práškového scintilátoru ZnO byl použit UV dusíkový laser o vlnové délce 337.1 nm. Jako zdroj SXR záření pro vyvolání scintilace vzorku bylo použito ionizované plazma generované infračerveným laserem. Napěťová a časová rozlišení obou měření byla zvolena stejně (Tabulka 8). Časová rozlišení byla stejná, aby se dal signál složit se stejným časovým krokem mezi značkami, a díky tomu byl použitelný jako IRF pro vyhodnocení luminiscenční odezvy scintilátorů GGAG. Celkem bylo naměřeno dvě stě průběhů každého rozlišení. Byl použit optický filtr FB405±10 nm ve spojení s tlumícím filtrem NDUV10B (oba vyrobeny firmou ThorLabs). Optická clona vymezující

štěrbinu pro vstup fotoluminiscenčního nebo scintilačního světla skrze optický a tlumící filtr do fotonásobiče byl nastaven na 3-4 mm. U každého rozlišení bylo změřeno dvě stě průběhů.

Tabulka 8 - Rozlišení použité pro měření časově rozlišené fotoluminiscence a scintilace práškového scintilátoru ZnO vyvolané odpovídajícím excitačním působením

Rozlišení	Napětí [mV/]	Čas [ns/]	Posun napětí [mV]	Časové zpoždění [ns]	Zastoupení v IRF pro přímou excitaci [%]	Zastoupení v IRF pro SXR-excitaci [%]
1	200	50	627	200	3.16	7.49
2	10	50	56	200	1.99	10.64
3	2	50	26.7	200	94.85	81.87

Z naměřených dat luminiscenčního dosvitu ZnO byla složena funkce IRF, která byla použita v konvoluci s naměřenými daty dohasínání GGAG. Křivky složených IRF funkcí jsou vyneseny v Grafu 10.

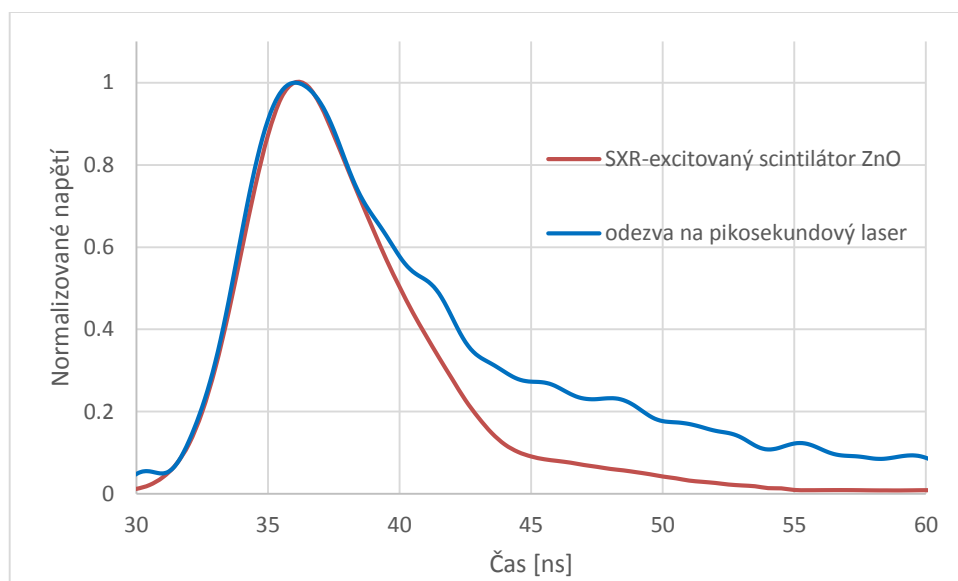


Graf 11 - Křivky složených IRF funkcí pro přímou excitaci a SXR-excitaci luminiscenčních center práškového scintilátoru ZnO

Z Grafu 11 je patrné, že doba luminiscenčního dosvitu práškového scintilátoru ZnO je pro přímou excitaci luminiscenčních center UV dusíkovým laserem kratší, než v případě excitace zdrojem SXR záření. Tento fakt potvrzuje předpoklad, že proces scintilace probíhá ve stejné látce obecně pomaleji (kvůli zpoždění v transportní fázi), než fotoluminiscence přímo excitovaných luminiscenčních center.

V Grafu 12 jsou vyneseny křivky odezvy detekční části aparatury na přímou excitaci modrým pikosekundovým laserem roztokem mléka a vody, a odezvy na SXR-excitovaný práškový scintilátor ZnO. Z grafu je patrné, že odezva detekční části aparatury probíhala v případě rozptýleného světla modrého pikosekundového laseru pomaleji než odezva na SXR-excitovaný ZnO. Tento fakt není

v souladu s teoretickým předpokladem. Chyba měření byla pravděpodobně způsobena znečištěním kyvety fluorescence schopnými látkami nebo nevhodným nastavením laseru.



Graf 12 - Porovnání odezvy detekční části aparatury na excitaci modrým pikosekundovým laserem se scintilační odezvou ZnO vyvolanou SXR zářením

5. Scintilátory Ce:GGAG

Pro měření scintilace krystalického materiálu Ce:GGAG bylo k dispozici pět vzorků, které obsahovaly různý materiál dopantu, nebo pocházely z různého místa krystalu. Jeden ze vzorků (Ce:GGAG 83) obsahuje pouze dopant ceru, a byl proto považován za referenční vzorek (standard). Všechny vzorky byly vystaveny ionizujícímu záření SXR a byla porovnána výsledná křivka dohasínání luminiscence. Vzorek GGAG_81 byl navíc vystaven přímé excitaci luminiscenčních center UV dusíkovým laserem a byla porovnána křivka dohasínání fotoluminiscence a scintilace. Specifikace složení všech pěti vzorků Ce:GGAG je obsažena v Tabulce 9.

Tabulka 9 - Specifikace pěti vzorků scintilátorů Ce:GGAG

Specifikace	GGAG 79	GGAG 80	GGAG 81	GGAG 82	GGAG 83
Ce	1 %	1 %	1 %	1 %	1 %
Li	500 ppm	500 ppm	-	-	-
Mg	-	-	2000 ppm	2000 ppm	-
Pozice	seed	tail	seed	tail	STD

5.1 Scintilační odezva krystalů Ce:GGAG na SXR-excitaci

Při měření scintilační odezvy luminiscenčních center krystalů Ce:GGAG bylo pro excitaci použito laserem produkovaného plazmatického zdroje SXR záření. Pro měření bylo využito pět různých časových i napěťových rozlišení, která hrála důležitou roli při skládání výsledného luminiscenčního signálu. Hodnoty všech pěti rozlišení jsou obsaženy v Tabulce 10. Značka „/“ u jednotek napětí a času má na osciloskopu význam „na divizi“. Jednotlivá rozlišení jsou barevně odlišena proto, že výsledná křivka dohasínání je složena z takto barevných částí, které odpovídají hodnotám naměřeným daným rozlišením.

Všechna měření probíhala za stejných podmínek a se stejným počtem měření pro každý vzorek. Byl použit optický filtr FB530 10-1 vyrobený firmou ThorLabs. Optická clona vymezující štěrbinu pro prošlé záření do fotonásobiče byla nastavena na 2-3 mm. U každého rozlišení bylo změřeno dvě stě průběhů.

Tabulka 10 - Časová rozlišení nastavená pro měření scintilace všech vzorků Ce:GGAG a fotoluminiscence vzorku GGAG_81

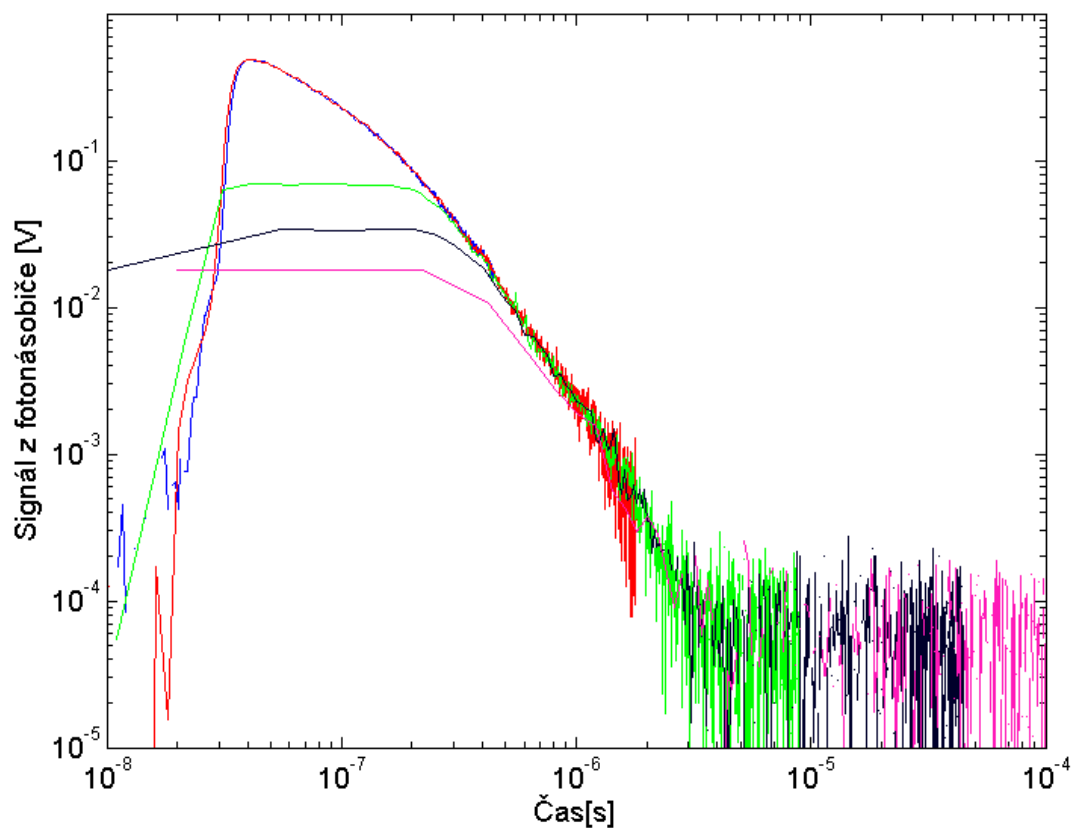
rozlišení	Napětí [mV/]	Čas [us/]	Napěťový offset [mV]	Časové zpoždění [us]
1	200	0.05	627	0.2
2	100	0.2	320	0.8
3	10	1	53	4
4	5	5	36	20
5	2	20	26	80

Data takto naměřených vzorků byla zpracována programem v prostředí MATLAB, jehož výstupem bylo několik grafů. První z nich představoval křivky odpovídající všem pěti rozlišením. V druhém grafu byla vynesena složená křivka výsledného dohasínání s barevně oddělenými úseky odpovídajícími hodnotám naměřeným daným rozlišením. Další graf představoval opět hodnoty výsledné křivky dohasínání, tentokrát vynesené v bodech a proložené křivkou výsledku fitu. Všechny tyto tři grafy mají v obou osách logaritmické měřítko, při čemž poslední dva mají normalizované napětí a napěťovou osu proloženou přerušovanou čarou v hodnotě 10^{-4} , která má význam uměle zvolené nulové hodnoty napětí. Poslední graf představoval křivku vážených reziduí odpovídající (ne)dokonalosti vypočteného fitu. Protože bylo naměřeno pět vzorků (šest počítáme-li vzorek GGAG_81 dvakrát kvůli měření fotoluminiscence), a výsledek měření každého z nich obnášel čtyři grafy, bude dále prezentován pouze výsledek prvního vzorku, tedy GGAG_79. Výsledky zpracování ostatních vzorků jsou k dispozici v příloze.

Jako funkce IRF, která popisuje odezvu detekční části aparatury, byla použita křivka scintilační odezvy práškového scintilátoru ZnO měřeného za stejných podmínek. K fitování dat byl použit model čtyř-exponenciální funkce (rovnice 7).

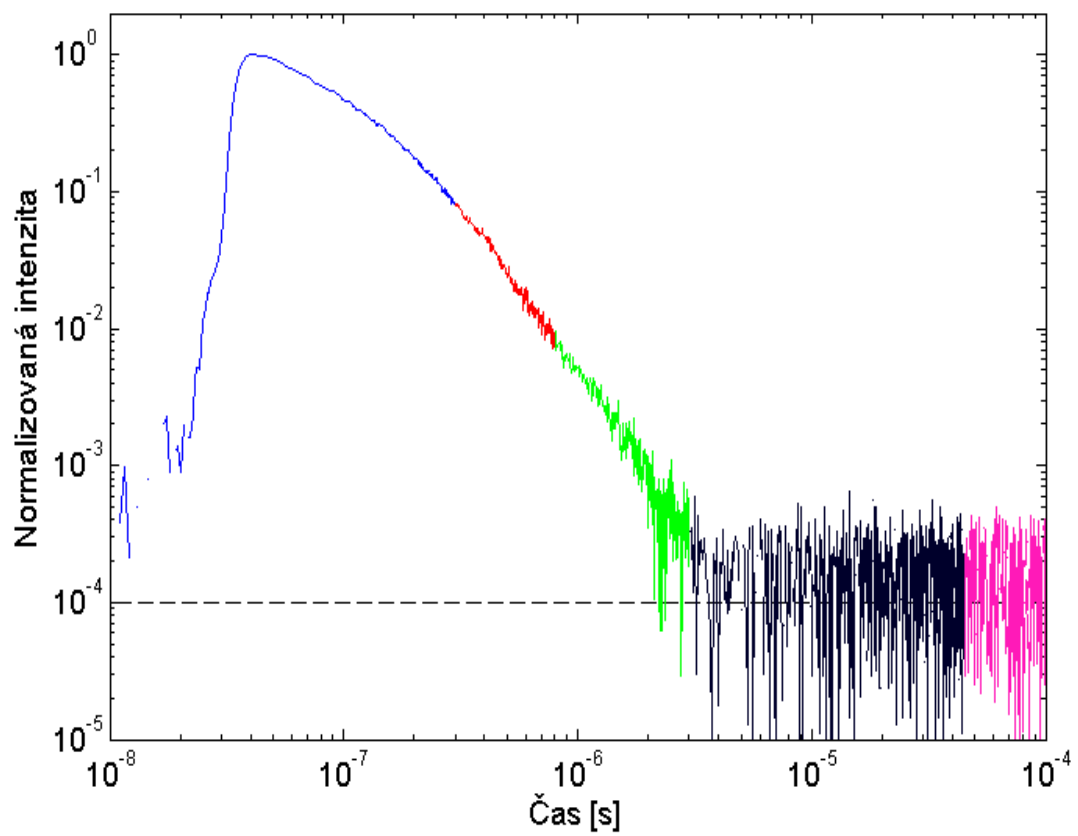
Odezva vzorku GGAG_79 na SXR-excitaci

Ve vzorku tohoto scintilačního krystalu bylo přítomno určité množství dvou dopantů - cer (1%) a 500 částic lithia na jeden milion (ppm) atomů přítomných v krystalu. Zkoumaný vzorek pocházel z počáteční části krystalu (seed position). V Grafu 13 jsou vyneseny křivky odpovídající naměřeným hodnotám za každého rozlišení.

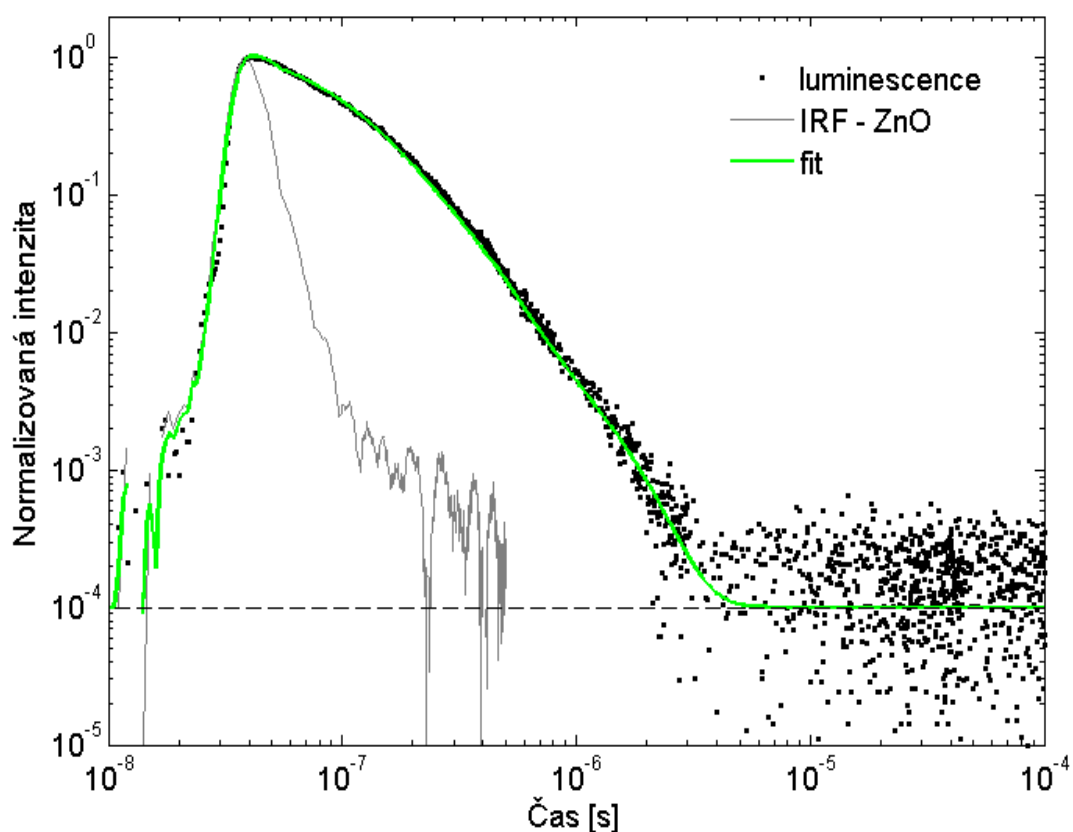


Graf 13 – Scintilátor GGAG_79, jednotlivé křivky odpovídající naměřeným hodnotám za každého rozlišení vzorku GGAG_79

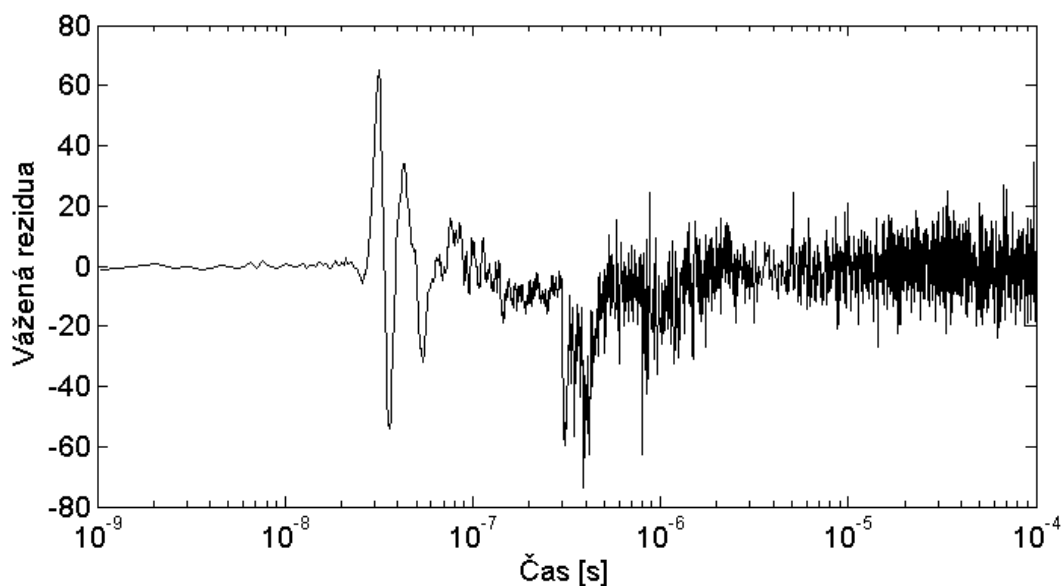
Než mohly být vypočítány hodnoty χ^2 pro všechny hodnoty, aby se následně proložily křivkou ideálního fitu (Graf 15), musela být složena výsledná křivka luminiscenčního dohasínání ze všech pěti rozlišení (Graf 14). Graf 16 představuje křivku vážených reziduí odpovídající fitu vzorku GGAG_79.



Graf 14 - Scintilátor GGAG_79, výsledná poskládaná křivka dohasínání vzorku GGAG_79 excitovaného zdrojem SXR záření



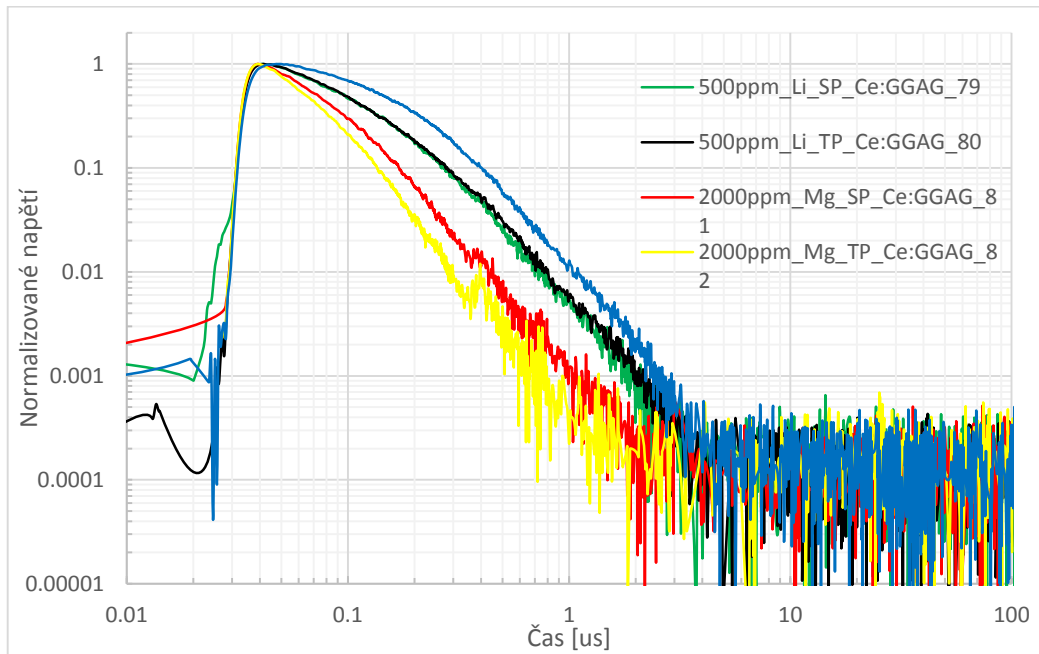
Graf 15 - Scintilátor GGAG_79, data složené křivky luminiscenčního dohasínání (černé body) proložené křivkou výsledku fitu a s vynesenu funkcí IRF změřenou pro scintilátor ZnO



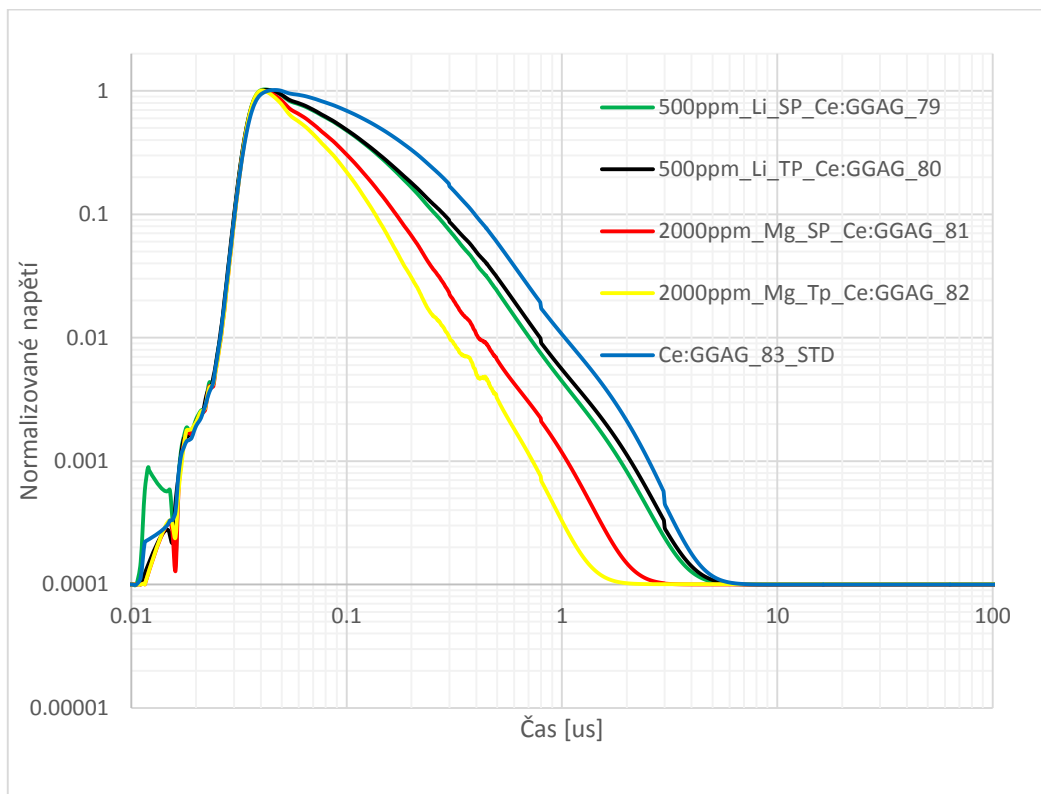
Graf 16 - Scintilátor GGAG_79, vážená rezidua křivky fitu

Obdobně byla změřena kinetika scintilačního dohasínání zbývajících čtyř vzorků krystalů Ce:GGAG v odezvě na excitaci SXR zářením a vzorku GGAG_81 v odezvě na fotoluminiscenci vyvolanou UV dusíkovým laserem, jejichž grafy jsou vyneseny v přílohách této diplomové práce. K porovnání

chování scintilační odezvy vzorků o různém složení (nebo z jiné části krystalu) byly vyhotoveny dva grafy, ve kterých jsou tyto křivky vyneseny přes sebe. První graf reprezentuje složené křivky všech pěti rozlišení pro všech pět vzorků a druhý graf představuje křivky fitu. Parametry fitu a váhy odpovídající jednotlivým rozlišením se nacházejí v Tabulce 11.



Graf 17 - Pět složených křivek odpovídajících všem vzorkům GGAG excitovaných SXR zářením



Graf 18 - Pět křivek odpovídajících fitu křivky dohasínání každého vzorku GGAG excitovaného SXR zářením

Tabulka 11 - Parametry fitu pro měření scintilační odezvy vzorků GGAG na excitaci SXR zářením

Exponenciální komponent	Amplituda [V]	Doba života (lifetime) [ns]	Podíl na fitu
GGAG_79			
1	1.03	0.209	0.690
2	0.000759	61.1	0.149
3	0.0000182	606	0.035
4	0.000251	156	0.126
GGAG_80			
1	1.36	0.195	0.716
2	0.000713	53.0	0.102
3	0.00000209	656	0.037
4	0.000334	161	0.145
1GGAG_81			
1	5.49	0.156	0.939
2	0.000528	35.1	0.020
3	0.0000218	323	0.008
4	0.000425	70.1	0.033
GGAG_82			
1	5.85	0.245	0.781
2	0.856	39.7	0.186
3	0.000018	547	0.005
4	0.000246	207	0.028
GGAG_83			
1	2.99	0.257	0.317
2	0.522	84.7	0.182
3	0.0409	662	0.112
4	0.572	165	0.390

Z Grafů 17 a 18 je snadno pozorovatelné, že doba života (lifetime) vzorku GGAG_83, který byl díky svému složení brán jako standard, protože obsahoval pouze dopant Ce bez žádné kodopance dalším prvkem, byla ve srovnání s ostatními vzorky delší.

Porovná-li se vzorky se stejným složením, avšak z jiné části krystalu, tak vzorek GGAG_81 a GGAG_82 korespondují s teoreticky známým faktem, že v koncové části krystalu (tail position) je obecně vyšší koncentrace dopantů než na začátku krystalu (seed position), a proto je i rychlost odezvy vzorků z této části krystalu vyšší.

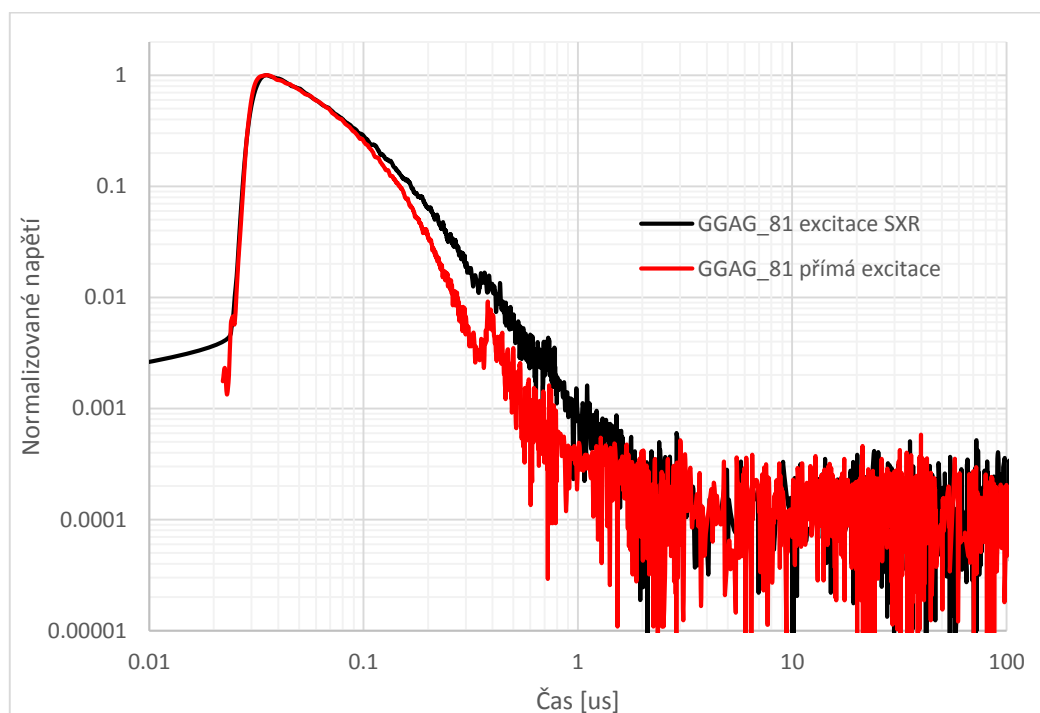
V případě vzorků GGAG_79 a GGAG_80 byl výsledek v souladu s předpokladem, že přítomnost dalšího dopantu zrychlí odezvu. Rychlost odezvy obou vzorků byla prakticky stejná, vzhledem k možnostem použité měřicí techniky.

Celková scintilační odezva pro všechny vzorky krystalu GGAG obsahující kromě ceru i další dopant byla rychlejší než standard, ale rychlost odezvy vzorků obsahující lithium byla menší než u vzorků obsahujících 2000ppm hořčíku.

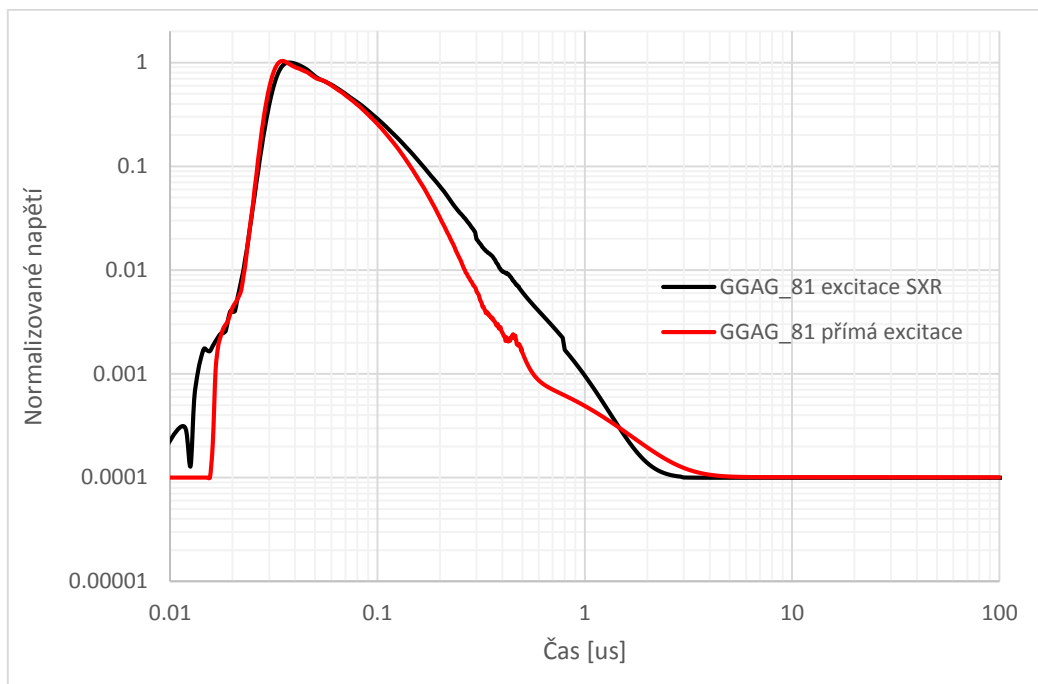
5.2 Fotoluminiscenční odezva vzorku GGAG_81 na přímou excitaci

Fotoluminiscenční odezva na přímou excitaci UV dusíkovým laserem byla změřena pouze pro vzorek GGAG_81. Výběr právě tohoto vzorku byl zcela náhodný.

Pro vyhodnocení měření fotoluminiscenční odezvy na přímou excitaci UV dusíkovým laserem byla použita funkce IRF měřená pro práškový scintilátor ZnO za stejných podmínek. Rozsah rozlišení byl použit stejný jako v případě měření scintilační odezvy na excitaci SXR zářením. Pro každé rozlišení bylo zaznamenáno 200 průběhů. Byl použit optický filtr FB530 10-1 od firmy ThorLabs. Vyhodnocení naměřených dat probíhalo stejně jako v případě měření scintilační odezvy všech vzorků GGAG, a proto budou dále uvedeny pouze grafy složených křivek a fitu vzorku GGAG_81 měřeného oběma metodami. Příslušné grafy samotného měření vzorku GGAG_81 metodou přímé excitace luminiscenčních center UV dusíkovým laserem jsou k nahlédnutí v Příloze 9 a 10.



Graf 19 - Složené křivky luminiscenčního (scintilačního) dohasínání vzoru GGAG_81



Graf 20 - Křivky fitu odpovídající luminiscenční a scintilační odezvě vzorku GGAG_81 na příslušnou excitaci

Tabulka 12 - Parametry fitu pro měření luminiscenční a scintilační odezvy na příslušnou excitaci vzorku GGAG_81

Exponenciální komponent	Amplituda [V]	Doba života (lifetime) [s]	Podíl na fitu
GGAG_81 excitace SXR zářením			
1	5.49	0.156	0.939
2	0.528	35.1	0.020
3	0.0000218	323	0.008
4	0.000425	70.1	0.033
GGAG_81 přímá excitace UV dusíkovým laserem			
1	2.84	0.512	0.222
2	0.11	44.4	0.745
3	0.0000208	1570	0.005
4	0.000640	284	0.028

Výsledky srovnání přímé excitace fotoluminiscenčních center a excitace SXR zářením vzorku scintilačního krystalu GGAG_81 ukázaly, že instrumentální odezva na fotoluminiscenci je díky kratšímu excitačnímu pulzu rychlejší. Z tohoto důvodu je patrná ostřejší náběžná hrana. Konečný pozvolný průběh fotoluminiscence, kde křivka protíná křivku scintilační odezvy (Graf 20), byl způsoben nedokonalým fitem.

Scintilační odezva na excitaci SXR zářením je v souladu s teoretickým předpokladem zpožděná, a to díky zpoždění v transportní fázi procesu scintilace.

6. Diskuze výsledků

V experimentální části této diplomové práce byla provedena měření ve dvou různých uspořádáních – měření odezvy luminiscenčního signálu na přímou excitaci UV dusíkovým laserem a měření scintilační odezvy na excitaci SXR zářením. Předmětem zkoumání byly vzorky scintilačních krystalů Ce:GGAG (cerem dopovaný galium, gadolinium, aluminium granát ko-dopovaný lithiem a hořčíkem). Aby mohla být samotná měření provedena, bylo zapotřebí provést různá dílčí měření, jako vybrat vhodný triggerovací signál a provést statistiku jeho stálosti, či změřit odezvu detekční části aparatury na jednotkový Diracův impuls (resp. signálu, který se mu blíží). Pro všechny vzorky scintilačních krystalů GGAG byla změřena scintilační odezva na excitaci SXR zářením. Pouze pro jeden vzorek (GGAG_81) byla změřena i luminiscenční odezva na přímou excitaci UV dusíkovým laserem. Výběr právě tohoto vzorku scintilačního krystalu byl zcela náhodný.

6.1 Výběr triggeru

Pro měření scintilační odezvy krystalů GGAG na excitaci SXR zářením bylo možno vybrat ze tří různých triggerovacích signálů – signálem snímaným IR diodou, synchronním signálem s IR laserem pro triggerování CCD pinhole kamery a signálem z XUV diody.

Největší zašumění a jitter představovalo použití jako triggeru signálu synchronního s IR laserem pro triggerování CCD pinhole kamery. Tento signál byl oproti světelnému signálu dohasínání scintilátoru zpožděn o několik řádu, a proto nepřipadalo v úvahu použít ho jako trigger.

Lépe se projevil signál z IR diody, která zaznamenávala přítomnost laserového paprsku ve vakuové komoře. I přes to, že se užití tohoto triggeru jeví jako vhodné, stále si zaznamenané signály, jejichž nastavení rozlišení bylo stejné, neodpovídaly a na časové ose byly posunuty (i když pouze v řádu desetin až jednotek nanosekund). Tyto nepřesnosti byly způsobeny tím, že ve své podstatě nedochází k vytvoření plazmatu (které je zdrojem SXR záření) pouhou přítomností elektrického pole z laserového svazku, ale toto pole slouží jako urychlovač pro přirozeně se vyskytující ion v použitém plynu (argonu), který je schopen následně celý plyn ionizovat. Tím může dojít k určité prodlevě, než je vytvořeno plazma. V Grafech 1 a 2 se jedná o zprůměrované hodnoty dvou set zaznamenaných průběhů s odstupem měření několika minut, a v případě, že by se takto měřil celý průběh dohasínání scintilačních vzorků, byl by právě takový posun IRF.

Jako nejvhodnější kandidát na pozici triggerovacího signálu byla tedy zvolena XUV dioda. Dokázala zaznamenat signál právě ve chvíli, kdy se ve vakuové komoře vytvořilo plazma, a kdy zdroj SXR záření právě excitoval vzorek scintilačního krystalu. Nedocházelo tedy k žádnému signálovému posunu (jitteru).

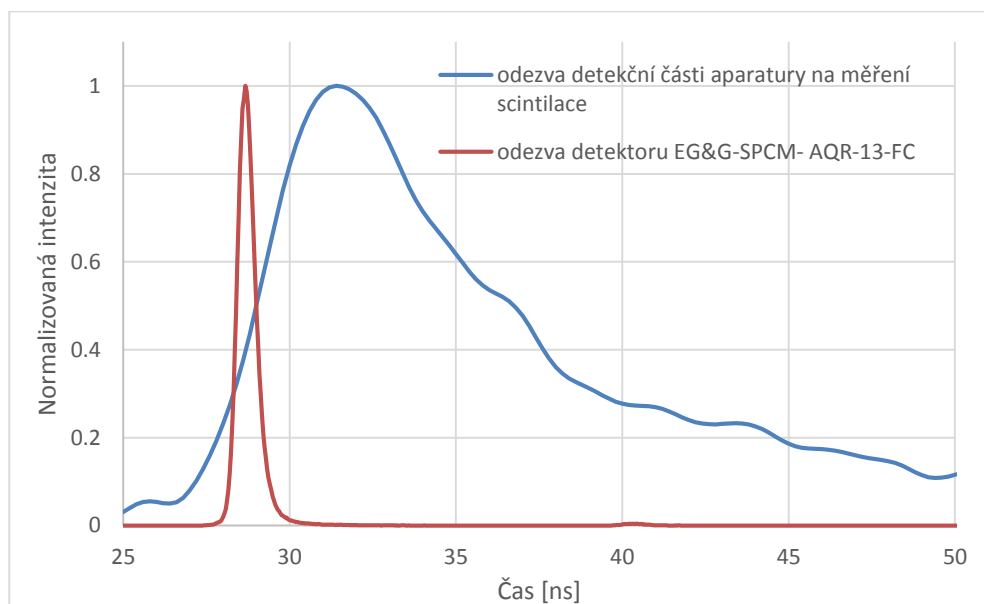
Pro měření luminiscenční odezvy na přímou excitaci luminiscenčních center UV dusíkovým laserem byla jako trigger vybrána polovodičová Si dioda. Pro zjištění statistiky bylo touto diodou změřeno deset průběhů UV dusíkového laseru a modrého pikosekundového laseru. Naměřené údaje byly porovnány s osciloskopem. Zjišťovala se výchylka napěťové amplitudy v čase a ve svém maximu. Následně byla z deseti naměřených průběhů spočtena směrodatná odchylka, která byla porovnána s hodnotou na osciloskopu a po dvou stech průbězích signálu. Pro měření průběhů UV dusíkového laseru byla výchylka napěťové amplitudy ve svém maximu $\pm 4\%$ a v čase $\pm 0.32\%$. Střední doba trvání FWHM byla 3.5 ns. V případě modrého pikosekundového laseru byla výchylka amplitudy ve svém maximu přibližně $\pm 1.67\%$ a v čase $\pm 0.7\%$, střední doba života FWHM byla Relativně malá výchylka maxima napěťové amplitudy a téměř nulové vychýlení této amplitudy v čase dokázaly, že je tato dioda vhodná jako trigger. Pro deset zaznamenaných průběhů signálu ručně a pro dvě stě zaznamenaných průběhů signálu na osciloskopu byly spočítány (odečteny) směrodatné odchylky amplitudy vůči triggeru v čase a ve svém maximu. V případě měření průběhů UV dusíkového laseru byly hodnoty získané vlastním výpočtem 111.8 ps a 2.275 mV, a hodnoty odečtené z osciloskopu 103.2 ps a 2.032 mV. Porovnáním směrodatných odchylek vlastního výpočtu a výpočtu osciloskopu pro UV dusíkový laser lze usoudit, že čím více je změřeno průběhů signálu, tím menší by měla být směrodatná odchylka, což je v souladu s teoretickým předpokladem. Pro modrý pikosekundový laser byly hodnoty vlastního výpočtu 100.23 ps a 16.99 mV, a hodnoty odečteny z osciloskopu 102.36 ps a 18.23 mV. V tomto případě byl patrný nárůst hodnoty směrodatné odchylky, který byl patrně způsoben nedokonalým odstíněním parazitního světla laboratoře nebo nežádoucím vlivem signálu mobilního operátora.

6.2 Odezva detekční části aparatury

Měřením charakterizujícím detekční část aparatury bylo měření rozptylu světla modrého pikosekundového laseru roztokem mléka ve vodě a detekce signálu na náhodné fotony.

Jako trigger pro měření rozptylu světla modrého pikosekundového laseru byla použita polovodičová Si dioda. K utlumení signálu byl použit tlumící filtr NDUV10B vyrobený firmou ThorLabs. V tomto případě bylo změřeno dvacet průběhů signálu, nicméně statistika vyhodnocení probíhala v zásadě stejně jako v předchozím případě, pouze s rozdílem, že tentokrát nebyly porovnány směrodatné odchylky vlastního výpočtu a hodnotou zaznamenanou osciloskopem. Z grafu vynesných hodnot byla patrná velká nestálost napěťové amplitudy ve svém maximu (přibližně $\pm 17\%$ od aritmetického průměru). Časová výchylka amplitudy činila zhruba $\pm 3\%$. Směrodatná odchylka byla v napěťovém maximu 84.68 mV a v časové oblasti 461.09 ps. Takto velké oscilace maxima napěťové amplitudy byly způsobeny vlastnostmi fotonásobiče.

Naměřená odezva detekční části aparatury na signál z modrého pikosekundového laseru byla porovnána s měřením odezvy detektoru EG&G-SPCM- AQR-13-FC na stejný signál metodou TCSPC. Tento experiment byl realizován pomocí odrazu laserového svazku od sklíčka, s opakovací frekvencí 10 MHz a délkou jednoho laserového pulzu 0.7 ns. Z následujícího grafu je evidentní obrovský rozdíl v detekci modrého pikosekundového laseru aparaturou použitou v této práci a detektorem EG&G-SPCM- AQR-13-FC.



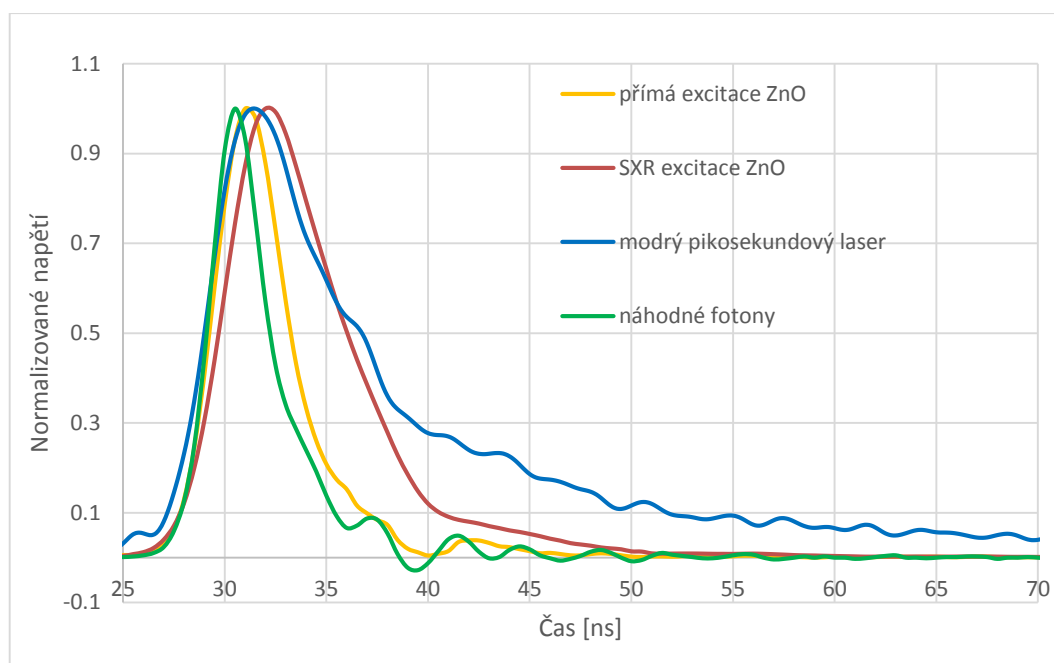
Graf 21 – Porovnání detekce modrého pikosekundového laseru detekční částí aparatury na měření scintilace a detektorem EG&G-SPCM-AQR-13-FC

Celková délka trvání jednoho průběhu byla navzdory teoretickým předpokladům příliš dlouhá. To mohlo být způsobeno znečištěním kvety fluorescence schopnými látkami, které by mohly délku pulzu prodloužit. Další možností pak bylo špatné nastavení laserové intenzity, která by v případě nastavení podprahové hodnoty pracovala v módu spontánní emise. Pro případné opakování měření je doporučeno tyto možnosti prověřit, eventuálně vyzkoušet jiné alternativy navedení světelného signálu z modrého pikosekundového laseru do fotonásobiče než signálem rozptýleným v roztoku mléka ve vodě.

6.3 Luminiscenční a scintilační odezva práškového ZnO

Pro analýzu a zpracování luminiscenční a scintilační odezvy krystalů GGAG hrála důležitou roli funkce IRF (instrument response function), která charakterizuje detekční část aparatury. Pro tento úkol byl vybrán práškový scintilátor ZnO, který je znám pro svou rychlou luminiscenční (scintilační) odezvu. Obě měření probíhala za stejných podmínek. V programu na ovládání osciloskopu vytvořeném v prostředí LabView byla nastavena tři různá napěťová rozlišení, přičemž časová rozlišení zůstala stejná, aby se dal výsledný signál složit se stejným časovým krokem, a proto byl použitelným jako

funkce IRF při analýze a zpracování kinetiky luminiscenčního (scintilačního) dohasínání vzorků GGAG. Pro každé rozlišení bylo naměřeno dvě sítě průběhů signálu, z jejichž zprůměrovaných hodnot byla složena výsledná křivka funkce IRF odpovídající luminiscenční nebo scintilační odezvě v závislosti na zdroji excitace. Průběhy obou křivek byly porovnány s odezvou detekční části aparatury na rozptýlené světlo modrého pikosekundového laseru roztokem mléka a vody a na náhodné fotony okolního prostředí (viz následující graf).



Graf 22 - Křivky luminiscence a scintilace práškového scintilátoru ZnO a křivka odezvy detekční části aparatury na rozptýlené světlo modrého pikosekundového laseru roztokem mléka ve vodě

V Grafu 21 jsou vyneseny křivky fotoluminiscenční a scintilační odezvy práškového scintilátoru ZnO na příslušnou excitaci, křivka odezvy detekční části aparatury na přímou excitaci modrým pikosekundovým laserem a křivka odezvy detekční části na náhodné fotony.

Z grafu je patrné, že nejrychlejší odezva byla naměřena pro náhodné fotony okolí, což bylo v souladu s teoretickým předpokladem. Ačkoli se nejedná o jasně definovaný signál, nic rychlejšího už detekční část aparatury detekovat nemůže, čili je tento signál pravděpodobně na hranici meze detekovatelnosti detekční části. Tabulka 13 zachycuje střední dobu života FWHM pro jednotlivá měření.

Tabulka 13 - Hodnoty FWHM jednotlivých měření detekční částí aparatury

	Fotoluminiscence ZnO	Scintilace ZnO	Modrý pikosekundový laser	Náhodné fotony
FWHM [ns]	3.75	6.25	11.2	3.5

Práškový scintilátor ZnO vykazoval podobně rychlý průběh, avšak v tomto případě se jednalo o jasně definovaný signál. Nejlepší možnost pro měření IRF je dohasínáním SXR excitovaného ZnO, protože je to konvoluce excitačního SXR pulzu, detekční části aparatury a křivky dohasínání ZnO. Ideální by bylo použití vzorku s nekonečně krátkým dosvitem, avšak práškový ZnO měl nejrychlejší dosvit, jaký byl k dispozici.

6.4 Scintilátory Ce:GGAG

Bylo měřeno celkem pět vzorků scintilátorů GGAG, které se lišily přítomností různého ko-dopujícího prvku nebo pozicí, ze které části krystalu pocházely (seed = počáteční část krystalu nebo tail = koncová část krystalu). Poslední vzorek neobsahoval žádný ko-dopující prvek, a proto byl považován za standard (STD). Vzorky GGAG byly excitovány SXR zářením a následně se měřila jejich doba života (lifetime) vyvolaného procesu scintilace. U vzorku vykazujícího největší světelný výtěžek (GGAG_81) byla změřena i fotoluminiscenční odezva na přímou excitaci UV dusíkovým laserem, která se následně porovnávala se scintilační odezvou téhož vzorku. Specifikace vzorků GGAG obsahuje následující tabulka.

Tabulka 14 - Specifikace pěti vzorků scintilátorů Ce:GGAG

specifikace	GGAG 79	GGAG 80	GGAG 81	GGAG 82	GGAG 83
Ce	1 %	1 %	1 %	1 %	1 %
Li	500 ppm	500 ppm	-	-	-
Mg	-	-	2000 ppm	2000 ppm	-
pozice	seed	tail	seed	tail	STD

Měření všech vzorků probíhalo za stejných podmínek za použití vždy pěti různých napěťových a časových rozlišení. Rozlišení byla volena tak, aby bylo možné na sebe bez problému jednotlivé úseky navázat, a tím získat křivku vhodnou pro fitování. Parametry napěťového a časového rozlišení zvolené pro měření scintilační i luminiscenční odezvy vzorků GGAG jsou v následující tabulce.

Tabulka 15 - Časová rozlišení nastavená pro měření scintilace všech vzorků Ce:GGAG a fotoluminiscence vzorku GGAG_81

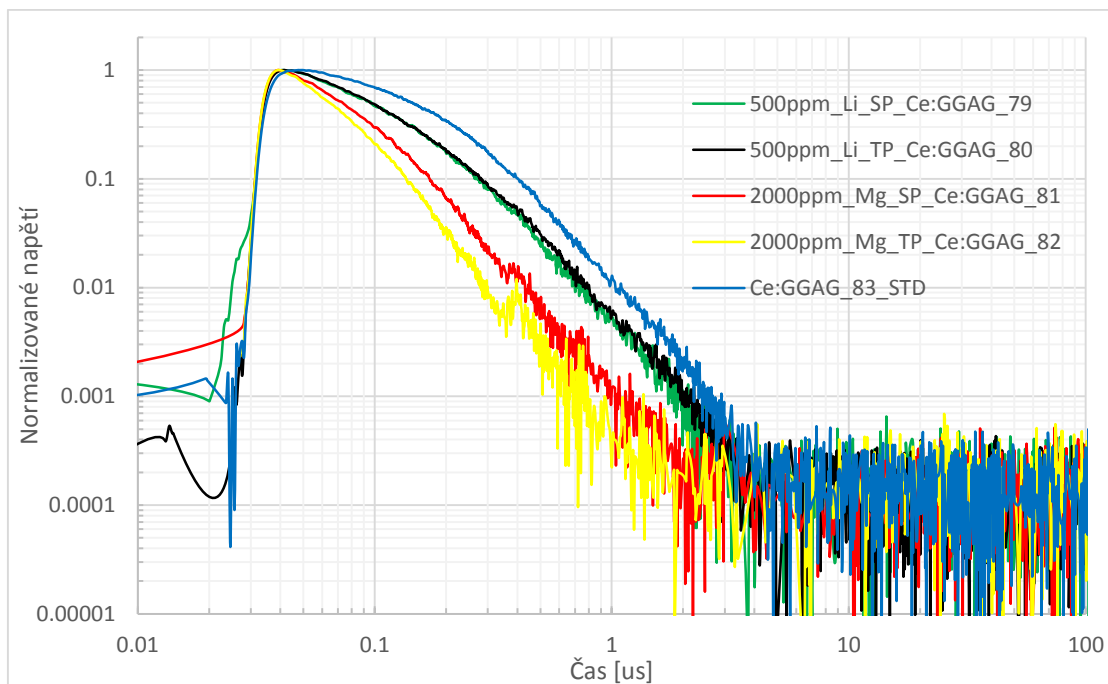
rozlišení	Napětí [mV/]	Čas [us/]	Napěťový offset [mV]	Časové zpoždění [us]
1	200	0.05	627	0.2
2	100	0.2	320	0.8
3	10	1	53	4
4	5	5	36	20
5	2	20	26	80

Protože byly složené křivky fotoluminiscenční a scintilační odezvy vzorků GGAG velmi zašuměné, bylo důležité najít vhodnou aproximaci (fit) ke každé křivce, a touto aproximací ji proložit. Pro hledání vhodné aproximace byla použita metoda nejmenších čtverců. Funkcí, kterou byla data fitována, byl čtyř-exponenciální model definovaný

$$I = \sum_{i=1}^4 a_i * e^{\left(\frac{-t}{\tau_i}\right)}$$

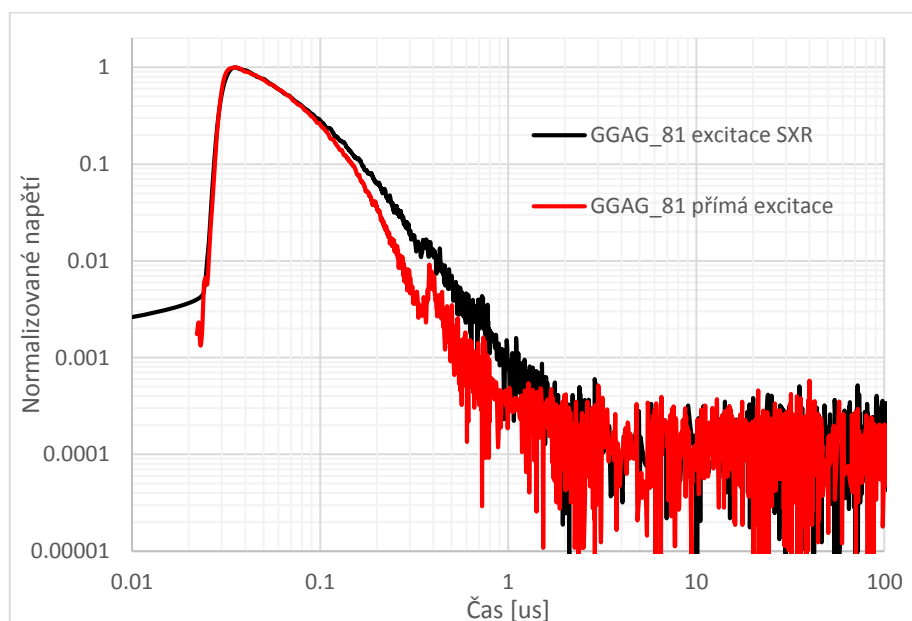
kde a_i a τ_i představují parametry fitu (amplitudu a dobu života příslušného exponenciálního komponentu). Křivka dohasínání luminiscence musí obsahovat kromě vlivu pozadí i funkci IRF charakterizující rychlost odezvy detekční části aparatury. Měřená data jsou tedy rovna konvolucí IRF a průběhu dohasínání luminiscence, což byl v tomto případě čtyř-exponenciální model popsany výše. Jako funkce IRF byla použita křivka fotoluminiscenčního, resp. scintilačního dohasínání práškového scintilátoru ZnO. Tímto způsobem změřené a vyhodnocené křivky dohasínání vzorků scintilačních krystalů GGAG byly vyneseny do jednoho grafu a dále interpretovány.

Nejpomalejší průběh scintilační odezvy na excitaci SXR záření měl z měřených vzorků krystal GGAG_83 (standard), který byl dopován pouze cerem. Tento fakt byl v souladu s teoretickým předpokladem, že při ko-dopování scintilátoru se zvyšuje rychlost scintilační odezvy. Nejrychlejší průběh byl naopak pozorován u vzorku GGAG_82, který obsahoval kromě ceru navíc 2000ppm hořčíku a pocházel z koncové části krystalu (tail position). Vzorek o stejném složení a koncentraci (GGAG_81) ale z počáteční části krystalu (seed position) byl pomalejší, což odpovídá domněnce, že se koncentrace dopantu zvyšuje směrem s růstem krystalu. U zbývajících dvou vzorků byl výsledek v souladu s předpokladem, že přítomnost dalšího dopantu zrychlí odezvu. Rychlost odezvy obou vzorků byla prakticky stejná, vzhledem k možnostem použité měřící techniky.



Graf 17 - Pět složených křivek odpovídajících všem vzorkům GGAG excitovaných SXR zářením

Stejným způsobem byl vyhodnocen vzorek GGAG_81, u něhož se porovnávala scintilační a luminiscenční odezva na příslušnou excitaci. Průběh dohasínání fotoluminiscence ukázal, že instrumentální odezva je díky kratšímu excitačnímu pulzu rychlejší. Scintilační odezva na excitaci SXR zářením je v souladu s teoretickým předpokladem zpožděná, a to díky zpoždění v transportní fázi procesu scintilace.



Graf 19 - Složené křivky luminiscenčního (scintilačního) dohasínání vzoru GGAG_81

7. Závěr

V teoretické části této diplomové práce byly nejprve popsány základní fyzikální principy důležité pro měření dosvitu časově rozlišené luminiscence scintilátorů. Byla provedena analýza současného stavu a shrnutí nejčastěji používaných metod pro tato měření. Následně byla pozornost věnována metodám pěstování scintilačních krystalů a jejich obohacení o ionty prvků, které do krystalické struktury z hlediska chemického složení nepatří, čímž tvoří tzv. luminiscenční centra. Díky těmto luminiscenčním centřům je krystal schopen procesu scintilace a může být využit jako základ scintilačních detektorů ve zdravotnických přístrojích založených na detekci ionizujícího záření (PET, SPECT, CT).

Následující kapitola - Instrumentace se zabývala charakterizací detekční části aparatury, která hrála později důležitou roli při měření scintilačních krystalů GGAG (galium gadolinium aluminium granát). Dále byla v této kapitole popsána schémata experimentů měření luminiscenční odezvy scintilátorů na přímou excitaci UV dusíkovým laserem a scintilační odezvy na excitaci laserem produkovaným zdrojem SXR záření. Důležitým aspektem v instrumentaci této diplomové práce byla manipulace s naměřenými daty a jejich analýza. Tato část zahrnovala postup na ovládání osciloskopu a hlavní principy samotného zpracování naměřených luminiscenčních (scintilačních) dat, včetně stanovení optimálních parametrů pro měření. Byl zde popsán původ a vliv šumu a parazitního signálu na naměřené luminiscenční dosvity a možný způsob jejich minimalizování.

Experimentální část této práce byla zaměřena zejména na měření scintilační odezvy vzorků GGAG o různém složení na excitaci SXR zářením. Pro vyhodnocení těchto měření byla důležitá funkce IRF (Instrument Response Function), která představovala konvoluci odezvy detekční části aparatury na Diracovu delta funkci a časového profilu excitace vzorku. Funkce IRF byla změřena pro práškový scintilátor ZnO. Naměřené dosvity luminiscence vzorků GGAG byly aproximovány čtyř-exponenciálním modelem. Nejpomalejší dosvit luminiscence byl při tomto experimentu pozorován u vzorku, který byl dopován pouze cerem. Naopak nejrychlejší odezvu měl scintilátor obsahující kromě dopantu ceru i dopant hořčíku, a pocházel z koncové části krystalu (tail position). Jeden z pěti vzorků GGAG byl podroben i měření fotoluminiscence přímou excitací UV dusíkovým laserem. Porovnáním fotoluminiscence a scintilace stejného vzorku byl potvrzen předpoklad, že proces scintilace probíhá pomaleji z důvodu zpoždění v transportní fázi procesu.

Seznam použité literatury

- [1] Bruza P., Fidler V., Nikl M., „Table-top instrumentation for time-resolved luminescence spectroscopy of solids excited by nanosecond pulse of soft X-ray source and/or Uv laser,“ *Journal of Instrumentation*, 2011.
- [2] Ch., Kittel, Úvod do fyziky pevných látek, Praha: Akademia, 185.
- [3] Pelant I., Valenta J., Luminiscenční spektroskopie, Praha: Akademia, 2006.
- [4] M., Nikl, „Scintillation detectors for x-rays,“ *Measurement Science and Technology*, pp. R37-R54, 10 February 2006.
- [5] B. G., „Scintillation mechanisms of inorganic materials: From crystal characteristics to scintillation properties,“ *Journal of Crystal Growth*, pp. 1213-1215, 1 Duben 2010.
- [6] M., Nozka, [Online]. Available: http://hroch.spseol.cz/~nozka/psk/052-opticke_zdroje_detektory/. [Přístup získán 15 03 2016].
- [7] H. P., „Univerzitni priprava gymnazialnich ucitelu (se zvlastni zretelem ke kvantove mechanice). Diplomova prace,“ 1996. [Online]. Available: <http://www.kof.zcu.cz/st/dp/horsky/html/2compton.html>. [Přístup získán 01 02 2016].
- [8] Lakowicz, Joseph R., Principles of fluorescence spectroscopy, Baltimore, USA: Springer, 2006.
- [9] Jochen Arlt, David Tindall, Bruce R. Rae, David D. U. Li, Justin A. Richardson, Robert K. Henderson, „A study of pile-up in integrated time-correlated single photon counting,“ *Review of Scientific instruments*, 2013.
- [10] K. Kamada, T. Yanagida, T. Endo, K. Tsutumi, Y. Usuki, M. Nikl, Y. Fujimoto, A. Fukabori, A. Yoshikawa, „2 inch diameter single crystal growth and scintillation properties of Ce:Gd₃Al₂Ga₃O₁₂,“ *Journal of Crystal Growth*, pp. 88-90, 2012.
- [11] A. Yoshikawa, V. Chani, M. Nikl, „Czochralski Growth and Properties of Scintillating Crystals,“ *Acta Physica Polonica*, pp. 250-264, 2013.

- [12] Robert Král, Vítězslav Jarý, Jan Pejchal, Shunsuke Kurosawa, Karel Nitsch, Yuui Yokota, Martin Nikl, and Akira Yoshikawa, „Growth and Luminescence Properties of Eu:SrI₂ Single Crystals Prepared by Modified Micro-Pulling-Down Method,“ *IEEE TRANSACTIONS ON NUCLEAR SCIENCE*, pp. 453-458, Duben 2016.
- [13] Jan Pejchal, Robert Král, Karel Nitsch, Antonín Cihlář, Petra Zemenová, Aleš Bystřický, „Fyzikální ústav AV ČR,“ [Online]. Available: <http://www.fzu.cz/oddeleni/oddeleni-opticky-materiálu/working-groups/laborator-pripravy-opticky-materiálu-a-termic>. [Přístup získán 11 Květen 2016].
- [14] Nikl M., Kamada K., Babimn V., Pejchal J., Pilarova K., Mihokova E., Beitlerova A., Bartosiewicz K., Kurosawa S., Yoshikawa A., „Defect Engineering in Ce-Doped Aluminium Garnet Single Crystal Scintillators,“ *Crystal Growth Design*, pp. 4827-4833, 30 Červenec 2014.
- [15] Lucchini M., Babin V., Bohacek P., Kamada K., Nikl M., Petrosyan A., Yoshikawa A., Auffray E., „Effect of Mg²⁺ ions co-doping on timing performance and radiation,“ *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, pp. 176-183, 11 Únor 2016.
- [16] Nikl M., Yoshikawa A., Kamada K., Nejezchleb K., Stanek C.R., Mares J.A., Blazek K., „Development of LuAG-based scintillator crystals - A review,“ *Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials*, pp. 17-72, 2013.
- [17] Derenzo S. E., Weber M. J., „Development of ZnO:Ga as an ultra-fast scintillator,“ *Nuclear Instruments and Methods in Physics*, pp. 358-363, 1 Duben 2009.
- [18] Hamamatsu photonics K.K., „Photomultiplier tubes, datasheet,“ Hamamatsu, [Online]. Available: https://www.hamamatsu.com/resources/pdf/etd/R6427_R7056_TPMH1187E.pdf. [Přístup získán 6 Květen 2016].
- [19] Jaroslav Reichl, Martin Všetická, „Encyklopedie fyziky,“ 2006-2016. [Online]. Available: <http://fyzika.jreichl.com/main.article/view/747-fotonasobic>. [Přístup získán 7 Květen 2016].
- [20] Pandatron.cz, „Elektronický magazín,“ Pandatron.cz, 11 Červen 2009. [Online]. Available: http://pandatron.cz/?819&velke_srovnani_digitalnich_osciloskopu. [Přístup získán 11 Květen 2016].

- [21] A. Technologies, Agilent InfiniiVision 5000/6000/7000 Series Oscilloscopes, User's guide, Colorado Springs, USA: Agilent Technologies, 2009.
- [22] „LTB Lasertechnik Berlin,“ [Online]. Available: http://www.ltb-berlin.de/fileadmin/ltb/style/gfx/pdf/products/mnl100_e.pdf. [Přístup získán 25 Duben 2016].
- [23] „InnoLas laser,“ [Online]. Available: <http://www.innolas-laser.com/index.php/de/wissenschaftliche-laser/blitzlampen/spitlight-standard-600.html>. [Přístup získán 25 Duben 2016].
- [24] PicoQuant, [Online]. Available: <https://www.picoquant.com/products/category/picosecond-pulsed-driver/pdl-800-b-picosecond-pulsed-diode-laser-driver#specification>. [Přístup získán 29 Duben 2016].
- [25] PicoQuant, „Picosecond Laser Diode Heads icosecond Laser Diode Heads for PDL 800-B/-D/808/828,“ [Online]. Available: http://www.picoquant.com/images/uploads/downloads/ldh_series.pdf. [Přístup získán 18 Květen 2016].
- [26] P. Benedikt, Time-resolved luminescence spectroscopy of scintillators excited by SXR pulses, Kladno, 2014.
- [27] Kania Patrik, Urban Štěpán, „Ústav analytické chemie, VŠCHT Praha,“ 21 Květen 2014. [Online]. Available: <http://old.vscht.cz/anl/lmsvr/Modulace%20a%20C5%A1um%20sign%C3%A1lu.pdf>. [Přístup získán 13 Květen 2016].
- [28] technology, Jobin Yvon, Horiba scientific, [Online]. Available: <http://www.horiba.com/scientific/products/optical-spectroscopy/spectrometers-monochromators/h-20/h-20-196/>. [Přístup získán 29 Duben 2016].
- [29] Ulmann Vojtěch, „Fyzika a nukleární medicína,“ [Online]. Available: <http://astronuklfyzika.cz/DetekceSpektrometrie.htm>. [Přístup získán 13 Květen 2016].
- [30] Studio, FMAS Fluorescence Measurement and Analysis, „DAS6 v6.1 Decay analysis software with reconvolution User Guide,“ [Online]. Available: www.jobinyvon.com. [Přístup získán 25 Duben 2016].

[31] „Digi-Key electronics,“ Digi-Key electronics, 13 Duben 2016. [Online]. Available: <http://www.digikey.com/product-detail/en/opto-diode-corp/AXUVHS11/958-1008-ND/3782856>. [Přístup získán 14 Duben 2016].

[32] „ThorLabs,“ Copyright 1999-2016 Thorlabs, Inc., [Online]. Available: <http://www.thorlabs.de/thorproduct.cfm?partnumber=DET10A/M>. [Přístup získán 14 Duben 2016].

Seznam obrázků

Obrázek 1 - Emisní spektrum ZnS dopovaný různými kovy; 1 – ZnS/Zn, 2 – ZnS/Cu, 3 – ZnS/Ag, 4 – ZnS/Au, 5 – ZnS/Mn při pokojové teplotě (25°C/295K), převzato z [3]	4
Obrázek 2 - Blokové schéma aparatury pro měření emisního spektra vzorku	5
Obrázek 3 - Princip scintilačního detektoru, převzato z [4]	5
Obrázek 4 - Princip fotoelektrického jevu, převzato z [6]	6
Obrázek 5 - Princip Comptonova jevu (rozptylu), převzato z [7]	7
Obrázek 6 - Průběh mechanismu scintilace, převzato z [4]	7
Obrázek 7 - Modulace excitačního záření a luminiscenční odezvy při metodě fázového posuvu, převzato z [3]	9
Obrázek 8 - Příklad možného výsledku experimentu měřeného metodou TCSPC, převzato z [3]	11
Obrázek 9 - Princip Czochralskiho metody pěstování krystalů, převzato z [11]	13
Obrázek 10 - Micropulling down metoda pěstování krystalů, a) pohled na celou aparaturu, b) schéma jednotlivých částí aparatury, c) snímání procesu růstu CCD kamerou, převzato z [13]	14
Obrázek 11 - Scintilační krystal Ce:GGAG vypěstovaný Czochralskiho metodou, převzato z [10]	15
Obrázek 12 - Princip fotonásobiče, převzato z [19]	17
Obrázek 13 - Digitální osciloskop Agilent Technologies DSO7104	18
Obrázek 14 - Blokové schéma experimentu pro měření fotoluminiscence způsobené přímou excitací luminiscenčních center UV dusíkovým laserem (1 – UV dusíkový laser, 2 – laserové světlo vedené optickým vláknem, 3 – fokusační čočka, 4 – umístěný vzorek scintilátoru, 5 – soustava dvou čoček na sběr a fokusaci luminiscence, 6 – luminiscence vedená optickým vláknem, 7 – držák na umístění optického a tlumícího filtru, 8 – fotonásobič, 9 – digitální osciloskop)	20
Obrázek 15 - Blokové schéma experimentu pro měření scintilace způsobené excitací vzorku SXR zářením (1 – IR Ng:YAG laser, 2 – vakuová komora, 3 – čočky fokusující laserový paprsek na obláček plynu argonu, 4 – terčík plynu argonu, 5 – titanová folie 400 nm, 6 – scroll pumpa, 7 – membránová pumpa, 8 – turbo-molekulární pumpa, 9 – zásobní láhev plynu argonu, 10 – kondenzor na fokusaci SXR záření, 11 – vzorek scintilátoru, 12 – držák na umístění optického a tlumícího filtru, 13 – fotonásobič, 14 – digitální osciloskop)	20
Obrázek 16 - Uspořádání experimentu pro měření scintilace způsobené excitací vzorku SXR zářením (1 - IR Nd:YAG laser, 2 - vakuová komora, 3 - optický filtr, 4 - fotonásobič, 5 - digitální osciloskop, 6 - ovládání dvou turbomolekulárních pumt, 7 - membránová pumpa)	21
Obrázek 17 - Držák vzorku GGAG uchycený na magnetickém stojanu	22
Obrázek 18 - Držák vzorku práškového ZnO	22

Obrázek 19 - Soustava čoček se vzorkem scintilačního krystalu pro přímou excitaci (1 – optické vlákno nesoucí laserový paprsek pro excitaci vzorku, 2 – čočka fokusující paprsek na vzorek, 3 – magnetický stojan s držákem vzorku, 4 – soustava dvou čoček fokusujících luminiscenci ze vzorku na optické vlákno, 5 – optické vlákno nesoucí luminiscenční záření do detekční části aparatury)	22
Obrázek 20 - Umístění vzorku roztoku destilované vody a mléka (1 - optické vlákno nesoucí laserový paprsek, 2 – čočka fokusující paprsek na vzorek, 3 – vzorek v květu, 4 – Si dioda, 5 - optické vlákno nesoucí luminiscenční záření do detekční části aparatury).....	23
Obrázek 21 - UV dusíkový laser MNL 100 firmy Laser Technik Berlin použitý jako zdroj pro přímou excitaci luminiscenčních center.....	24
Obrázek 22 – Nd:YAG laser Spitlight 600 firmy Innolas z Velké Británie (vlnová délka 1064 nm, energie jednoho pulzu >800 mJ, střední délka pulzu (FWHM) 6-7 ns, nastavitelná frekvence pulzů od 1 do 100 Hz).....	25
Obrázek 23 – Modrý pikosekundový laser PicoQuant, 1 – driver k laseru, 2 – odnímatelná hlava samotného modrého laseru, 3 – výstup laserového paprsku optickým vláknem	25
Obrázek 24 – Ovládací panel softwaru LabView (1 – trigger level, 2 – kanál signálu luminiscence, 3 – kanál triggerovacího signálu, 4 – výběr osciloskopu, 5 – cílová složka pro uložení měření, 6 – počet měření pro jednotlivá rozlišení, 7 – počet rozlišení, 8 – čas prodlevy, po kterém se signál zastaví, 9 – tabulka nastavení rozlišení, 10 – tabulka naměřených hodnot, 11 – graf měřeného signálu, 12 – graf triggerovacího signálu, 13 – aktuální výsledky měření)	27
Obrázek 25 - Proces skládání různě rozlišených úseků dohasínání luminiscence, převzato z [1].....	28

Seznam grafů

Graf 1 – Naměřené průběhy signálu z IR diody při rozlišení 1 a 5.....	33
Graf 2 - Naměřené průběhy signálu z IR diody při rozlišení 2 a 6	34
Graf 3 – Naměřené průběhy signálu z pinhole kamery při rozlišení 1 a 5	35
Graf 4 - Naměřené průběhy signálu z pinhole kamery při rozlišení 2 a 6	35
Graf 5 – Naměřené průběhy signálu z XUV diody při rozlišení 1 a 5.....	36
Graf 6 - Naměřené průběhy signálu z XUV diody při rozlišení 2 a 6.....	36
Graf 7 - Průběhy deseti zaznamenaných signálů UV dusíkového laseru na Si diodě	38
Graf 8 - Průběhy deseti zaznamenaných signálů modrého pikosekundového laseru na Si diodě	40
Graf 9 - Dvacet průběhů modrého pikosekundového laserového pulzu rozptýleného roztokem mléka ve vodě	42
Graf 10 - Odezva detekční části aparatury na náhodné fotony	44
Graf 11 - Křivky složených IRF funkcí pro přímou excitaci a SXR-excitaci luminiscenčních center práškového scintilátoru ZnO	45
Graf 12 - Porovnání odezvy detekční části aparatury na excitaci modrým pikosekundovým laserem se scintilační odezvou ZnO vyvolanou SXR zářením	46
Graf 13 – Scintilátor GGAG_79, jednotlivé křivky odpovídající naměřeným hodnotám za každého rozlišení vzorku GGAG_79	49
Graf 14 - Scintilátor GGAG_79, výsledná poskládaná křivka dohasínání vzorku GGAG_79 excitovaného zdrojem SXR záření.....	50
Graf 15 - Scintilátor GGAG_79, data složené křivky luminiscenčního dohasínání (černé body) proložené křivkou výsledku fitu a s vynesenu funkcí IRF změřenou pro scintilátor ZnO	51
Graf 16 - Scintilátor GGAG_79, vážená rezidua křivky fitu	51
Graf 17 - Pět složených křivek odpovídajících všem vzorkům GGAG excitovaných SXR zářením	52
Graf 18 - Pět křivek odpovídajících fitu křivky dohasínání každého vzorku GGAG excitovaného SXR zářením.....	52
Graf 19 - Složené křivky luminiscenčního (scintilačního) dohasínání vzorku GGAG_81	54
Graf 20 - Křivky fitu odpovídající luminiscenční a scintilační odezvě vzorku GGAG_81 na příslušnou excitaci.....	55
Graf 21 – Porovnání detekce modrého pikosekundového laseru detekční částí aparatury na měření scintilace a detektorem EG&G-SPCM-AQR-13-FC.....	58
Graf 22 - Křivky luminiscence a scintilace práškového scintilátoru ZnO a křivka odezvy detekční části aparatury na rozptyl modrého pikosekundového laseru roztokem mléka ve vodě	59

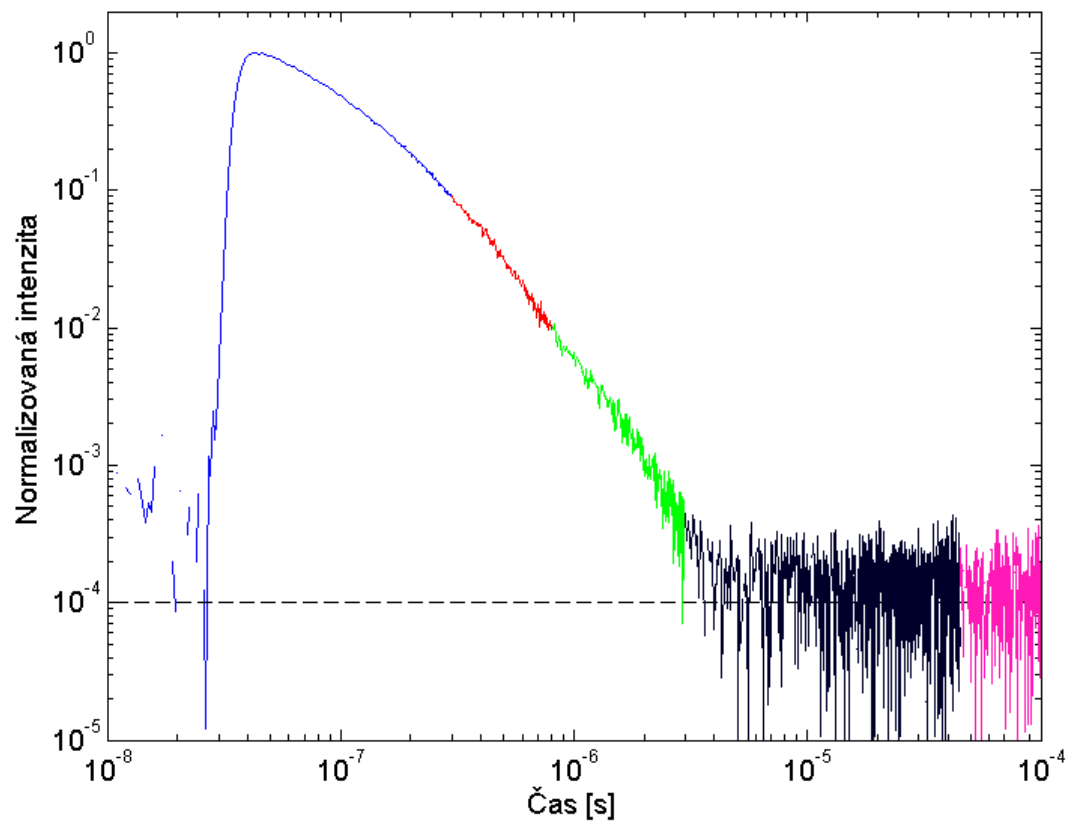
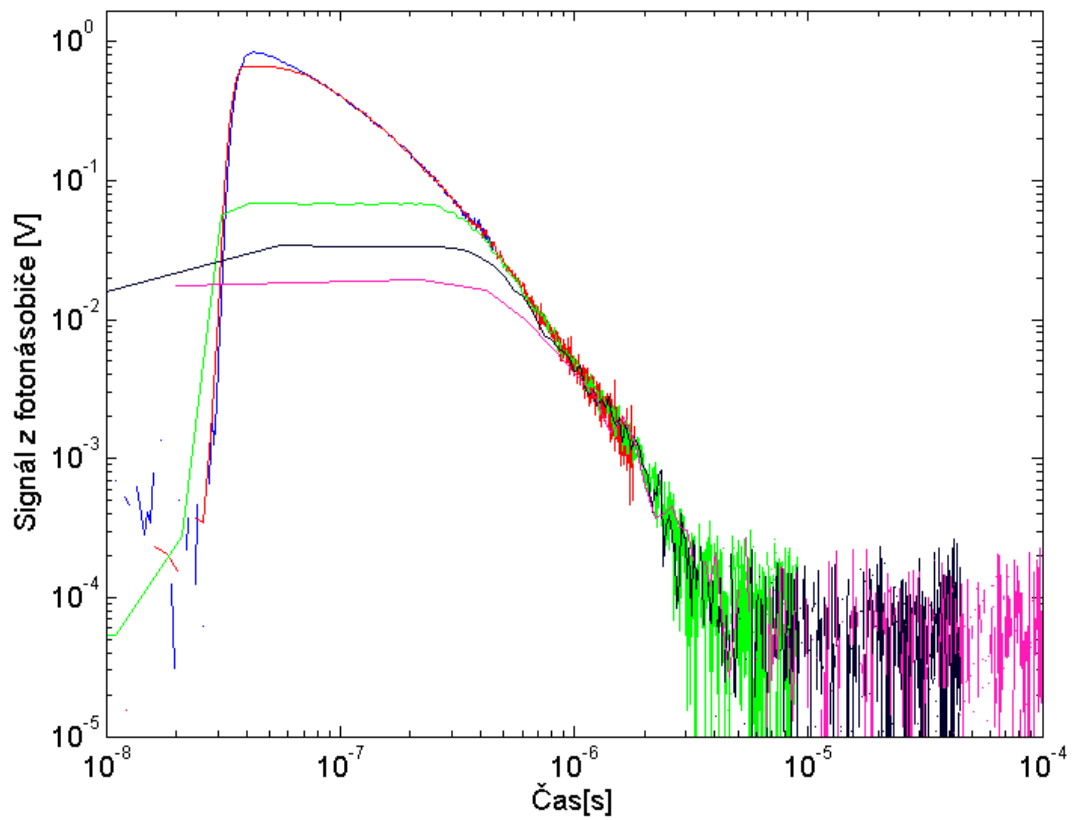
Seznam tabulek

Tabulka 1 - Příklady změny konkrétních parametrů Czochralskiho metody pěstování krystalů, převzato z [11].....	13
Tabulka 2 - Parametry měření nastavené pro volbu vhodného triggerovacího signálu	33
Tabulka 3 - Specifikace SXR diody použité jako trigger při časově rozlišené luminiscenci scintilátorů [28]	37
Tabulka 4 - Specifikace Si diody [29]	37
Tabulka 5 - Naměřené a vypočtené hodnoty signálu UV dusíkového laseru na Si diodě	39
Tabulka 6 - Naměřené a vypočtené hodnoty signálu modrého pikosekundového laseru na Si diodě .	40
Tabulka 7 - Naměřené a vypočtené hodnoty amplitudy a směrodatné odchylky laserového paprsku rozptýleného roztokem mléka a destilované vody	43
Tabulka 8 - Rozlišení použitá pro měření časově rozlišené fotoluminiscence a scintilace práškového scintilátoru ZnO vyvolané odpovídajícím excitačním působením.....	45
Tabulka 9 - Specifikace pěti vzorků scintilátorů Ce:GGAG	47
Tabulka 10 - Časová rozlišení nastavená pro měření scintilace všech vzorků Ce:GGAG a fotoluminiscence vzorku GGAG_81.....	48
Tabulka 11 - Parametry fitu pro měření scintilační odezvy vzorků GGAG na excitaci SXR zářením	53
Tabulka 12 - Parametry fitu pro měření luminiscenční a scintilační odezvy na příslušnou excitaci vzorku GGAG_81	55
Tabulka 13 - Hodnoty FWHM jednotlivých měření detekční částí aparatury	59
Tabulka 9 - Specifikace pěti vzorků scintilátorů Ce:GGAG	60
Tabulka 10 - Časová rozlišení nastavená pro měření scintilace všech vzorků Ce:GGAG a fotoluminiscence vzorku GGAG_81.....	61

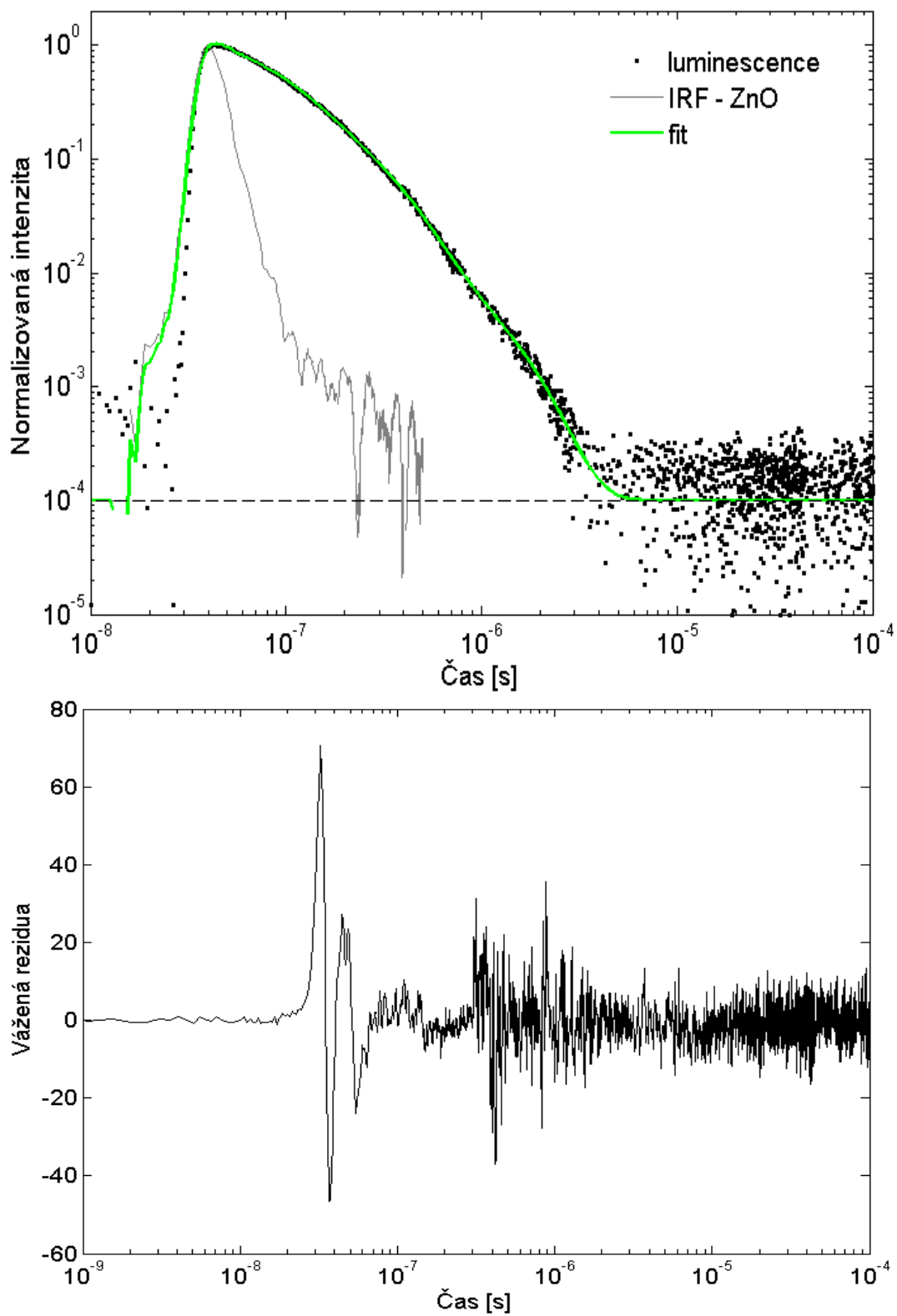
Seznam příloh

Příloha 1 – Graf jednotlivých křivek odpovídajících hodnotám naměřeným za každého rozlišení a Graf výsledné poskládané křivky dohasínání vzorku GGAG_80 excitovaného zdrojem SXR záření	74
Příloha 2 - Graf složené křivky luminiscenčního dohasínání (černé body) proložené křivkou výsledku fitu a s vynesenu funkcí IRF změřenou pro scintilátor ZnO, a Graf příslušných vážených reziduí vzorku scintilátoru GGAG_80 excitovaného zdrojem SXR záření	75
Příloha 3 - Graf jednotlivých křivek odpovídajících hodnotám naměřeným za každého rozlišení a Graf výsledné poskládané křivky dohasínání vzorku GGAG_8 excitovaného zdrojem SXR záření	76
Příloha 4 - Graf složené křivky luminiscenčního dohasínání (černé body) proložené křivkou výsledku fitu a s vynesenu funkcí IRF změřenou pro scintilátor ZnO, a Graf příslušných vážených reziduí vzorku scintilátoru GGAG_81 excitovaného zdrojem SXR záření	77
Příloha 5 - Graf jednotlivých křivek odpovídajících hodnotám naměřeným za každého rozlišení a Graf výsledné poskládané křivky dohasínání vzorku GGAG_82 excitovaného zdrojem SXR záření	78
Příloha 6 - Graf složené křivky luminiscenčního dohasínání (černé body) proložené křivkou výsledku fitu a s vynesenu funkcí IRF změřenou pro scintilátor ZnO, a Graf příslušných vážených reziduí vzorku scintilátoru GGAG_82 excitovaného zdrojem SXR záření	79
Příloha 7 - Graf jednotlivých křivek odpovídajících hodnotám naměřeným za každého rozlišení a Graf výsledné poskládané křivky dohasínání vzorku GGAG_83 excitovaného zdrojem SXR záření	80
Příloha 8 - Graf složené křivky luminiscenčního dohasínání (černé body) proložené křivkou výsledku fitu a s vynesenu funkcí IRF změřenou pro scintilátor ZnO, a Graf příslušných vážených reziduí vzorku scintilátoru GGAG_83 excitovaného zdrojem SXR záření	81
Příloha 9 - Graf jednotlivých křivek odpovídajících hodnotám naměřeným za každého rozlišení a Graf výsledné poskládané křivky dohasínání vzorku GGAG_81 excitovaného přímo UV dusíkovým laserem	82
Příloha 10 - Graf složené křivky luminiscenčního dohasínání (černé body) proložené křivkou výsledku fitu a s vynesenu funkcí IRF změřenou pro scintilátor ZnO, a Graf příslušných vážených reziduí vzorku scintilátoru GGAG_81 excitovaného přímo UV dusíkovým laserem	83

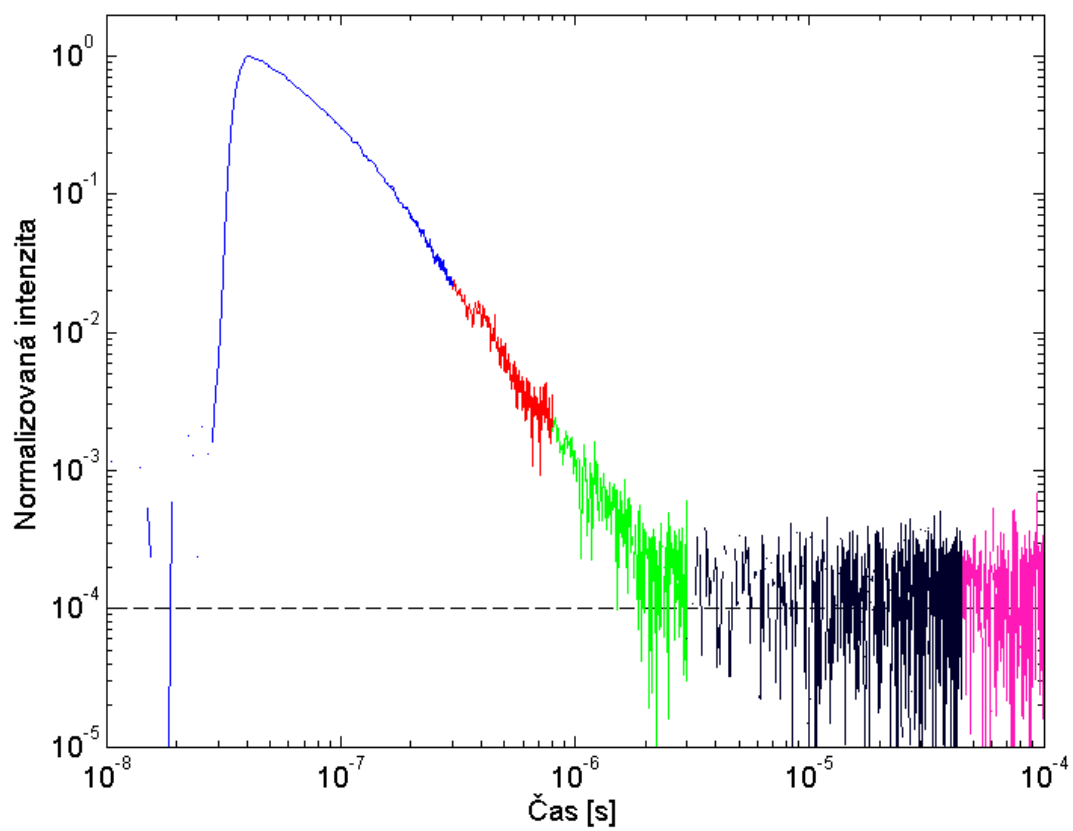
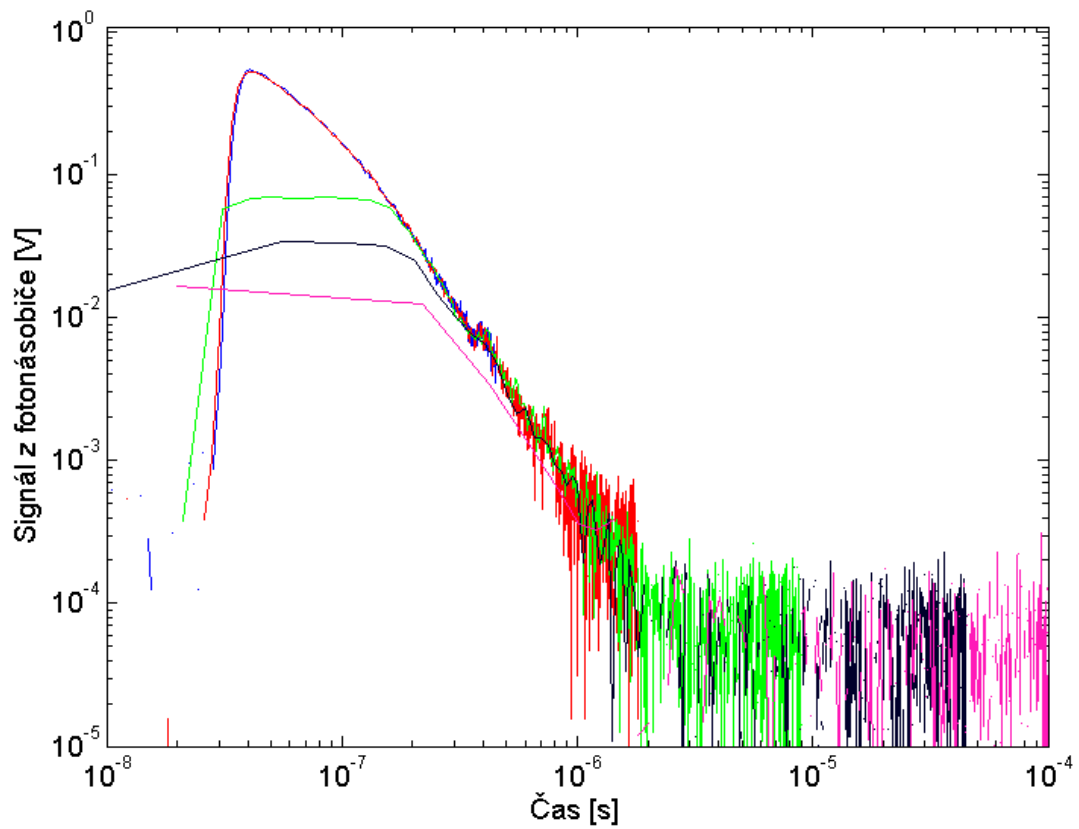
Příloha 1 – Graf jednotlivých křivek odpovídajících hodnotám naměřeným za každého rozlišení a Graf výsledné poskládané křivky dohasínání vzorku GGAG_80 excitovaného zdrojem SXR záření



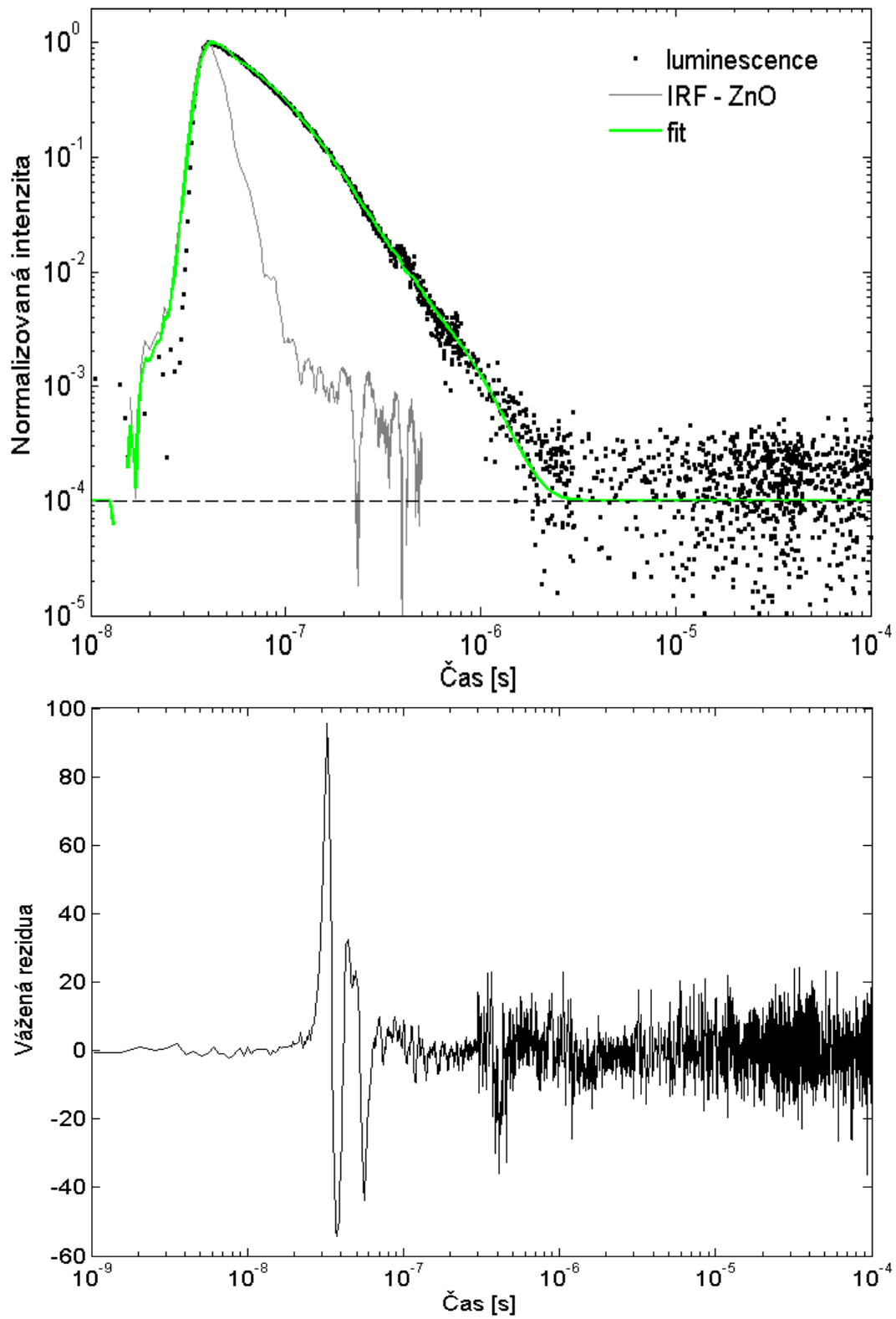
Příloha 2 - Graf složené křivky luminescenčního dohasínání (černé body) proložené křivkou výsledku fitu a s vynesou funkcí IRF změřenou pro scintilátor ZnO, a Graf příslušných vážených reziduí vzorku scintilátoru GGAG_80 excitovaného zdrojem SXR záření



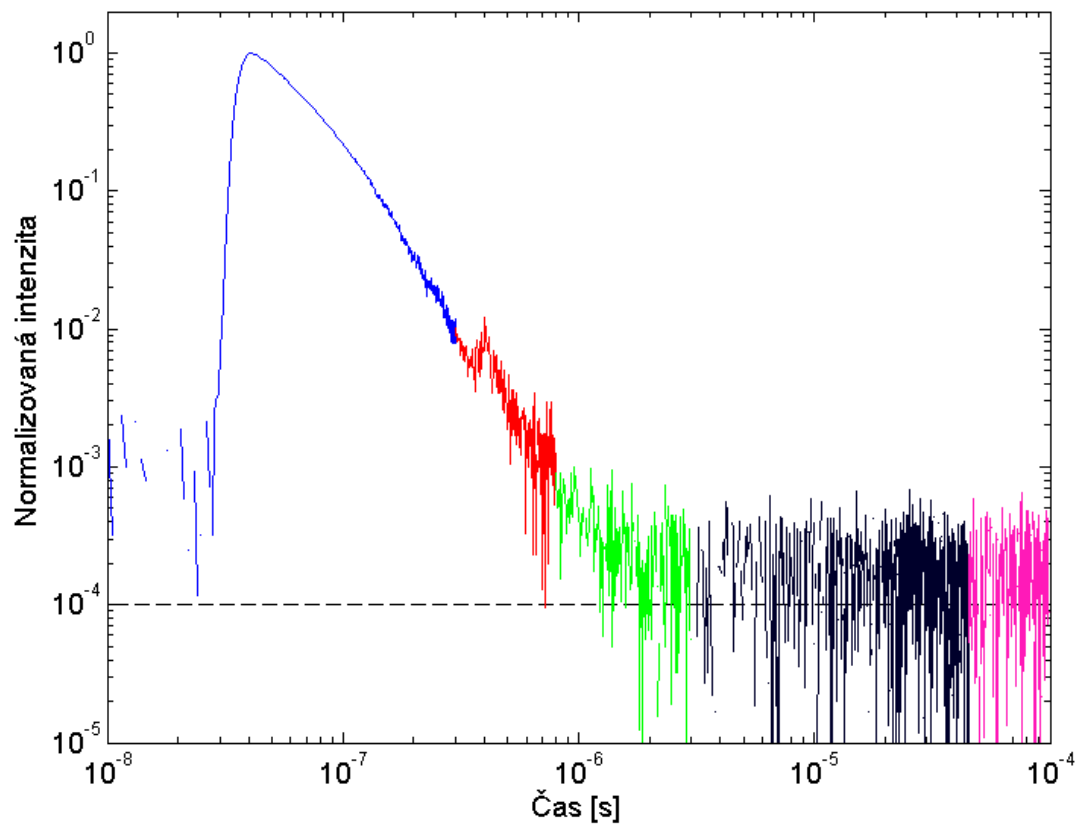
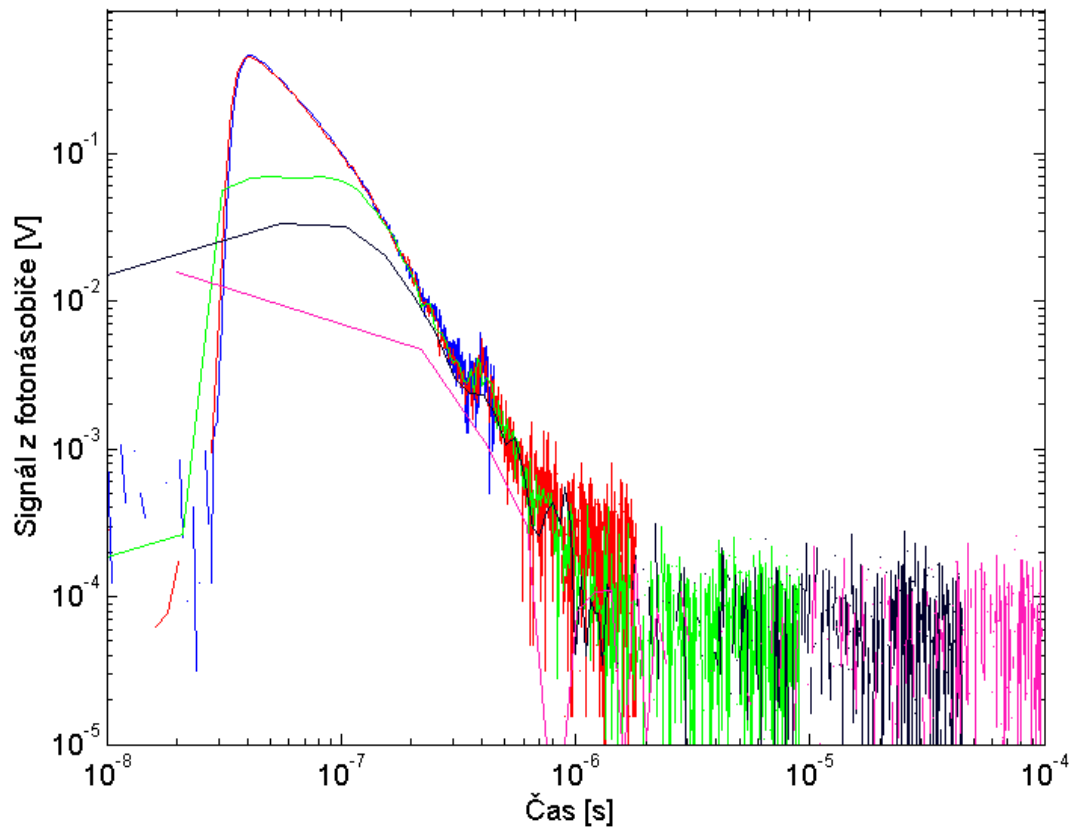
Příloha 3 - Graf jednotlivých křivek odpovídajících hodnotám naměřeným za každého rozlišení a Graf výsledné poskládané křivky dohasínání vzorku GGAG_8 excitovaného zdrojem SXR záření



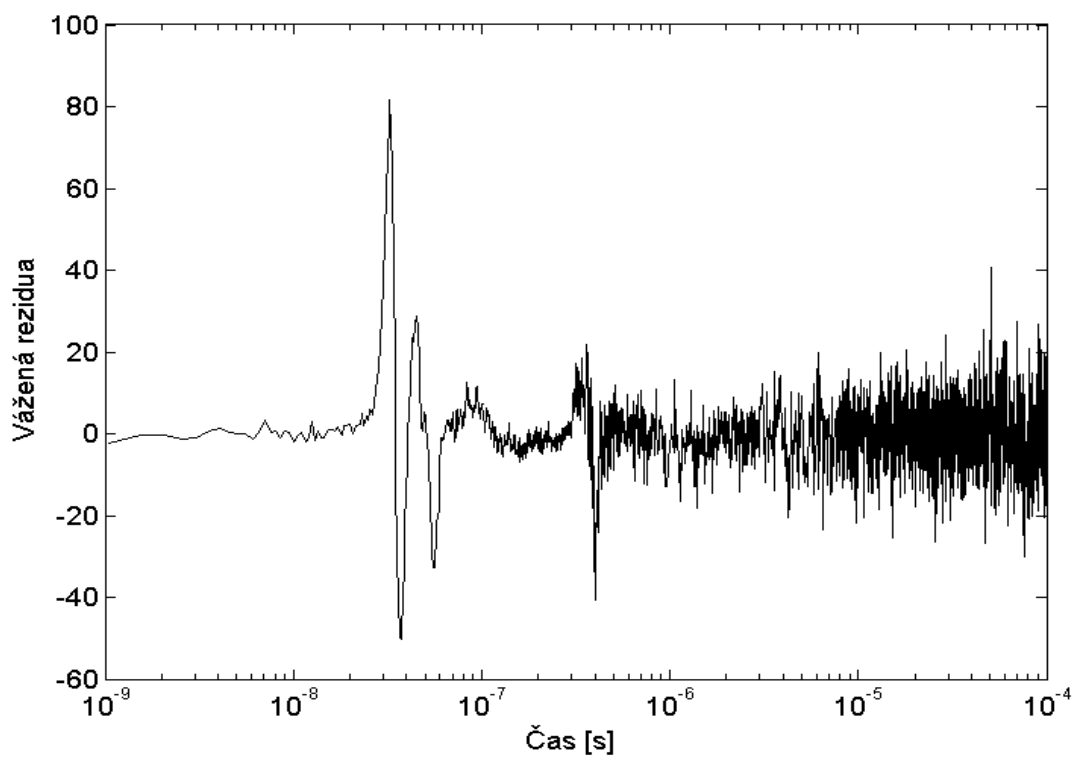
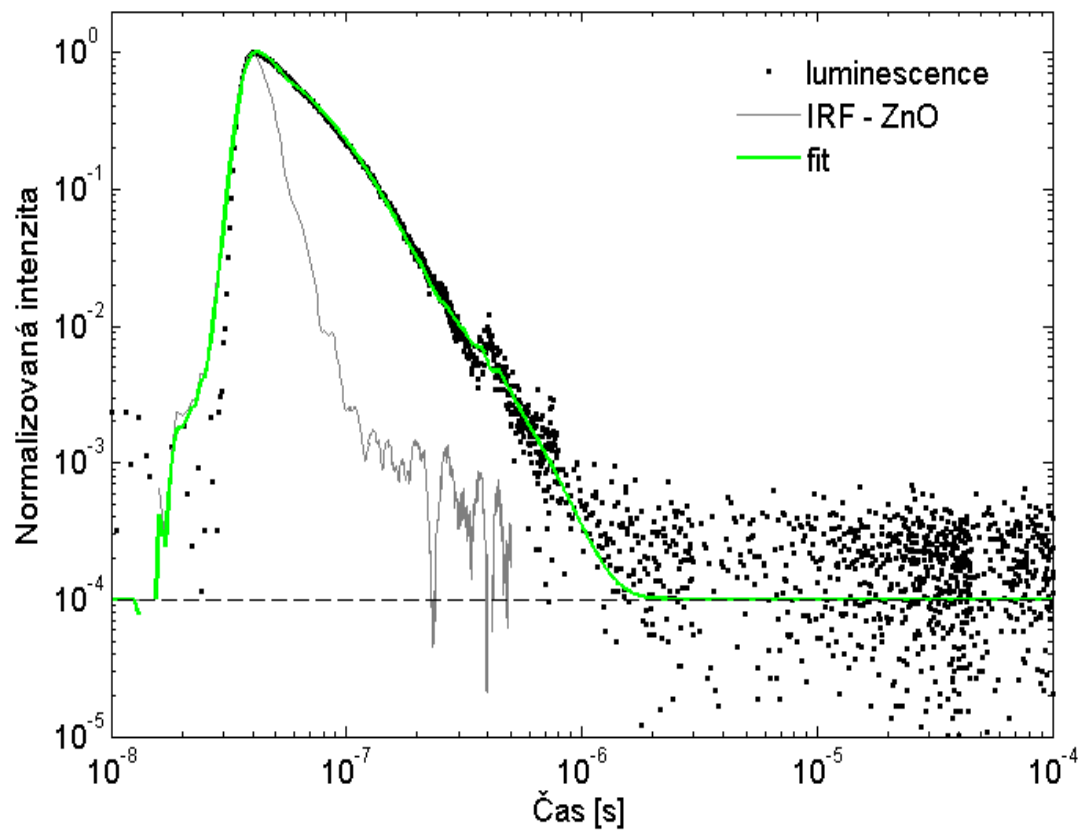
Příloha 4 - Graf složené křivky luminiscenčního dohasínání (černé body) proložené křivkou výsledku fitu a s vynesenu funkcí IRF změřenou pro scintilátor ZnO, a Graf příslušných vážených reziduí vzorku scintilátoru GGAG_81 excitovaného zdrojem SXR záření



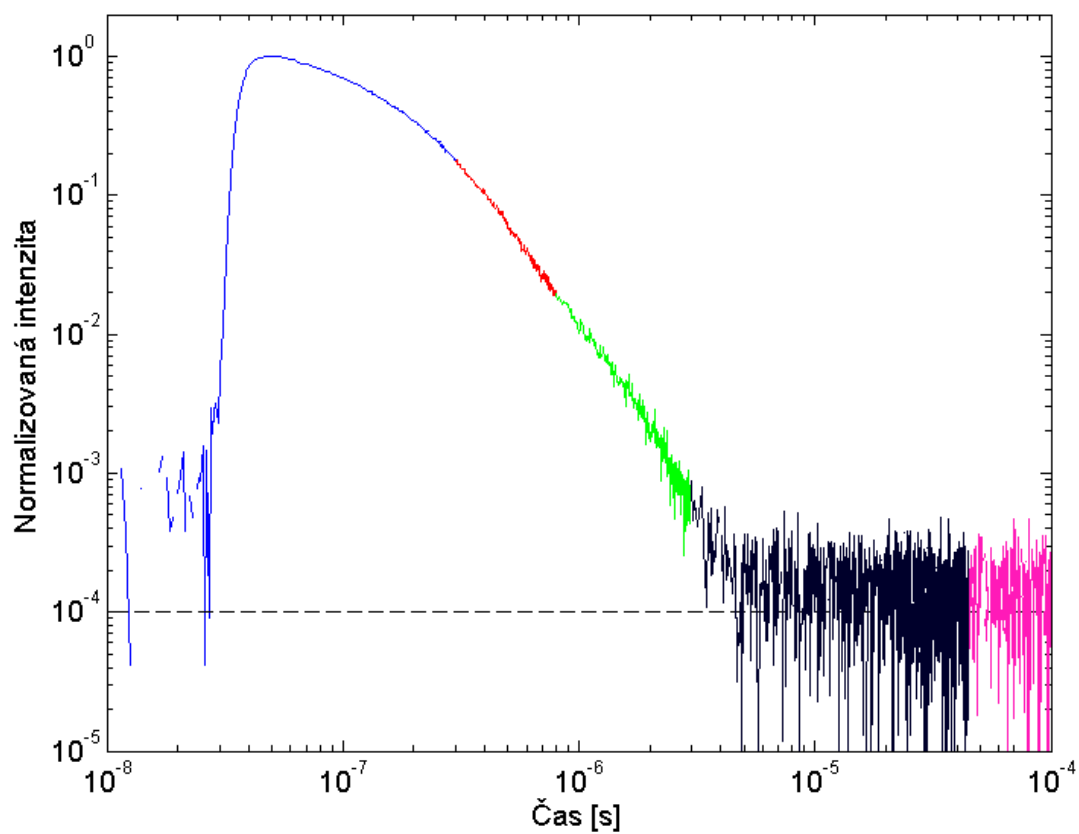
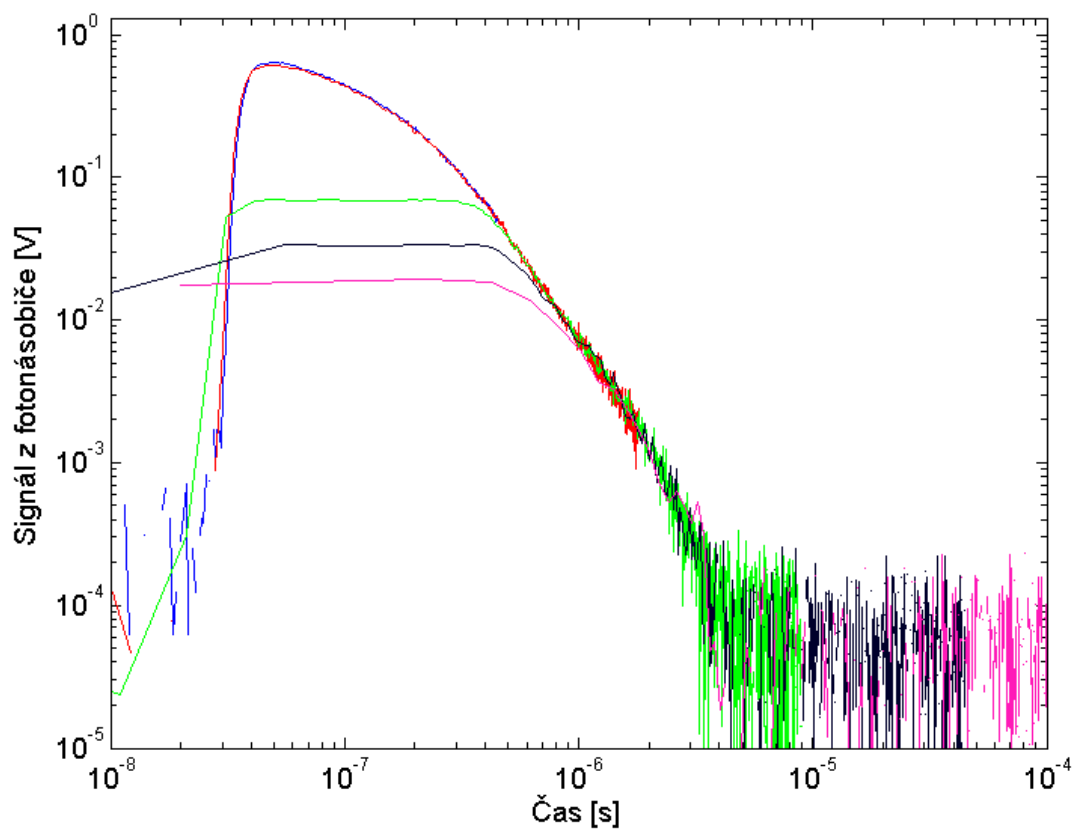
Příloha 5 - Graf jednotlivých křivek odpovídajících hodnotám naměřeným za každého rozlišení a Graf výsledné poskládané křivky dohasínání vzorku GGAG_82 excitovaného zdrojem SXR záření



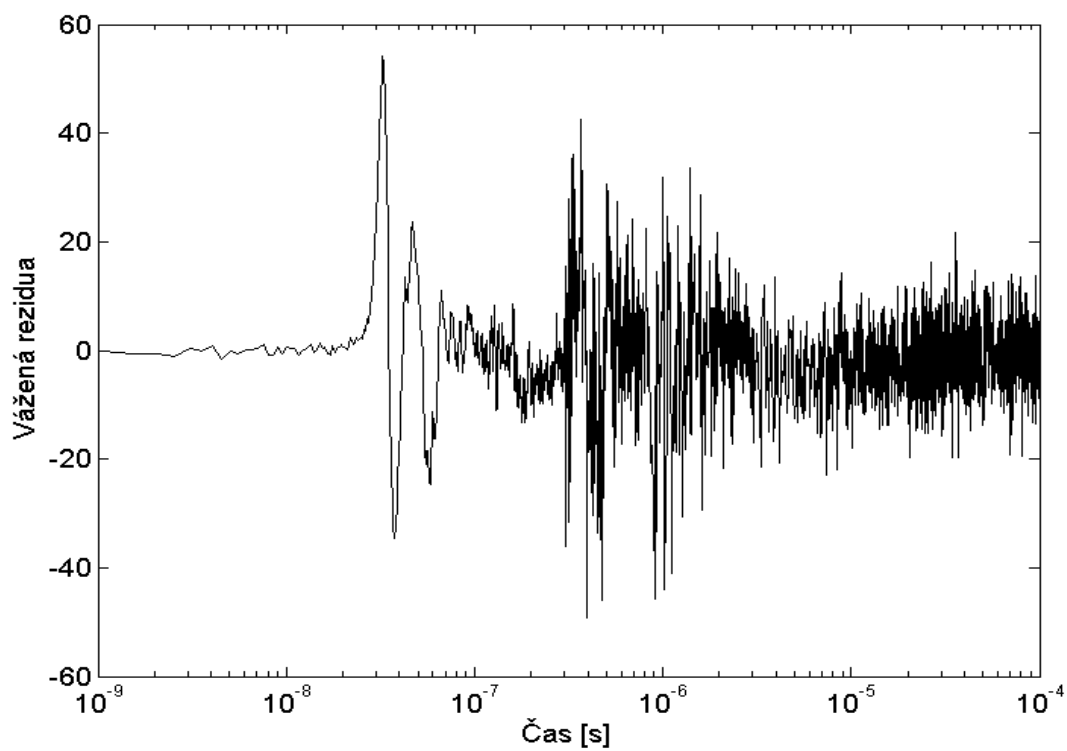
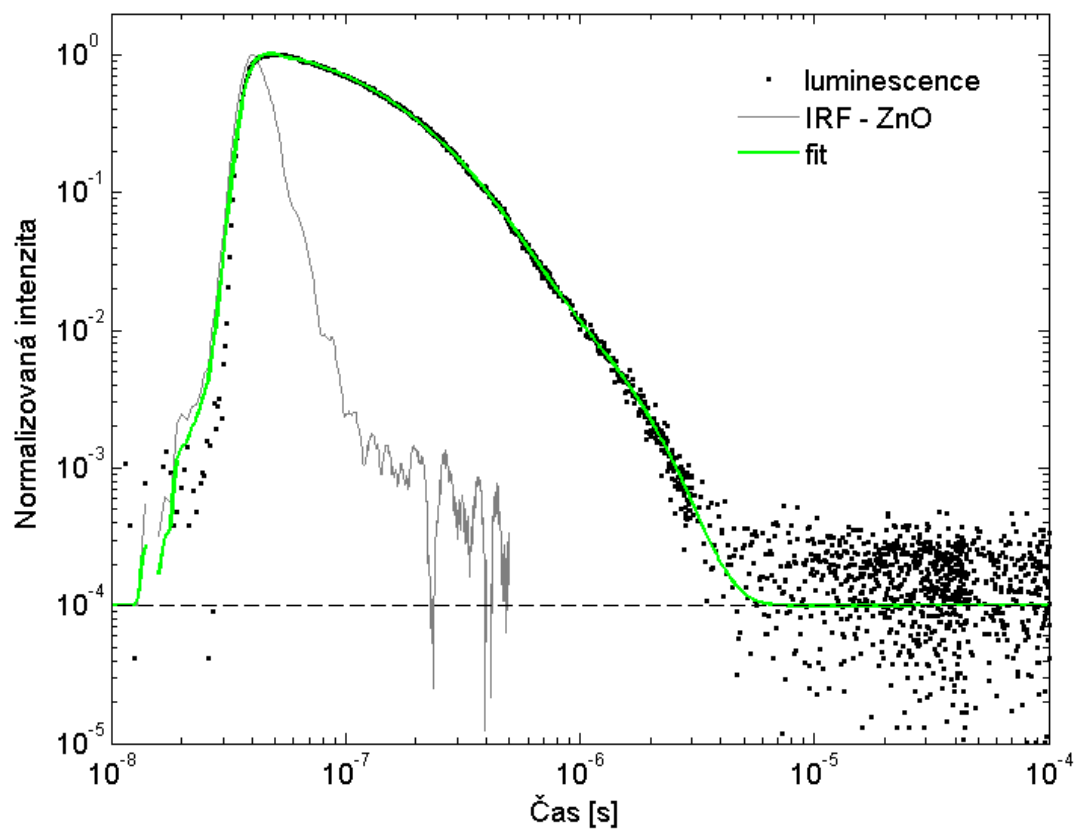
Příloha 6 - Graf složené křivky luminescenčního dohasínání (černé body) proložené křivkou výsledku fitu a s vynesenu funkcí IRF změřenu pro scintilátor ZnO, a Graf příslušných vážených reziduí vzorku scintilátoru GGAG_82 excitovaného zdrojem SXR záření



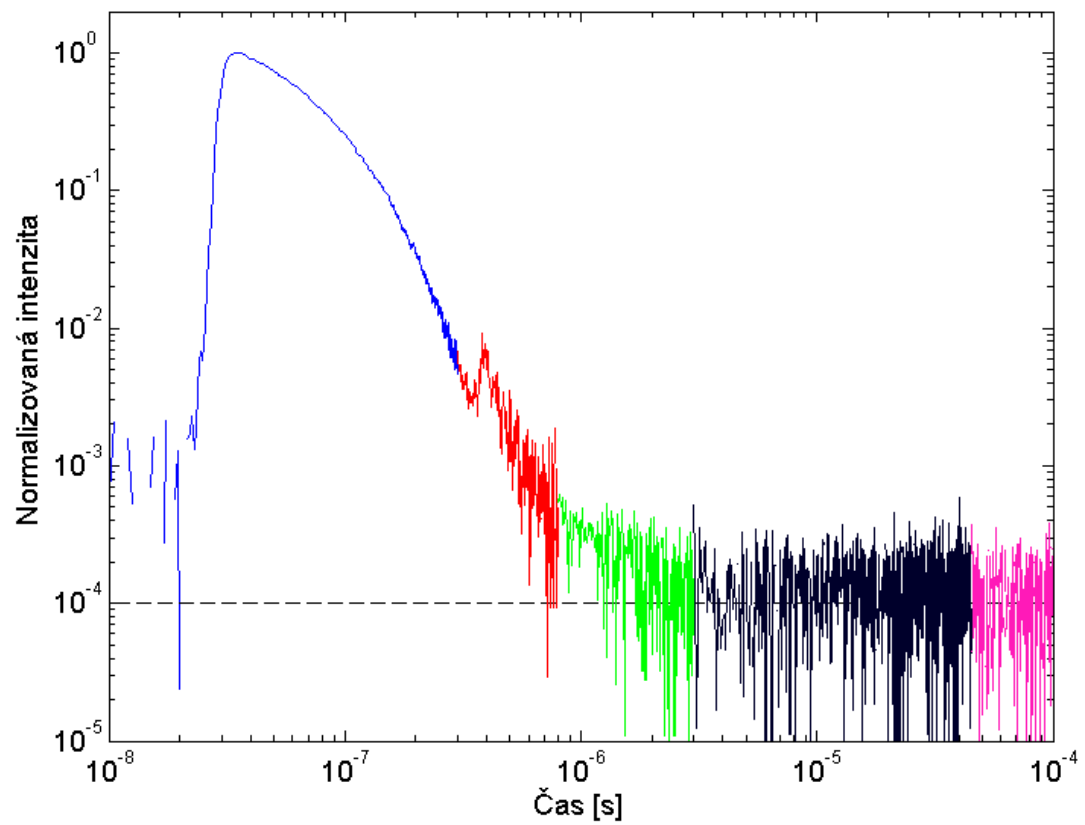
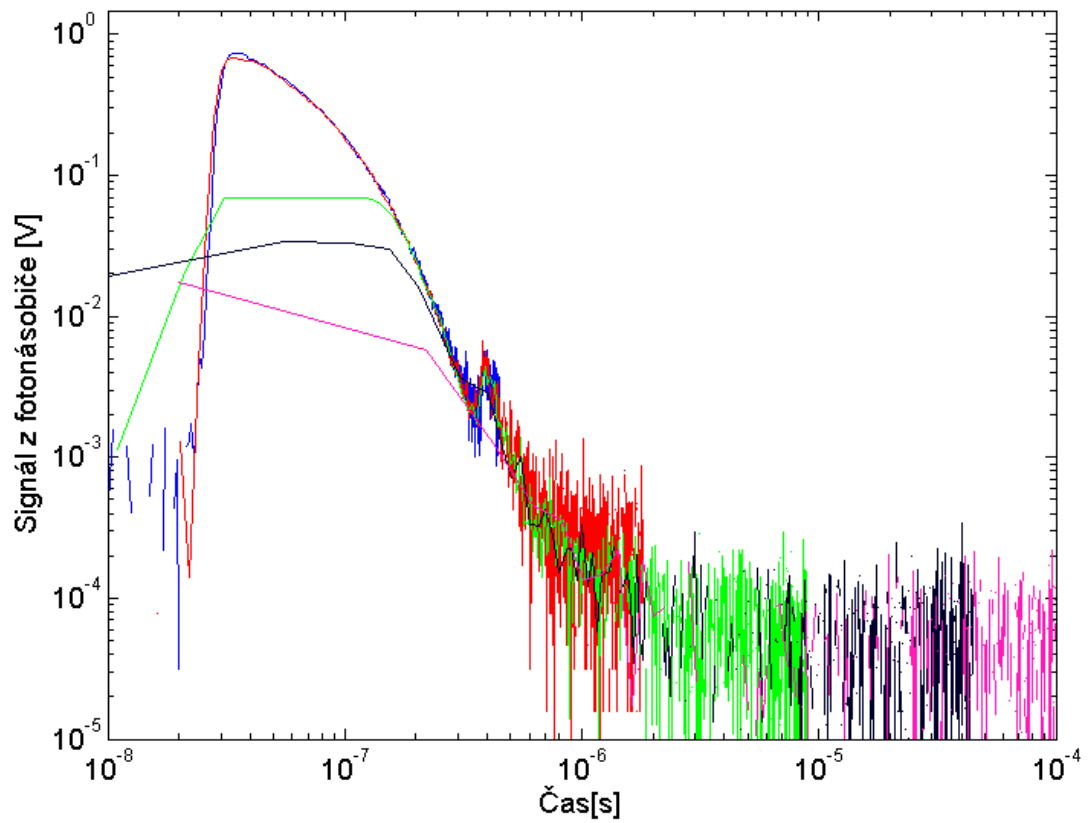
Příloha 7 - Graf jednotlivých křivek odpovídajících hodnotám naměřeným za každého rozlišení a Graf výsledné poskládané křivky dohasínání vzorku GGAG_83 excitovaného zdrojem SXR záření



Příloha 8 - Graf složené křivky luminiscenčního dohasínání (černé body) proložené křivkou výsledku fitu a s vynesenu funkcí IRF změřenou pro scintilátor ZnO, a Graf příslušných vážených reziduí vzorku scintilátoru GGAG_83 excitovaného zdrojem SXR záření



Příloha 9 - Graf jednotlivých křivek odpovídajících hodnotám naměřeným za každého rozlišení a Graf výsledné poskládané křivky dohasínání vzorku GGAG_81 excitovaného přímo UV dusíkovým laserem



Příloha 10 - Graf složené křivky luminiscenčního dohasínání (černé body) proložené křivkou výsledku fitu a s vynesenu funkcí IRF změřenu pro scintilátor ZnO, a Graf příslušných vážených reziduí vzorku scintilátoru GGAG_81 excitovaného přímo UV dusíkovým laserem

