

Автореферат
на дисертация за присъждане на ОНС „Доктор“
на тема:

Разработване на Compton-TDCR система за
приложение в радионуклидната метрология

Владислав Тодоров Тодоров

Под ръководството на
доц. д-р Красимир Митев

Физически факултет
Катедра Атомна физика
София, България
Юли, 2026

Съдържание	ii
1 Въведение	1
2 Течно-сцинтилационно броене за стандартизация на радионуклиди	3
3 Изследване на пространствената хомогенност на отклика на фотокатода на ФЕУ	11
3.1 Автоматична система за изследване на отклика на фотокатода	11
3.2 Резултати от автоматичното сканиране	12
3.3 Нагряване на ФЕУ и възможно му влияние върху стабилността на ефективността на детектиране	15
3.4 Влияние на нехомогенността на фотокатода върху ефективността на детектиране при TDCR	16
4 Оптични ефекти и тяхното влияние върху неопределеността на TDCR измерванията	17
4.1 Експериментално изследване на влиянието на сцинтилационното шишенце върху ефективността на детектиране	18
4.2 Експериментално измерване на нехомогенността на фотокатодите на ФЕУ	19
4.3 Влияние на нехомогенността на отклика на ФЕУ върху TDCR измерванията	20
4.4 Влияние на нехомогенността на отклика на фотокатода върху бюджета на неопределеността при TDCR измервания	21
5 Разработване на Compton-TDCR спектрометър	22
5.1 Конструкция на Compton-TDCR системата	22
5.1.1 Сглобяване на Compton-TDCR системата	23
5.1.2 Схема за регистриране на Комптън съвпадения	24
5.2 Монте Карло симулация на спектъра на Комптъново разсеяните γ -лъчи	26
5.3 Комптън-TDCR експерименти за оценка на нелинейността на течни сцинтилатори	27
5.3.1 Резултати от Комптън-TDCR измерванията	28
6 Сравнение между TDCR системите в СУ	33
6.1 ^3H Wallac източник	33
6.2 ^{14}C Wallac източник	34
6.3 ^{14}C в сцинтилатор Ultima Gold AB	35
6.4 ^{63}Ni в сцинтилатор Ultima Gold	35
6.5 ^{55}Fe в сцинтилатор Ultima Gold	36
7 Влияние на случайни съвпадения върху определянето на kB чрез вариране на ефективността със сиви филтри	38
7.1 Системи и измервания	38
7.2 Резултати	39

8	Изследване на избора на kV чрез МК симулирани TDCR list-mode файлове	42
9	Заклучение	46
	List of Publications	49
	Библиография	51

Радионуклидната метрология осигурява основата за количествените приложения на йонизиращите лъчения, включително мониторинг на околната среда, нуклеарна медицина, радиационна защита и фундаментални изследвания. В основата на тази дисциплина стои определянето на активността с доказана проследимост и добре оценена неопределеност. За много радионуклиди – по-специално нискоенергийни β -излъчватели и радионуклиди, разпадащи се чрез електронен захват – течно-сцинтилационното броене остава първичен метод за измерване, тъй като осигурява почти 4 π геометрия на детектиране, висока ефективност и нисък праг на детектиране. Сред първичните методи, основани на течно-сцинтилационно броене, методът Triple-to-Double Coincidence Ratio (TDCR) е широко възприет за абсолютно определяне на активността, като се основава на статистически модел, свързващ измерените скорости на съвпадения с ефективността на детектиране. Методът TDCR обаче има някои ограничения, едно от които е донякъде нееднозначното определяне на параметъра на йонизационно гасене в модела на Бъркс, използван за описание на йонизационното гасене в органични сцинтилатори. Поради това основната цел на настоящата дисертация беше разработването на Комптън-TDCR система и експерименталното определяне на отклика на течни сцинтилатори, вместо да се разчита единствено на полуемпирични модели като този на Бъркс.

Структура на дисертацията

Дисертацията е разделена на 9 глави и едно приложение. Глава 1 въвежда темата на дисертационния труд и формулира неговите цели. Глава 2 разглежда физичните принципи на сцинтилацията, гасенето и броенето в съвпадение и въвежда формализма на TDCR. Главата завършва с описание на основната идея на Compton-coincidence метода и в частност на Комптън-TDCR спектрометрите. Оригиначните резултати от работата по дисертацията са представени в Глави 3-8 и Приложение А.

Глави 3 и 4 представят подготвителна работа, свързана с разработването на Комптън-TDCR системата. В Глава 3 е представена автоматизирана система за сканиране на отклика на фотокатодите на ФЕУ. Изследван беше отклика на четири модела фотоелектронни умножителя, което позволи избора на най-добрия за Комптън-TDCR системата. Изследванията, представени в Глава 4, са насочени към влиянието на оптичните ефекти и нехомогенния отклик на фотокатодите на ФЕУ върху неопределеността на ефективностите на детектиране при TDCR броене.

Глава 5 е посветена основно на разработването и охарактеризирането на TDCR и гама каналите на Комптън-TDCR системата, схемата за Compton-coincidence броене, Монте Карло симулацията на комптъново разсеяните фотони в гама канала и резултатите от измерения отклик на сцинтилатори. Формулата на Бъркс за йонизационно гасене беше апроксимирана към експерименталните точки с цел определяне на средния брой фотоелектрони на keV енергия, отдадена в сцинтилатора, както и на параметъра на йонизационно гасене kB . Оценката на параметъра kB е в много добро съгласие с независимата оценка, получена чрез метода на вариране на ефективността. Изследвано беше и влиянието на прозореца на съвпадение в TDCR върху стойността на kB .

Глава 6 представя сравнение на ефективност и изчислените активности с TDCR канала на Комптън-TDCR със стойностите получени с три утвърдени TDCR брояча, намиращи

се в Лабораторията по метрология на йонизиращите лъчения към Физическия факултет. Резултатът от сравнението показва, че TDCR каналът на новоразработената Комптън-TDCR система има най-висока ефективност сред всички броячи, а оценените активности са в добро съгласие в рамките на неопределеностите.

Глави 7 и 8 са посветени на оценката на влиянието на корекцията за случайни съвпадения върху определянето на параметъра kB при вариране на ефективността с помощта на сиви филтри. Подходът в Глава 7 се основава на сравнение на стойностите на kB , получени със и без прилагане на корекцията за случайни съвпадения към експериментални TDCR данни. Глава 8 е фокусирана върху Монте Карло подход за изследване на влиянието на случайните съвпадения върху скоростите на броене и активността чрез сравнение с референтните стойности, зададени в симулацията. Това изследване потвърди необходимостта от прилагане на корекция за случайни съвпадения, особено при дълги прозорци на съвпадение.

Последната Глава 9 представя обобщение на изследванията и резултатите, изложени в дисертацията, както и насоки за бъдещи приложения на Комптън-TDCR системите и тяхното значение за метода TDCR.

Приложение А показва по-практическо приложение на TDCR метода за първична стандартизация на проби с ^{222}Rn във вода. Стандартизираните проби впоследствие бяха използвани за калибриране на вторични детектори.

Течно-сцинтилационното броене (LSC) определя активността на радионуклид, разтворен в сцинтилационен коктейл, чрез регистриране на скоростта на сцинтилационните светлинни импулси. Обикновено пробата се приготвя в стъклено или полиетиленово шишенце с обем 20 mL и се измерва в специализиран течно-сцинтилационен (LS) брояч, в който един или повече фотоелектронни умножители (ФЕУ) наблюдават флакона в оптична камера. Скоростта на броене n на изследвания източник се определя чрез броене на импулсите в зададен интервал за измерване, а чистата скорост на броене n_0 представлява скоростта на броене на източника след корекция за фона. Ефективността на детектиране ε свързва тази скорост с активността A чрез зависимостта $A = n_0/\varepsilon$. При LSC радиоактивният материал се намира в чувствителния обем, което води до високи ефективности — често близки до 100% за α -излъчватели и високоенергийни β -излъчватели — докато за радионуклиди, разпадащи се чрез електронен захват (ЕС), и за нискоенергийни β -излъчватели ефективността ε може да бъде значително по-ниска. В тези случаи ε трябва да бъде определена с висока точност, за да се получат надеждни оценки на активността.

Често използван подход за оценка на ε е калибрирането на детектора с β източници, проследими до първични еталони. Активността на много калибровъчни източници обаче сама по себе си се определя чрез LSC, поради което ефективността не може да се приема предварително известна и този подход не представлява първичен метод. Това налага използването на модел на отклика на детектора. Въз основа на по-ранни изследвания [1, 2, 3], моделът на свободния параметър, разработен от Broda *et al.* [4] и Grau Malonda *et al.* [5], предоставя статистическо описание на излъчването и детектирането на сцинтилационната светлина и представлява основа на съвременните LSC методи в радионуклидната метрология. LSC е особено подходящо за чисти ЕС и чисти β -излъчватели, например ^3H , ^{14}C , ^{55}Fe и ^{63}Ni , чиито излъчвания представляват заредени частици с много малък пробег във веществото.

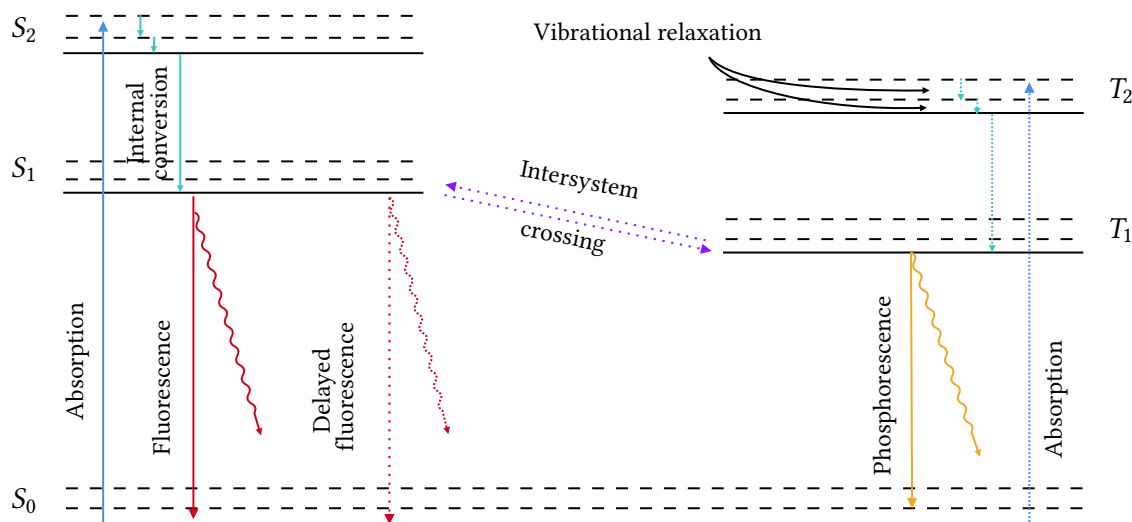
Течни сцинтилатори

Течно-сцинтилационното броене се основава на органични сцинтилатори, в които енергията на йонизиращото лъчение се преобразува в оптични фотони. Тези сцинтилиращи съединения обикновено са ароматни молекули с въглеродни атоми в sp^2 хибридизирано състояние: три копланарни орбитали образуват σ връзки, а останалите p орбитали формират делокализирани π -електронни системи. Възбуждането и радиационната релаксация на тези π състояния са физичната основа на излъчването на сцинтилационна светлина в органични среди [6].

Течните органични сцинтилатори рядко се използват като еднокомпонентни системи, тъй като самопоглъщането в обема на сцинтилатора и несъответствието между спектъра на излъчване на разтворителя и максимума на отклика на ФЕУ могат да намалят детектираните фотони. Поради това обикновено се добавя малка концентрация първичен флуорофор поради високия си флуоресцентен добив и способността си да приема енергията на възбуждане от основния органичен разтворител чрез процеси на молекулен пренос [7]. Въпреки че по-голямата част от енергията, отдадена от йонизиращото лъчение, се разсейва като топлина, малка част се пренася чрез тези молекулни процеси и се преобразува в сцинтилационна светлина. В много коктейли се добавя и вторичен флуорофор, който

поглъща излъчването на първичния флуорофор и го преизлъчва при по-дълги дължини на вълната, като по този начин подобрява оптичния пренос и спектралното съответствие с отклика на ФЕУ [6].

Преобразуването на кинетичната енергия, отдадена от йонизираща частица, в сцинтилационни фотони е сложен многоетапен процес [8, 9]. В органичните сцинтилатори отдаването на енергия води до електронни възбудени състояния и йонизации на π -електронната система, което води до заселване както на синглетни, така и на триплетни възбудени състояния [6]. Последващите пътища на релаксация, част от които водят до бързо или забавено сцинтилационно излъчване, са схематично показани на [Фигура 2.1](#).



Фигура 2.1: Схема на π -електронните енергетични нива в органични сцинтилатори. S_0 означава основното състояние, S_1 и S_2 са възбудени синглетни състояния, а T_1 и T_2 са възбудени триплетни състояния. Преходът от S_1 към T_1 е означен като интерсистемно преминаване. Плътните линии представят пътища, водещи до бърза флуоресценция, а прекъснатите линии означават пътища, свързани със забавена флуоресценция.

Снемането на възбудеността от най-ниското възбудено синглетно състояние, $S_1 \rightarrow S_0$, е бърз процес и води до бърза флуоресценция, която обикновено се нарича просто флуоресценция. В органичните сцинтилатори тази компонента има характерно време на затихване от порядъка на няколко наносекунди. В първо приближение интензитетът на бързата сцинтилация може да бъде описан с експоненциален закон на затихване [6].

Директният радиационен преход от най-ниското триплетно състояние, $T_1 \rightarrow S_0$, съответства на процеса фосфоресценция но този преход е спин-забранен. Триплетните състояния обаче могат да допринасят към сцинтилационната светлина чрез триплет-триплетна аниhilация. При този процес две молекули в състояние T_1 взаимодействат; едната се връща в основното състояние, а другата се възбужда до синглетно състояние, обикновено S_1 . Последващият радиационен преход $S_1 \rightarrow S_0$ води до забавена флуоресценция.

Тъй като триплетните състояния имат много по-дълги времена на живот от синглетните състояния, забавената флуоресценция протича в много по-дълъг период от бързата флуоресценция. Нейният времеви профил е по-сложен, тъй като зависи не само от радиационната релаксация, но и от дифузията и вероятността за взаимодействие на молекулите във възбудени триплетни състояния [8]. В резултат на това интензитетът на забавената компонента обикновено не затихва по експоненциален закон и може да се простира от няколко десетки наносекунди до микросекундният диапазон.

За даден участък от следата на йонизиращата частица отдадената енергия и локалната плътност на възбуденията се определят от линейната спираща способност. Тъй като

различните части на следата могат да допринасят по различен начин към сцинтилационния добив, общият светлинен добив се получава чрез интегриране на тези приноси по пътя на частицата в сцинтилатора [9]. Основен процес, влияещ върху това преобразуване, е йонизационното гасене, т.е. намаляването на сцинтилационния добив на единица отдадена енергия, причинено от високата локална плътност на йонизации и възбуждания по следата на заредената частица. Въпреки че величината му зависи от състава на сцинтилатора, качествено поведение е общо за органичните сцинтилатори: частици с по-високо линейно отдаване на енергия създават по-плътни следи на възбуждане, което увеличава вероятността за безизлъчвателна релаксация и бимолекулни процеси на гасене [6]. Следователно сцинтилационният отклик не е пропорционален на отдадената енергия, а зависи от спирачната способност dE/dx , която се изменя с вида на частицата и нейната кинетична енергия.

Едно от най-широко използваните описания на йонизационното гасене е полуемпиричната зависимост, предложена от Бъркс, известна като закон на Бъркс. Тя свързва интензитета на сцинтилационната светлина I , излъчена на единица дължина от пътя, със спирачната способност на заредената частица [6]:

$$\frac{dI}{dx} = \frac{\eta_0 \cdot \frac{dE}{dx}}{1 + kB \frac{dE}{dx}}, \quad (2.1)$$

където η_0 е абсолютната сцинтилационна ефективност, дефинирана като отношението между общата енергия на излъчените фотони и отдадената енергия, а kB е параметърът на йонизационно гасене. Трябва да се подчертае, че законът на Бъркс е въведен за описание на гасенето на бързата сцинтилационна компонента и не отчита забавената флуоресценция или пълната сцинтилационна кинетика.

Практическото приложение на формулата на Бъркс има няколко ограничения. Те включват надеждното определяне на параметъра kB , изчисляването на спирачните способности на електрони при много ниски енергии, особено под около 1 keV, както и необходимостта от точна информация за състава и плътността на сцинтилатора, използвани при изчисленията на спирачната способност. Тези ограничения са особено важни за TDCR оценката на ефективността, при която нискоенергетичният сцинтилационен отклик оказва пряко влияние върху оценената ефективност на детектиране.

Фотоелектронни умножители

Фотоелектронните умножители (ФЕУ) са вакуумни фотодетектори, които преобразуват слаби сигнали от сцинтилационна светлина в измерими електрически импулси. Те се използват широко в течносцинтилационното броене поради високото си усилване, ниския шум и високата чувствителност при малък брой излъчени фотони. Типичният ФЕУ се състои от входен прозорец, фотокатод, фокусиращи електроди, диодна умножителна система и анод.

Процесът на детектиране започва, когато сцинтилационен фотон достигне фотокатодал. Квантовата ефективност ε_q (QE) на фотокатода се дефинира като вероятността попадналия фотон да доведе до излъчване на фотоелектрон. След това излъченият фотоелектрон се насочва от фокусиращите електроди към първия диод, където след вторичната електронна емисия започва електронна лавина. Последователното умножаване на електроните върху диодите води до голям зарядов импулс, който накрая се събира от анода и формира изходния сигнал на ФЕУ.

Ефективността на детектиране на фотони (PDE) на ФЕУ обикновено се изразява като произведение от квантовата ефективност и ефективността на събиране (CE). CE описва

вероятността фотоелектрон да бъде транспортиран до първия динод. Пространствената нехомогенност на отклика на ФЕУ възниква, когато QE, CE или и двете величини се изменят по повърхността на фотокатода.

Такава пространствена нехомогенност е оценена като важен фактор в сцинтилационната спектрометрия още в ранните изследвания на Schardt [10], а по-късно и на Godlove и Wadey [11]. Въпреки това тя често не се отчита изрично при избора на ФЕУ за TDCR броене или за сцинтилационна спектрометрия. Този избор допълнително се усложнява от факта, че откликът на фотокатода може да се различава не само между различни модели ФЕУ, но и между отделни ФЕУ от един и същ тип. Следователно характеризирането на пространствената хомогенност на отклика е важно, когато ФЕУ се използват в прецизни системи за броене в съвпадение и спектрометри.

Течно-сцинтилационни спектрометри и броячи

Течно-сцинтилационните спектрометри и броячи се състоят от един или повече ФЕУ, наблюдаващи шишенце, съдържащо сцинтилационната проба, разположено в светлонепроницаема камера. Обикновено вътрешната страна на камерата е покрита с отразяващ материал, за да се подобри събирането на фотони върху входните прозорци на ФЕУ.

При LS броене, и особено при първични измервания на активност, ФЕУ-тата обикновено работят при голямо усилване, за да могат да детектират сигнали от единични фотони. При тези условия броенето в съвпадение е от съществено значение, тъй като истинските сцинтилационни събития могат да породят времево корелирани импулси в няколко ФЕУ, докато електронният шум и термоемисионните импулси са предимно некорелирани между отделните канали за детектиране. Броенето в съвпадение изисква зададен прозорец на съвпадение, в който се определя дали импулсите се отнасят към едно и също събитие на разпад. Изборът на този прозорец влияе както върху истинските, така и върху случайните съвпадения [12].

Разработени са няколко метода за стандартизация чрез течносцинтилационно броене. Методът на $4\pi\beta\text{-}\gamma$ съвпаденията е приложим за радионуклиди, които излъчват както β частици, така и γ лъчи, докато методът CIEMAT/NIST разширява възможностите за стандартизация с течносцинтилационно броене към по-широк кръг радионуклиди, но изисква използването на референтен източник. За разлика от тях, методът TDCR позволява първично определяне на активността на β -излъчващи и разпадащи се чрез електронен захват радионуклиди чрез прилагане на статистически модел на детектиране към скоростите на съвпадения, измерени с течно-сцинтилационен брояч с три ФЕУ [13, 14, 15].

Модел със свободен параметър

За нискоенергийни β -излъчватели и радионуклиди, разпадащи се чрез електронен захват, ефективността за детектиране при течносцинтилационно броене може да бъде значително по-ниска от единица и чувствителна към експерименталните условия. В метода TDCR тази ефективност се определя от измерените скорости на двойни и тройни съвпадения чрез *модела на свободния параметър*, който описва детектирането на сцинтилационни фотони посредством един свободен параметър на ефективността.

След радиоактивен разпадане, енергията E , отдадена в течния сцинтилатор, води до образуването среден на брой сцинтилационни фотони, зададен от [16]:

$$M(E) = \frac{\eta_0 Q(E) E}{h\nu}, \quad (2.2)$$

където η_0 е абсолютната сцинтилационна ефективност, $h\nu$ е средната енергия на излъчения

фотон, а $Q(E)$ описва нелинейния сцинтилационен отклик. Може да се приеме, че излъчването на сцинтилационни фотони следва Поасоново разпределение и също така, че броят на детектираните фотоелектрони в даден канал на ФЕУ също е разпределен по Поасон.

За ФЕУ с геометрична ефективност ξ , квантова ефективност ε_q и фактор на спектрално съответствие μ , абсолютна ефективност на детектиране на фотони е

$$\varepsilon_{\text{abs}} = \xi \varepsilon_q \mu. \quad (2.3)$$

Следователно средният брой детектирани фотоелектрони, породени от отдаване на енергия E , е

$$\bar{n}(E) = M(E) \varepsilon_{\text{abs}} = \frac{\eta_0 \xi \varepsilon_q \mu}{h\nu} Q(E) E. \quad (2.4)$$

При течносцинтилационното броене обикновено интерес представлява вероятността сцинтилационният светлинен импулс да доведе до поне един детектиран фотоелектрон и следователно до детектируем импулс. За Поасоново разпределение със средна стойност $\bar{n}(E)$ тази вероятност е комплементарна на вероятността да не бъде образуван нито един фотоелектрон:

$$P_E(E) = 1 - e^{-\bar{n}(E)}. \quad (2.5)$$

Следователно за три-ФЕУ TDCR брояч с идентични ФЕУ:

$$P_{AB}(E) = P_{BC}(E) = P_{AC}(E) \left(1 - e^{-\frac{\bar{n}(E)}{2}}\right)^2, \quad (2.6)$$

и

$$P_{ABC}(E) \left(1 - e^{-\frac{\bar{n}(E)}{3}}\right)^3. \quad (2.7)$$

В TDCR метода се въвежда свободен параметър, λ , известен още като *Figure of Merit* (FOM) чрез зависимостта:

$$\bar{n}(E) = \lambda E Q(E), \quad (2.8)$$

за еквивалентни канали на ФЕУ. Параметърът λ представлява средния брой детектирани фотоелектрони на единица отдадена енергия, като йонизационното гасене е взето предвид.

Метод на тройни към двойни съвпадения

TDCR метода е първичен течносцинтилационен метод, основан на модела на свободния параметър и на брояч с три ФЕУ-та работещи в схема на съвпадение. Той определя активността на източника от измерените скорости на двойни и тройни съвпадения (AB, BC, AC и T) и съответните изчислени ефективности на детектиране, без калибриране с радиоактивен стандарт [17]. Надеждното прилагане на TDCR изисква специализирана електроника регистрираща импулсите от ФЕУ и зададен прозорец на съвпадения. В повечето TDCR системи след всяко регистрирано събитие се прилага удължаващо мъртво време: следващи импулси, попаднали в рамките на този интервал, се отхвърлят и удължават периода на мъртвото време [18]. Мъртвото време се оценява чрез оценката на изминалото реално и живо време докато тече измерването.

За система с три ФЕУ ($R = 3$) ефективностите на съвпадение могат да бъдат изчислени чрез комбиниране на вероятността за регистриране $P(E, \lambda)$ със спектъра на отдадената енергия $S(E)$. При допускане за идентични ФЕУ-та, ефективностите за двойни и тройни съвпадения се задават от [16]:

$$\varphi_2 = \int_0^{E_{\text{max}}} S(E), \left(1 - e^{-\bar{n}/3}\right)^2 dE = \int_0^{E_{\text{max}}} S(E), \left(1 - e^{-\lambda E Q(E)/3}\right)^2 dE, \quad (2.9)$$

$$\varphi_T = \int_0^{E_{max}} S(E), \left(1 - e^{-\bar{n}/3}\right)^3 dE = \int_0^{E_{max}} S(E), \left(1 - e^{-\lambda EQ(E)/3}\right)^3 dE, \quad (2.10)$$

където E_{max} е максималната енергия на заредената частица, $Q(E)$ е функцията на йонизационно гасене (Уравнение (2.1)), а λ е свободният параметър.

За определяне на активността е удобно да се използва логическата сума на двойните съвпадения, чиято ефективност е [16]:

$$\varphi_D = \int_0^{E_{max}} S(E), \left[3 \left(1 - e^{-\lambda EQ(E)/3}\right)^2 - 2 \left(1 - e^{-\lambda EQ(E)/3}\right)^3\right] dE. \quad (2.11)$$

Логическата сума на двойните съвпадения се дефинира като [16]:

$$D = AB \vee BC \vee AC. \quad (2.12)$$

За идентични ФЕУ-та отношението на скоростите на броене за тройни към двойни съвпадения T/D , клони към отношението на ефективностите φ_T/φ_D при голям брой детектирани събития. Това отношение може да се запише като [16]:

$$\frac{\varphi_T}{\varphi_D} = \frac{\int_0^{E_{max}} S(E), \left(1 - e^{-\lambda EQ(E)/3}\right)^3 dE}{\int_0^{E_{max}} S(E), \left[3 \left(1 - e^{-\lambda EQ(E)/3}\right)^2 - 2 \left(1 - e^{-\lambda EQ(E)/3}\right)^3\right] dE}. \quad (2.13)$$

За даден спектър на отдадената енергия $S(E)$ и функция на йонизационно гасене $Q(E)$ това уравнение се решава за определяне на λ . Получената стойност след това се използва за изчисляване на ефективностите на съвпадение, необходими за определяне на активността.

В TDCR броячи допускането за идентични ФЕУ обикновено не е изпълнено. Разлики в оптичното свързване, отклика на фотокатода, усилването и настройката на прага за детектиране могат да доведат до различни вероятности за детектиране в трите канала. За да се отчетат тези разлики между каналите, свободният параметър се разглежда за всяко отделно ФЕУ, λ_A , λ_B и λ_C , като $\lambda = \lambda_A + \lambda_B + \lambda_C$ [16].

Отношенията на ефективностите φ_T/φ_{AB} , φ_T/φ_{BC} и φ_T/φ_{AC} се изчисляват от енергийния спектър $S(E)$, отдадена в сцинтилатора, функцията на гасене $Q(E)$ и пробни стойности на трите FOM λ_A , λ_B и λ_C . При достатъчно голям брой преброени сигнали, експерименталните отношения клонят към съответните отношения на ефективностите. Стойностите на λ_A , λ_B и λ_C се определят числено чрез минимизиране на [16]:

$$\Delta = \left(\frac{\varphi_T}{\varphi_{AB}} - \frac{T}{AB}\right)^2 + \left(\frac{\varphi_T}{\varphi_{BC}} - \frac{T}{BC}\right)^2 + \left(\frac{\varphi_T}{\varphi_{AC}} - \frac{T}{AC}\right)^2. \quad (2.14)$$

След като FOM за отделните канали бъдат определени за избраната стойност на kB , могат да се изчислят ефективностите на съвпадение. Активността обикновено се получава от логическата сума на двойните съвпадения:

$$A = \frac{D}{\varphi_D(kB, \lambda_A, \lambda_B, \lambda_C)}. \quad (2.15)$$

При стандартизиране по TDCR метода изчислената ефективност за детектиране зависи от параметъра на йонизационно гасене kB . Тази зависимост е особено важна за нискоенергийни β -излъчватели като ^3H , за които ефективността може да бъде значително по-ниска от единица и силно повлияна от приетия сцинтилационен отклик.

Стандартният подход за определяне на kB е методът на вариране на ефективността.

Той се основава на предположението, че при правилно моделирана система изчислената активност трябва да остава постоянна, когато ефективността на детектиране се изменя. На практика ефективността се намалява контролирано, например чрез използване на сиви филтри с различна оптична плътност, а активността се преизчислява за набор от стойности на kB . Избраната стойност на kB е тази, която промяната на изчислената активност за серията измервания е минимална. Практическите ограничения и предизвикателства на тази процедура са разгледани в дисертацията.

При TDCR/LSC измерванията случайни съвпадения възникват, когато импулси от несвързани събития, фон или термоелектронна емисия попаднат в рамките на прозореца на съвпадения и бъдат регистрирани като истински съвпадения. За два некорелирани канала със скорости на броене N_1 и N_2 и прозорец на съвпадения τ , честотата на случайните съвпадения е $N_a = 2\tau N_1 N_2$ [19].

Обикновено се използват два подхода за корекция [19]. Експерименталният list-mode метод се основава на разпределението на времевите закъснения между импулсите в различните канали на ФЕУ. Късната опашка на това разпределение, където истинските съвпадения са пренебрежимо малко, се фитира, за да се оцени случайният фон и неговият принос в рамките на времето на разрешаване. Аналитичният метод реконструира чистите скорости на единични импулси и съвпадения от измерените TDCR канали и изчислява приносите на случайните съвпадения, породени от некорелирани импулси или съвпадения, възникващи в рамките на един и същ прозорец на съвпадение. Корекцията за случайни съвпадения вече се приема като важна част от прецизния TDCR анализ и намира все по-широко приложение в течно-сцинтилационната метрология [20, 21].

Compton-coincidence метод

Compton-coincidence методът се използва за определяне на сцинтилационния отклик дължащ се на електрони с известна енергия. Сцинтилаторът се облъчва с колимиран моноенергиен сноп γ лъчи и се избират събития, при които фотон претърпява комптъново разсейване в сцинтилатора. Разсеяният фотон се детектира с γ детектор, докато сцинтилационната светлина, произведена от съответния комптънов електрон, се измерва в съвпадение. От измерената енергия на разсеяния фотон кинетичната енергия на комптъновия електрон се определя чрез комптънова кинематика. Чрез избиране на тесни области на интерес (ROI) в γ -спектъра могат да бъдат изследвани различни енергийни интервали на комптъновите електрони.

В Compton-TDCR система сцинтилационният сигнал се измерва с три-ФЕУ TDCR брояч, работещ с чувствителност за единични фотони. За отдадената енергия, която произвежда средно \bar{m} сцинтилационни фотона, вероятността ФЕУ X да регистрира импулс е [22]

$$p_X = 1 - e^{-\frac{\varepsilon_X \bar{m}}{3}}, \quad X = A, B, C, \quad (2.16)$$

където ε_X представлява ефективността на детектиране на фотони на ФЕУ X . Съответните вероятности за двойни и тройни съвпадения са

$$p_{XY} = \left(1 - e^{-\frac{\varepsilon_X \bar{m}}{3}}\right) \left(1 - e^{-\frac{\varepsilon_Y \bar{m}}{3}}\right), \quad XY = AB, BC, AC, \quad (2.17)$$

и

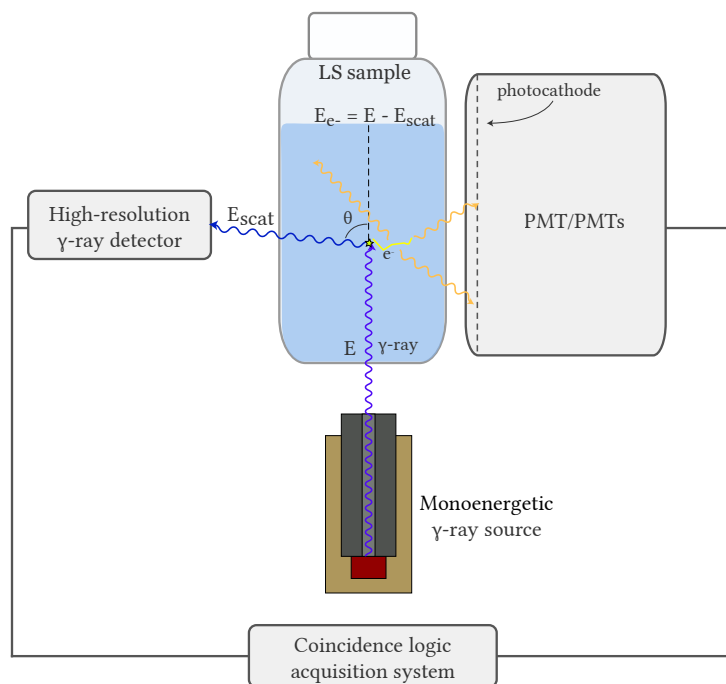
$$p_T = \prod_{X=A,B,C} \left(1 - e^{-\frac{\varepsilon_X \bar{m}}{3}}\right). \quad (2.18)$$

При достатъчно голяма статистика измерените отношения на скоростите на съвпадения клонят към съответните отношения на ефективностите. Следователно за дадено двойно

съвпадение XY отношението T/XY дава вероятността за детектиране в третото ФЕУ Z . Съответният среден брой детектирани фотоелектрони може да бъде оценен като [22]:

$$\bar{n} * Z = -3 \ln \left(1 - \frac{p * T}{p_{XY}} \right) \approx -3 \ln \left(1 - \frac{T}{XY} \right), \quad Z \in A, B, C. \quad (2.19)$$

Чрез повтаряне на тази процедура за различни области на интерес в γ -спектъра средният брой детектирани фотоелектрони може да бъде определен като функция на енергията на комптъновия електрон. Това осигурява директно експериментално измерване на отклика на течния сцинтилатор в нискоенергийната област, където йонизационното гасене е най-силно изразено. Методът предполага изотропно разпределение на излъчените фотони в сцинтилационното шишенце, така че разпределението на фотоните между ФЕУ да не зависи силно от позицията на комптъновото взаимодействие.



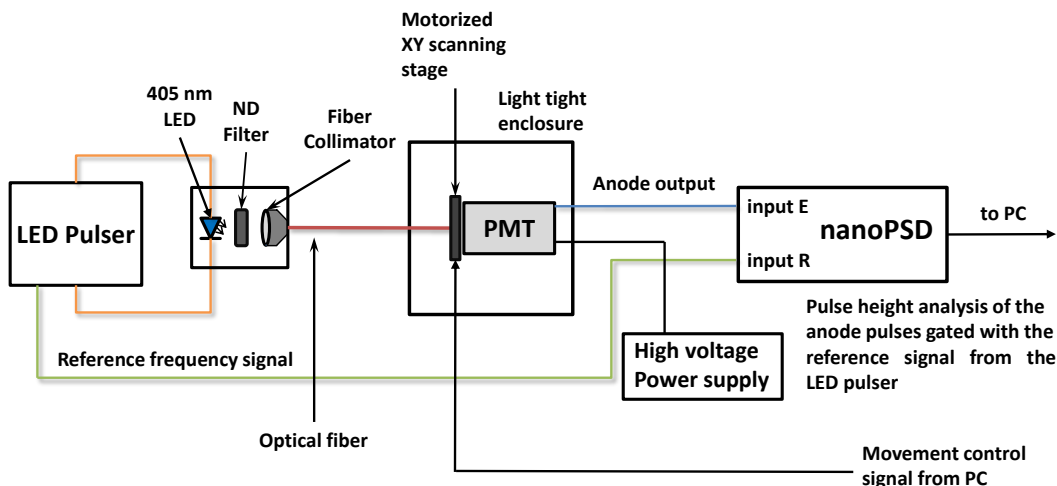
Фигура 2.2: Схема на Compton-coincidence система, при която енергията, отдадена от електрона в сцинтилационния коктейл, се определя от измерената енергия на разсеяния γ фотон.

Нехомогенността на ефективността на детектиране на фотони (PDE) може да повлияе на TDCR измерванията, тъй като моделът предполага неизменчива вероятност за детектиране за всеки ФЕУ канал. Пространствените изменения на квантовата ефективност и събирателната ефективност по повърхността на фотокатода могат да променят вероятността за детектиране на отделни сцинтилационни фотони и следователно да повлияят на измерените скорости на съвпадения, особено при условия на малък брой фотони, особено при прилагане на метода за вариране на ефективността. Поради тази причина беше изследвана пространствената еднородност на отклика на фотокатодите на ФЕУ, използвани в TDCR системи.

Предишни измервания в Лабораторията по метрология на йонизиращите лъчения показаха, че откликът на детектора може да зависи от позицията на попадане на светлината. Изследвания с пластмасови сцинтилатори разкриха позиционно зависими ефекти върху разделителната способност по енергии и разделянето по форма на импулса [23]. За пълна характеристика на прозореца на ФЕУ беше разработена автоматизирана сканираща система, която тук е приложена към ФЕУ, използвани в TDCR броячи за първични измервания на активност.

3.1 Автоматична система за изследване на отклика на фотокатода

Експерименталната установка, използвана за сканиране на пространствения отклик на фотокатодите на ФЕУ, е показана схематично на [Фигура 3.1](#). Тя се състои от специално разработен LED генератор на импулси, държач за сертифицирани филтри с неутрална плътност, колиматор, свързан с многомодово оптично влакно с диаметър на сърцевината $200 \mu\text{m}$, и моторизирана сканираща платформа. Платформата премества влакното по прозореца на ФЕУ чрез механика от CD четящо устройство, управлявана от Arduino Uno с CNC shield. Пространствена разделителна способност е ограничена главно от диаметъра на влакното, а използваемата площ на сканиране е $3.6 \times 3.2, \text{cm}^2$.



Фигура 3.1: Схема на експерименталната установка, използвана за характеризиране на пространствената хомогенност на отклика на фотокатода на ФЕУ [24].

LED генератора на импулси работи при дължина на вълната 405 nm и се управлява с честота 2.6 kHz чрез бързопревключващ лавинен транзистор. Изходът на оптичното влакно е разположен на приблизително 1 mm от прозореца на ФЕУ. Във всяка позиция на сканиране анодният сигнал на ФЕУ се регистрира с nanoPSD [25] анализатор в съвпадение с референтен сигнал от LED генератора на импулси. Времето на измерване за всяка точка е 30 s.

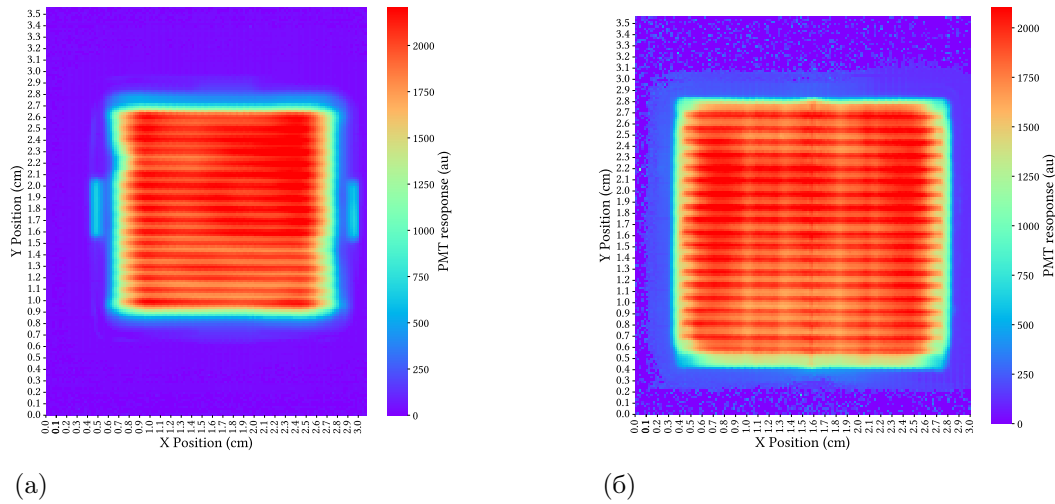
Тестът за стабилност потвърди, че сканиращата система работи надеждно след начален преходен период. Въпреки че през първите часове на работа беше наблюдаван известен дрейф на центроида на пика на светлинните импулси, впоследствие се установи стабилност на положението на центроида, FWHM и скоростта на броене. Измененията след преходния период бяха малки в сравнение с промените в отклика, наблюдавани при сканиране на фотокатодите, и не се очаква да внесат значимо отместване. Тези резултати показват, че сканиращата система е подходяща за възпроизводимо сканиране на отклика на фотокатодите на ФЕУ.

В допълнение към сканирането на отклика на фотокатода беше използвана термокамера TOPDON TC001 [26] за наблюдение на разпределението на топлината, генерирана от ФЕУ по време на работа.

Сканираните ФЕУ включваха два компактни квадратни модела, Hamamatsu R7600U-200 и H11934-203, и двата с боросиликатни прозорци, ултра-биалкални фотокатоде и метално-канални диодни структури. Другите изследвани ФЕУ бяха кръгли фотоелектронни умножители с биалкални фотокатоде и линейно-фокусиращи диодни структури: Hamamatsu R9779 [27], Hamamatsu R331-05 [28] и Philips XP2020Q [29]. R331-05 има матиран вдлъбнато-изпъкнал боросиликатен прозорец, докато XP2020Q използва прозорец от кварцово стъкло. За всеки ФЕУ приложеното високо напрежение беше или оптимизирано за детектиране на единични фотони, или зададено на максималната стойност, препоръчана от производителя.

3.2 Резултати от автоматичното сканиране

Резултатите от автоматичното сканиране на компактните Hamamatsu R7600U and H11934 са представени на Фигура 3.2.



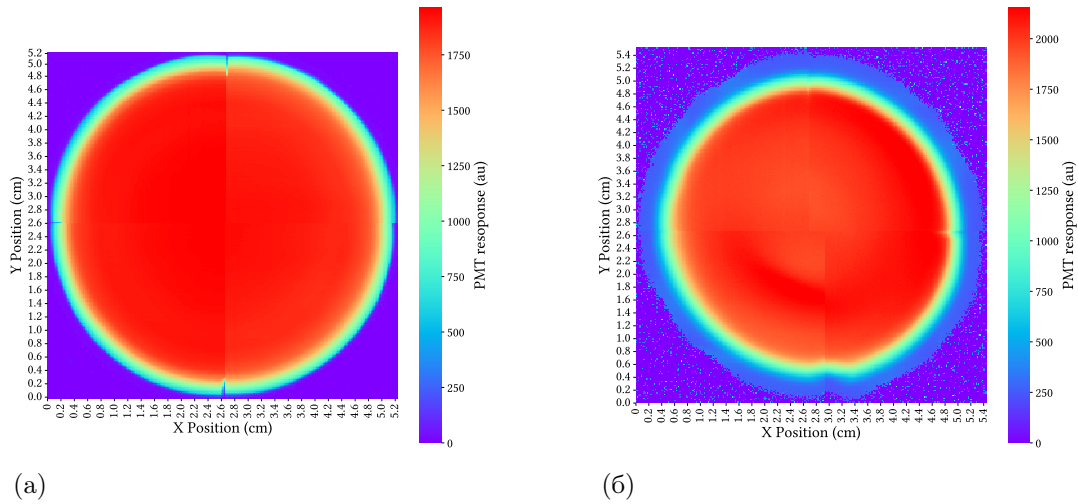
Фигура 3.2: Отклик на фотокатода получен от сканирането на ФЕУ-та Hamamatsu R7600U-200 (a), H11934-203 (b) [24].

Сканиранията на компактните ФЕУ Hamamatsu R7600U-200 и H11934 потвърждават, че откликът на техните фотокатоде не е хомогенен по цялата площ на прозореца. За R7600U-200 ефективната площ на фотокатода съответства на около 49% от общата площ на прозореца. Сканирането на отклика показва периодични изменения от около 15% между минималните и максималните стойности, което е в съответствие с влиянието на метално-каналната динодна структура. Наблюдавана беше и локална област с по-висока чувствителност, която вероятно е свързана с нехомогенност в дебелината на фотокатодния слой.

ФЕУ H11934 има по-голяма ефективна площ, съответстваща на около 78% от общата площ на прозореца. Това представлява ясно предимство спрямо R7600U-200 по отношение на покритието на активната фотокатодна област. Въпреки това сканирането на отклика също показва периодични структури и по-широки пространствени неоднородности, с изменения от около 13%, което отново показва влияние на динодната конфигурация.

Тези компактни квадратни ФЕУ са привлекателни за изграждането на преносими TDCR броячи поради своята геометрия и възможност за броене на единични фотони. Въпреки това наблюдаваните периодични изменения на отклика ги правят по-малко подходящи за прецизни TDCR измервания, при които моделът на ефективността предполага пространствено еднородни вероятности за детектиране на единични фотони. Областите извън ефективната площ на фотокатода или областите с намалена чувствителност могат да влошат разделянето по енергии, да намалят статистиката на броене и да внесат допълнителна неопределеност при приложения, основани на броене в съвпадение.

Не е известно ФЕУ Hamamatsu R9779 да се използват в TDCR броячи, но те бяха включени в изследването, тъй като се използват в течно-сцинтилационен детектор в Лабораторията по метрология на йонизиращите лъчения. Особено внимание беше отделено на ФЕУ Hamamatsu R331-05, тъй като този модел беше избран за TDCR канала на Compton-TDCR брояча, разработен в дисертацията. Съответният отклик на двата сканирани ФЕУ е показан на [Фигура 3.3](#).



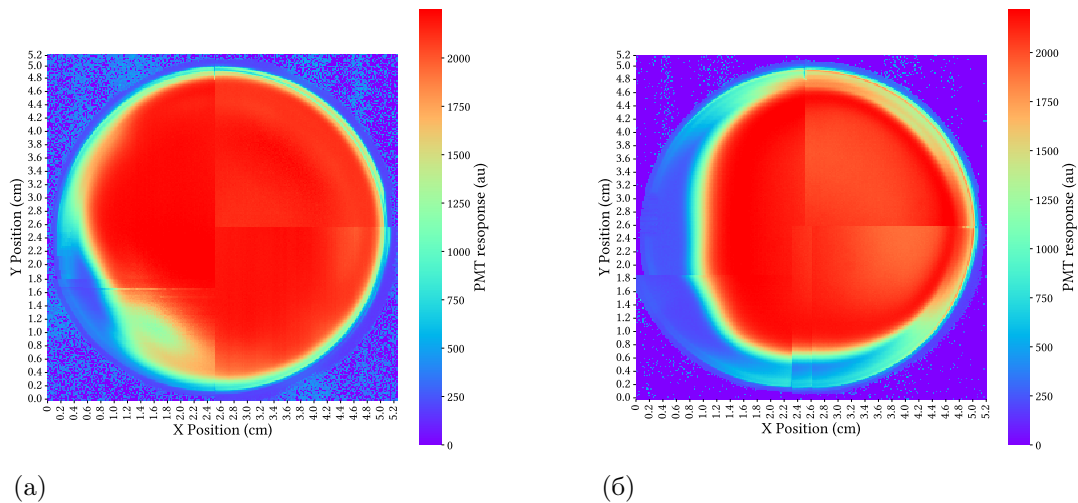
Фигура 3.3: Отклик на фотокатода получен от сканирането на ФЕУ-та Hamamatsu R9779 (a), Hamamatsu R331-05 (b) [24].

Сканиранията на кръглите ФЕУ с линейно-фокусиращи диодни структури не показаха структури в отклика, които могат да бъдат свързани с диодната система. Основната нехомогенност беше наблюдавана в периферията на прозореца на ФЕУ, извън ефективната площ, посочена от производителя. Въпреки че тази област е извън номиналната активна площ, тя все пак може да повлияе на измервания, които разчитат на ефективно детектиране на единични фотони.

Някои артефакти се виждат в изображенията на отклика, тъй като кръглите ФЕУ бяха сканирани в четири отделни квадранта. Малки несъответствия в позиционирането между сканирането на отделните квадранти и маркерите на границите между квадрантите се проявяват като локални точки с намален отклик. Тези артефакти не възпрепятстват определянето на ефективната площ на фотокатода или охарактеризирането на периферната област с понижена ефективност.

За ФЕУ R331-05 откликът в рамките на ефективната площ е до голяма степен хомогенен. Областта с понижена ефективност близо до ръба на фотокатода е по-широка от наблюдаваната при R9779, най-вероятно поради дифузния прозорец на R331-05. Благодарение на хомогенния си отклик, голямата ефективна площ и високото усилване, R331-05 беше определен като подходящ за TDCR канала на Compton-TDCR системата. За ФЕУ R9779 и R331-05 влиянието на периферната област с ниска ефективност може да бъде намалено чрез маскиране на външната част на прозореца на ФЕУ.

Последният изследван ФЕУ беше Philips XR2020Q, по-стар модел, произведен в началото на 90-те години. Измереният му отклик е показан на [Фигура 3.4](#). Освен при стандартни работни условия, откликът на фотокатода беше изследван и в дефокусиран режим. Това беше направено, за да се изследва отклика при дефокусиране, тъй като дефокусирането на ФЕУ се използва в TDCR измерванията като начин за намаляване на ефективността на детектиране.



Фигура 3.4: тклик на фотокатода получен от сканирането на ФЕУ Philips XR2020Q(a), отклик при дефокусиране на ФЕУ-то (b) [24].

Сканирането на ФЕУ XR2020Q разкри ясно изразена пространствена нехомогенност, в съответствие с по-ранни наблюдения, докладвани в [30]. В долната лява част на фотокатода беше наблюдавана област с намалена чувствителност, проявяваща се като „сляпо петно“. Тъй като при визуален оглед на прозореца на ФЕУ не бяха установени видими повреди, тази особеност не изглежда да произхожда от макроскопично увреждане на повърхността.

След дефокусиране областта с понижен отклик се разшири значително и зае по-голяма част от повърхността на фотокатода, като по този начин намали ефективния диаметър. Областта с намалена ефективност беше също асиметрична спрямо центъра на ФЕУ, което показва, че ефективността на детектиране на светлина може да стане силно зависима от позицията на излъчване. Това потвърждава, че дефокусирането може да засили влиянието на нехомогенността на фотокатода и следователно трябва да се използва с внимание при измервания, изискващи еднаква ефективност на детектиране на единични фотони. Относителната промяна на площта, в която откликът надвишава 1500 а.у., беше приблизително 13%.

3.3 Нагриване на ФЕУ и възможно му влияние върху стабилността на ефективността на детектиране

Измерванията с термокамера показаха, че ФЕУ достигат стабилна работна температура след приблизително 3–4 часа работа при приложено високо напрежение. При компактните ФЕУ нагриване беше наблюдавано в близост до областта на фотокатода, като R7600U работеше при температура около 1–2 °C над околната температура, а при H11934 температурата на фотокатода беше с повече от 4 °C над околната температура. Това показва, че методи за отвеждане на топлината са препоръчителни за компактните ФЕУ-та модели. За разлика от тях, при по-големите “традиционни” ФЕУ-та нагриването е локализирано главно в областта на делителя на напрежение и не се разпространява значително към фотокатода, поради което температурни ефекти върху сцинтилационната проба са малко вероятни.

3.4 Влияние на нехомогенността на фотокатода върху ефективността на детектиране при TDCR

Моделът на ефективността при TDCR приема, че излъчените фотони следват Поасоново разпределение и че всеки ФЕУ имат пространствено еднаква вероятност за детектиране на единични фотони. Когато откликът на фотокатода е нехомогенен, това приближение става неприложимо, тъй като средният брой детектирани фотоелектрони зависи от позицията, в която фотоните достигат фотокатода. Както е посочено от P. Cassette, този ефект до голяма степен се осреднява, когато се произвеждат много фотони, но може да допринесе за допълнителна дисперсия при събития с нисък светлинен добив [31]. Следователно той е най-съществен за нискоенергийни чисти β -излъчватели като ^3H и ^{63}Ni , и радионуклиди, разпадащи се чрез електронен захват, като ^{55}Fe , както и за измервания, извършвани при намалена ефективност на детектиране.

Получените резултати имат няколко практически следствия за TDCR броенето. Първо, оптичната камера трябва да бъде проектирана така, че периферните области на ФЕУ с ниска ефективност да бъдат изключени от възможност за детектиране на фотони, тъй като те намаляват ефективната вероятност за детектиране. Второ, когато измененията на отклика отразяват реална пространствена нехомогенност, а не само статистика на броенето, при оценката на неопределеността трябва да се използва стандартното отклонение на измерените скорости на броене вместо стандартното отклонение на средната стойност. Трето, компактните ФЕУ изискват отвеждане на топлината, тъй като нагриването в близост до фотокатода може да повлияе на стабилността на детекторната система и евентуално на течносцинтилационната проба.

Резултатите също така показват, че дефокусирането не е оптимален подход за вариране на ефективността при TDCR. Въпреки че то може да намали ефективността на детектиране, същевременно променя ефективната площ на детектиране и следователно модифицира оптичната геометрия на измерването. Това противоречи на основното изискване на метода на вариране на ефективността, а именно геометрията на измерването да остава неизменна при промяна на ефективността на детектиране. Поради това сивите филтрите са за предпочитане, тъй като намаляват ефективността на детектиране, като същевременно запазват геометрията на детектиране. Може да се използва и химично гасене, но то може да промени самия сцинтилационен процес, включително относителния принос на бързата и забавената светлинна компонента.

Освен при TDCR броенето, нехомогенността на отклика на ФЕУ е важна и в сцинтилационната спектрометрия, където разделителната способност по енергии често е ключов параметър на детектора. Нехомогенният отклик на фотокатода може да влоши разделителната способност по енергии и да внесе систематично отместване при изследвания на разделителната способност по енергии на изследван сцинтилатор, ако изборът на ФЕУ, оптичното свързване и геометрията не са внимателно контролирани. Поради това следващата глава разглежда как оптичните ефекти, включително нехомогенността на отклика на фотокатодния и типа на стените на течносцинтилационните шишенца, влияят върху неопределеността на TDCR измерванията.

Изследването, представено в тази глава, беше иницирано от P. Cassette, който предложи да се изследва дали пространствената нехомогенност на фотокатодите на ФЕУ и типа на стените на течносцинтилационните шишенца могат да повлияят на допусканията, използвани при TDCR броенето. При течносцинтилационното броене енергията, отдадена при разпад на радионуклид, се преобразува във фотони чрез последователност от процеси на възбуждане, енергиен пренос и флуоресценция [6]. Както беше споменато, TDCR модела се приема, че броят излъчени фотони следва Поасоново разпределение. Ако средният брой излъчени фотони за отдадена енергия E се означи с $m(E)$, вероятността за излъчване на x фотона е [31]:

$$P(x|m) = \frac{m^x e^{-m}}{x!}. \quad (4.1)$$

Както е показано в [16], каскадата от процеси, водещи до детектиране на фотоелектрони се свежда отново до Поасоново разпределение. Средният брой детектирани фотоелектрони е:

$$n(E) = m(E), \varepsilon_{\text{abs}}, p, \quad (4.2)$$

където ε_{abs} представлява абсолютната ефективност на детектиране на фотони на ФЕУ, а p е вероятността фотоелектрон, излъчен от фотокатода, да доведе до измерим електрически импулс [31]. Стойността на ε_{abs} зависи от дължината на вълната на фотоните, материала на фотокатода и геометрията, докато p се определя от условията на събиране на фотоелектроните във ФЕУ. При правилно настроен ФЕУ p обикновено е близка до единица, но може да бъде повлияна от дефокусиране или от външни магнитни полета.

В класическия модел на свободния параметър n се разглежда като фиксирана величина за даден брояч, източник и отдадена енергия E и към нея не се приписва неопределеност. На практика обаче n може да се изменя, тъй като вероятността за детектиране на фотони зависи от оптичните и пространствените ефекти в системата източник–детектор [31].

Един от приносите произтича от геометрията и оптичните свойства на шишенцето. В прозрачни, недифузни стъклени шишенца сцинтилационните фотони, излъчени в различни позиции в течния сцинтилатор, нямат еднаква вероятност да достигнат до ФЕУ. Пречупването и вътрешното отражение на границите сцинтилатор–въздух–стъкло могат да направят вероятността за детектиране зависима от позицията, особено за нискоенергийни честици, които се държат приблизително като точкови източници на светлина. Втори принос произтича от самите ФЕУ-та, тъй като квантовата ефективност на фотокатода и вероятността за събиране на фотоелектроните не са непременно хомогенни по цялата активна площ.

Следователно за фиксирана отдадена енергия, n трябва да се разглежда като случайна величина, а не като константа. Получената статистика на фотоелектроните тогава се описва по-добре със съставно Поасоново разпределение, при което средната стойност на Поасоновото разпределение следва собствено вероятностно разпределение.

Допълнителната компонента на неопределеност, произтичаща от нехомогенността на отклика на фотокатода или от оптични ефекти в системата източник–детектор, влияе не само върху изчислената ефективност на детектиране, но и върху самия процес на детектиране. Тъй като измерената скорост на броене е пропорционална на произведението от активността и ефективността на детектиране, измененията в ефективността за детектиране трябва

да се проявяват като допълнителен принос към дисперсията на повторни измервания. Следователно наблюдаваната дисперсия трябва да включва както статистическата дисперсия на радиоактивния разпад, така и всяка дисперсия, свързана с флуктуации на оптичните условия или на ефективността на детектиране.

При отсъствие на такива ефекти статистиката на броене обикновено се очаква да следва Поасоново разпределение, въпреки че мъртвото време на брояча може да направи дисперсията по-малка. Ако оптичните ефекти не са пренебрежими, експериментално наблюдаваното стандартно отклонение на повторните измервания трябва да надвишава стойността, очаквана единствено от статистиката на броене. Доколкото ни е известно, този допълнителен принос досега не е бил изрично включван в бюджетите на неопределеността при TDCR измервания.

4.1 Експериментално изследване на влиянието на сцинтилационното шишенце върху ефективността на детектиране

Вътрешното отражение в прозрачни стъклени шишенца може да направи вероятността за детектиране на фотони зависима от мястото, в което се случва разпадането. Показателите на пречупване на течносцинтилационния коктейл и стъклото са близки до 1.5, а около шишенцето има въздух и на външната повърхност на шишенцето може да възникне пълно вътрешно отражение. В резултат на това сцинтилационната светлина, излъчена в близост до стените на шишенцето, може да достигне до ФЕУ с по-ниска вероятност в сравнение със светлина, излъчена близо до центъра на флакона. Очаква се този ефект да бъде най-съществен за нискоенергийни радионуклиди, при които частиците имат малък пробег и сцинтилационното събитие е почти точков източник на светлина. Ефектът може да бъде намален чрез използване на оптично дифузни шишенца, които намаляват ефекта на вътрешно отражение [31].

За експериментално изследване на този ефект източници ^3H и ^{55}Fe , приготвени в Ultima Gold, бяха измерени както в прозрачни, така и в дифузни стъклени шишенца. Едни и същи LS източници бяха използвани и при двата типа измервания, като дифузионни свойства бяха постигнати чрез облепване на шишенцата с дифузно тиксо. Измерванията бяха извършени в LNHB с mini- и micro-TDCR броячите [32], работещи с анализатора nanoTDCR [33]. Използвани бяха прозорци на съвпадение 40 ns и 200 ns, с удължаващо мъртво време 50 μs . Всяко измерване беше с продължителност 1000 s и беше повторено 24 пъти при идентични условия. Резултатите за ^3H и ^{55}Fe са обобщени съответно в Таблицы 4.1 and 4.2.

Таблица 4.1: TDCR стойности, скорости на броене и съответните относителни стандартни отклонения, получени за течносцинтилационен източник ^3H , измерен в прозрачни и дифузни стъклени шишенца при прозорци на съвпадение 40 ns и 200 ns, заедно с очакваните Поасоновы неопределености [31].

Проз. съвпад. (ns)	Шишенце	TDCR	D (s^{-1})	$\frac{u_D}{D}$	$\frac{u_D}{D_{\text{Poisson}}}$	T (s^{-1})	$\frac{u_T}{T}$	$\frac{u_T}{T_{\text{Poisson}}}$
40	Прозрачно	0.5794	3659.6	0.09%	0.05%	2120.2	0.10%	0.07%
40	Дифузно	0.5914	3709.0	0.05%	0.05%	1860.9	0.08%	0.07%
200	Прозрачно	0.5899	3733.8	0.09%	0.05%	2202.6	0.10%	0.07%
200	Дифузно	0.6019	3783.0	0.04%	0.05%	2276.8	0.07%	0.07%

Таблица 4.2: TDCR стойности, скорости на броене и съответните относителни стандартни отклонения, получени за течносцинтилационен източник ^{55}Fe , измерен в прозрачни и дифузни стъклени шишенца при прозорци на съвпадение 40 ns и 200 ns, заедно с очакваните Поасоновы неопределености [31].

Проз. съвпад. (ns)	Шишенце	TDCR	D (s^{-1})	$\frac{u_D}{D}$	$\frac{u_D}{D_{\text{Poisson}}}$	T (s^{-1})	$\frac{u_T}{T}$	$\frac{u_T}{T_{\text{Poisson}}}$
40	Прозрачно	0.3809	2423.0	0.08%	0.06%	922.9	0.16%	0.10%
40	Дифузно	0.3973	2507.8	0.07%	0.06%	997.2	0.10%	0.10%
200	Прозрачно	0.4215	2600.1	0.08%	0.06%	1096.0	0.16%	0.10%
200	Дифузно	0.4395	2681.6	0.08%	0.06%	1178.6	0.10%	0.09%

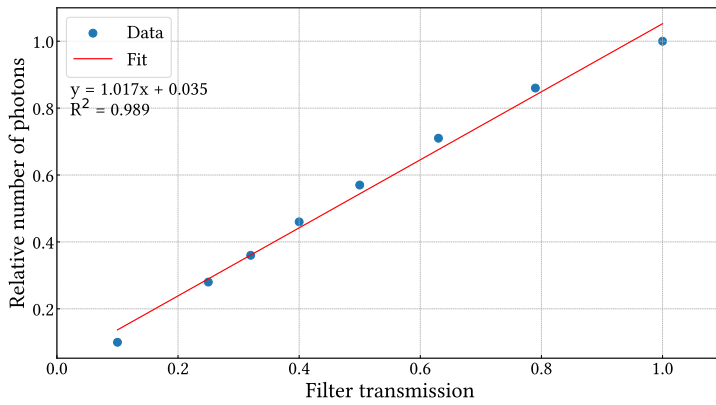
Резултатите показват, че дифузните шишенца увеличават TDCR стойността, ефективността на детектиране и скоростта на броене, като същевременно намаляват наблюдаваните флукуации на скоростта на броене. За дифузните шишенца не беше наблюдавана значима допълнителна дисперсия спрямо очакваната от Поасоновата статистика. За разлика от тях, прозрачните стъклени шишенца водят до допълнително стандартно отклонение както за ^3H , така и за ^{55}Fe , което е в съответствие със събиране на светлината, зависещо от позицията на излъчване. Увеличаването на прозореца на съвпадения повишава TDCR стойността и скоростите на броене, но не намалява съществено дисперсията на резултата. Поради това по-дългите прозорци на съвпадение могат да бъдат полезни за ^{55}Fe , при който изчисляването на ефективността е слабо зависимо от kB , но са по-малко подходящи за ^3H , тъй като моделът на Birks описва предимно бързата сцинтилационна компонента [6].

4.2 Експериментално измерване на нехомогенността на фотокатодите на ФЕУ

За всяка позиция на сканиране пикът на отклика беше апроксимиран с Гаусово разпределение, от която бяха определени центроидът и стандартното отклонение. При допускане за Поасонова статистика на детектираните фотоелектрони, средният брой фотоелектрони беше получен от стандартното отклонение на пика. Това позволи откликът на ФЕУ да бъде изразен директно чрез броя фотоелектрони, генерирани за всяка позиция на светлинния източник върху фотокатода.

Валидността на допускането за Поасоново разпределение беше проверена чрез калибрирани оптични филтри, поставени пред светлинния източник. Относителният брой фотоелектрони, получен от ширините на пиковете, беше пропорционален на пропускането на филтрите, с наклон близък до единица, както е показано на [Фигура 4.1](#). Това потвърждава, че при настоящите експериментални условия детектираните фотоелектрони следват Поасонова статистика [31].

Фотоелектронният добив, получен във всяка позиция (x, y) , беше записан в матрица, представяща пространствената ефективност на детектиране на фотокатода на ФЕУ. От тези матрици беше оценено относителното стандартно отклонение на средния брой детектирани фотоелектрони върху ефективната площ на фотокатода. За ФЕУ Hamamatsu R7600U-200 и H11934-203 бяха получени съответно стойности 0.26% и 0.6% [31].



Фигура 4.1: Изменение на относителния брой детектирани фотоелектрони в зависимост от пропускането на сертифицирани оптичните филтри, поставени пред светлинния източник.

4.3 Влияние на нехомогенността на отклика на ФЕУ върху TDCR измерванията

При ^{55}Fe сцинтилационният сигнал се доминира от събития на електронен захват от К-слоя, които водят до излъчване на Оже електрони или характеристични рентгенови лъчи с енергии близки до 6 keV. Следователно разпределението на отдадената енергия може да се разглежда като тясно, което позволява влиянието на нехомогенността на фотокатода на ФЕУ да бъде оценено чрез аналитичен моноенергетичен подход.

Течносцинтилационния източник ^{55}Fe беше изготвен в Ultima Gold и измерен в оптично дифузни шишенца в LNHB с miniTDCR система, оборудвана с ФЕУ R7600U-200. Използван беше прозорец на съвпадение 40 ns, а ефективността на детектиране беше променена чрез поставяне на сиви филтри. Експерименталните резултати са сравнени с предсказанията на аналитичния модел в Таблица 4.3.

Таблица 4.3: Сравнение между експериментално измерените относителни стандартни отклонения на ефективностите на детектиране за двойни и тройни съвпадения за течносцинтилационен източника ^{55}Fe и стойностите, предсказани от аналитичния модела [31].

Условие на измерване	TDCR	$u_{\varepsilon_D}/\varepsilon_D$ експер.	$u_{\varepsilon_D}/\varepsilon_D$ предказ.	$u_{\varepsilon_T}/\varepsilon_T$ експер.	$u_{\varepsilon_T}/\varepsilon_T$ предказ.
Без филтър	0.4370	0.053%	0.047%	0.12%	0.12%
Сив филтър	0.1221	0.076%	0.12%	0.24%	0.20%

Средният брой фотоелектрони беше определен от измерените TDCR стойности, като се прие, че доминиращият принос към броя излъчени фотони произтича от К-захвата в ^{55}Fe . Резултатите показват, че нехомогенността на фотокатода има умерен, но непренебрежим ефект върху изменението на ефективностите за двойни и тройни съвпадения. Ефектът е по-силно изразен при тройните съвпадения, докато аналитичният модел леко надценява приноса за двойните съвпадения.

За радионуклиди, излъчващи непрекъснат енергиен спектър, аналитичното МК подход за включване на измерената нехомогенност на отклика на фотокатода в изчислението на ефективността. Нормираната матрица на отклика на ФЕУ R7600U-200 беше използвана за случайно мащабиране на FOM - λ , с който се отчита локалното изменение на отклика на ФЕУ. При фиксирани условия на измерване ефективностите за двойни и тройни съвпадения, ε_D и ε_T , бяха преизчислени многократно, а техните стандартни отклонения бяха използвани за оценка на допълнителната неопределеност, дължаща се на нехомогенността на фотокатода.

Този подход беше приложен към измервания на ^3H , извършени с miniTDCR системата в

Софийския университет, оборудвана с ФЕУ R7600U-200 и анализатор nanoTDCR. Източникът беше изготвен в сцинтилатор толуен-РРО и измерен в дифузен стъклен флакон. При изчисленията беше използвана стойност $kB = 0.01 \text{ cm/MeV}$ и бяха приети еквивалентни ефективности на детектиране за трите ФЕУ-та. Резултатите са представени в Таблица 4.4, заедно с експериментално наблюдаваните относителни стандартни отклонения и съответните очаквания от Поасоновата статистика.

Таблица 4.4: Сравнение между експериментално измерените относителни стандартни отклонения на ефективностите на детектиране за двойни и тройни съвпадения за течносцинтилационен източника ^3H и стойностите, предсказани от МК модела model [31].

Пропускливост на филтъра	TDCR	$u_{\varepsilon_D}/\varepsilon_D$ експер.	$u_{\varepsilon_D}/\varepsilon_D$ предказ.	$u_{\varepsilon_T}/\varepsilon_T$ експер.	$u_{\varepsilon_T}/\varepsilon_T$ предказ.
100%	0.6292	0.07%	0.05%	0.11%	0.08%
60%	0.3094	0.09%	0.11%	0.14%	0.18%
50%	0.2630	0.11%	0.13%	0.25%	0.21%

Наблюдава се леко увеличение на относителното стандартно отклонение на скоростите на двойни съвпадения, докато ефектът е по-силно изразен при тройните съвпадения, особено при намалена ефективност на детектиране.

4.4 Влияние на нехомогенността на отклика на фотокатода върху бюджета на неопределеността при TDCR измервания

Статистиката на броене обичайно се включва в бюджетите на неопределеността при TDCR измервания. Тя може да бъде оценена или чрез подход тип А, основан на повторни измервания, или чрез подход тип Б, основан на приет статистически модел, обикновено Поасонова статистика. Подходът тип А обикновено е за предпочитане, тъй като не изисква допускания относно разпределението на броенето и може да разкрие допълнителни изменения по време на измерването.

Когато обаче оптични ефекти или нехомогенността на фотокатода водят до вътрешни изменения на ефективността на детектиране, стандартното отклонение на средната стойност може да подцени съответния принос към неопределеността. С увеличаване на броя повторни измервания стандартното отклонение на средната стойност намалява, въпреки че вътрешната дисперсия на скоростите на броене остава налице. Следователно този принос трябва или да бъде добавен като допълнителен член в неопределеността, получен от аналитичен или МК модел, или да бъде отчетен директно от повторните измервания.

По-устойчив подход при наличие на такива оптични ефекти е да се използва експерименталното стандартно отклонение на самите скорости на броене, а не стандартното отклонение на средната стойност. Така се включват флукуациите, причинени от изменения на ефективността на детектиране, както и други възможни нестабилности по време на измерването, поради което този подход е по-подходящ, когато процесът на броене не може да бъде описан единствено с Поасонова статистика.

Тази глава разглежда основната цел на дисертацията: разработването, характеризирането, валидирането и приложението на Compton-TDCR система за измерване на отклика на течни сцинтилатори. Методът се основава на облъчване на сцинтилатора с фотони от моноенергетичен γ -източник. Гама детектор регистрира енергията на фотоните, претърпели Комптъново разсейване в сцинтилатора, докато TDCR детекторът измерва в съвпадение сцинтилационната светлина, излъчена след отдаване на енергията на съответния Комптънов електрон в сцинтилатора.

Мотивацията за разработването на настоящия Комптън-TDCR спектрометър беше създаването на оптимизирана и добре охарактеризирана система за метрологично надеждни измервания на светлинния добив на течни сцинтилатори. По-конкретно, целта беше да се определят както енергията на Комптъновия електрон, отдадена в сцинтилатора, така и съответният среден брой детектирани фотоелектрони, измерен чрез TDCR канала, с добре дефинирана неопределеност.

5.1 Конструкция на Compton-TDCR системата

Комптъновият сцинтилационен спектрометър се състои от две основни части — сцинтилационен детектор и γ -детектор, както и от регистрираща електроника, която свързва двете системи в схема на съвпадение. Два канала са свързани чрез електроника, позволяваща регистриране на съвпадения, така че да се избират само времево корелирани събития. В този раздел е описан Комптън-TDCR спектрометърът, изграден като част от работата по настоящата дисертация. Системата е инсталирана в Лабораторията по метрология на йонизиращите лъчения към Физическия факултет на Софийския университет и по-нататък е означена като CTDCR-SU.

TDCR канал

TDCR каналът на системата CTDCR-SU е оборудван с три ФЕУ Hamamatsu R331-05 [28]. Това са цилиндрични фотоелектронни умножители с линейно-фокусираща структура, които имат голяма площ на фотокатода, високо усилване и добра разделителна способност на пика от единични фотоелектрони. Техният матиран изпъкнал прозорец подобрява преминаването на светлината, а откликът на фотокатодите им беше характеризиран, както е описано в [Раздел 3.2](#). ФЕУ-тата се хранят от четириканален източник на високо напрежение CAEN DT1470ET [34].

Оптичната камера беше проектирана за стандартни течносцинтилационни шишенца с обем 20 mL. Вътрешните ѝ стени бяха оптимизирани за събиране на светлина и покрити с отразяващо фолио 3M [35]. Както оптичната камера, така и външната светлонепроницаема обвивка бяха 3D-принтирани от PLA. Външната обвивка беше покрита с проводима боя, а ФЕУ-тата бяха поставени в метални екраниращи тръби. Целият брояч беше монтиран в метален корпус за осигуряване на по-добро електромагнитно екраниране.

TDCR каналът може да работи едновременно с две регистриращи системи. Трите анодни сигнала от ФЕУ-тата първо се подават към бърз усилвател CAEN N978 [36], работещ при усилване 1. Тъй като всеки канал на усилвателя има два изхода, сигналите могат да

бъдат разделени и подадени паралелно към анализатор nanoTDCR+ TD9020 [37] и към цифровизатор CAEN DT5751 [38].

Гама канал

Изборът на γ -източник за Compton-TDCR спектрометъра се определя от нискоенергийната област, в която сцинтилационният отклик на течните сцинтилатори е най-силно нелинеен, особено под около 20 keV енергия на електроните. Поради това е необходим нискоенергиен моноенергетичен γ -източник. В настоящата система се използва източник на ^{241}Am , за който разсеяните фотони, детектирани след Комптъново взаимодействие в сцинтилатора, се очакват основно в областта 50–60 keV. Това изисква γ -детектор с добра ефективност и разделителна способност по енергии в тази енергийна област, тъй като енергията на Комптъновия електрон се определя от измерената енергия на разсеяния фотон.

За тази цел беше използван планарен n-тип HPGe детектор. Германевият кристал е с дебелина 5 mm, диаметър 10 mm и е разположен приблизително на 7 mm зад берилиев прозорец с дебелина 250 μm .

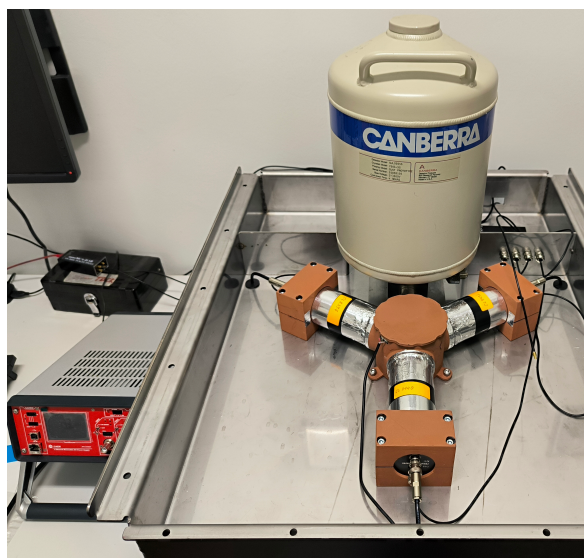
nHPGe детекторът е оборудван със специално разработен зарядочувствителен предусилвател с транзисторно нулиране, създаден от В. Йорданов. Поради типа на предусилвателя и относително дългите сигнали на детектора, цифровизаторът CAEN DT5751 не беше подходящ за обработка на този канал. Вместо това сигналите от предусилвателя на nHPGe детектора, включително изходите за амплитуда на импулса и задържащият сигнал, бяха обработвани с анализатора nanoMCA-II [39], който съчетава усилвател, цифров процесор за обработка на импулси и многоканален анализатор.

Параметрите на формиране на импулса бяха оптимизирани с помощта на 59.54 keV γ -линия на ^{241}Am . Времето на нарастване на бавния формироваел и настройките на платото на сигнала бяха систематично изменени и беше проследена промяната на ширината на пика на 59.54 keV. Най-добрата енергийна разделителна способност беше 0.62%, съответстваща на FWHM = 370 eV. Тази оптимизация е от съществено значение за Комптън-TDCR системата, тъй като енергията на Комптъновия електрон се определя от енергията на разсеяния фотон, измерена с nHPGe детектора.

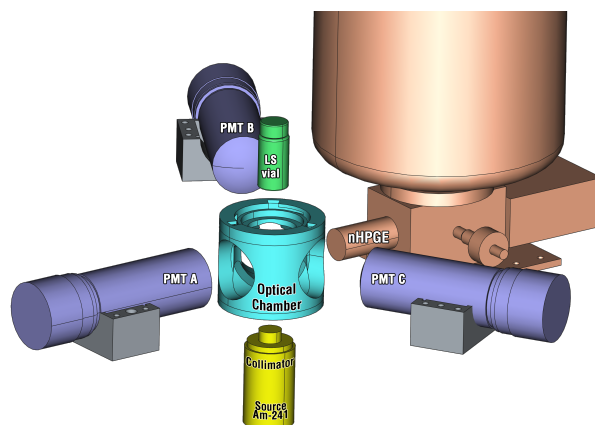
5.1.1 Сглобяване на Compton-TDCR системата

Механичната платформа на Compton-TDCR системата беше проектирана така, че да интегрира TDCR и γ -детекторния канал, като същевременно осигурява екраниране от електромагнитни смущения и външната светлина. Двата детектора са монтирани в корпус от неръждаема стомана, който осигурява механична конструкция и електромагнитното екраниране. Под оптичната камера е направен кръгъл отвор, за да се избегне отслабване на първичния γ сноп от използвания източник.

Геометрията беше оптимизирана с цел подобряване на ефективността на детектиране на Комптъново разсеяните фотони чрез намаляване на количеството материал по пътя на падащите и изходящите разсеяни фотони. Стените на оптичната камера бяха изтънени в областите, през които преминават първичните и разсеяните фотони, а nHPGe детекторът беше разположен възможно най-близо до оптичната камера, за да се увеличи геометричната ефективност на детектиране. Позицията на шишенцето беше избрана така, че фотоните, детектирани от nHPGe детектора, да съответстват предимно на ъгли на разсейване, близки до 90°. Сглобената Комптън-TDCR система е показана на [Фигура 5.1 \(а\)](#), а САД изглед на детектора е представен на [Фигура 5.1 \(б\)](#).



(a)

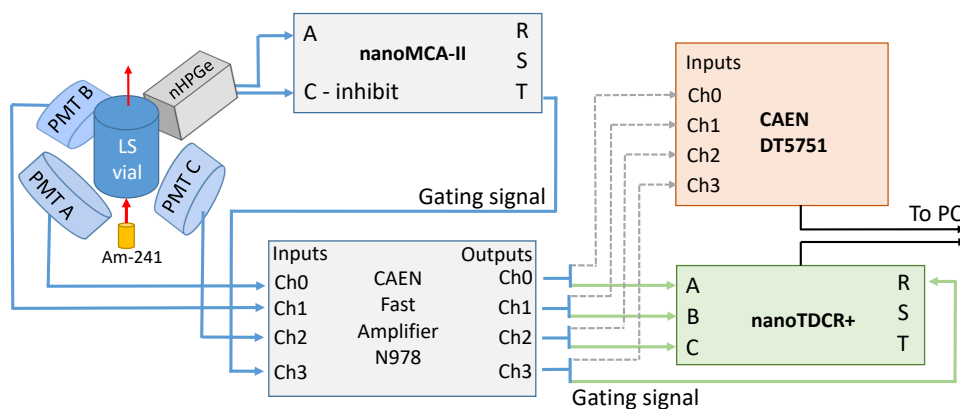


(б)

Фигура 5.1: (a) Сглобено състояние на CTDCR-SU; (b) разглобен изглед, показващ основните части на детектора CTDCR-SU [40].

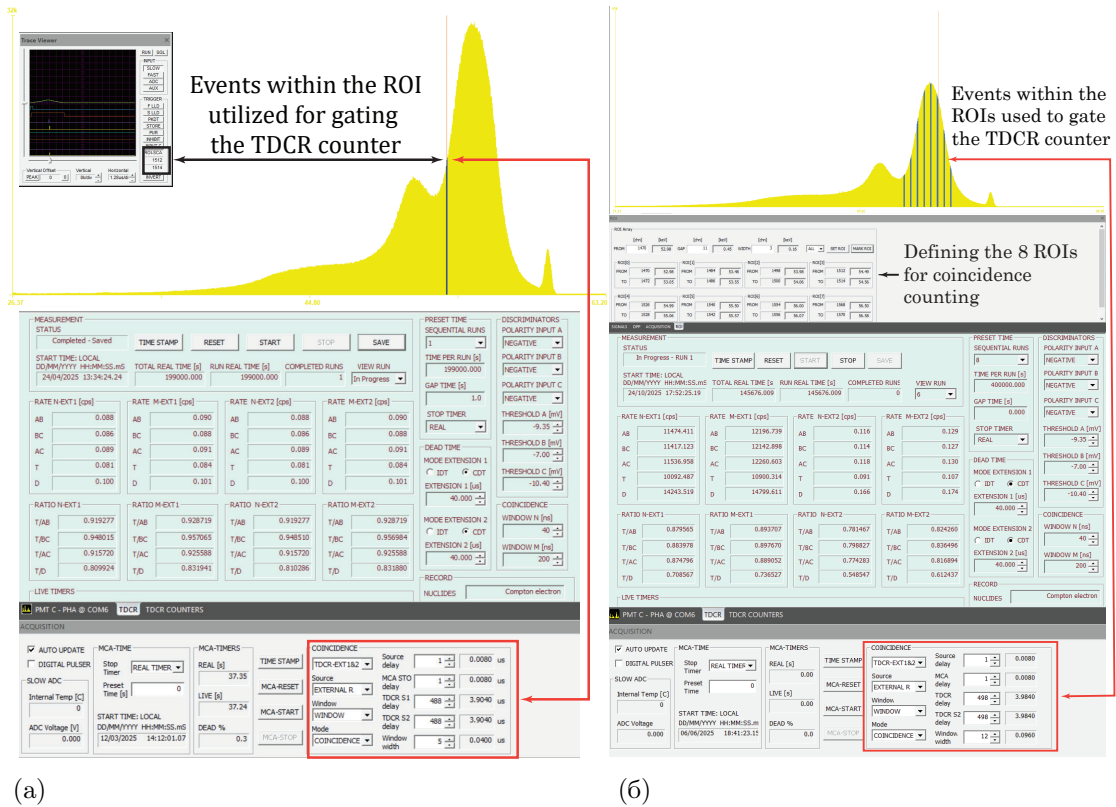
5.1.2 Схема за регистриране на Комптън съвпадения

Електрониката за измерване в съвпадение беше разработена от V. Jordanov с някои модификации на nanoTDCR и nanoMCA-II, реализирани специално за целите на този експеримент. Фигура 5.2 показва разработената схема за регистриране, използвана за енергийно селектиране на комптъновите електрони. Системата позволява измервания в съвпадение между TDCR канала и pHPGe детектора, като същевременно запазва възможността за стандартна TDCR работа без промяна на хардуерната конфигурация.



Фигура 5.2: Схема на регистриращата система на Compton-TDCR [40].

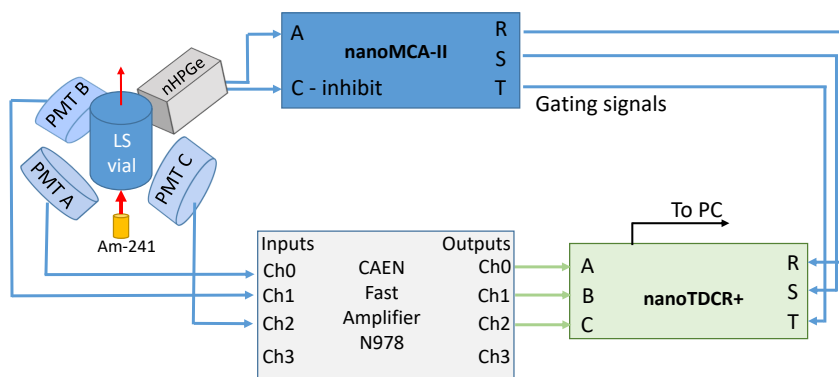
Когато γ -събитие бъде регистрирано в предварително зададена ROI област от спектъра на pHPGe детектора, nanoMCA-II генерира логически импулс на своя T изход, както е илюстрирано на Фигура 5.3 (a). Този сигнал се подава към R входа на nanoTDCR+, където отваря 40 ns прозорец на съвпадение. Валидно Compton-TDCR събитие се регистрира, когато двойно или тройно TDCR съвпадение възникне в рамките на този прозорец, като съответните TDCR броячи се увеличават. По време на Compton-TDCR измерванията основното мъртво време беше зададено на 40 μ s.



Фигура 5.3: Спектър на комптъново разсеяните гама кванти на източника ^{241}Am с една ROI област (a) и 8 ROI области (b) за селектиране на енергията на Комптъновите електрони в TDCR канала.

След първоначалното валидиране на Compton-TDCR системата схемата за регистриране беше надградена, за да се намали общото време на измерване чрез възможност за едновременни измервания в 8 области на интерес. Това надграждане, предложено и осъществено от В. Йорданов, изискваше нови версии на FPGA и софтуер както за nanoMCA-II, така и за nanoTDCR+.

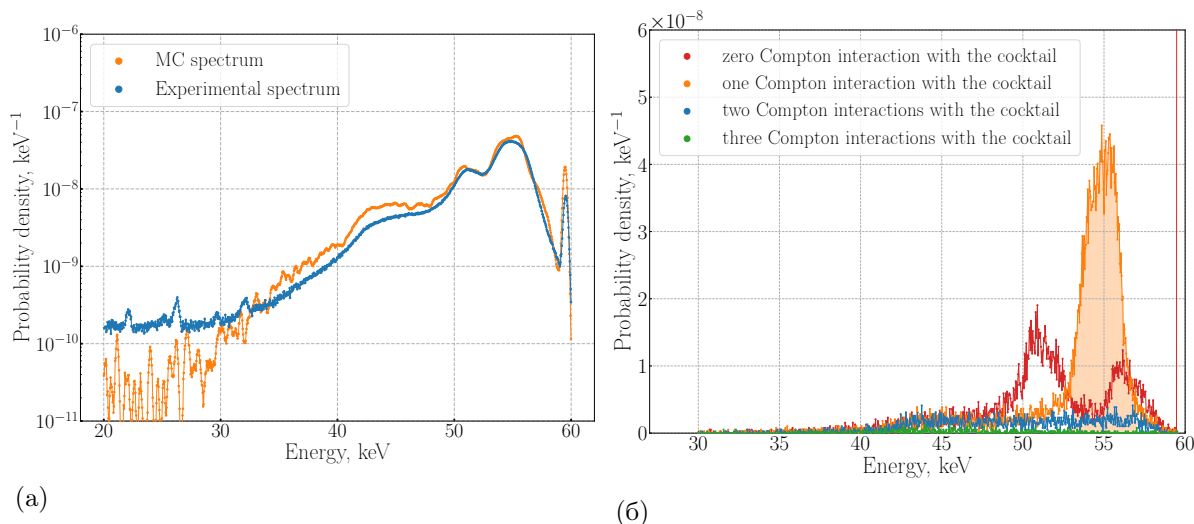
Необходими бяха само малки хардуерни промени: T , S и R изходите на nanoMCA-II бяха свързани към съответните входове на nanoTDCR+, както е показано на Фигура 5.4. Обновеният FPGA на nanoMCA-II позволява едновременна работа на осем непрепокриващи се ROI области. Когато амплитудата на импулса от HPGe детектора попадне в една от тези ROI области, се генерира логически импулс за съвпадение заедно с адрес, идентифициращ активната ROI област. Този адрес се предава към nanoTDCR+, който записва съответните скорости на двойни и тройни съвпадения в отделни последователни измервания, свързани с всяка ROI област, т.е. се извършва 8 едновременни TDCR измервания. По този начин едно измерване осигурява осем Комптън-TDCR набора от данни, съответстващи на осем различни енергии на Комптъновите електрони.



Фигура 5.4: Схема на надградената регистрираща система на Комптън-TDCR за 8 едновременни ROI области в гама спектъра.

5.2 Монте Карло симулация на спектъра на Комптъново разсеяните γ -лъчи

Експериментално измереният спектър на Комптъново разсеяните фотони, показан на [Фигура 5.3 \(а\)](#), изискваше допълнителен анализ, тъй като произходът на пика, разположен вляво от основния пик на Комптъново разсеяните γ -лъчи, първоначално не беше ясен. За да се интерпретира тази структура преди провеждането на систематични измервания на отклика на течните сцинтилатори, бяха извършени Монте Карло симулации, базирани на GEANT4 направени от С. Иванов. Експерименталният и симулираният спектър са сравнени на [Фигура 5.5 \(а\)](#), докато [Фигура 5.5 \(б\)](#) показва симулирания спектър, класифициран според броя на Комптъновите взаимодействия, претърпени от 59.54 keV фотоните в течния сцинтилатор.



Фигура 5.5: (а) Разпределение на вероятностната плътност на енергията, отдадена в nHPGe детектора за всеки 59.54 keV фотон, излъчен от източника. (б) Симулиран спектър на вероятностната плътност, класифициран според броя на Комптъновите взаимодействия, претърпени от фотона в LS коктейла преди детектирането му от nHPGe детектора. Оцветената област показва енергийния интервал на γ -лъчите, избран за броене в съвпадение между гама и TDCR канала [40]. Благодарности на С. Иванов.

Симулацията възпроизвежда основните особености на експерименталния спектър и

показва, че пикът около 51 keV произхожда главно от фотони, разсеяни извън течния сцинтилатор, най-вероятно в околни материали като капачката на шишенцето. Такива събития не са свързани с Комптънови електрони, образувани в сцинтилатора, и следователно не допринасят към валидните Комптън-TDCR съвпадения.

Интервалът 53–56 keV беше избран така, че да се предпочетат събития с единично Комптъново разсейване в коктейла, при които енергията на детектирания разсеян фотон осигурява добре дефинирана оценка на енергията на Комптъновия електрон. В тази област симулацията показва, че събитията с единично разсейване доминират, а приносът от многократни Комптънови взаимодействия е малък. Следователно МК изследването потвърждава, че Комптън-TDCR измерванията в областта 3–6 keV енергия на електроните могат да се извършват без значимо влияние от многократно Комптъново разсейване.

5.3 Комптън-TDCR експерименти за оценка на нелинейността на течни сцинтилатори

След конструирането и валидирането на системата, СТDCR-SU спектрометърът беше приложен за измерване на отклика на избрани течни сцинтилатори за електрони с ниски енергии. Измерваната величина беше средният брой детектирани фотоелектрони, детектирани в TDCR канала образувани при отдаване на известна енергията в сцинтилатора от Комптъновите електрони. Тази енергия беше определена от разликата между енергията на падащото γ -лъчение от ^{241}Am и енергията на разсеяния фотон, измерена с nHPGe детектора. Тъй като пробегът на електрони с енергия 3–6 keV е малък в сравнение с обема на сцинтилатора, беше прието, че тяхната кинетична енергия се отлага напълно в течния сцинтилатор.

Откликът на сцинтилатора беше изразен чрез средния брой детектирани фотоелектрони, а не чрез абсолютния брой излъчени сцинтилационни фотони, тъй като последното би изисквало допълнителна информация за оптичните загуби, ефективността за събиране на светлина и квантовите ефективности на ФЕУ-тата. За всяка избрана енергия на Комптъновите електрони средният брой детектирани фотоелектрони във всеки ФЕУ беше получен от отношенията на TDCR съвпаденията [22]:

$$\bar{n} * Z(E) = -3 \ln \left(1 - \frac{T(E)}{XY(E)} \right), \quad XY = AB, BC, AC, \quad Z \notin X, Y, \quad (5.1)$$

където XY означава съответната скорост на броене на двойни съвпадения, а T е скоростта на броене на тройни съвпадения, селектирана от събития в избраната ROI област на nHPGe детектора. Общият среден брой детектирани фотоелектрони беше изчислен като

$$\bar{n} = \sum *i = A, B, C \bar{n}_i. \quad (5.2)$$

Измереният отклик може да бъде използван директно в TDCR изчисленията на ефективността. В настоящата дисертация обаче той беше също така апроксимиран с полуемпиричния модел на Birks за йонизационно гасене, за да се сравнят получените стойности на kB със стойностите, определени независимо чрез метода на вариране на ефективността в TDCR метода:

$$L(E) = \int_0^E \frac{dE'}{1 + kB, \frac{dE'}{dx}}, \quad (5.3)$$

където dE'/dx съответства на спиращата способност на електрон с енергия E' , а kB означава

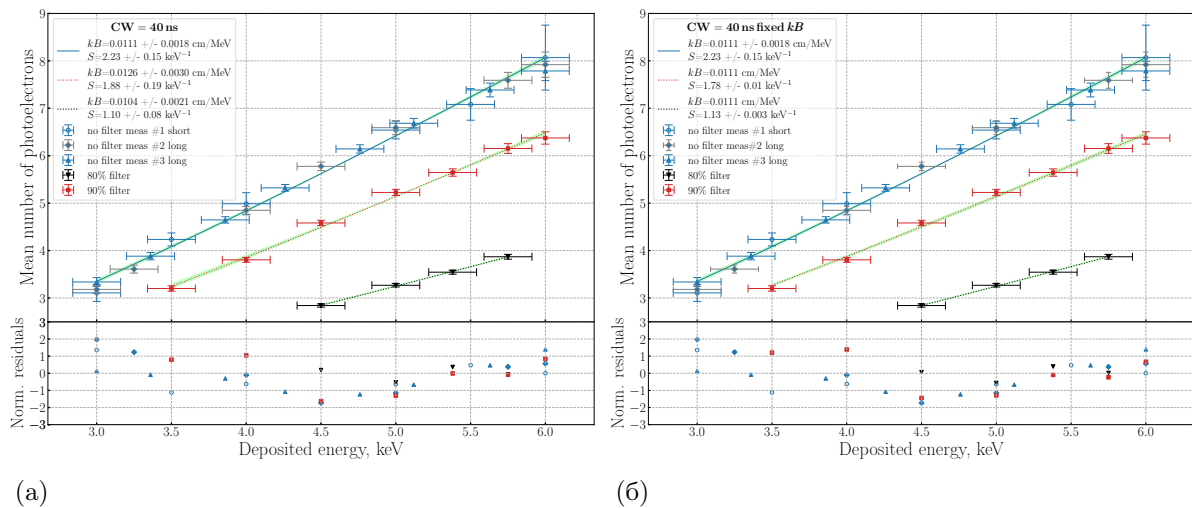
параметъра на йонизационно гасене. Измереният фотоелектронен добив беше описан чрез:

$$\bar{n}(E) = S \cdot L(E), \quad (5.4)$$

където S представлява средния брой детектирани фотоелектрони на keV в отсъствие на йонизационно гасене.

5.3.1 Резултати от Комптън-TDCR измерванията

Първите Комптън-TDCR измервания със системата CTDCR-SU бяха извършени с източник ^3H в толуен+PPO. Първоначалната конфигурация на регистриращата система позволяваше измерване на една енергия на Комптъновите електрони за едно измерване. За всяка избрана ROI област в γ -спектъра енергията на Комптъновия електрон беше определена от измерената енергия на разсеяния фотон, докато отношенията на TDCR съвпадения бяха използвани за изчисляване на средния брой детектирани фотоелектрони. Повтарянето на тази процедура за няколко позиции на ROI областта в спектъра на разсеяните гама кванти позволи да се определи откликът на сцинтилатора в областта приблизително между 3 и 6 keV. Резултатът, получен с 40 ns прозорец на съвпадение, е показан на [Фигура 5.6 \(а\)](#).



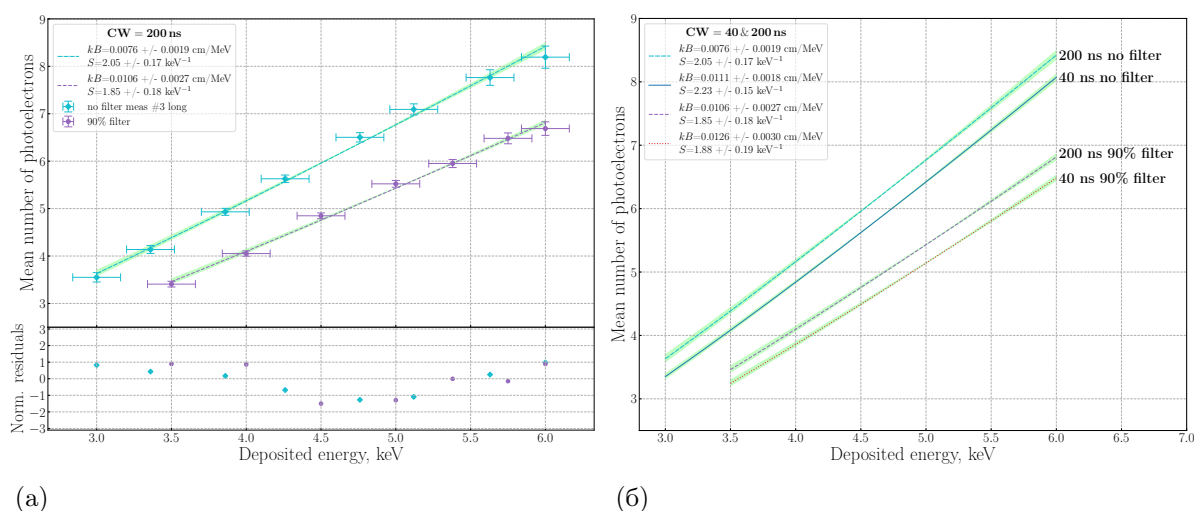
Фигура 5.6: (а) Зависимост на средния брой фотоелектрони от отдадената енергия в сцинтилатора за измервания, проведени с 40 ns прозорец на съвпадение. Сините маркери показват измерването на източника без филтър, червените маркери показват измерването с 90% сив филтър, а черните маркери показват измерването с 80% сив филтър. Със зелено е показан 1σ доверителен интервал. Стойностите на параметрите, определени чрез напасването (S , kB), са показани в легендата заедно с техните оценени неопределености, получени от апроксимирането. (б) апроксимиране на измерванията със сиви филтри при фиксирана стойност на kB [40]. kB [40].

Формулата на Birks беше апроксимирана към измервания, извършени без сив филтър и с филтри с различно пропускане. Получените стойности на kB са съгласувани в рамките на неопределеностите и не показват систематична зависимост от оптичното филтриране, както се очаква за параметър, свързан с отклика на сцинтилатора. За разлика от това, параметъра S , който представлява детектирания фотоелектронен добив на единица енергия, намалява при намаляване на пропускането на филтъра. Това потвърждава, че сивите филтри основно намаляват детектираното количество светлина, без да влияят върху нелинейността на сцинтилатора. Стойността на kB , получена без оптично филтриране, е в съответствие със стойността, определена чрез метода на вариране на ефективността при TDCR за същия детектор и сцинтилатор. Това съответствие подкрепя надеждността на CTDCR-SU системата

за определяне на светлинен отклик на течни сцинтилатори при ниски енергии отдадени в сцинтилатора.

Данните с филтри бяха анализирани и при фиксирана стойност на kB , получена от измерването без филтър, като беше оставен да се изменя само параметърът S . Както е показано на **Фигура 5.6 (б)**, експерименталните точки се възпроизвеждат в рамките на неопределеностите, което потвърждава, че ефектът на филтрите може да бъде описан основно чрез намаляване на S . Трябва да се отбележи силната корелация между kB и S , приблизително 0.99, при което измененията в единия параметър могат частично да компенсират измененията в другия при процедурата на апроксимиране.

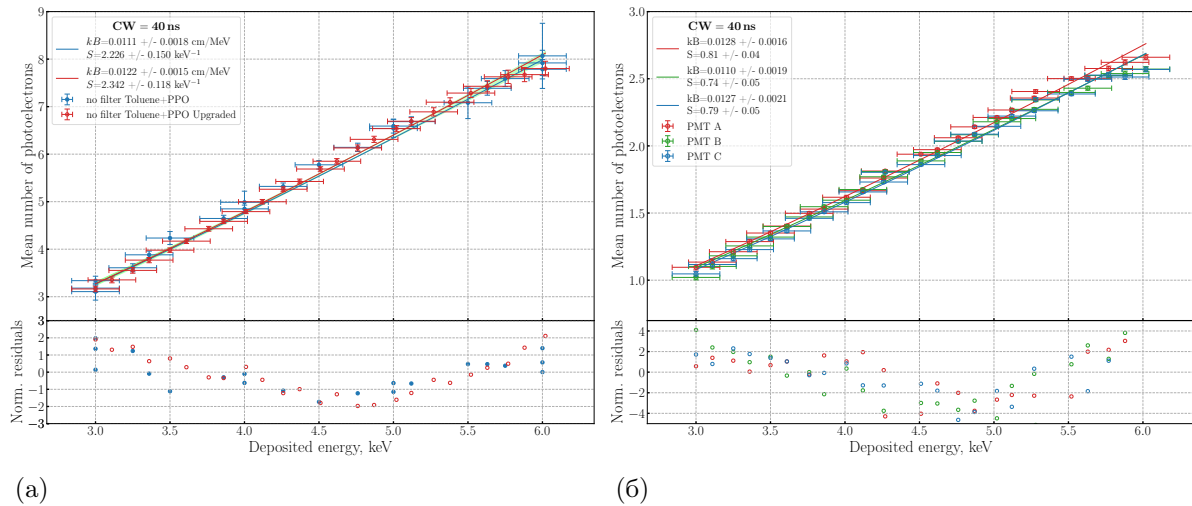
Същите измервания бяха оценени и с 200 ns прозорец на съвпадение, както е показано на **Фигура 5.7 (а)**. Апроксимираните криви на отклика, получени с 40 ns и 200 ns прозорци на съвпадение, са представени на **Фигура 5.7 (б)** за по-удобно сравнение.



Фигура 5.7: Среден брой детектирани фотоелектрони като функция на отдадената енергия в толуен+PPO: (а) данни, оценени с 200 ns CW; (б) апроксимираните криви на отклика, получени с 40 ns и 200 ns CW, без филтър и с филтър с 90% пропускане [40].

Данните, оценени с 200 ns прозорец, водят до систематично по-ниски стойности на kB в сравнение с данните, оценени с 40 ns прозорец, в съответствие с тенденцията, наблюдавана при измерванията чрез вариране на ефективността в TDCR метода. Това не трябва да се интерпретира като физична зависимост на kB от прозореца на съвпадение. По-скоро по-дългият прозорец включва по-голям принос от късните сцинтилационни фотони, включително от забавена флуоресценция. Тъй като формулата на Birks описва нелинейността на бързия сцинтилационен отклик и не включва сцинтилационната кинетика, резултатът за 200 ns трябва да се разглежда като ефективен, зависещ от условията на регистриране параметър.

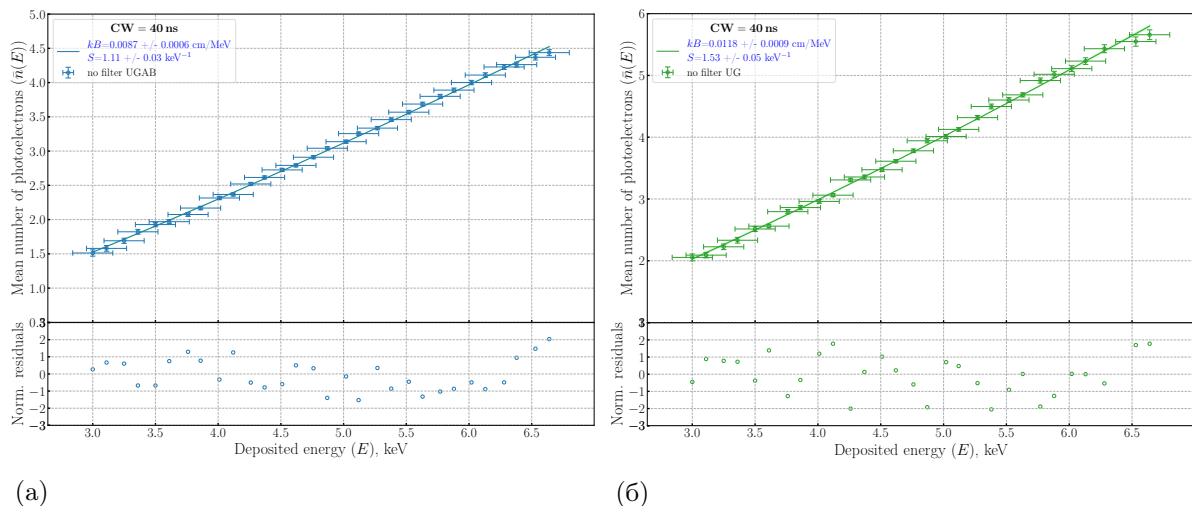
След първоначалните измервания системата СТDCR-SU беше надградена, за да позволи едновременно регистриране на осем непрепокриващи се ROI области в спектъра на разсеяните фотони. Надградената система беше тествана със същия източник ^3H -Wallac. Резултатите преди и след надграждането, показани на **Фигура 5.8 (а)**, са съгласувани в рамките на неопределеностите, което демонстрира, че режимът на многоканално измерване на енергията на Комптъновите електрони възпроизвежда отклика, получен с първоначалната едноканална конфигурация. Стойността на kB след надграждането също е в съответствие със стойността от вариране на ефективността, $kB = 0.0122(4) \text{ cm/MeV}$, като същевременно значително се намалява времето за измерване, необходимо за покриване на няколко енергии на Комптъновите електрони.



Фигура 5.8: Среден брой детектирани фотоелектрони като функция на отдадената енергия в сцинтилатора: (а) сравнение на отклика на СТDCR-SU преди и след надграждането на система; (б) отклик, оценен отделно за трите ФЕУ [40].

Като допълнително валидиране откликът беше оценен отделно за трите ФЕУ. Резултатите, показани на Фигура 5.8 (б), показват взаимно съгласувани стойности на kB , което потвърждава, че трите оптични канала на системата СТDCR-SU дават съгласувани оценки на отклика на сцинтилатора.

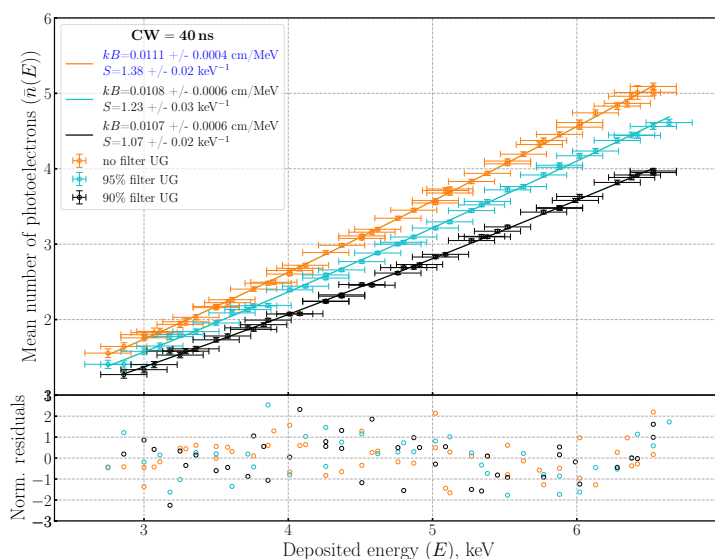
Допълнителни Комптън-TDCR измервания бяха извършени с други комбинации сцинтилатор-радионуклид. Проба ^{14}C в Ultima Gold AB беше изготвена в полиетиленово шишенце, чиито дифузни стени подобряват събирането на светлина. Получената крива на отклика е показана на Фигура 5.9 (а). Стойност на kB получена от апроксимиране на експерименталните данни е в съответствие със стойността, получена чрез метода на вариране на ефективността при TDCR, $kB = 0.0080(6)$ cm/MeV. Параметърът S е приблизително два пъти по-нисък от този за толуен+PPO, което показва, че съставът на сцинтилатора има доминиращо влияние върху детектирания фотоелектронен добив.



Фигура 5.9: Среден брой детектирани фотоелектрони като функция на отдадената енергия за измервания, проведени с 40 ns прозорец на съвпадение (CW): (а) проба с ^{14}C в UG AB; (б) проба с ^{63}Ni в UG [40].

След това откликът на Ultima Gold беше изследван с източник на ^{63}Ni , изготвен в стъклоно шишенце, облепено с дифузно тиксо. Измерената крива на отклика е показана на [Фигура 5.9 \(б\)](#). Стойността на kB , получена от апроксимиране на експерименталните данни, е в съответствие в рамките на неопределеността със стойността от вариране на ефективността, $kB = 0.0105(5) \text{ cm/MeV}$.

Накрая беше измерен източник на ^{55}Fe в Ultima Gold без оптичен филтър и с два сиви филтъра. Кривата на отклика, показана на [Фигура 5.10](#), съдържа по-голям брой експериментални точки в сравнение с първоначалните измервания с ^3H . Стойности на kB получени от апроксимацията на данните със и без филтри, са съгласувани в рамките на неопределеностите, докато S намалява систематично с увеличаване на оптичната плътност, както се очаква. Стойностите на kB също така съответстват на стойността по подразбиране $kB = 0.01 \text{ cm/MeV}$, използвана в кода за изчисляване на TDCR ефективността на ^{55}Fe . Освен това съгласието между стойностите на kB , получени за $^{63}\text{Ni/UG}$ и $^{55}\text{Fe/UG}$, допълнително подкрепя надеждността на Комптън-TDCR определянето за Ultima Gold.



Фигура 5.10: Среден брой детектирани фотоелектрони като функция на отдадената енергия в UG за проба с ^{55}Fe , получен от измервания с 40 ns CW и с два различни филтъра.

Сравнението между резултатите от Комптън-TDCR и от метода на вариране на ефективността в TDCR е обобщено в [Таблица 5.1](#). Съответствието между двата независими метода е един от основните резултати на настоящата работа и валидира използването на системата STDCR-SU за определяне на нискоенергетичния отклик на течни сцинтилатори.

Таблица 5.1: Сравнение на параметъра на йонизационно гасене kB , получен от Комптън-TDCR измервания и от метода на вариране на ефективността в TDCR метода за комбинациите сцинтилатор-радионуклид, изследвани в дисертацията.

Радионуклид	Сцинтилатор	kB Комптън-TDCR cm/MeV	kB вариране на ефективността cm/MeV
^3H	toluene+PPO	0.0122(15)	0.0122(4)
^{14}C	Ultima Gold AB	0.0087(6)	0.0080(6)
^{63}Ni	Ultima Gold	0.0118(9)	0.0105(5)
^{55}Fe	Ultima Gold	0.0111(4)	0.0100

В същото време апроксимирането на данните от Комптън-TDCR системата потвърждават силната корелация между kB и S , както е докладвано и от Sabot *et al.* [41]. Следователно една и съща крива на отклика може да бъде описана с повече от една комбинация от тези параметри, особено когато броят на експерименталните точки е ограничен или неопределеностите са големи.

Основно предимство на Комптън-TDCR метода е, че експериментално измереният отклик не е задължително да бъде параметризиран чрез формулата на Birks. Вместо това той може да бъде въведен директно в TDCR изчисленията на ефективността, както при подхода ZoMBieS, като по този начин се намалява зависимостта от конкретен модел на гасене. Това е особено важно за пластмасови сцинтилатори, за които методът на вариране на ефективността не може да бъде приложен по същия начин, както при течносцинтилационни източници.

Тази глава сравнява TDCR системите, налични в Лабораторията по метрология на йонизиращите лъчения: TDCR-SU, miniTDCR, μ TDCR и новоразработената CTDCR-SU. Целта е да се валидира TDCR каналът на CTDCR-SU чрез сравнение на неговите характеристики с утвърдени TDCR броячи. Такова валидиране е от съществено значение, тъй като Компютърен TDCR методът изисква TDCR каналът да осигурява точни и съгласувани измервания в съвпадение.

Сравнението се основава главно на активността, определена за всеки източник с различните броячи. За източниците на ^3H и ^{14}C беше приложено и вариране на ефективността със сиви филтри, за да се определят ефективностите за двойни и тройни съвпадения, FOM и параметърът на йонизационно гасене kB . Стойността на kB беше избрана като тази, при която зависимостта на изчислената активност от ефективността на детектиране е минимална.

6.1 ^3H Wallac източник

Таблица 6.1 представя резултатите от измерванията чрез вариране на ефективността на ^3H Wallac източник в сцинтилатор толуен+PPO, извършени с TDCR системите, както и параметрите, използвани за сравнение на тяхното представяне.

Таблица 6.1: Резултати, получени от измерванията чрез вариране на ефективността на ^3H Wallac източник, извършени с всички TDCR системи. Стойностите, дадени в скоби, са стандартните отклонения.

Детектор	TDCR-SU	miniTDCR	μ TDCR	CTDCR-SU
kB (cm/MeV)	0.0130(7)	0.0110(5)	0.0130(5)	0.0122(4)
TDCR	0.494	0.655	0.747	0.774
ε_D	0.5355(8)	0.6909(4)	0.7653(4)	0.7908(3)
ε_T	0.2647(8)	0.4526(6)	0.5714(7)	0.6117(4)
FOM (ph.e ⁻ /keV)	0.877	1.448	2.235	2.505
A (Bq)	366.9(25)	367.1(18)	369.5(19)	368.1(16)

Резултатите, представени в Таблица 6.1, показват, че сред сравнените детектори ефективностите за двойни и тройни съвпадения са най-високи за системата CTDCR-SU. Увеличението е около 3% за ε_D и около 7% за ε_T в сравнение с μ TDCR. В сравнение със системата TDCR-SU увеличението на ефективностите за двойни и тройни съвпадения е съответно около 57% и 65%.

Стойностите на kB , представени в Таблица 6.1, са в съответствие в рамките на оценените неопределености, с изключение на резултата за miniTDCR детектора. Причината за тази разлика изисква внимание, тъй като не е физически оправдано да се получават различни стойности на kB за един и същ сцинтилационен коктейл и един и същ радионуклид.

Оценените активности са в добро съгласие в рамките на оценените неопределености, което показва, че TDCR моделът по вероятно компенсира чрез разликата в kB .

6.2 ^{14}C Wallac източник

Таблица 6.2 представя резултатите от измерванията чрез вариране на ефективността на ^{14}C Wallac източник в сцинтилатор толуен+PPO, извършени с TDCR системите, както и параметрите, използвани за сравнение на тяхното представяне.

Таблица 6.2: Резултати, получени от измерванията чрез вариране на ефективността на ^{14}C Wallac източник, извършени с всички TDCR системи. Стойностите, дадени в скоби, са стандартните отклонения.

Детектор	TDCR-SU	miniTDCR	μ TDCR	CTDCR-SU
kB (cm/MeV)	0.0098(3)	0.0070(4)	0.0078(4)	0.0110(4)
TDCR	0.947	0.969	0.978	0.980
ε_D	0.9509(2)	0.9708(3)	0.9782(1)	0.9794(1)
ε_T	0.9006(3)	0.9406(5)	0.9565(2)	0.9598(2)
FOM (ph.e ⁻ /keV)	0.807	1.287	1.899	2.360
A (Bq)	1775.5(37)	1775.0(35)	1776.2(36)	1778.5(35)

Тъй като ^{14}C излъчва β частици с по-висока енергия в сравнение с ^3H , сцинтилационният светлинен добив е по-голям и ефективностите на броеве са по-близки до единица. В резултат на това относителните разлики между TDCR броячите са по-малки. Резултатите в Таблица 6.2 показват, че TDCR каналът на системата CTDCR-SU осигурява най-висока ефективност на детектиране сред броячите, налични в Лабораторията по метрология на йонизиращите лъчения.

Стойностите на kB , получени чрез метода на вариране на ефективността, обаче отново се различават между сравнените броячи. Това е важно, тъй като настоящият ^{14}C източник и ^3H източникът, разгледан в Раздел 6.1, са изготвени в един и същ сцинтилационен коктейл. Ако kB представляваше единствено вътрешните свойства на сцинтилатора, свързани с йонизационното гасене, биха се очаквали съвместими стойности за един и същ коктейл, поне когато се използват един и същ детектор и един и същ модел на ефективността. С изключение на системата CTDCR-SU, такава съгласуваност не беше наблюдавана в рамките на оценените неопределености.

Това предполага, че стойността на kB , оценена чрез вариране на ефективността, може да бъде повлияна от специфични за брояча особености на отклика или от ограничения на модела на ефективността, а не само от отклика на сцинтилатора. Въпреки различията в избраните стойности на kB , активностите, определени със сравнените TDCR броячи, остават съгласувани в рамките на 0.2%. Това показва, че при практическото TDCR определяне на активност измененията в оценената стойност на kB могат частично да компенсират зависими от детектора ефекти, като същевременно водят до съгласувани оценки на активността.

Такова несъответствие в стойността на kB се наблюдава и за още два източника в сцинтилатор толуен+PPO. Оценената стойност на kB не показва очевидна зависимост от ефективността на детектора и за един и същ сцинтилационен коктейл се определят различни стойности на kB . Това може да се интерпретира по два начина: или съществуват разлики

в състава на LS коктейла, които водят до различни стойности на kB , или TDCR моделът компенсира експериментални вариации чрез промяна на стойността на параметъра kB . Това остава отворен въпрос, който изисква допълнителна експериментална работа – оценка на възпроизводимостта на определянето на kB , по-добър контрол на експерименталните условия, например нагряването на източниците, както и подробен анализ на параметрите, които могат да повлияят върху определянето на kB .

6.3 ^{14}C в сцинтилатор Ultima Gold AB

Източникът ^{14}C беше изготвен от ацетонов разтвор на стандартизирана бензоена киселина съдържаща ^{14}C . Приблизително 1 mL от този разтвор беше смесен с 15 mL сцинтилационен коктейл Ultima Gold AB (UG AB) в 20 mL полиетиленово шишенце. Резултатите са представени в Таблица 6.3.

Таблица 6.3: Резултати, получени от измерванията чрез вариране на ефективността на ^{14}C в сцинтилатор Ultima Gold AB. Стойностите, дадени в скоби, са стандартните отклонения.

Детектор	TDCR-SU	CTDCR-SU
kB (cm/MeV)	0.0085(6)	0.0080(6)
TDCR	0.889	0.959
ε_D	0.9059(1)	0.9609(1)
ε_T	0.8051(1)	0.9212(2)
FOM (ph.e ⁻ /keV)	0.385	1.017
A (Bq)	2427.0(50)	2428.6(40)

Резултатите в Таблица 6.3 показват добро съответствие между активностите, определени със системите TDCR-SU и CTDCR-SU. Стойностите на kB , получени чрез метода на вариране на ефективността, също са съгласувани в рамките на своите неопределености, което показва съвместими оценки на параметъра на йонизационно гасене за ^{14}C в UG AB.

Системата CTDCR-SU осигурява значително по-високи TDCR стойности, както и по-високи ефективности за двойни и тройни съвпадения. Това се отразява и в нейния FOM, който е повече от 2.5 пъти по-голям от този на TDCR-SU.

6.4 ^{63}Ni в сцинтилатор Ultima Gold

Пробата с ^{63}Ni беше изготвена от сертифициран разтвор в 15 mL сцинтилационен коктейл Ultima Gold (UG). Пробата беше изготвена в стандартен 20 mL стъклоно шишенце с капачка, облицована с алуминиево фолио. Шишенцето беше облепено с дифузно тиксо, за да се намалят ефектите от вътрешното отражение. Резултатите са представени в Таблица 6.4.

Таблица 6.4: Резултати, получени от измерванията чрез вариране на ефективността на ^{63}Ni в сцинтилатор Ultima Gold. Стойностите, дадени в скоби, са стандартните отклонения.

Детектор	TDCR-SU	CTDCR-SU
kB (cm/MeV)	0.0110(6)	0.0105(4)
TDCR	0.712	0.872
ε_D	0.7101(1)	0.8616(9)
ε_T	0.5054(2)	0.7515(8)
FOM (ph.e ⁻ /keV)	0.484	1.331
A (Bq)	3702.3(74)	3702.9(37)

Резултатите в Таблица 6.4 показват отлично съгласие между активностите, определени със системите TDCR-SU и CTDCR-SU. Стойностите на kB , получени чрез метода на вариране на ефективността, също са съгласувани в рамките на своите стандартни отклонения.

По-високата ефективност на детектиране на CTDCR-SU ясно се наблюдава за този нискоенергетичен β -излъчвател. В сравнение с TDCR-SU ефективностите за двойни и тройни съвпадения са по-високи съответно с около 18% и 33%. Това подобрение се отразява и в по-голямата стойност на FOM, което показва по-висок детектиран фотоелектронен добив на единица отдадена енергия.

6.5 ^{55}Fe в сцинтилатор Ultima Gold

Източник на ^{55}Fe в Ultima Gold беше изготвен в 20 mL стъклено шишенце с капачки, облицовани с фолио, като стените на флаконите отново бяха облепени с дифузно тиксо. Активността на пробите беше изчислена с кода Fe55_6, написан от P. Cassette, който използва актуализирани данни за разпада към 19 март 2024 г. Активността, оценена с този код, е представена в Таблица 6.5.

Таблица 6.5: Резултати, получени от измерванията на ^{55}Fe , извършени с TDCR системите. Стойностите, дадени в скоби, са стандартните отклонения.

Sample	Detector	TDCR-SU	miniTDCR	μ TDCR	CTDCR-SU	метод на изготв.
Proba 4	A (Bq)	1129.7(57)	1138.7(57)	1150.1(57)	1159.0(57)	1153(18)
Proba 4	ε_D	0.3057(12)	0.4352(17)	0.6130(12)	0.7396(14)	—

Резултатите, представени в Таблица 6.5, показват, че определянето на активността на ^{55}Fe се влияе от ефективността на детектиране на TDCR системата. Това е очаквано, тъй като ^{55}Fe е много нискоенергетичен радионуклид, разпадащ се чрез електронен захват, при който сцинтилационният светлинен добив е много малък. При тези условия системи с ниска ефективност могат да доведат до подценяване на активността на измерваната проба.

Системата CTDCR-SU осигури най-висока ефективност на детектиране за ^{55}Fe , надвишаваща тази на TDCR-SU, miniTDCR и μ TDCR съответно с около 60%, 41% и 17%. Това представлява ясно предимство за TDCR измервания на много нискоенергетични радионуклиди, при които ефективността на детектиране е силно повлияна от малкия сцинтилационен светлинен добив.

Активностите, получени с двете системи с най-висока ефективност, μ TDCR и CTDCR-SU, са съгласувани в рамките на своите неопределености. За разлика от това, резултатът от понискоефективната система TDCR-SU не е съвместим със стойността, получена с CTDCR-SU, нито с активността, оценена от метода на изготвяне на източника, 1153(18) Bq. Резултатът от miniTDCR също не е напълно съгласуван със стойностите от μ TDCR и CTDCR-SU, въпреки че остава съвместим с оценката, базирана на изготвянето. Трябва да се отбележи, че активността от изготвянето е изчислена от сертификат, издаден на 1 март 2018 г., с използване на по-стари данни за разпада на ^{55}Fe ; преизчисляването с актуализирани данни за разпада се очаква да доближи тази стойност до резултата от CTDCR-SU.

Като цяло сравнението потвърждава метрологичните възможности на TDCR канала на CTDCR-SU. За ^3H , ^{14}C и ^{63}Ni активностите, определени с CTDCR-SU, са в съгласие с тези, получени с утвърдените TDCR броячи. За ^{55}Fe най-добро съгласие се получава между системите с най-висока ефективност, което подчертава значението на високата ефективност на детектиране при много нискоенергетични радионуклиди. Тези резултати валидират CTDCR-SU като абсолютна течносцинтилационна броячна система и подкрепят използването ѝ като TDCR канал на Комптън-TDCR спектрометъра.

Влиянието на Корекцията за случайни съвпадения върху избора на параметъра kB при измервания чрез вариране на ефективността със сиви филтри обаче не беше оценявано. Тъй като скоростите на броене се изменят при използване на филтри с различно пропускане, случайните съвпадения могат да повлияят на вариацията на активността, използвана за определяне на kB . Това е важно и при сравняване на нови стойности на kB с по-ранни резултати, получени преди такива корекции да станат рутинно достъпни.

За да се изследва този ефект, експериментални данни от вариране на ефективността, получени с няколко TDCR системи и радионуклиди, бяха анализирани повторно. За всеки набор от данни параметърът kB беше определен както със, така и без прилагане на аналитичната корекция за случайни съвпадения, след което получените стойности бяха сравнени.

7.1 Системи и измервания

Детекторните системи използвани за извършване на измерванията в СУ са представени в [Глава 6](#). Системите използвани в Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB) са копие на системите използвани в СУл

Източници ^3H и ^{14}C от стандартния комплект на Wallac RackBeta, изготвени в коктейл на основата на толуен, бяха измерени със системите TDCR-SU и miniTDCR-SU. Източници на ^3H и ^{63}Ni бяха изготвени в коктейл Ultima Gold в запечатани стъклени шишенца. Стъклените шишенца бяха облепени с дифузно тиксо, за да се намалят ефектите от пълното вътрешно отражение. Източникът $^3\text{H}/\text{UG}$ беше измерен с miniTDCR детектора на LNHB, докато източникът $^{63}\text{Ni}/\text{UG}$ беше измерен с microTDCR устройството на LNHB. Трябва да се отбележи, че дифузното тиксо беше подменено между измервателните кампании през 2022 и 2023 г. в SU.

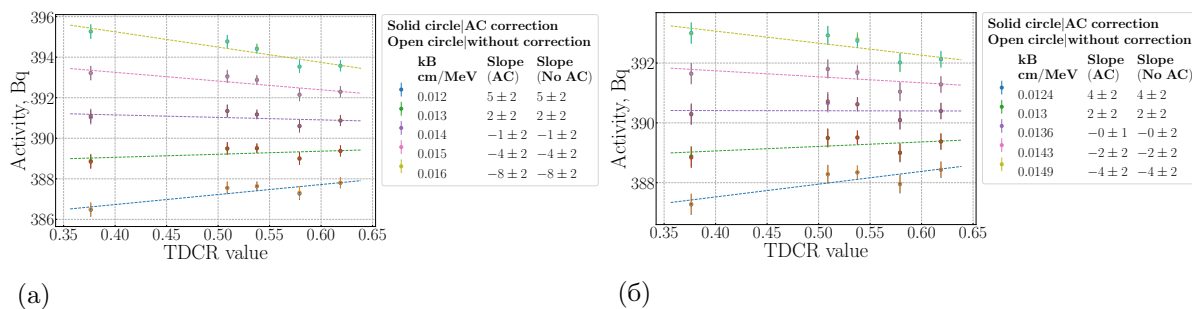
Аналитичната корекция за случайни съвпадения беше приложена съгласно процедурата, описана в [19]. За да се оцени нейното влияние, всяко измерване беше обработено два пъти: първо без корекцията, а след това с приложена корекция. Тази процедура беше извършена както за радиоактивния източник, така и за съответната фонова проба.

Чистите скорости на броене бяха получени чрез изваждане на скоростите на фонвата проба от скоростите на източника, като по този начин бяха получени два набора от данни: единият базиран на некоригирани данни, а другият — на данни, коригирани за случайни съвпадения. След това двата набора от данни бяха анализирани с TDCR код за пресмятане на ефективностите, за да се определят съответните активности и стойности на kB от измерванията чрез вариране на ефективността.

Бяха разгледани два прозореца на съвпадение: 40 ns и 200 ns. Прозорецът от 40 ns представлява често използвана настройка при TDCR измервания, докато прозорецът от 200 ns беше използван за изследване на влиянието от включването на по-голяма част от забавената сцинтилационна компонента. Приложените мъртви времена бяха 40 μs за измерванията в Софийския университет и 50 μs за тези, извършени в LNHB.

7.2 Резултати

За илюстрация на ефекта от корекцията за случайни съвпадения върху резултатите от варирането на ефективността, коригираните и некоригираните данни са представени на [Фигура 7.1](#). Както е показано на [Фигура 7.1 \(а\)](#), прилагането на корекцията за случайни съвпадения не влияе върху определянето на параметъра kB за изследвания източник и прозорец на съвпадение. Дори когато се използва по-малка стъпка при варирането на kB , както е показано на [Фигура 7.1 \(б\)](#), стойностите на параметъра kB със и без прилагане на корекция за случайни съвпадения остават еднакви. Подобни резултати са получени и за всички останали измерени източници.



Фигура 7.1: Резултати от вариране на ефективността за проба с ^3H в коктейл на основата на толуен, измерена със системата miniTDCR в SU (а), и повторно анализирана с намалена стъпка на kB (б). Не се забелязва промяна на наклона при линейното апроксимиране на данните с и без приложена корекция [42].

[Таблицы 7.1](#) and [7.2](#) представят скоростите на броене на двойни (D) и тройни (T) съвпадения, отношението T/D и съответната активност (A), всички оценени с използване на определените стойности на kB . [Таблица 7.1](#) се отнася за измервания, проведени с прозорец на съвпадение 40 ns, а [Таблица 7.2](#) съответства на измервания, извършени с прозорец 200 ns. И за двата прозореца на съвпадение резултатите показват, че големината на корекцията за случайни съвпадения е по-малка от статистическите флуктуации на измерените скорости на броене.

Сравнение на стойностите на kB , оценени от измервания чрез вариране на ефективността с прозорци на съвпадение 40 ns и 200 ns, е представено в [Таблица 7.3](#). За ^3H използването на по-дълъг прозорец на съвпадение в повечето случаи води до по-ниска оценена стойност на kB . Подобна зависимост на параметъра kB от настройката на прозореца на съвпадение е докладвана и по-рано [12]. Това поведение не трябва да се интерпретира като физическа промяна на параметъра на йонизационно гасене на Birks.

Резултатите също така показват, че определените стойности на kB проявяват вариации, чийто произход все още не е изяснен. За даден източник и сцинтилационен коктейл стойността на kB зависи от TDCR броячната система, но оценените активности на източника остават съгласувани в рамките на статистическите неопределености (виж [Таблицы 7.1](#) and [7.2](#)).

Влиянието на аналитичната корекция за случайни съвпадения върху скоростите на броене в съвпадение и върху оценената активност е малко и остава в рамките на статистическите неопределености, като не се наблюдава влияние върху определянето на kB . Това заключение обаче е валидно за изследвания режим на измерване и не трябва автоматично да се приема за други коктейли, активности, настройки на мъртвото време или алтернативни техники за вариране на ефективността. Тези резултати не са аргумент срещу прилагането на корекцията за случайни съвпадения. Напротив, тъй като съществува аналитична корекция и тя може

лесно да бъде приложена, използването ѝ трябва да се разглежда като съществена част от анализа на TDCR данни [21].

Резултатите, представени в настоящата глава, както и Комптгън-TDCR резултатите, представени в Раздел 5.3, показват, че е необходима допълнителна теоретична и експериментална работа за изясняване на определянето на параметъра kB и за по-добро разбиране на йонизационното гасене в рамките на TDCR метода.

Таблица 7.1: Сравнение на скоростите на броење на двойни D и тройни T съвпадения, отношението T/D и активността A на пробите за измерване с 40 ns CW [42].

Детектор	Нуклид Коктейл	Корекция	D , s^{-1}	T , s^{-1}	T/D	A , Bq
TDCR-SU 2022 $kB=0.0144$ cm/MeV	^3H толуен	без АС	192.05 (25)	87.67 (14)	0.456 (2)	389.2 (15)
		със АС	192.05 (25)	87.66 (14)	0.456 (2)	389.2 (15)
		% корек.	0.002	0.003	0.001	0.002
miniTDCR-SU 2022 $kB=0.0136$ cm/MeV	^3H толуен	без АС	254.77 (19)	157.65 (20)	0.619 (1)	390.0 (9)
		със АС	254.77 (19)	157.65 (20)	0.619 (1)	389.9 (9)
		% корек.	0.003	0.003	0.0003	0.003
TDCR-SU 2023 $kB=0.0130$ cm/MeV	^3H толуен	без АС	206.19 (16)	101.55 (11)	0.493 (1)	386.4 (10)
		със АС	206.18 (16)	101.54 (11)	0.493 (1)	386.4 (10)
		% корек.	0.01	0.007	-0.002	0.003
miniTDCR-SU 2023 $kB=0.0132$ cm/MeV	^3H толуен	без АС	268.25 (14)	176.23 (18)	0.657 (1)	389.7 (12)
		със АС	268.24 (14)	176.23 (18)	0.657 (1)	389.7 (12)
		% корек.	0.003	0.004	0.001	0.003
miniTDCR-LNHB $kB=0.0122$ cm/MeV	^3H UG	без АС	8311 (28)	3686 (25)	0.443 (8)	17295 (122)
		със АС	8308 (28)	3683 (25)	0.443 (8)	17298 (122)
		% корек.	0.03	0.08	0.05	-0.02
TDCR-SU 2023 $kB=0.009$ cm/MeV	^{14}C толуен	без АС	1689 (1)	1599 (1)	0.947 (1)	1775 (3)
		със АС	1689 (1)	1599 (1)	0.947 (1)	1775 (3)
		% корек.	0.002	0.002	0.0005	0.002
microTDCR-LNHB $kB=0.0074$ cm/MeV	^{63}Ni UG	без АС	2373 (3)	2003 (3)	0.844 (2)	2822 (16)
		със АС	2373 (3)	2003 (3)	0.844 (2)	2822 (16)
		% корек.	0.007	0.010	0.003	0.007

Таблица 7.2: Сравнение на скоростите на броене на двойни D и тройни T съвпадения, отношението T/D и активността A за измерване с 200 ns CW [42].

Детектор	Нуклид Коктейл	Корекция	D , s^{-1}	T , s^{-1}	T/D	A , Bq
TDCR-SU 2022 $kB=0.0138$ cm/MeV	3H толуен	без AC	198.65 (26)	93.40 (16)	0.470 (2)	390.3 (14)
		със AC	198.63 (26)	93.38 (16)	0.456 (2)	404.5 (20)
		% корек.	0.008	0.016	0.007	0.004
miniTDCR-SU 2022 $kB=0.0128$ cm/MeV	3H , толуен	без AC	260.53 (21)	164.59 (23)	0.632 (2)	390.0 (10)
		със AC	260.49 (21)	164.55 (23)	0.627 (2)	394.2 (14)
		% корек.	0.014	0.016	0.002	0.008
TDCR-SU 2023 $kB=0.0120$ cm/MeV	3H толуен	без AC	212.48 (17)	107.41 (12)	0.506 (1)	386.9 (13)
		със AC	212.38 (16)	107.32 (12)	0.498 (1)	392.8 (18)
		% корек.	0.04	0.03	0.010	0.018
miniTDCR-SU 2023 $kB=0.0124$ cm/MeV	3H толуен	без AC	273.66 (17)	183.15 (18)	0.669 (1)	390.9 (13)
		със AC	273.62 (18)	183.11 (18)	0.663 (1)	394.3 (14)
		% корек.	0.02	0.02	0.003	0.009
miniTDCR-LNHB $kB=0.0126$ cm/MeV	3H UG	без AC	8568 (30)	3890 (27)	0.454 (8)	17468 (133)
		със AC	8555 (31)	3876 (27)	0.453 (8)	17482 (134)
		% корек.	0.15	0.37	0.23	-0.08
TDCR-SU 2023 $kB=0.0088$ cm/MeV	^{14}C толуен	без AC	1693 (1)	1606 (1)	0.949 (1)	1776 (3)
		със AC	1693 (1)	1599 (1)	0.947 (1)	1776 (3)
		% корек.	0.001	0.01	0.002	0
microTDCR-LNHB $kB=0.0074$ cm/MeV	^{63}Ni UG	без AC	2394 (3)	2013 (3)	0.848 (2)	2833 (15)
		със AC	2394 (3)	2001 (3)	0.848 (2)	2835 (15)
		% корек.	0.03	0.05	0.002	0.02

Таблица 7.3: Стойности на kB , получени от измервания с 40 ns и 200 ns CW [42].

Детектор	Нуклид Коктейл	kB за 40 ns CW, cm/MeV	kB за 200 ns CW, cm/MeV
TDCR-SU 2022	3H толуен	0.0144 (3)	0.0138 (3)
miniTDCR-SU 2022	3H толуен	0.0136 (2)	0.0128 (2)
TDCR-SU 2023	3H толуен	0.0130 (2)	0.0120 (1)
miniTDCR-SU 2023	3H толуен	0.0132 (3)	0.0124 (2)
miniTDCR-LNHB	3H UG	0.0122 (10)	0.0126 (10)
TDCR-SU 2023	^{14}C толуен	0.0090 (2)	0.0088 (2)
microTDCR-LNHB	^{63}Ni UG	0.0074 (1)	0.0074 (4)

Основна трудност при оценката на ефекта от корекцията за случайни съвпадения върху TDCR анализа е липсата на референтен набор от данни с известни скорости на броене и активност. Такъв референтен набор би позволил коригираните и некоригираните резултати да бъдат сравнявани не само помежду си, но и с истинските стойности, което би дало възможност да се оцени как корекцията влияе върху крайната активност и избора на параметъра kB .

За преодоляване на това ограничение бяха проведени допълнителни изследвания с МК код, разработен от К. Митев за симулиране на list-mode данни [43]. Предимството на този подход е, че симулираната активност и условията на броене са известни, което осигурява референтна основа, спрямо която TDCR анализът може да бъде тестван. List-mode файловете бяха анализирани с кода *cdt_logic*, разработен в [44]. Целта беше да се изследва как се държи корекцията за случайни съвпадения, когато един и същ симулиран файл се анализира с различни прозорци на съвпадение, и как това влияе върху оценката на активността и избора на kB .

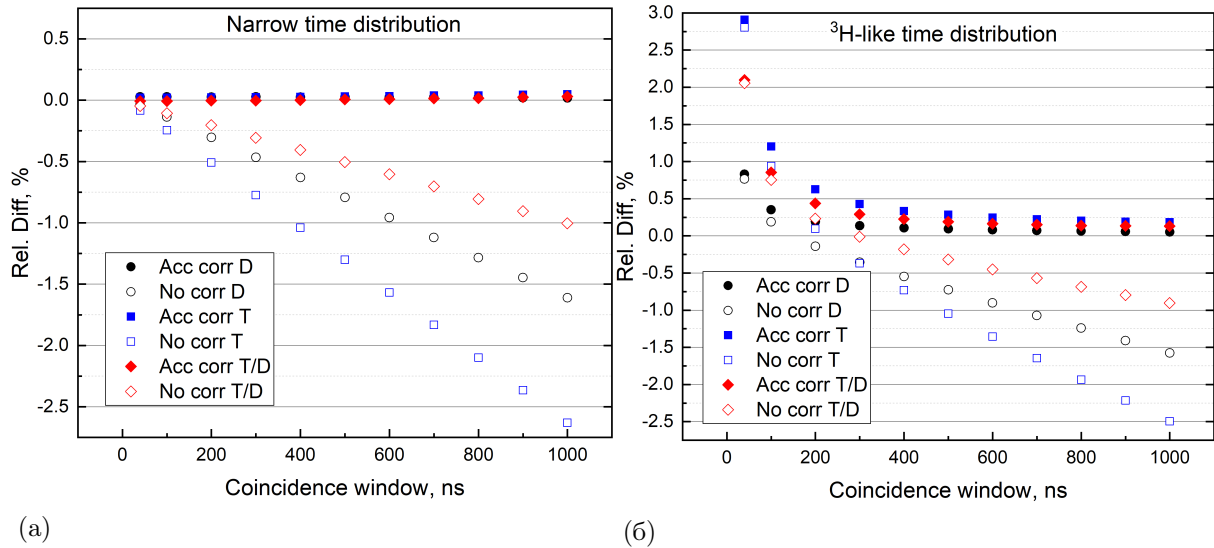
Бяха използвани два симулирани набора от данни с еднакви входни параметри, с изключение на времето разпределение на импулсите между ФЕУ-тата. И двете разпределения бяха описани като конволюция на функция на Фойт и експоненциално модифицирано Гаусово разпределение. Първото разпределение беше избрано така, че да наподобява реалистично ^3H -подобно времево разпределение, докато второто беше изкуствено, нефизично разпределение с изключително малка ширина от порядъка на 10^{-15} s, включено с цел валидиране на кода за анализ.

Двата симулирани набора от данни бяха анализирани за няколко прозореца на съвпадение, както със, така и без прилагане на аналитичната корекция за случайни съвпадения. Резултатите са представени на [Фигура 8.1](#).

За симулацията с тясното времево разпределение корекцията е много ефективна: след нейното прилагане оценените скорости на броене и отношението T/D са в съгласие с МК референтните стойности за всички прозорци на съвпадение, както е показано на [Фигура 8.1 \(а\)](#). За разлика от това, при реалистичното ^3H -подобно времево разпределение ефективността на корекцията зависи от ширината на прозореца на съвпадение. Съгласието се подобрява при по-големи прозорци, докато при по-къси прозорци на съвпадение отклонения са по-големи, както е показано на [Фигура 8.1 \(б\)](#). Това поведение най-вероятно се дължи на пропуснати истински съвпадения, когато прозорецът на съвпадение е твърде тесен. От тези резултати може да се заключи, че кодът за анализ на работи правилно и че корекцията за случайни съвпадения е от съществено значение за правилната оценка на скоростите на броене в съвпадение.

Скоростите на броене, получени с кода, заедно с МК референтните стойности и относителните им разлики, са обобщени в [Таблица 8.1](#). Въпреки че съществуват разлики в някои от отделните скорости на броене, активността, оценена с TDCR модела, е в много добро съгласие с МК референтната стойност. Това показва, че TDCR метода за оценка на ефективността частично компенсира разликите в скоростите на броене, което води до устойчива оценка на активността.

Симулираните list-mode данни бяха използвани и за изследване на ролята на корекцията за случайни съвпадения при избора на параметъра kB . За тясното времево разпределение резултатите на [Фигура 8.2](#) показват, че без корекция оценените активности имат ясно



Фигура 8.1: Относително отклонение между симулираните референтни стойности и изчислените резултати като функция на CW за тясното (Фигура 8.1 (а)) и реалистичното (Фигура 8.1 (б)) времево разпределение. Запълнените и отворените символи означават съответно резултати, получени със и без корекция за случайни съвпадения.

изразена дисперсия за всяка стойност на kB , което затруднява идентифицирането на подходящата стойност Фигура 8.2 (а). След прилагане на корекцията за случайни съвпадения тази дисперсия до голяма степен се елиминира и правилната стойност, $kB = 0.012 \text{ cm/MeV}$, се идентифицира ясно Фигура 8.2 (б).

Подобен, но по-слаб ефект се наблюдава за реалистичното ${}^3\text{H}$ -подобно времево разпределение, показано на Фигура 8.3. В този случай корекцията намалява дисперсията само умерено, като най-ясното подобрение се получава при по-големи прозорци на съвпадение. Резултатите за 40 ns и 100 ns са повлияни само слабо, докато данните, получени с по-дълги прозорци на съвпадение, показват по-добро групиране след корекцията Фигура 8.3 (б).

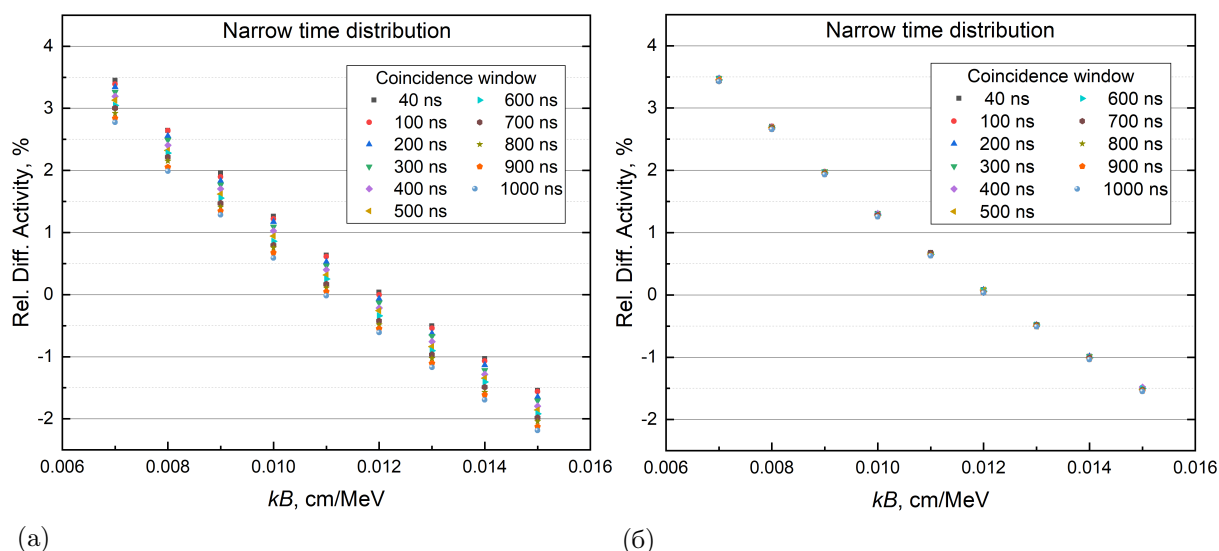
Това поведение е в съгласие със сравнението, показано на Фигура 8.1 (б). При къси прозорци на съвпадение коригираните отношения T/D остават отместени спрямо МК референтната стойност, най-вероятно поради пропускане на истински съвпадения. При по-големи прозорци това отместване намалява, въпреки че абсолютният брой случайни съвпадения е по-голям. Следователно подобреното съгласие за $\text{CW} \geq 200 \text{ ns}$ обяснява потясното групиране, наблюдавано след корекцията. Въпреки това TDCR моделът частично компенсира пропуснатите събития при крайната оценка на активността, като дава добро съгласие с МК референтната стойност при стойности на $kB : 0.012 \text{ cm/MeV}$ за тясното разпределение и 0.010 cm/MeV за ${}^3\text{H}$ -подобното разпределение.

Бяха разгледани две времеви разпределения на импулсите: „изкуствено“ тясно разпределение и реалистично ${}^3\text{H}$ -подобно разпределение. Корекцията за случайни съвпадения е ефективна за тясното разпределение, докато за реалистичния случай влиянието ѝ е по-слабо и основно подобрява съгласуваността на резултатите, получени с по-дълги прозорци на съвпадение. Кодът за анализ на list-mode файловете беше валидиран и значението на прилагането на корекцията за случайни съвпадения беше потвърдено.

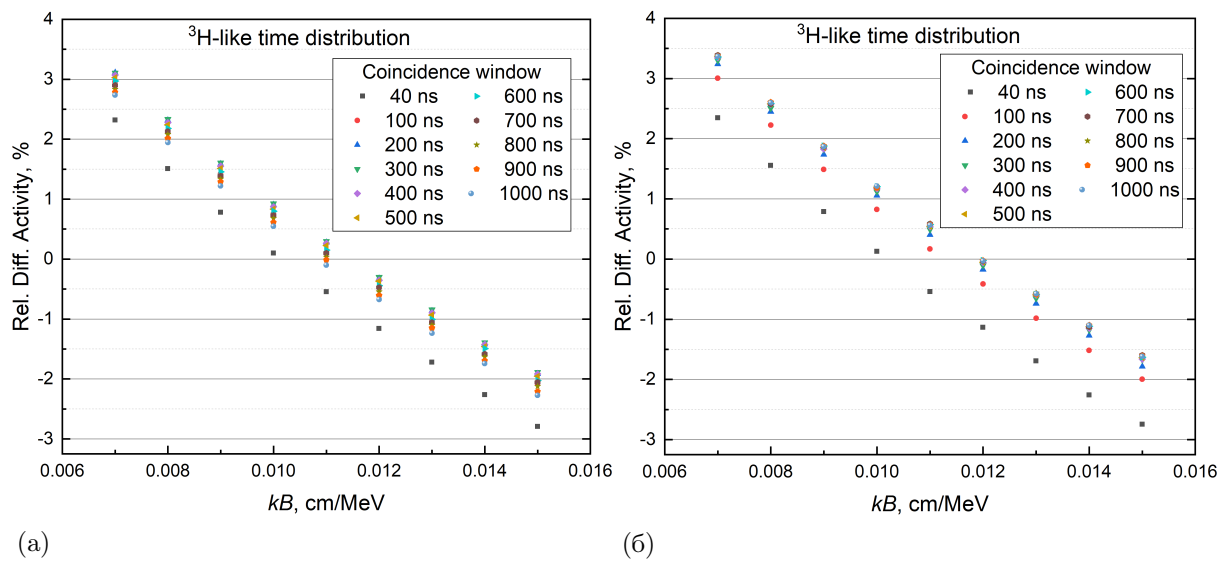
Въпреки че TDCR моделът компенсира голяма част от разликите в скоростите на броене и осигурява активности, близки до МК референтната стойност, симулациите показват, че изборът на kB остава чувствителен към времевото разпределение на излъчената от сцинтилатора светлина. Следователно, дори при наличие на МК референтни данни, определянето на kB не може да се счита за напълно решено.

Таблица 8.1: Сравнение на МК симулираните и оценените скорости на броене и активност за двата случая на времево разпределение [43].

Параметър	^3H -подобно разпределение			Тясно разпределение		
	МК симулация	Оценена	Δ	МК симулация	Оценена	Δ
A, cps	10680	10612	0.6%	10680	10682	-0.01%
B, cps	11914	11856	0.5%	11914	11915	-0.01%
C, cps	10619	10547	0.7%	10619	10620	-0.01%
AB, cps	6365	6262	1.6%	6365	6369	-0.05%
BC, cps	6221	6116	1.7%	6221	6225	-0.06%
AC, cps	5677	5568	1.9%	5677	5681	-0.07%
T, cps	4370	4248	2.8%	4370	4374	-0.09%
D, cps	9523	9450	0.8%	9523	9527	-0.04%
T/AB	0.687	0.678	1.2%	0.687	0.687	-0.03%
T/BC	0.703	0.695	1.1%	0.703	0.703	-0.02%
T/AC	0.770	0.763	0.9%	0.770	0.770	-0.02%
T/D	0.459	0.450	2.1%	0.459	0.459	-0.05%
Активност, Bq	19022	18998	0.1%	19022	19014	0.04%



Фигура 8.2: Относително отклонение между симулираната референтна активност и изчислената активност като функция на kB за тясното времево разпределение, оценено за няколко прозореца на съвпадение, без (Фигура 8.2 (а)) и със (Фигура 8.2 (б)) корекция за случайни съвпадения [43].



Фигура 8.3: Относително отклонение между симулираната референтна активност и изчислената активност като функция на kB за ^3H -подобното времево разпределение, оценено за няколко прозореца на съвпадение, без (Фигура 8.3 (а)) и със (Фигура 8.3 (б)) корекция за случайни съвпадения [43].

Основната цел на дисертационния труд беше разработването, валидирането и прилагането на Комптгън-TDCR спектрометър за експериментално определяне на отклик на течни сцинтилатори за ниски енергии отпадени в тях. Тази цел беше постигната чрез изграждането на нова система в Софийския университет, съчетаваща TDCR брояч с три ФЕУ-та и планарен *n*-тип HPGe детектор за енергийно селективно детектиране на Комптгъново разсеяни фотони. Системата позволява измерване на сцинтилационния отклик за Комптгънови електрони с известна енергия, която е най-важна за оценка на ефективността по TDCR метода.

Комптгън-TDCR спектрометърът беше приложен за сцинтилационните коктейли толуен+PPO, Ultima Gold AB и Ultima Gold в енергийния интервал на електроните приблизително 3–6 keV. Измерените криви на светлинния отклик бяха апроксимирани с функцията на Birks, а получените стойности на *kB* се съгласуват със стойностите, определени независимо чрез метода на вариране на ефективността в TDCR. Това съответствие е един от основните резултати на дисертацията и показва, че разработената система осигурява надеждна експериментална информация за нелинейността на течните сцинтилатори и може да се използва като независим инструмент за изследване на йонизационното гасене.

Сравнението на различни TDCR броячи показва, че могат да се получат съгласувани оценки на активността дори когато оценените стойности на *kB* се различават между системите. Това показва, че определянето на *kB* може да бъде повлияно не само от отклик на сцинтилатора, но и от специфични за детектора ефекти и от допусканията на модела при пресмятане на ефективността. Зависимостта на оценената стойност на *kB* от ширината на прозореца на съвпадение допълнително показва, че стойностите на *kB*, получени с дълги прозорци на съвпадение, трябва да се интерпретират като ефективни, зависещи от условията на измерване, тъй като тогава се включва и забавената сцинтилационна компонента. Тези резултати потвърждават, че формулата на Birks има най-ясен физически смисъл, когато се прилага към измервания, които разглеждат само бързата сцинтилационна компонента.

Резултатите от настоящата дисертация имат няколко важни последствия за бъдещото развитие на TDCR метода. Комптгън-TDCR измерванията показват, че отклика на сцинтилатори при ниски енергии на възбуждане може да бъде определен експериментално и по принцип да бъде въведен директно в TDCR оценката на ефективността, вместо да се разчита единствено на формулата на Birks и на независимо избрана стойност на *kB*. Това е особено важно, тъй като настоящите резултати показват, че надеждното определяне на *kB* остава предизвикателство: различни TDCR броячи, а в някои случаи дори различни измервания със същия сцинтилатор, могат да доведат до различни оценени стойности на *kB*, като същевременно дават съгласувани оценки на активността. Това предполага, че TDCR моделът може частично да компенсира специфични за детектора ефекти, разлики в оптичния отклик или ограничения на модела на ефективността чрез избраната стойност на *kB*. Механизмът на тази компенсация все още не е напълно изяснен и трябва да бъде изследван допълнително. Перспективна насока е прилагането на подходи без параметричен модел, като ZoMBieS, при които експериментално измереният отклик или зависимостта на ефективността на детектиране на ФЕУ-тата от отдадената енергия се използват директно, като по този начин се намалява зависимостта от полуемпиричен модел на гасене. Бъдеща работа трябва също да оцени устойчивостта на определянето на *kB* чрез повтаряне на

измерванията с вариране на ефективността при контролирани условия, включително стабилна оптична геометрия и контролирана температура на пробата или околната среда.

Подготвителните изследвания на отклика на фотокатодите на ФЕУ показаха, че пространствената нехомогенност може да допринесе към неопределеността на TDCR оценките на ефективността, особено при условия на малко количество светлина. Избраните за Комптън-TDCR системата ФЕУ-та Hamamatsu R331-05 показаха достатъчно равномерен отклик върху по-голямата част от ефективната площ на фотокатода. Изследването също така показва, че дефокусирането на ФЕУ-тата може да увеличи нехомогеността на отклика и следователно не е оптимална техника за равномерно вариране на ефективността.

TDCR каналът на системата CTDCR-SU беше валидиран чрез сравнение с утвърдени TDCR броячи с използване на източници ^3H , ^{14}C , ^{63}Ni и ^{55}Fe . Получените активности са в съгласие в рамките на съответните неопределености, което потвърждава, че новият детектор работи надеждно като първична течносцинтилационна броячна система. Системата показва и най-висока ефективност на детектиране сред сравнените броячи, което е особено важно за нискоенергетични радионуклиди и за Комптън-TDCR измервания, при които се произвежда само малък брой фотоелектрони.

Влиянието на корекцията за случайни съвпадения беше изследвано чрез експериментални данни от вариране на ефективността и чрез МК list-mode симулации. За проведените експериментални измервания корекцията не промени оценените стойности на kB . МК list-mode симулациите показаха, че корекцията може силно да повлияе върху избора на kB при изкуствено тясно, нефизично времево разпределение, докато при реалистично ^3H -подобно времево разпределение ефектът е по-ограничен и основно подобрява групирането на оценените активности при прозорци на съвпадение, по-големи от 100 ns. Тези резултати потвърждават значението на корекцията за случайни съвпадения за точния TDCR анализ, но също така показват, че определянето на kB остава чувствително към времевите характеристики и допусканията на модела.

Накрая, дисертацията демонстрира по-широката приложимост на TDCR броенето чрез първична стандартизация на ^{222}Rn във вода. Бяха приготвени стандартизирани източници на радон във вода, които бяха използвани за калибриране на вторични инструменти, като по този начин беше установена верига на проследимост за рутинни измервания. Това потвърждава, че TDCR методологията, разработена и приложена в дисертацията, има пряко значение за радионуклидната метрология и измерванията на радиоактивност в околната среда.

Основни научни приноси

Основните научни приноси на настоящата дисертация са:

- проектиране, конструиране, въвеждане в експлоатация и валидиране на Комптън-TDCR спектрометър за измервания на нискоенергийния отклик на течни сцинтилатори;
- охарактеризиране и оптимизиране на TDCR и nHPGe каналите;
- експериментално измерване на криви на сцинтилационен отклик за няколко комбинации сцинтилатор-радионуклид и сравнение на стойностите на kB , получени чрез Комптън-TDCR, със стойностите, определени чрез вариране на ефективността в TDCR метода;
- изследване на нехомогенността на фотокатодите на ФЕУ, включително влиянието на дефокусирането и температурните ефекти, и оценка на значението им за TDCR измерванията;

- анализ на корекцията за случайни съвпадения чрез експериментални TDCR данни и МК list-mode симулации;
- прилагане на TDCR броене за първична стандартизация на ^{222}Rn във вода за калибриране на вторични измервателни системи в Софийския университет.

Articles in refereed journals

- [A.1] V. Todorov, P. Cassette, S. Georgiev, B. Sabot и K. Mitev. **Automatic system for testing PMT photocathode homogeneity.** *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* (март 2025). ISSN: 1588-2780. DOI: [10.1007/s10967-025-10028-y](https://doi.org/10.1007/s10967-025-10028-y). URL: <http://dx.doi.org/10.1007/s10967-025-10028-y>.
- [A.2] Philippe Cassette, Vladislav Todorov, Benoit Sabot, Strahil Georgiev и Krasimir Mitev. **Uncertainties in TDCR measurement revisited: Contribution of optical effects.** *Applied Radiation and Isotopes* 201 (ноем. 2023), 110992. ISSN: 0969-8043. DOI: [10.1016/j.apradiso.2023.110992](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2023.110992). URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2023.110992>.
- [A.3] V. Todorov, P. Cassette, V. Jordanov, S. Ivanov, H. Stoycheva, S. Georgiev, B. Sabot и K. Mitev. **Design of a new Compton-TDCR spectrometer at Sofia University for the characterization of Liquid Scintillation cocktails.** *Applied Radiation and Isotopes* 226 (2025), 112194. ISSN: 0969-8043. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2025.112194>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0969804325005391>.
- [A.4] V. Todorov, K. Mitev, P. Cassette и B. Sabot. **Investigation of the possible effect of the accidental coincidences correction on the determination of kB value by efficiency variation with grey filters.** *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 334:9 (май 2025), 5943–5950. ISSN: 1588-2780. DOI: [10.1007/s10967-025-10173-4](https://doi.org/10.1007/s10967-025-10173-4). URL: <http://dx.doi.org/10.1007/s10967-025-10173-4>.
- [A.5] K. Mitev, V. Todorov, P. Cassette и B. Sabot. **MCLTDCR: A Monte Carlo code for generation of list mode TDCR files.** *Applied Radiation and Isotopes* 226 (дек. 2025), 112094. ISSN: 0969-8043. DOI: [10.1016/j.apradiso.2025.112094](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2025.112094). URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2025.112094>.

Articles in refereed conference proceedings

- [P.1] Vladislav Todorov, Philippe Cassette, Strahil Georgiev, Hristiana Stoycheva, Radostina Vasileva и Krasimir Mitev. **Application of TDCR Counting for Primary Standardization of Radon-in-Water Samples.** в: *2024 XXXIV International Scientific Symposium Metrology and Metrology Assurance (MMA)*. 2024, 1–6. DOI: [10.1109/MMA62616.2024.10817679](https://doi.org/10.1109/MMA62616.2024.10817679).

Other articles related to the thesis

- [O.1] Vladislav T. Todorov, Chavdar Ch. Dutsov, Philippe Cassette и Krasimir K. Mitev. **Effects of the photocathode non-uniformity on radon measurements by plastic scintillation spectrometry.** *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* (юни 2022). DOI: [10.1007/s10967-022-08362-6](https://doi.org/10.1007/s10967-022-08362-6).

- [O.2] V. Todorov, P. Cassette, Ch. Dutsov, B. Sabot, S. Georgiev и К. Mitev. **A study of the non-uniformity of the PMT photocathode response and its influence on the results obtained in different scintillation counting experiments.** *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 1046 (ян. 2023), 167719. ISSN: 0168-9002. DOI: [10.1016/j.nima.2022.167719](https://doi.org/10.1016/j.nima.2022.167719). URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.nima.2022.167719>.

- [1] D. L. Horrocks. **Applications of Liquid Scintillation Counting**. 1974. URL: <http://gen.lib.rus.ec/book/index.php?md5=АЕС337237738642FC1E09F533E5600F1> (цит. на с. 3).
- [2] J A B Gibson и H J Gale. **Absolute standardization with liquid scintillation counters**. *J. Phys. E: Sci. Instrum.* 1:2 (февр. 1968), 99–106. DOI: [10.1088/0022-3735/1/2/305](https://doi.org/10.1088/0022-3735/1/2/305) (цит. на с. 3).
- [3] V. Kolarov, Y. Le Gallic и R. Vatin. **Mesure absolue directe de l'activité des émetteurs β purs par scintillation liquide**. *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes* 21:8 (авг. 1970), 443–452. DOI: [10.1016/0020-708x\(70\)90090-6](https://doi.org/10.1016/0020-708x(70)90090-6) (цит. на с. 3).
- [4] Ryszard Broda, Krzysztof Pochwalski и Tomasz Radoszewski. **Calculation of liquid-scintillation detector efficiency**. *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part A. Applied Radiation and Isotopes* 39:2 (1988), 159–164. DOI: [10.1016/0883-2889\(88\)90161-x](https://doi.org/10.1016/0883-2889(88)90161-x) (цит. на с. 3).
- [5] A. Grau Malonda и Bert M. Coursey. **Calculation of beta-particle counting efficiency for liquid-scintillation systems with three phototubes**. *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part A. Applied Radiation and Isotopes* 39:12 (ян. 1988), 1191–1196. DOI: [10.1016/0883-2889\(88\)90098-6](https://doi.org/10.1016/0883-2889(88)90098-6) (цит. на с. 3).
- [6] J. B. Birks. **The Theory and Practice of Scintillation Counting**. Oxford: Pergamon Press, 1964 (цит. на с. 3–5, 17, 19).
- [7] Mordechai Vixon и Joshua Jortner. **Intramolecular Radiationless Transitions**. *The Journal of Chemical Physics* 48:2 (ян. 1968), 715–726. ISSN: 1089-7690. DOI: [10.1063/1.1668703](https://doi.org/10.1063/1.1668703). URL: <http://dx.doi.org/10.1063/1.1668703> (цит. на с. 3).
- [8] T. A. King и R. Voltz. **The time dependence of scintillation intensity in aromatic materials**. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences* 289:1418 (ян. 1966), 424–439. DOI: [10.1098/rspa.1966.0021](https://doi.org/10.1098/rspa.1966.0021) (цит. на с. 4).
- [9] G. Laustriat. **The luminescence decay of organic scintillators**. *Molecular Crystals* 4:1-4 (юни 1968), 127–145. DOI: [10.1080/15421406808082905](https://doi.org/10.1080/15421406808082905) (цит. на с. 4, 5).
- [10] A. W. Schardt и W. Bernstein. **Resolution of the Scintillation Spectrometer**. *Review of Scientific Instruments* 22:12 (дек. 1951), 1020–1021. DOI: [10.1063/1.1745805](https://doi.org/10.1063/1.1745805). URL: <https://doi.org/10.1063/1.1745805> (цит. на с. 6).
- [11] T. F. Godlove и W. G. Wadey. **Photocathode Uniformity and Resolution of Scintillation Spectrometers**. *Review of Scientific Instruments* 25:1 (ян. 1954), 1–4. DOI: [10.1063/1.1770874](https://doi.org/10.1063/1.1770874). URL: <https://doi.org/10.1063/1.1770874> (цит. на с. 6).
- [12] Chavdar Dutsov, Philippe Cassette, Krasimir Mitev и Benoît Sabot. **In quest of the optimal coincidence resolving time in TDCR LSC**. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* (ноем. 2020), 164846. DOI: [10.1016/j.nima.2020.164846](https://doi.org/10.1016/j.nima.2020.164846) (цит. на с. 6, 39).
- [13] P Cassette, J Bouchard и B Chauvenet. **Standardization of iodine-129 by the TDCR liquid scintillation method and $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence counting**. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 339:1 (1994), 339–342. ISSN: 0168-9002. DOI: [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(94\)91828-7](https://doi.org/10.1016/0168-9002(94)91828-7). URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0168900294918287> (цит. на с. 6).
- [14] Agustín Grau Malonda и Eduardo Garcia-Toraño. **Evaluation of counting efficiency in liquid scintillation counting of pure β -ray emitters**. *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes* 33:4 (1982), 249–253. ISSN: 0020-708X. DOI: [https://doi.org/10.1016/0020-708X\(82\)90022-9](https://doi.org/10.1016/0020-708X(82)90022-9). URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0020708X82900229> (цит. на с. 6).

- [15] K. Pochwalski и T. Radoszewski. **Disintegration Rate Determination by Liquid Scintillation Counting Using the Triple to Double Coincidence Ratio (TDCR) Method**. техн. докл. INR 1848/OPiDI/E/A. Warsaw: Institute of Nuclear Research, 1979 (цит. на с. 6).
- [16] Ryszard Broda, Philippe Cassette и Karsten Kossert. **Radionuclide metrology using liquid scintillation counting**. *Metrologia* 44:4 (2007), S36 (цит. на с. 6–8, 17).
- [17] R Broda. **A review of the triple-to-double coincidence ratio (TDCR) method for standardizing radionuclides**. *Applied Radiation and Isotopes* 58:5 (май 2003), 585–594. DOI: 10.1016/s0969-8043(03)00056-3 (цит. на с. 7).
- [18] P. Cassette и R. Vatin. **Experimental evaluation of TDCR models for the 3 PM liquid scintillation counter**. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 312:1-2 (февр. 1992), 95–99. DOI: 10.1016/0168-9002(92)90135-q (цит. на с. 7).
- [19] Chavdar Dutsov, Philippe Cassette, Benoît Sabot и Krasimir Mitev. **Evaluation of the accidental coincidence counting rates in TDCR counting**. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 977 (окт. 2020), 164292. DOI: 10.1016/j.nima.2020.164292 (цит. на с. 9, 38).
- [20] Chavdar Dutsov, Benoît Sabot, Philippe Cassette и Krasimir Mitev. **Significance of the corrections for accidental coincidences in liquid scintillation counting measurements**. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 331:8 (апр. 2022), 3303–3311. ISSN: 1588-2780. DOI: 10.1007/s10967-022-08316-y. URL: <http://dx.doi.org/10.1007/s10967-022-08316-y> (цит. на с. 9).
- [21] Karsten Kossert и Marcell Péter Takács. **Study of a method to correct for accidental coincidences in TDCR measurements**. *Applied Radiation and Isotopes* 226 (дек. 2025), 112176. ISSN: 0969-8043. DOI: 10.1016/j.apradiso.2025.112176. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2025.112176> (цит. на с. 9, 40).
- [22] P. Cassette и P. Do. **The Compton source efficiency tracing method in liquid scintillation counting: A new standardization method using a TDCR counter with a Compton spectrometer**. *Applied Radiation and Isotopes* 66:6-7 (2008), 1026–1032. DOI: 10.1016/j.apradiso.2008.02.062 (цит. на с. 9, 10, 27).
- [23] Vladislav T. Todorov, Chavdar Ch. Dutsov, Philippe Cassette и Krasimir K. Mitev. **Effects of the photocathode non-uniformity on radon measurements by plastic scintillation spectrometry**. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* (юни 2022). DOI: 10.1007/s10967-022-08362-6 (цит. на с. 11).
- [24] V. Todorov, P. Cassette, S. Georgiev, B. Sabot и K. Mitev. **Automatic system for testing PMT photocathode homogeneity**. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* (март 2025). ISSN: 1588-2780. DOI: 10.1007/s10967-025-10028-y. URL: <http://dx.doi.org/10.1007/s10967-025-10028-y> (цит. на с. 12–15).
- [25] Yantel. *nanoPSD, product information*. URL: <https://www.yantel.com/products/nanopsd/> (цит. на с. 12).
- [26] TOPDON. *TOPDON TC001 Product Profile*. [Online; accessed 17-Nov-2025]. 2025. URL: https://web-file.topdon.com/topdon-web/information_download/TC001-Product-Profile-V2.pdf (цит. на с. 12).
- [27] Hamamatsu. *Hamamatsu R9779 photomultiplier tube datasheet*. [Online; accessed 17-Nov-2025]. 2025. URL: https://www.artisanng.com/info/Hamamatsu_R9779_Datasheet_201727162455.pdf (цит. на с. 12).
- [28] Hamamatsu. *Hamamatsu R331-05 photomultiplier tube datasheet*. [Online; accessed 17-Nov-2025]. 2025. URL: https://www.hamamatsu.com/content/dam/hamamatsu-photonics/sites/documents/99_SALES_LIBRARY/etd/R331-05_TPMH1209E.pdf (цит. на с. 12, 22).
- [29] Philips. *Philips XP2020Q photomultiplier tube datasheet*. [Online; accessed 17-Nov-2025]. 2025. URL: http://bitsavers.org/components/philips/_dataBooks/1987_T09_Philips_Photo_and_Electron_Multipliers.pdf (цит. на с. 12).

- [30] F. Bauer, M. Aykac, M. Loope, C.W. Williams, L.A. Eriksson и M. Schmand. **Performance Study of the new Hamamatsu R9779 and Photonis XP20D0 fast 2"Photomultipliers**. в: *IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record*, 2005. т. 5. IEEE, 2920–2923. DOI: 10.1109/nssmic.2005.1596942. URL: <http://dx.doi.org/10.1109/nssmic.2005.1596942> (цит. на с. 15).
- [31] Philippe Cassette, Vladislav Todorov, Benoit Sabot, Strahil Georgiev и Krasimir Mitev. **Uncertainties in TDCR measurement revisited: Contribution of optical effects**. *Applied Radiation and Isotopes* 201 (нояб. 2023), 110992. ISSN: 0969-8043. DOI: 10.1016/j.apradiso.2023.110992. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2023.110992> (цит. на с. 16–21).
- [32] Benoît Sabot, Chavdar Dutsov, Philippe Cassette и Krasimir Mitev. **Performance of portable TDCR systems developed at LNE-LNHB**. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 1034 (юли 2022), 166721. ISSN: 0168-9002. DOI: 10.1016/j.nima.2022.166721. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.nima.2022.166721> (цит. на с. 18).
- [33] V. Jordanov, P. Cassette, Ch. Dutsov и K. Mitev. **Development and applications of a miniature TDCR acquisition system for in-situ radionuclide metrology**. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 954 (февр. 2020), 161202. DOI: 10.1016/j.nima.2018.09.037 (цит. на с. 18).
- [34] CAEN. *CAEN DT1470ET 4 Ch Reversible Desktop HV Power Supply Module*. <https://www.caen.it/products/dt1470et/>. [Online; accessed 18-Mar-2025]. CAEN, 2025 (цит. на с. 22).
- [35] 3M. *3M Enhanced Specular Reflector Film (ESR)*. [Online; accessed 18-Mar-2025]. 2025. URL: <https://multimedia.3m.com/mws/media/12450890> (цит. на с. 22).
- [36] CAEN. *CAEN N978 4 Channel Variable Gain Fast Amplifier*. <https://www.caen.it/products/n978/>. [Online; accessed 18-Mar-2025]. CAEN, 2025 (цит. на с. 22).
- [37] Yantel. *Triple-To-Double Coincidence Ratio Liquid Scintillation Counting System (TDCR) and a digital multichannel analyzer (MCA)*. <https://www.yantel.com/products/nanotdcr/>. [Online; accessed 18-Mar-2025]. YANTEL, 2025 (цит. на с. 23).
- [38] CAEN. *CAEN DT5751 digitizer manual*. <https://www.caen.it/products/dt5751/>. CAEN, 2020 (цит. на с. 23).
- [39] Yantel. *Ultra Low Noise Real-Time Digital Pulse Processor (DPP) and Digital MCA*. <https://www.yantel.com/products/nanomcaii/>. [Online; accessed 18-Mar-2025]. YANTEL, 2025 (цит. на с. 23).
- [40] V. Todorov, P. Cassette, V. Jordanov, S. Ivanov, H. Stoycheva, S. Georgiev, B. Sabot и K. Mitev. **Design of a new Compton-TDCR spectrometer at Sofia University for the characterization of Liquid Scintillation cocktails**. *Applied Radiation and Isotopes* 226 (2025), 112194. ISSN: 0969-8043. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2025.112194>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0969804325005391> (цит. на с. 24, 26, 28–30).
- [41] Benoit Sabot, Chavdar Dutsov, Philippe Cassette, Krasimir Mitev, Matthieu Hamel, Guillaume H. V. Bertrand, Kheirreddine Lebbou и Christophe Dujardin. **A compact detector system for simultaneous measurements of the light yield non-linearity and timing properties of scintillators**. *Scientific Reports* 14:1 (март 2024). ISSN: 2045-2322. DOI: 10.1038/s41598-024-57186-9. URL: <http://dx.doi.org/10.1038/s41598-024-57186-9> (цит. на с. 32).
- [42] V. Todorov, K. Mitev, P. Cassette и B. Sabot. **Investigation of the possible effect of the accidental coincidences correction on the determination of kB value by efficiency variation with grey filters**. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 334:9 (май 2025), 5943–5950. ISSN: 1588-2780. DOI: 10.1007/s10967-025-10173-4. URL: <http://dx.doi.org/10.1007/s10967-025-10173-4> (цит. на с. 39–41).
- [43] K. Mitev, V. Todorov, P. Cassette и B. Sabot. **MCLTDCR: A Monte Carlo code for generation of list mode TDCR files**. *Applied Radiation and Isotopes* 226 (дек. 2025), 112094. ISSN: 0969-8043. DOI: 10.1016/j.apradiso.2025.112094. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2025.112094> (цит. на с. 42, 44, 45).

- [44] Chavdar Dutsov. **Studies on the applications of the triple-to-double coincidence ratio method for primary activity standardization using liquid scintillation counting**. PhD Thesis. Sofia, Bulgaria: Sofia University "St. Kliment Ohridski", юли 2021. URL: https://physica.dev/files/phd_thesis.pdf (цит. на с. 42).