

**Pulsformdiskrimination und
Lichtausbeutemessungen von LAB-basierten
Flüssigszintillatoren**

Diplomarbeit
zur Erlangung des wissenschaftlichen Grades
Diplom-Physiker

vorgelegt von

Toni Jörg Kögler

geboren am 11.09.1985 in Löbau

Institut für Kern- und Teilchenphysik
Fachrichtung Physik
Fakultät Mathematik- und Naturwissenschaften
der Technischen Universität Dresden

und

Institut für Strahlenphysik
Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf

2011

Eingereicht am 28.02.2011

1. Gutachter: Prof. Dr. Kai Zuber
2. Gutachter: Prof. Dr. Thomas Cowan

Kurzdarstellung

Die Grundlage vieler zukünftiger Flüssigszintillator-Neutrinoexperimente (SNO+, Daya Bay, LENA) ist das Lösungsmittel Lineare-Alkyl-Benzene (LAB, $C_6H_5C_nH_{2n+1}$, $n = 10 - 13$). Zusammen mit dem weit verbreiteten Szintillator 2,5-Diphenyloxazole (PPO) ist es ein farb- und geruchsloses Detektormaterial mit hohem Flammpunkt. Im Vergleich zu toluol- oder xylolbasierten Szintillatoren ist LAB+PPO preiswert und nicht gesundheitsschädlich. Die Eigenschaften von LAB machen es ebenfalls interessant für die Anwendung an nELBE, die Neutronenflugzeitanlage im Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf.

Ein neuer Ansatz zur Bestimmung der Lichtausbeute im niederenergetischen Bereich (bis 2 MeV) wird vorgestellt. Kombiniert wurden Messungen mit (quasi) monoenergetischen γ -Prüfstrahlern und einem in dieser Arbeit aufgebauten Compton-Spektrometer. Letzteres ermöglicht die Bestimmung der Lichtausbeute bis zu 5 keVee (Elektronenäquivalent). Der Birks-Parameter wurde für eine Lösung von LAB + 3 g/l PPO sowie für den Flüssigszintillator NE-213 bestimmt. Die relative Lichtausbeute in Bezug auf letzteren konnte mit diesen Messmethoden ebenfalls ermittelt werden. Zur spektralen Analyse des Lumineszenzlichtes wurden Messungen an Fluoreszenz- und UV/VIS- Spektrometern durchgeführt.

Die Pulsformdiskriminationsfähigkeit auf LAB basierenden Szintillatoren wurde während eines Flugzeitexperiments in einem gemischten n - γ -Feld eines ^{252}Cf -Prüfstrahlers ermittelt. Dabei kamen unterschiedliche Algorithmen der semi-analogen und digitalen Pulsformdiskrimination zum Einsatz.

Abstract

Linear alkyl benzene (LAB, $C_6H_5C_nH_{2n+1}$, $n = 10 - 13$) is the proposed solvent for the SNO+, the Daya Bay Neutrino and LENA experiment. In solution with the commonly used scintillator PPO it is a colourless, odourless and cheap liquid scintillator with a high flash point and low health hazard compared to toluene based ones.

The properties of LAB make this scintillator interesting also for nELBE, the neutron time-of-flight facility at Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf.

A new approach to measure the light yield in the low-energy range using a combination of quasi-monoenergetic photon sources and a Compton-spectrometer is described. The latter allows the measurement of the light yield down to 5 keVee (electron equivalent). The Birks-Parameter was determined for a homemade solution (LAB + 3 g/l PPO) and for NE-213. The light yield (relative to this standard scintillator) was confirmed by measurements using a fluorescence spectrometer. The ability of pulse-shape-discrimination in a mixed n - γ - field of a ^{252}Cf source was tested using different digital and semi-analogue techniques.

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	vii
Tabellenverzeichnis	ix
Liste der verwendeten Akronyme	xi
1 Einleitung	1
1.1 Motivation	1
1.2 Ziele und Inhalt der Diplomarbeit	2
2 Organische Szintillatoren	5
2.1 Allgemeine Grundlagen	6
2.2 Der Szintillationsmechanismus in organischen Szintillatoren	8
2.3 Das freie Elektronenmodell	10
2.4 Mehrkomponentige Szintillatoren	14
3 Spektroskopische Messungen	17
3.1 Messprinzip der verwendeten Spektrometer	18
3.2 UV/VIS- Spektroskopie	22
3.3 Fluoreszenzspektroskopie	25
3.4 Resultate	28
4 Lichtausbeute	29
4.1 Analyse der Energiespektren von γ -Prüfstrahlern	33
4.2 Compton-Spektrometer	38
4.2.1 Aufbau	42
4.2.2 Durchführung der Messung	43
4.2.3 Auswertung	43
4.3 Bestimmung des Einzelelektronenmaximums	50
4.4 Resultate	54

5	Pulsformdiskrimination	55
5.1	Algorithmen zur digitalen Pulsformdiskrimination	56
5.1.1	Pulsgradientmethoden	57
5.1.2	Pulsfrequenzmethoden	61
5.1.3	Test der Algorithmen / Simulationen	63
5.2	Experimente	64
5.2.1	Auswertung und Diskussion	67
5.3	Resultate	73
6	Zusammenfassung und Ausblick	75
A	Anhang	77
A.1	Der Szintillationsmechanismus in mehrkomponentigen Szintillatoren	77
A.1.1	Energietransfer zu Molekülen von Y beziehungsweise Z	78
A.2	Verwendete radioaktive Prüfstrahler	80
A.3	Ergebnisse der digitalen Pulsformdiskrimination (Fortsetzung)	81
A.4	Diverses	83
A.5	Algorithmen der digitalen Pulsformdiskrimination ($C++$ Quellcode)	85
	Literaturverzeichnis	93

Abbildungsverzeichnis

Abb. 2.0.1:	Sir William Crookes und „Spintharische“	5
Abb. 2.1.1:	Ortssensitiver Szintillationsdetektor FAST	7
Abb. 2.2.1:	LCAO am Beispiel des sp^3 -Hybrids	8
Abb. 2.2.2:	Benzenmolekül	9
Abb. 2.2.3:	Hybrid-Orbitale	10
Abb. 2.3.1:	Jablonski-Termschema	12
Abb. 2.4.1:	Molekülorbitale einiger aromatischer Kohlenwasserstoffe	16
Abb. 3.0.1:	Absorption in Anthracen und Vergleich mit elektronischem Aufbau . .	18
Abb. 3.0.2:	Emissions- und Absorptionsspektrum von Anthracen	19
Abb. 3.0.3:	Schematischer Aufbau eines kombinierten Absorptions- und Fluoreszenzspektrometers	20
Abb. 3.2.1:	Ergebnisse der UV/VIS-Spektroskopie	24
Abb. 3.2.2:	Zusammenstellung von Absorptions- und Fluoreszenzmessungen . . .	24
Abb. 3.3.1:	Fluoreszenz-Spektren organischer Szintillatoren	27
Abb. 3.3.2:	Integrierte Lichtausbeute	27
Abb. 4.0.1:	Küvette mit Stabilisierungszyylinder	31
Abb. 4.0.2:	Glasgefäß mit Siebeinsatz.	31
Abb. 4.1.1:	Elektronikaufbau und Datenaufnahme zur Bestimmung der Compton-Kante	34
Abb. 4.1.2:	Ladungsspektren einiger γ -Prüfstrahler	36
Abb. 4.1.3:	Lokale und globale Anpassung der Monte-Carlo-Simulation	37
Abb. 4.1.4:	Energieauflösung eines NE-213- und LAB+PPO-Detektors	38
Abb. 4.2.1:	Prinzipskizze zur Streuung im Szintillator	39
Abb. 4.2.2:	Ergebnisse der Koinzidenzzählratenabschätzung und Energieauflösung	41
Abb. 4.2.3:	Überlagerung von Compton-Kontinuum und Vollenergiemaximum im Germanium-Detektor	41
Abb. 4.2.4:	Schematischer Aufbau des Compton-Spektrometers	44
Abb. 4.2.5:	Auswertung 33° Messung des LAB-Küvettedetektors	46
Abb. 4.2.6:	Pulsflächenspektren des LAB-Küvettedetektors	47

Abb. 4.2.7:	Lichtausbeute	49
Abb. 4.2.8:	Residuen	49
Abb. 4.3.1:	Antikoinzidente Messung zwischen den zwei Photomultipliern	52
Abb. 5.0.1:	Typische neutronen- und photoneninduzierte Pulsformen	56
Abb. 5.1.1:	Wichtungsfunktionen $w(t)$ beider Photomultiplier des NE-213-Detektors. Datensatz: <code>/gpfs/data/fwkk/koegler/01.242011/NE_213_ALL_2GS_1kPTS_Cf.root</code>	61
Abb. 5.2.1:	Signalverarbeitung bei dem verwendeten Flugzeitexperiment	65
Abb. 5.2.2:	Flugzeit- und Energiespektrum eines ^{252}Cf -Prüfstrahlers	66
Abb. 5.2.3:	Long-Gate- / Short-Gate- Integration für einen NE-213 und LAB+PPO-Detektor	68
Abb. 5.2.4:	Ergebnisse der digitalen Pulsformdiskrimination am NE-213-Detektor mit vollem Datensatz und ausgewählten Pulsformen	70
Abb. 5.2.5:	Gemittelte Pulsformen des NE-213 und LAB+PPO+bis-MSB Detektor.	71
Abb. A.3.1:	Pulsformdiskrimination mit dem semi-analogen Verfahren	81
Abb. A.3.2:	Zweidimensionale Darstellung der Flugzeit und der Diskriminationsvariablen unterschiedlicher DPSD-Algorithmen.	82
Abb. A.3.3:	Ergebnisse der Wavelet-Analyse	82
Abb. A.4.1:	Zertifikat Wibarcan der Firma Wibarco	83
Abb. A.4.2:	Quanteneffizienz und Strahlungsempfindlichkeit der Hamamatsu R2059-01 Photokathode	84

Tabellenverzeichnis

Tab. 2.2.1:	Hybrid-Orbitale	9
Tab. 3.3.1:	Messparameter und Ergebnisse der Fluoreszenzspektroskopie	26
Tab. A.2.1:	Verwendete γ -Prüfstrahler	80

Liste der verwendeten Akronyme

$0\nu\beta\beta$	neutrinoloser, doppelter Betazerfall
bis-MSB	1,4-bis(2-Methylstyryl)-Benzol (ein sekundärer Szintillator); $C_{24}H_{22}$
CFD	Proportionaldiskriminator (engl.: constant-fraction-discriminator)
DAQ	Datenaufnahme (engl.: data acquisition)
DPSD	digitale Pulsformdiskriminierung (engl.: digital pulse shape discrimination)
DSP	digitale Datenverarbeitung (engl.: digital signal processing)
ELBE	E lektronen- L inear b eschleuniger für Strahlen hoher B rillianz und niedriger E mittanz
FoM	Gütezahl (engl.: figure of merit)
FPGA	feldprogrammierbare Gatteranordnung (engl.: Field Programmable Gate Array)
FWHM	Volle Breite auf halber Höhe (engl.: full width at half maximum)
HOMO	h ighest o ccupied m olecular o rbital
HPGe	hochreiner Germanium Detektor (engl.: high-purity germanium detector)
HZDR	Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf
LAB	l ineare A lky b enzene
LCAO	l inear c ombination of a tomic o rbitals
LG/SG	ein Pulsformdiskriminationsalgorithmus (engl.: LongGate/ShortGate)
LOMO	l owest o ccupied m olecular o rbital
LUMO	l owest u noccupied m olecular o rbital
POPOP	1,4-bis-[2-(5-Phenylloxazolyl)]-Benzol (ein sekundärer Szintillator); $C_{24}H_{16}N_2O_2$
PPO	2,5-Diphenylloxazole (ein primärer Szintillator); $C_{15}H_{11}NO$
PMT	Photoelektronenvervielfacher (engl.: Photomultiplier tube)
QDC	Ladungs-zu-digital Wandler (engl.: charge-to-digital converter)
rms	Quadratisches Mittel (engl.: root mean square)
SEP	Einzelelektronenmaximum (engl.: single-electron peak)
SEV	S ekundärelektronen v ervielfacher
SNO	S udbury N eutrino O bservatory (ein Neutrinoexperiment in Canada)
SNO+	Nachfolger des SNO Experiments in Sudbury
WLS	Wellenlängenschieber (engl.: wavelength-shifter)

1 Einleitung

1.1 Motivation

Mit der Lösung des solaren Neutrinoproblems und dem Nachweis der Oszillation dieser Teilchen konnte das Sudbury Neutrino Observatory (SNO) einen großen Erfolg verbuchen. In den kommenden Monaten startet das Nachfolgeexperiment SNO+ mit ebenso ambitionierten Plänen wie sein Vorgänger. SNO+ steht dabei für SNO plus Szintillator. Die Plexiglassphäre des früheren Schwerwasser(D₂O)-Tscherenkow-Detektors wird nun mit einem Flüssigszintillator befüllt. Die fünfzig- bis hundertmal größere Lichtausbeute soll es dem Detektor ermöglichen, weitere Phänomene in Verbindung mit den leichtesten Materieteilchen des Standardmodells aufzuklären. Unter anderem sollen nun der Beitrag des CNO-Zyklus zur Energiebilanz der Sonne untersucht werden, sowie der Fluss der Geo- und solarer pep-Neutrinos bestimmt werden (siehe [[Kraus, 2006](#)] und [[SNOLAB Homepage, 2011](#)]). Durch Lösen von natürlichem Neodym im Szintillator ist man in der Lage 56 kg eines Nuklids (¹⁵⁰Nd) in einem Teilchendetektor zu haben, welches ein Kandidat für den neutrinolosen, doppelten β -Zerfall (im Folgendem als $0\nu\beta\beta$ bezeichnet) ist. Durch die zweithöchste Endpunktenergie aller $\beta\beta$ Isotope (Isotope, die nur über den doppelten β -Zerfall zerfallen, da der einfache energetisch verboten ist) eignet sich Neodym besonders gut dafür, da das erwartete Signal für den $0\nu\beta\beta$ somit oberhalb aller natürlichen Radioaktivität liegt. Wird dieser besondere Zerfall des Isotops im Detektor nachgewiesen, lässt sich die Diskussion über den Teilchencharakter des Neutrinos (Majorana- oder Dirac-Teilchen) endlich klären. Die Masse des Majorana-Neutrinos könnte bei SNO+ oberhalb von 80 meV dann ausgeschlossen werden.

Die Basis des SNO+ Szintillators bildet ein Lösungsmittel aus linearen Alkylbenzenen (LAB). Für große Neutrinoexperimente (SNO+, LENA, Daya Bay etc.) erhofft man sich viel von dieser Substanz. Für großvolumige Flüssigszintillationsdetektoren gelten strenge Sicherheitsvorschriften. LAB zeichnet sich durch einen hohen Flammpunkt ($\approx 130^\circ\text{C}$) und sehr gute Umweltverträglichkeit aus. Es wird großindustriell hergestellt (Grundstoff der Spülmittelindustrie) und ist verhältnismäßig preiswert. Viele Neutrinoexperimente planen daher eine Szintillatorkonfiguration auf Basis dieses Lösungsmittels.

An der Neutronenflugzeitanlage nELBE am supraleitenden Linearbeschleuniger ELBE (Elektronen-Linearbeschleuniger für Strahlen hoher Brillanz und niedriger Emittanz) des Helmholtz-Zentrums Dresden-Rossendorf werden zukünftig minore Aktinide hinsichtlich ihrer Transmutationsfähigkeit untersucht. Transmutation beschäftigt sich mit der künstlichen Kernumwandlung dieser Stoffe mit dem Ziel, sie in Isotope mit geringerer Halbwertszeit umzuwandeln. Das würde helfen, die Abklingzeit des radioaktiven Abfalls unserer Kernkraftwerke um Größenordnungen zu verkürzen. Um Transmutation in Reaktortypen der vierten Generation oder in ADS (accelerator driven systems) wie dem MYRRHA-Projekt in Mol (Belgien) zu realisieren, werden hochpräzise Kerndaten benötigt. Mit dem schnellen Neutronenspektrum von nELBE [Altstadt et al., 2007] lassen sich die Verhältnisse in diesen Reaktoren simulieren und Wirkungsquerschnitte messen. Das Photo-Neutronen-Target dieser Anlage produziert neben den schnellen Neutronen aber auch eine große Anzahl von Photonen, die die Ergebnisse dieser Messungen verfälschen können. Man ist bestrebt die Reaktionen, an denen diese Photonen beteiligt waren, von den neutroneninduzierten zu trennen. Über eine Flugzeitmessung der Teilchen ist dieses möglich. Gestreute Photonen können jedoch zeitlich verzögert am Detektor auftreffen und als Neutronen interpretiert werden. Ein zusätzliches Diskriminationskriterium wäre somit sehr nützlich.

Einige Flüssigszintillatoren besitzen die Eigenschaft anhand ihrer Impulsform eine Unterscheidung zwischen Teilchen mit unterschiedlichem Bremsvermögen zuzulassen. Bei nELBE hätte man somit unabhängig von der Flugzeit, eine Möglichkeit zwischen Photonen und Neutronen zu unterscheiden. Jedoch gelten in Hinblick auf die anderen Eigenschaften des zukünftigen Detektors (Zeitauflösung, Nachweiseffizienz, Handhabbarkeit und Linearität der Lichtausbeute) hohe Ansprüche, da die bereits erprobten Plastiksintillatoren in allen diesen Bereichen überzeugen [Beyer et al., 2007]. Könnten LAB-basierte Flüssigszintillatoren diese Eigenschaften mit Pulsformdiskrimination kombinieren, ließen sich sowohl erwähnte Neutrinoexperimente, als auch die Experimente an nELBE besser interpretieren.

1.2 Ziele und Inhalt der Diplomarbeit

Zielsetzung dieser Arbeit ist es, die Eignung von linearen Alkylbenzenen als Lösungsmittel für neuartige Flüssigszintillatoren festzustellen. Ein an der Zusammensetzung von SNO+ angelehnter Detektor soll hinsichtlich seiner Lichtausbeute und Pulsformdiskriminationsfähigkeit charakterisiert werden. Unterschiedliche Algorithmen der digitalen Pulsformdiskrimination werden dabei diskutiert. Während eines Flugzeitexperiments mit einem ^{252}Cf -Prüfstrahler und digitaler Datenaufnahme mit schnellen Digitizern werden diese Algorithmen im Anschluss getestet. Die Lichtausbeute wird mit Hilfe eines in dieser Arbeit entwi-

ckelten Compton-Spektrometers untersucht, sodass ein weiter Energiebereich von circa 10 keV bis 1,7 MeV Elektronenäquivalent abgedeckt werden konnte.

Im folgenden Kapitel werden die Grundlagen des Szintillationsprozesses in organischen Szintillatoren erörtert. Kapitel 3 beschäftigt sich mit der spektroskopischen Analyse von LAB in Verbindung mit primären Szintillatoren und Wellenlängenschiebern. Unterschiedliche Methoden zur Bestimmung der Lichtausbeute werden in Kapitel 4 präsentiert und die relative Lichtausbeute des Detektors in Bezug auf einen baugleichen NE-213-Detektor bestimmt. Am Ende des Kapitels Lichtausbeute wird versucht, mit Hilfe des Einzel-Photoelektronenmaximums den Absolutwert dieser Größe abzuschätzen. Im Anschluss werden im Kapitel Pulsformdiskrimination Methoden der digitalen Diskrimination vorgestellt und innerhalb des erwähnten Flugzeitexperimentes angewendet. Das abschließende Kapitel 4.4 fasst die wesentlichen Erkenntnisse dieser Arbeit zusammen und schlussfolgert, ob LAB-basierte Flüssigszintillatoren eine Alternative zu den erprobten Plastiksintillatoren von nELBE sein könnten.

2 Organische Szintillatoren

„The scintillation detector is undoubtedly one of the most often and widely used particle detection devices in nuclear and particle physics today.“

[[Leo, 1994](#)]

Dieses Zitat aus dem bekanntem Buch von WILLIAM R. LEO verdeutlicht, welchen besonderen Stellenwert Szintillationsdetektoren in der Kern- und Teilchenphysik haben. Schon 1903 verwendete Sir WILLIAM CROOKES in seinen Experimenten zum Nachweis von α -Teilchen einen ZnS-Schirm, auf dem er kleine Lichtblitze beobachten konnte. Diese Lichtblitze waren sehr schwach und konnten nur visuell detektiert werden. Erst 31 Jahre später, mit der Erfindung des Photoelektronenvervielfachers durch N.J. HARLEY IAMS und BERNARD SALZBERG, setzten sich Szintillatoren endgültig durch. Seitdem sind sie aus physikalischen, chemischen und biologischen Experimenten nicht mehr wegzudenken.

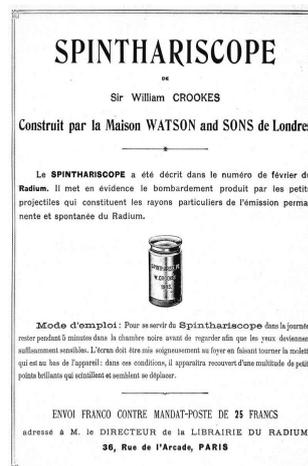


Abbildung 2.0.1: Links: Sir William Crookes - verwendete als erster Szintillationszähler zum Nachweis radioaktiver Strahlung [[wikienergia.pt, 2011](#)]
Rechts: Titelbild seiner 1904 veröffentlichten Arbeit „Spinthariscopes“ [[dissident-media.org, 2010](#)]

Was zeichnet Szintillationsdetektoren aus? Wie kann die Entstehung von Szintillationslicht im Rahmen der Molekülphysik erklärt werden? Und welche Information über die Anregung

kann aus dem elektronisch verstärkten Signal gewonnen werden? Diese zentralen Fragen sind Inhalt der nächsten Unterkapitel.

2.1 Allgemeine Grundlagen

Als Szintillatoren bezeichnet man jene Stoffe, die die Eigenschaft der *Lumineszenz* besitzen. Man findet sie in organischen Molekülen vor allem bei konjugierten und aromatischen Systemen. Lumineszenz ist dabei ein Überbegriff für die Emission von Photonen infolge von Energieabsorption. Die Möglichkeiten dem Szintillator Energie zuzuführen sind dabei vielfältig. So ist eine Anregung über Licht (*Photolumineszenz*), Wärme (*Thermolumineszenz*), elektrische Energie (*Elektrolumineszenz*), Schall (*Sonolumineszenz*) oder durch mechanische Deformation (*Tribolumineszenz*) möglich. Des Weiteren können auch chemische Reaktionen (*Chemolumineszenz*) oder biologische Reaktionen (*Biolumineszenz*) zur Emission von Licht führen. Werden Photonen (meist Teil des Röntgen-, UV- oder sichtbaren Bereichs des elektromagnetischen Spektrums) infolge einer Anregung durch ionisierende Strahlung emittiert, so spricht man von *Szintillation* (entnommen aus [Krammer, 2005]).

Dringen geladene Teilchen in Materie ein, so verlieren sie ihre Energie hauptsächlich über die elektromagnetische Wechselwirkung mit den Elektronen. Der Energieverlust per Wegstrecke von Protonen, Myonen, α -Teilchen und leichten Mesonen wird dabei durch die BETHE-BLOCH-Gleichung [Bethe, 1930] beschrieben. Für Elektronen muss aufgrund ihrer geringen Masse, dem damit verbundenen Einfluss auf die Trajektorie im Medium und des Prinzips der Ununterscheidbarkeit, diese Gleichung modifiziert werden. Alle diese Teilchen wechselwirken über ihre Ladung mit den Atomen des Szintillationsmaterials. Diese Wechselwirkung führt zur Anregung oder zur Ionisation des Mediums. Die Abregung oder Rekombination ist dann Ausgangspunkt der Entstehung von Szintillationslicht.

Aber auch ungeladene Teilchen können durch Szintillatoren nachgewiesen werden. Materialien mit hoher Kernladungszahl Z (meist anorganische Verbindungen) eignen sich besonders gut zum Nachweis von Photonenstrahlung, da sie ein größeres photoelektrisches Absorptionsvermögen besitzen, als Stoffe mit kleinem Z . Der hohe Anteil an Wasserstoff in organischen Szintillatoren begünstigt hingegen den Nachweis von Neutronen. Diese werden durch elastische Streuung an den Wasserstoffkernen abgebremst und damit moderiert. Aufgrund der annähernd gleichen Masse von Proton und Neutron verliert das Neutron im Mittel pro Stoß etwa 50 % seiner kinetischen Energie. Die vom Detektor absorbierte Energie der Rückstoßprotonen führt hauptsächlich zu Anregungs- und Ionisationseffekten im Medium. Der Abregungsvorgang geschieht dann vorwiegend über die Emission von Photonen.

Prinzipiell unterscheidet man drei Klassen von Szintillatoren:

- anorganische, kristalline Szintillatoren (zum Beispiel: NaI(Tl), Cs(Tl) und BGO)
- anorganische, flüssige Szintillatoren (hauptsächlich flüssige (Edel-) Gasdetektoren)
- organische Szintillatoren

Die Anwendungsgebiete sind sehr vielfältig. Aufgrund ihrer sehr schnellen Ansprechzeiten verwendet man Szintillatoren vorwiegend als Trigger für Koinzidenzanordnungen mit langsameren Detektoren, als Flugzeitspektrometer und zum effektiven Nachweis von thermischen und schnellen Neutronen. Teilweise kann man sie auch als Kalorimeter und als ortssensitiven Detektor (z.B. bei der Positronen-Emissions-Tomographie (PET) oder beim Szintillator-Pixel-Detektor FAST, siehe Abbildung 2.1.1) einsetzen. Ein weiteres wichtiges Einsatzgebiet ist die Neutrinophysik. Dort kommen vor allem organische Flüssigszintillatoren zum Einsatz, da sie in großen Mengen herstellbar sind, nahezu keine Alterungseffekte zeigen, sich durch eine hohe Lichtausbeute auszeichnen und sensitiv auf unterschiedliche Teilchenarten sind. Vor allem besteht die Möglichkeit weitere Substanzen direkt in den Szintillator einzubringen, um bestimmte Eigenschaften dieses Stoffes zu untersuchen. Weiterhin ist der vergleichsweise geringe Preis organischer Szintillatoren ausschlaggebend für die weite Verbreitung.

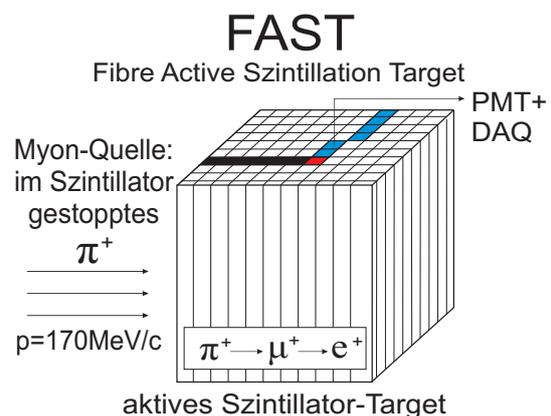
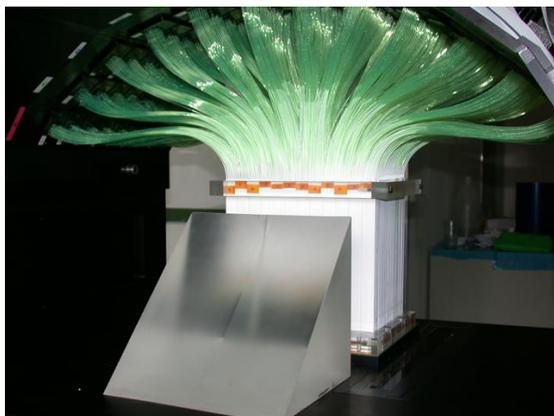


Abbildung 2.1.1: Ortssensitiver Szintillationsdetektor FAST im Paul-Scherrer-Institut. Links: Foto des Experiments [Die FAST Kollaboration, 2010]. Rechts: Prinzipskizze.

Während der Szintillationsmechanismus in anorganischen Szintillatoren prinzipiell auf die elektronische Bandstruktur in Kristallen zurückzuführen ist, ist die Grundlage der Szintillation in organischen Systemen rein molekularer Natur. Da der Gegenstand dieser Diplomarbeit die Untersuchung eines organischen Flüssigszintillators ist, beschränken sich

die weiteren Ausführungen auf letztere. Weitere Informationen zu anorganischen Szintillatoren können [Birks, 1964] entnommen werden.

Der folgende Abschnitt gibt einen prinzipiellen Überblick über die Entstehung der Szintillation auf molekularer Ebene.

2.2 Der Szintillationsmechanismus in organischen Szintillatoren

Die Organik ist das Teilgebiet der Chemie, welches sich mit der Herstellung, den Eigenschaften und dem Aufbau von Kohlenstoffverbindungen beschäftigt. Um zu verstehen, welche Voraussetzungen ein organisches Molekül aufweisen muss um lumineszenzfähig zu sein, ist es somit notwendig, sich mit der elektronischen Struktur des Kohlenstoffs zu beschäftigen.

Kohlenstoff ist Element der IV. Hauptgruppe und besitzt die Elektronenkonfiguration $1s^2 2s^2 2p^2$. Die nur halb gefüllte L -Schale ist die Grundlage für die Bildung komplexer Moleküle. Im Grundzustand sind aber nur zwei kovalente Bindungen unter Beteiligung der zwei $2p$ -Elektronen möglich. Die *Hybridisierung* ist der Grund, weshalb Kohlenstoff dennoch auf so vielfältige Weise Verbindungen eingehen kann. Löst man die Schrödingergleichung unter der Bedingung eines schwach angeregten Kohlenstoffatoms, so ergeben sich als Lösungen Linearkombinationen der atomaren Wellenfunktionen (LCAO ... linear combination of atomic orbital). Diese Lösungen tragen den Namen *Hybridorbitale* und werden nach der Anzahl der kombinierten atomaren Orbitale klassifiziert (siehe dazu [Mortimer und Müller, 2003]). Ein Beispiel einer solchen Konstruktion ist anhand des sp^3 -Hybrids in Abbildung 2.2.1 dargestellt. Die Struktur des Moleküls wird nun stark von dem Auftreten dieser neuen Lösungen geprägt. Die wichtigsten Formen sind in Tabelle 2.2.1 dargestellt.

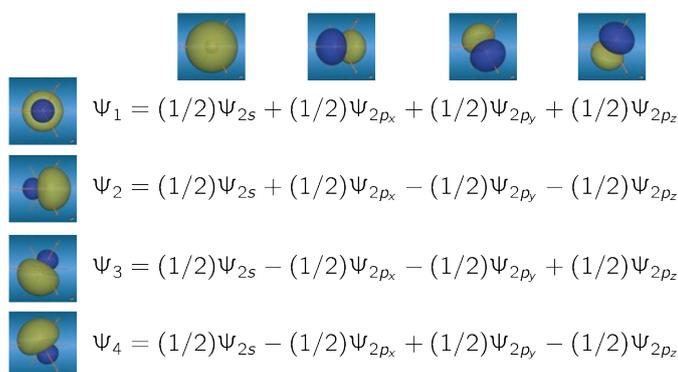


Abbildung 2.2.1: LCAO am Beispiel des sp^3 -Hybrids; erstellt mit Jmol von PD Dr. Stefan Immel [Immel, 2010]

Hybrid-Typ	Beteiligte Atomorbitale	räumliche Anordnung	Beispiel
sp	s, p_x	linear	C_2H_2
sp^2	s, p_x, p_y	trigonal-planar	C_2H_4
sp^3	s, p_x, p_y, p_z	tetraedrisch	CH_4
dsp^2	$d_{x^2-y^2}, s, p_x, p_y$	quadratisch-planar	$PtCl_4^{2-}$
dsp^3	$d_{z^2}, s, p_x, p_y, p_z$	trigonal-bipyramidal	VCl_5^-
d^2sp^3	$d_{z^2}, d_{x^2-y^2}, s, p_x, p_y$	oktaedrisch	TiF_6^{2-}

Tabelle 2.2.1: Einige ausgewählte Hybrid-Orbitale, ihre beteiligten atomaren Wellenfunktionen, sowie räumliche Gestalt und Vertreter derselben. Bemerkung: die quadratisch planare (dsp^2), trigonal-bipyramidale (dsp^3) und die oktaedrische Anordnung (d^2sp^3) kommen in der organischen Chemie nicht vor.

Im Falle der sp^3 -Hybridisierung kommt es zur Ausbildung eines gleichseitigen Tetraeders. Anschaulich gesprochen, wird eines der 2s-Elektronen in das unbesetzte p-Orbital gehoben. Dazu benötigt man die sogenannte Promotionsenergie, die zu dem angeregten Kohlenstoffatom führt. Dieses hat dann eine Elektronenkonfiguration von $1s^2 2s^1 2p^3$. Damit sind vier Orbitale mit nur einem Elektron besetzt. Überlappen sich diese Orbitale mit den s-Orbitalen von vier Wasserstoffatomen, wird unter Bildung von kovalenten Bindungen Energie frei. Diese freiwerdende Energie ist betragsmäßig größer als die Promotionsenergie. Die Hybridisierung ist somit die Voraussetzung für die Bildung von Methan. Die durch Überlappung entstandene Bindung zwischen dem sp^3 -Hybrid und dem s-Orbital des Wasserstoffs ist rotationssymmetrisch bezüglich der Verbindungsachse zwischen beiden Atomen und wird σ -Bindung genannt. σ -Bindungen sind sehr stark. Ihre Elektronen sind kaum delokalisiert, schwer anzuregen und somit auch nicht lumineszenzfähig.

Eine weitere Konfiguration eines Kohlenstoff-Hybrids ist die sp^2 (siehe Abbildung 2.2.3 in der Mitte), bei der ein s-Orbital und zwei p-Orbitale zu einer Lösung kombiniert werden. Die entstehende Molekülstruktur ist eine Ringstruktur und wird Benzentyp genannt (Vgl. Abbildung 2.2.2). Sechs Kohlenstoffatome, jeweils mit einem sp^2 -Hybridorbital, arrangieren sich dabei zu einem regelmäßigen Sechseck. Es handelt sich dabei erneut um σ -Bindungen, die die Stabilität des Moleküls garantieren. Die Fähigkeit Photonen bei Abregung zu emittieren, ist durch diese Verbindung nicht gegeben.

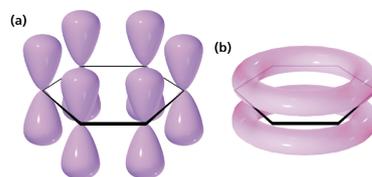


Abbildung 2.2.2: Benzenmolekül

Das verbleibende atomare p-Orbital steht senkrecht auf der Molekülebene. Sein zugehöriges

Elektron ist schwach gebunden und kann mit den Elektronen der anderen p-Orbitale wechselwirken. Weil sie keinem konkreten Atom mehr zugeordnet werden können, nennt man sie „delokalisierte π -Elektronen“. Im freien Elektronenmodell (siehe [Birks, 1964], S. 41ff.) geht man von der Vorstellung aus, dass sich diese Elektronen frei entlang des Umfangs des zugehörigen Moleküls bewegen können. Nach dem BOHRschen Kriterium ($\Psi(x) \stackrel{!}{=} \Psi(x+l)$, mit $l \dots$ Umfang des Moleküls) ergeben sich diskrete Energieniveaus. Durch Zufuhr von Energie können diese Elektronen nun in angeregte Zustände gehoben werden und beim darauf folgenden Übergang in den Grundzustand Photonen emittieren. Somit sind sp^2 Hybridorbitale fluoreszenzfähig.

Berücksichtigt man bei der LCAO nur ein s-Orbital und ein p-Orbital, so hat das resultierende Hybridorbital eine lineare Struktur (siehe Abbildung 2.2.3 links). Die unbeteiligten p-Orbitale bilden bei dieser Form ebenfalls π -Orbitale aus und sind somit ebenfalls lumineszent.

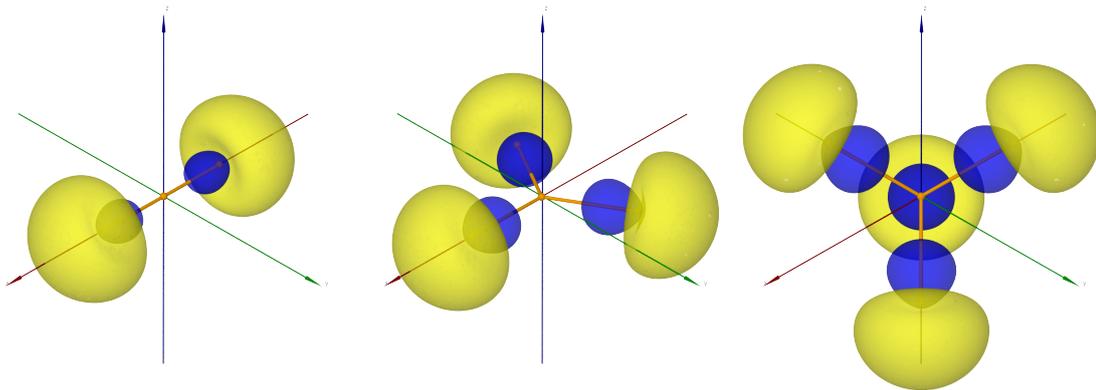


Abbildung 2.2.3: Hybrid-Orbitale, v.l.n.r: sp -, sp^2 -, und sp^3 -Hybrid; Die Iso-Konturflächen repräsentieren eine 90 %ige Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen ($|\Psi|^2$). Die unterschiedlichen Farben (gelb und blau) charakterisieren dabei Bereiche unterschiedlichen Vorzeichens der Wellenfunktion (Ψ). Die Graphiken wurden erzeugt mit MolArch⁺ und dargestellt mit Jmol. Mit freundlicher Genehmigung von PD Dr. Stefan Immel [Immel, 2010]

Der folgende Abschnitt widmet sich der elektronischen Struktur in den sp^2 - und sp -Hybriden etwas ausführlicher.

2.3 Das freie Elektronenmodell

Wie im vorangegangenen Abschnitt beschrieben, ergeben sich aufgrund des BOHRschen Kriteriums energetische Zustände im Hybridmolekül. Die korrekte quantenmechanische

Behandlung des Systems wurde schon 1949 von J. R. PLATT [Platt, 1949] publiziert. Das aus seiner Berechnung resultierende Energieschema der angeregten Molekülzustände wird im sogenannten Jablonski-Termschema (siehe Abbildung 2.3.1) dargestellt. In diesem werden die Energieniveaus unter anderem nach ihrer Spinorientierung unterschieden. Singulettzustände (S_i mit $i = 0, 1, 2, \dots$) sind Zustände, bei denen die s_z -Komponente des angeregten π -Elektrons antiparallel zum Spin des ungepaarten Elektrons im Grundzustand steht. Zustände mit paralleler Orientierung werden Triplettzustände genannt. Jedes dieser elektronischen Niveaus besitzt zusätzlich eine Feinstruktur von Vibrationszuständen. Da organische Moleküle meist viele Freiheitsgrade haben, ist die Anzahl der möglichen Vibrationszustände auch dementsprechend hoch. Energetisch liegen sie dicht beieinander mit Abständen um 0,1 eV. Zwischen den elektronischen Niveaus sind es hingegen etwa 2 - 4,5 eV.

Wird ein Szintillatormolekül durch Zufuhr von Energie aus dem Grundzustand (S_0) in einen angeregten Zustand (zum Beispiel S_2 oder S_3) gehoben, so regt es sich sehr schnell (innerhalb von 10^{-12} s) durch Kollisionen mit benachbarten Molekülen in ein Vibrationsniveau des ersten angeregten Zustandes (S_{1j} mit $j = 1, 2, 3, \dots$) ab. Die Equilibrierung auf das elektronische Niveau erfolgt ebenso schnell und strahlungslos und geschieht in Form von Wärmeabgabe an die Umgebung. Am Ende dieser Kaskade befindet sich das π -Elektron im ersten angeregten Zustand. Ursache dieses Mechanismus ist das FRANCK-CONDON-Prinzip ([Franck, 1926], [Condon, 1926] und [Condon, 1928]), welches besagt, dass sich der Kernabstand zwischen den Atomen in diesem Molekül während eines solchen Übergangs nicht ändert. Das hat zur Folge, dass bestimmte Übergänge zwischen Vibrationsniveaus wahrscheinlicher sind, wenn sich die zugehörigen Wellenfunktionen der Zustände nur wenig unterscheiden. Die wahrscheinlichsten Übergänge werden dann in drei Kategorien zusammengefasst:

1. Fluoreszenz
2. Phosphoreszenz
3. verzögerte Fluoreszenz

Bei der *Fluoreszenz* handelt es sich um Übergänge des S_{10} auf das S_{0j} -Niveau (mit $j = 0, 1, 2, \dots$). Die Abregung erfolgt durch Emission von Photonen, den sogenannten Fluoreszenzphotonen. Sie machen die schnelle oder prompte Komponente des Szintillatorlichtes aus. Die Besetzungszahl des ersten angeregten Zustands ist exponentiell verteilt und kann durch:

$$I_f = I_0 e^{-\frac{t}{\tau_f}} \quad (2.3.1)$$

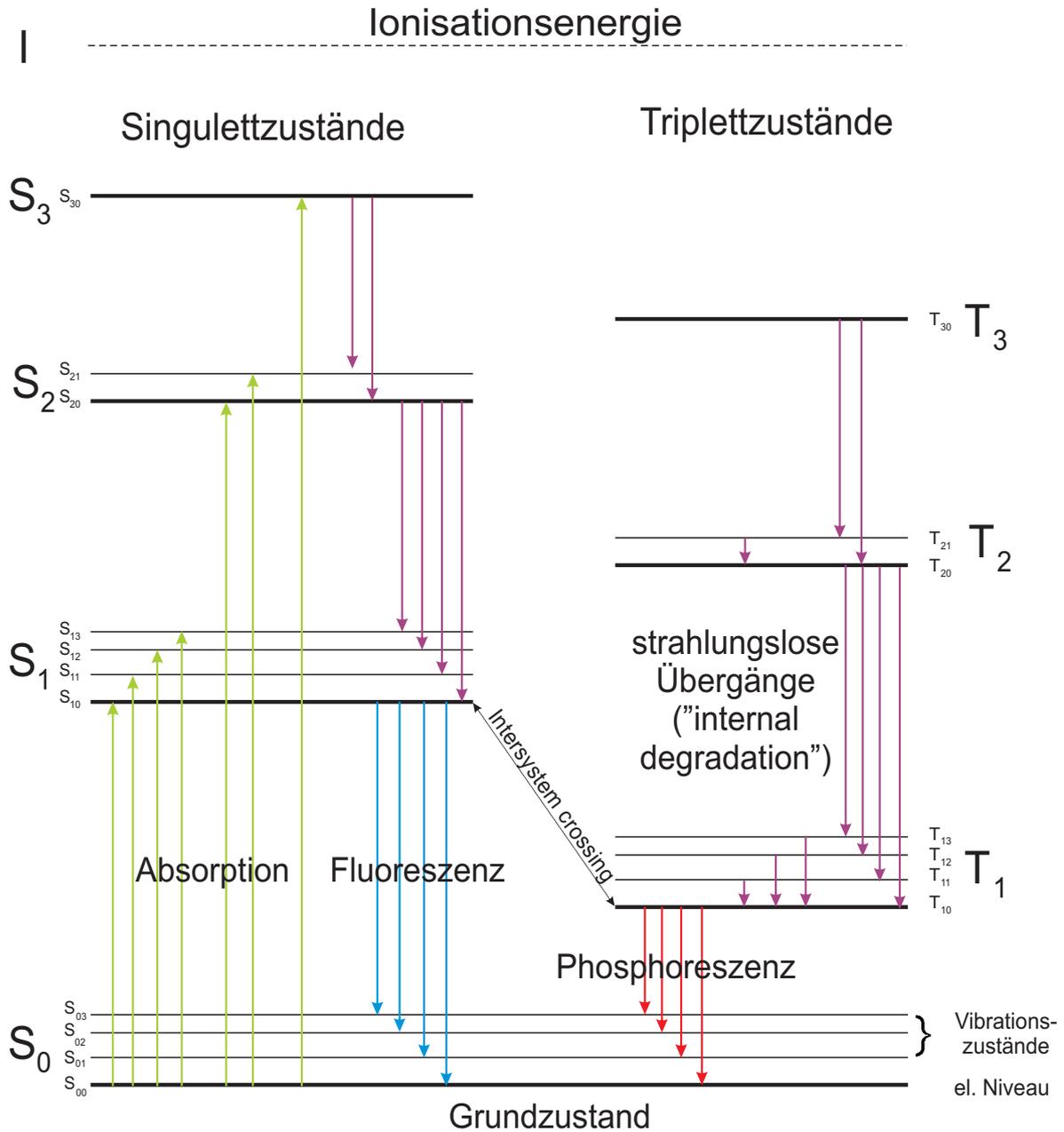


Abbildung 2.3.1: Jablonski-Termschema. Übergänge zwischen Molekülzuständen sind durch Pfeile dargestellt. Grüne Pfeile bezeichnen Übergänge infolge einer Absorption, blaue Abregungen des Moleküls, welche zur Emission von Fluoreszenzphotonen führen und rote, welche zur Emission von Phosphoreszenzphotonen führen. Magentafarbene Übergänge sind strahlungslos. Der schwarze Pfeil bezeichnet das sogenannte „Intersystem-crossing“.

beschrieben werden. Dabei ist τ_f ein Maß für die mittlere Lebensdauer des Zustands und hat die Größenordnung 10^{-8} - 10^{-9} s. Da die Wahrscheinlichkeit des Übergangs auf ein Vibrationsniveau des Grundzustandes hoch ist (FRANCK-CONDON-Prinzip), kommt es zu einer Verschiebung des Emissionsspektrums zu niedrigeren Energien. Das heißt, die Energie der Fluoreszenzphotonen ist kleiner als die Energie, die zur erneuten Anregung $S_0 \rightarrow S_1$ nötig wäre. Dieser Effekt trägt den Namen STOKES-Verschiebung und macht den Szintillator für sein eigenes Szintillationslicht teilweise transparent.

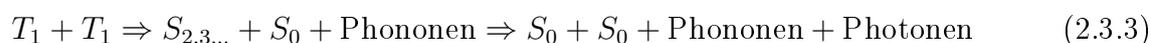
Da eine parallele Spinstellung energetisch ungünstiger als die antiparallele ist, liegen die Triplettzustände gleicher Hauptquantenzahl niedriger als vergleichbare Singulettzustände. Sie werden nicht direkt durch Absorption bevölkert, da der Übergang $S_0 \rightarrow T_1$ einen Spinflip voraussetzen würde und dieser durch Multipol-Auswahlregeln verboten ist. Dennoch werden Triplettzustände im Molekül besetzt. Rekombinieren Elektronen nach Ionisation wieder mit ihren Molekülen, so sind drei von vier Molekülen triplett-angeregt.

Eine weitere Möglichkeit zur Bevölkering von Triplett-Zuständen ist das sogenannte *intersystem crossing*, bei dem ein π -Elektron im S_1 durch Wechsel seiner Spinorientierung in das Niveau T_1 übergehen kann. Wie oben erwähnt, ist der Übergang von dort in den Grundzustand verboten. Das drückt sich in einer Lebensdauer des Zustandes aus, die vier bis fünf Größenordnungen länger ist, als die der Fluoreszenz. Zusätzlich ist das Spektrum der entstehenden Photonen zu niedrigeren Energien verschoben (Triplett-Zustände haben eine geringere Energie als vergleichbare Singulett-Zustände). Übergänge dieser Art bezeichnet man als *Phosphoreszenz* die ebenfalls einem exponentiellen Zerfallsgesetz folgen:

$$I_s = I_0 e^{-\frac{t}{\tau_s}} \quad \text{mit:} \quad \tau_s \cong 10^{-4} - 1\text{s} \quad (2.3.2)$$

Für ein Elektron des ersten angeregten Triplettzustandes gibt es jedoch noch zwei weitere Möglichkeiten in den Grundzustand zu fallen. Bei der ersten erhält das T_1 -Elektron von außen genau soviel Energie (durch Kollision mit anderen Molekülen/thermische Anregung zum Beispiel), dass es durch erneuten Spinflip wieder auf den ersten angeregten Singulettzustand wechseln kann und dort wie oben über den Fluoreszenzmechanismus auf den Grundzustand übergeht.

Hauptsächlich kommt es jedoch zu intermolekularen Reaktionen, bei denen zwei Moleküle mit angeregtem Triplettzustand zu Molekülen in Singulettzuständen reagieren. Die Reaktion lässt sich dabei wie folgt beschreiben:



Diese Art der Reaktionen, bei denen sich zwei organische Moleküle kurzzeitig formieren

und mindestens eines von beiden in einem angeregten Zustand ist, heißt „Exzimer-Bildung“. Die entstehenden Photonen beider Prozesse weisen das Spektrum von Fluoreszenzphotonen auf, können aber aufgrund ihrer Natur nicht durch ein exponentielles Zerfallsgesetz beschrieben werden. Da sie im Vergleich zur direkten (Fluoreszenz-)Emission verspätet auftreten, werden sie *verzögerte Fluoreszenzphotonen* genannt. Phosphoreszenz und verzögerte Fluoreszenz sind die Grundlage der langsamen/verzögerten Komponente im Szintillationslicht.

Oft ist es jedoch notwendig oder sinnvoll, weitere organische Moleküle in den Szintillator einzubringen. Diese Additiva besitzen oft ebenfalls die Eigenschaft der Lumineszenz. Wie man diese Systeme charakterisieren kann und welchen Einfluss die Zugabe weiterer Stoffe auf die Lichtausbeute, das Spektrum oder die Zerfallskonstanten hat, wird im folgenden Unterkapitel dargestellt.

2.4 Mehrkomponentige Szintillatoren

Möchte man die Eigenschaften eines Szintillators gezielt beeinflussen, fügt man ihm einen oder mehrere Stoffe bei. Man kann dabei das Emissionsspektrum in den sensitiven Bereich seiner Messapparatur (z.B. Photokathode im Photomultiplier) verschieben, die Lichtausbeute erhöhen oder die Nachweisbarkeit für eine bestimmte Teilchensorte maximieren. Je nach Anzahl der verwendeten Komponenten unterscheidet man:

1. Unitäre Systeme (z.B.: reine Kristalle, Flüssigkeiten, Kunststoffe (Plasten), sowie organische Gläser)
2. Binäre Systeme (z.B.: Anthracen und Naphtalen, in Kunststoffen gelöste reine Kristalle oder flüssige Lösungen)

3. Ternäre Systeme

In ternären Systemen wird meistens zusätzlich zum primären Szintillator auch noch ein zweiter beigemischt. Dieser absorbiert bestenfalls im Bereich der maximalen Emission des primären Szintillators und emittiert selbst bei kleineren Wellenlängen. Aufgrund dieser Eigenschaft werden sekundäre Szintillatoren auch als Wellenlängenschieber (im folgenden WLS genannt, engl. für wavelength-shifter) bezeichnet. Typische Vertreter für solche 3-komponentigen Systeme sind:

- ternäre Kunststoff-Lösungen (PPO und POPOP in Polysterenen) oder

- ternäre flüssige Lösungen (PPO und bis-MSB in LAB)

Systeme mit mehr als drei Komponenten sind möglich, finden in der Praxis jedoch nur selten Anwendung. Die Mechanismen, die bei der Entstehung von Szintillation in einem solchen System ablaufen, lassen sich meistens auf die drei bereits erwähnten Lumineszenzarten zurückführen.

Prinzipiell lassen sich alle lumineszenzfähigen Stoffe miteinander kombinieren. Bei der konkreten Zusammenstellung sollte jedoch auf folgende Kriterien geachtet werden:

- Passen Emissions- und Absorptionsspektren der verwendeten Stoffe zusammen?
- Ist die Fluoreszenzquanteneffizienz der verwendeten Szintillatoren hoch genug?
- Sind die Zerfallskonstanten der Szintillatoren für die spezielle Anwendung geeignet?
- Ist die Löslichkeit von primärem und sekundärem Szintillator im gewählten Lösungsmittel (Flüssigkeit oder Kunststoff) hoch genug?

Beachtet man alle diese Faktoren, so wird die mögliche Anzahl der Kombinationen stark eingeschränkt.

Eines haben aber alle effizienten Szintillatoren gemein: Sie bestehen aus ungesättigten Aromaten oder sind heterozyklische Moleküle. In Abbildung 2.4.1 sind drei wichtige Vertreter der Gruppe der Aromaten dargestellt.

Vor allem Naphthalen und Anthracen spielen in der Praxis eine wichtige Rolle. Naphthalen wird oft als Zusatz in weniger effizienten Systemen gelöst, um die Lichtausbeute zu erhöhen. Anthracen wurde in den vergangenen 50 Jahren ausgiebig untersucht, da es von allen bekannten unitären Systemen die höchste Lichtausbeute besitzt. Deswegen bezieht man gemessene Lichtausbeuten anderer Szintillatormaterialien oft auf die von Anthracen. Zur Reduzierung des Ionisations-Quenchings (Verminderung der Lichtausbeute durch stark ionisierende Teilchen, siehe Kapitel A.1) wird dem System oft Biphenyl beigesetzt. Möchte man hingegen den Wirkungsquerschnitt für den Nachweis von langsamen Neutronen erhöhen, so erreicht man das durch Zugabe von ^{10}B . Dabei nutzt man die Reaktion $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$, die einen Q -Wert von 2,792 MeV besitzt [Junghans, 2010]. Im Allgemeinen spricht man davon, dass der Szintillator mit diesen Stoffen „geladen“ ist.

Zur Entstehung der Szintillation in mehrkomponentigen Szintillatoren von der Anregung bis zur Emission sei der Leser an dieser Stelle auf das Kapitel A.1 im Anhang oder auf [Birks, 1964, S. 55-60] verwiesen.

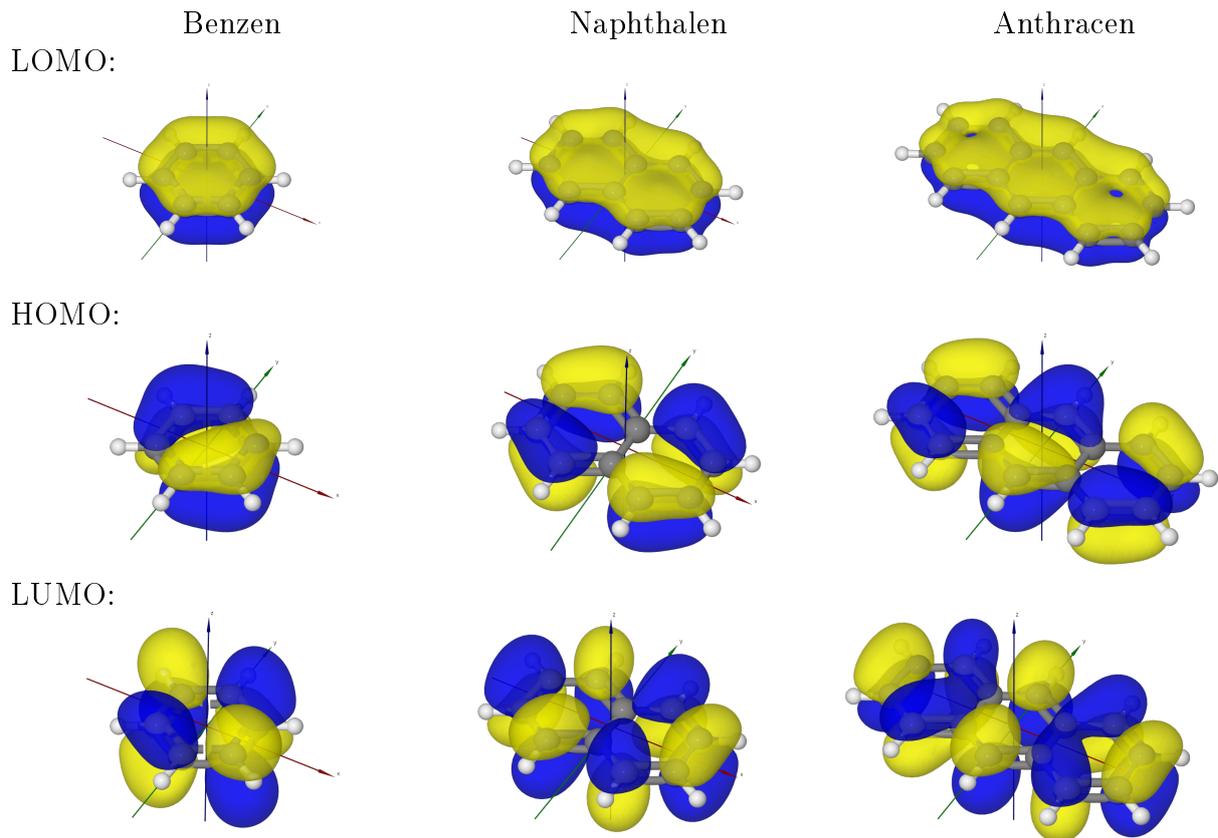


Abbildung 2.4.1: Molekülorbitale einiger aromatischer Kohlenwasserstoffe (π -Elektron-Systeme). Die Abbildung zeigt die Ladungsverteilung des niedrigsten besetzten Zustandes ((LOMO...lowest occupied molecular orbital), den höchsten besetzten Zustand (HOMO...highest occupied molecular orbital) und den ersten angeregten Zustand (LUMO...lowest unoccupied molecular orbital). Mit freundlicher Genehmigung von PD Dr. Stefan Immel [Immel, 2010]

3 Spektroskopische Messungen

Möchte man sich ein genaues Bild über die Zusammensetzung eines verwendeten Szintillators machen, so bietet es sich an, ihn mit spektroskopischen Methoden zu untersuchen. Man erhält dabei nicht nur detaillierte Informationen über die Zusammensetzung, sondern auch das Spektrum des emittierten Fluoreszenzlichtes. Das ist notwendig, um die Wahl der Photovervielfacher und anderer optischer Elemente abzustimmen. Mit Hilfe einer UV/VIS-Spektroskopie (spektroskopisches Verfahren, welches Licht im sichtbaren bis ultravioletten Bereich des Spektrums zur Anregung benutzt) lassen sich Stoffe, die das emittierte Licht anschließend absorbieren, nachweisen. Auch eine Reduzierung der Lichtausbeute durch Sauerstoff-Quenching (Verminderung der Lichtausbeute durch den Einfluss von gelöstem Sauerstoff) lässt sich durch spektroskopische Methoden überprüfen.

Hauptsächlich werden Fluoreszenz- und UV/VIS-Spektrometer jedoch genutzt, um Rückschlüsse auf die elektronische Struktur der spektroskopierten Moleküle zu ziehen. Wie in Kapitel 2.3 beschrieben, sind die Abstände der elektronischen Niveaus in organischen Szintillatoren im Bereich von einem Elektronenvolt. Das heißt, dass eine Anregung dieser Moleküle mit sichtbarem bis ultraviolettem Licht möglich ist. Umgekehrt sollte sich dann natürlich auch die Emission in diesem Bereich vollziehen beziehungsweise leicht zu längeren Wellenlängen verschoben sein. Elektronische Struktur und Fluoreszenz- sowie UV/VIS-Spektrum sollten also eng miteinander verflochten sein.

Am Beispiel von Anthracen¹ ist dieser Zusammenhang in Abbildung 3.0.1 einmal dargestellt. Man erkennt deutlich eine Struktur mehrerer Maxima im UV/VIS-Spektrum, die den Übergängen der Vibrationsniveaus des ersten angeregten Zustandes in den Grundzustand zugeordnet werden können. In Flüssigkeiten ist die Linienbreite in diesen Absorptionsspektren dominiert durch die Stoßverbreiterung, das heißt, durch Wechselwirkungen zwischen den Molekülen des Lösungsmittels. Geht man davon aus, dass sich der Aufbau der Vibrationsniveaus des Grundzustandes und des ersten elektronisch angeregten Zustandes ähneln und die Emission fast ausschließlich über die Übergänge $S_{10} \rightarrow S_{0i}$ (mit $i = 0, 1, 2 \dots$) abläuft (vgl. Kapitel 2.3), so folgt eine Axialsymmetrie zwischen den Spektren der UV/VIS- und Fluoreszenzspektroskopie. Dieses Verhalten konnte mit Anthracen ebenfalls nachgewiesen werden (vgl. Abbildung 3.0.2).

Die Abteilung Biophysik im Institut für Radiochemie des HZDR benutzt für Ihre Untersu-

¹Der dem Fluorezenzspektrometer beigefügte Anthracen-Standard enthielt zusätzlich eine geringe Konzentration Naphthalen. Die Bezeichnung Anthracen bezieht sich im folgenden immer auf die Kombination dieser beiden Stoffe.

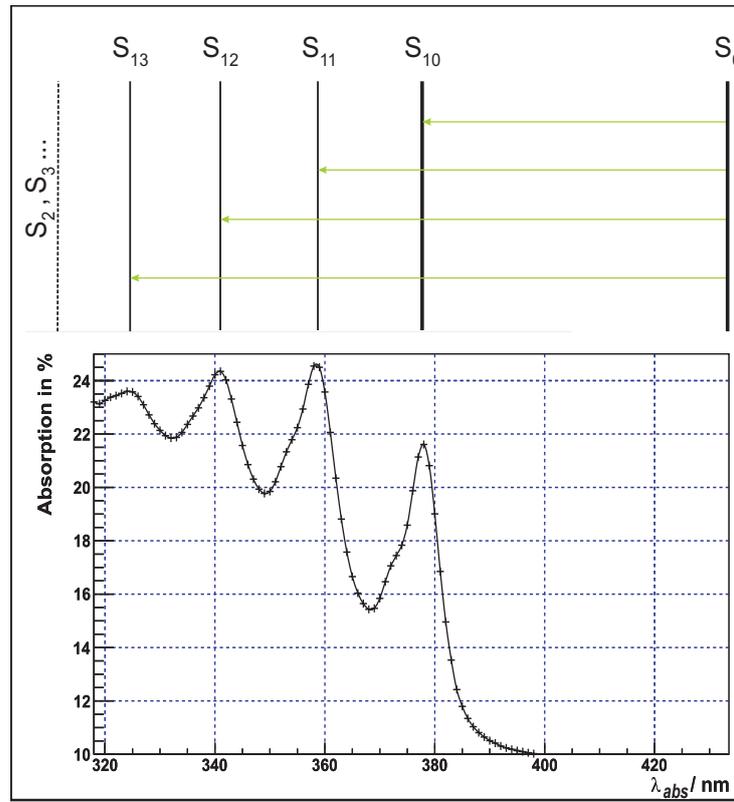


Abbildung 3.0.1: Absorption in Anthracen und Vergleich mit elektronischem Aufbau. Die Energiedifferenz zwischen S_{10} und S_{11} beträgt $\Delta E = 0,181$ eV. Datensatz: /gpfs/data/fwkk/koegler/06.232010/Fluoreszenz/Anthracen/emis_absorb.C

chungen von Proteinen in diversen Anwendungen zwei PerkinElmer[®] Spektrometer vom Typ Lambda 35 (UV/VIS-Spektrometer) und LS55 (Fluoreszenzspektrometer). Diese beiden Spektrometer waren geeignet auch Proben unterschiedlicher Flüssigszintillatoren zu untersuchen. Abbildung 3.0.3 zeigt den prinzipiellen Aufbau beider Apparaturen.

Die folgenden Unterkapitel geben einen kurzen Überblick über die Funktionsweise von Fluoreszenz- und UV/VIS-Spektrometern und erläutern die vorgenommene Messung sowie deren Ergebnisse.

3.1 Messprinzip der verwendeten Spektrometer

Wie noch in Kapitel A.1 genauer beschrieben wird, ist der sekundäre Prozess im Szintillationsmechanismus unabhängig von der Art der Anregung. Da die Effizienz bei der Anregung durch UV-Licht am größten ist, werden in Spektrometern meist Deuterium- oder Quecksilber-Dampflampen verwendet. Für Absorptionsspektroskopie im sichtbaren

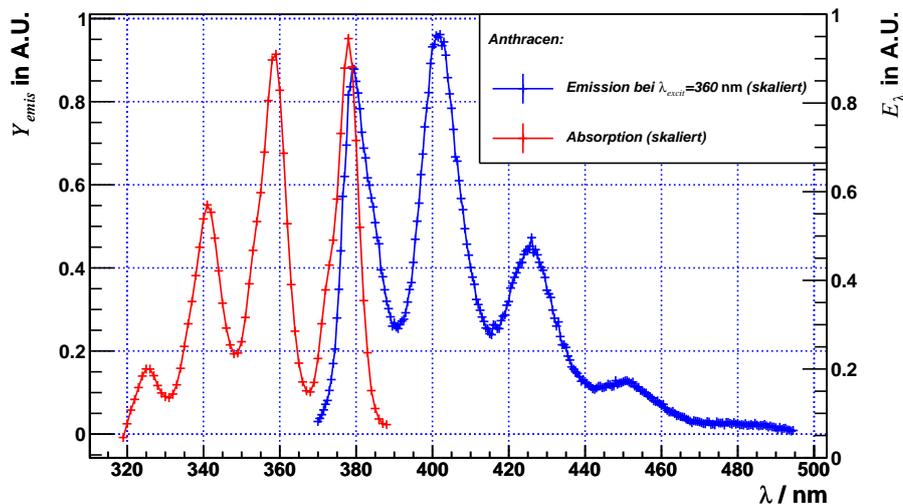


Abbildung 3.0.2: Emissions- und Absorptionsspektrum von Anthracen. Deutlich zu sehen ist die Axialsymmetrie der beiden Spektren, welches auf den identischen Aufbau von Vibrationsniveaus des Grund- und des ersten angeregten Zustandes zurückzuführen ist. Die Maxima bei $\lambda \approx 380$ nm entsprechen dem Übergang $S_{01} - S_{00}$. Zur besseren Veranschaulichung wurden beide Spektren skaliert, sowie beim Absorptionsspektrum ein linear ansteigender Untergrund entfernt.
Datensatz: /gpfs/data/fwkk/koegler/06.232010/Fluoreszenz/
/Anthracen/Fluoreszenz.C

Bereich verwendet man hingegen Halogenlampen. Ein Spiegel am Anfang des Strahlengangs kann zwischen dem Licht der beiden Lampen wechseln, je nachdem, welche Lampe in welchem Bereich des Spektrums eine größere Intensität hat. Das Licht fällt anschließend auf einen Monochromator, der nur eine eingestellte Wellenlänge passieren lässt. Für diese Funktion bietet sich eine Kombination aus Prisma und Filter an. Heute werden vor allem optische Gitter oder in hochauflösenden Geräten Kombinationen von Gittern und Prismen verwendet.

Hinter dem Gitter trifft das Licht auf die Probe. Diese befindet sich in einer Küvette (46 mm \times 12,5 mm \times 12,5 mm, 10,0 mm Lichtweg) aus UV-transparentem Quarzglas. Innerhalb der Probe wird das einfallende Licht gestreut, absorbiert und/oder dient zur Fluoreszenzanregung. Bis zu diesem Punkt gleichen sich die Spektrometer prinzipiell. Beim UV/VIS ist man an der Absorption oder besser der Extinktion (3.2.1) interessiert. Deshalb sind weitere Strahlelemente in direkter Verlängerung zum Anregungsweig platziert.

Bei der Fluoreszenzspektroskopie untersucht man hingegen das von der Probe emittierte Licht. Dieses, zumal sehr schwache Licht, wird meistens überdeckt vom deutlich stärkeren, gestreuten Licht der Quelle. Da die Wahrscheinlichkeit der Streuung unter 90° am geringsten ist (Rayleigh-Streuung [Böcker, 1997, S. 123 f.]), werden beim Fluoreszenzspek-

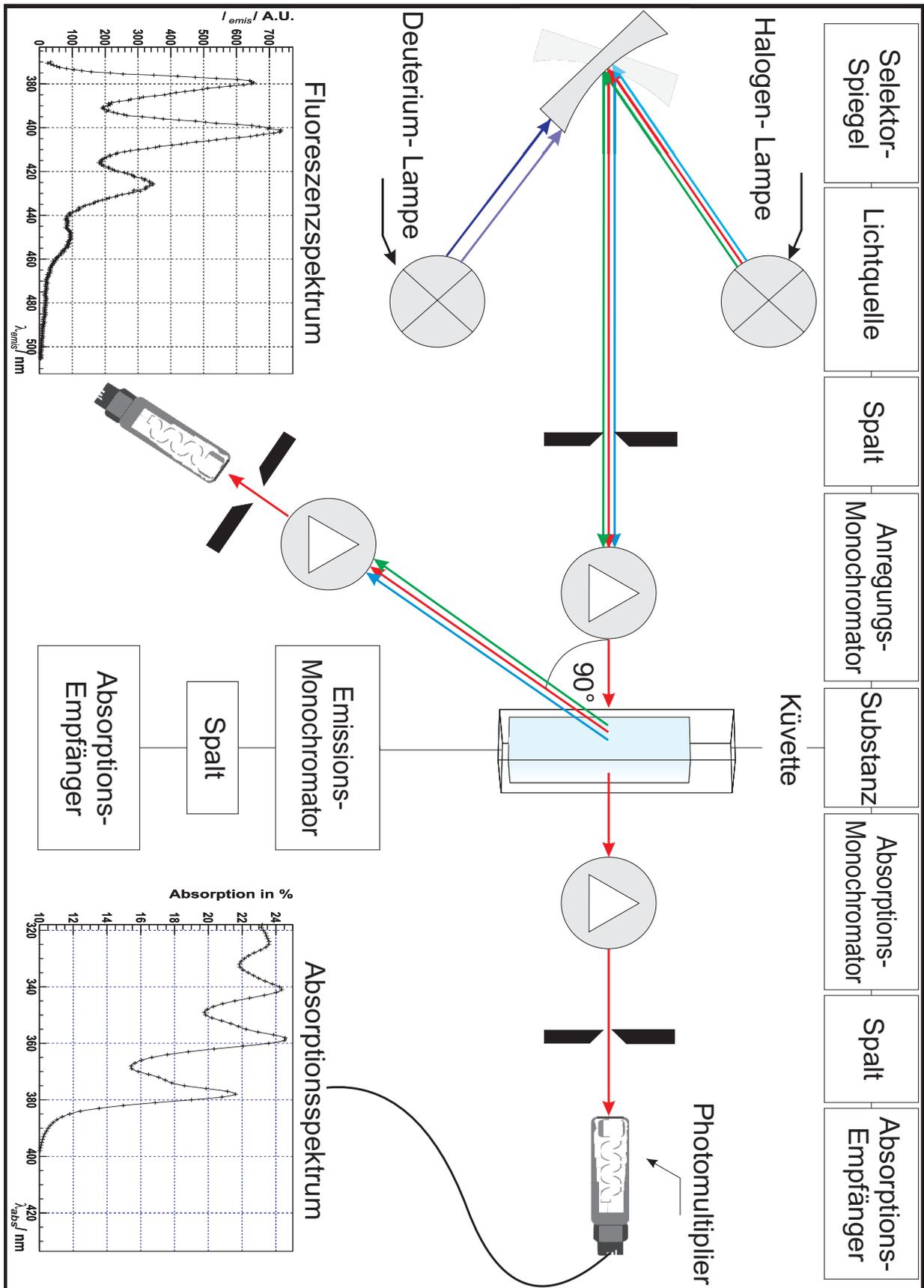


Abbildung 3.0.3: Schematischer Aufbau eines kombinierten Absorptions- und Fluoreszenzspektrometers

trometer Detektor und Emissionsmonochromator unter diesem Winkel platziert.

Bei den verwendeten Detektoren kommen hochempfindliche Photomultiplier zum Einsatz, die aber zunehmend von Photodiodenarrays abgelöst werden. Schlitze vor und nach dem Auftreffen auf die Probe schützen einmal die Probe selbst vor zu intensivem Licht, aber auch den Detektor, der bei zu hoher Intensität Schaden nehmen würde.

Der eben beschriebene Aufbau beider Spektrometer ist vereinfacht in Abbildung 3.0.3 dargestellt.

Gemessen wurden Proben auf Basis von linearen Alkylbenzenen versetzt mit primären beziehungsweise sekundären Szintillatoren in unterschiedlichen Zusammensetzungen:

- LAB (pur)
- LAB + 3 g/l 2,5-Diphenyloxazole (PPO)
- LAB + 0,5 g/l 1,4-bis(2-Methylstyryl)-Benzol (bis-MSB)
- LAB + 3 g/l PPO + 0,5 g/l bis-MSB (nur Fluoreszenz)
- LAB + 3 g/l PPO + 20 mg/l bis-MSB

Das LAB, welches die Grundlage dieser Proben bildet, heißt Wibarcan und ist ein Produkt der Firma Wibarco aus Ibbenbüren in Nordrhein-Westfalen. Wibarco stellte uns eine Probe ihres linearen Alkylbenzens zur Verfügung, welches chemisch ähnlich dem kanadischen Pendant der Firma Petresa ist. Der Hersteller versicherte uns durch ein eigens angefertigtes Labor-Zertifikat (siehe A.4.1) die konkrete Zusammensetzung und Reinheit seines Produktes.

Für jede Probe wurden 10 ml vom Lösungsmittel entnommen, anschließend die entsprechenden Mengen primärer und sekundärer Szintillatoren mit einer hochempfindlichen Waage eingewogen und zusammen mit dem Lösungsmittel in ein entsprechendes Behältnis gegeben. Da sich sowohl PPO als auch bis-MSB nur mühsam bei Zimmertemperatur in LAB lösen, wurde das Lösungsmittel mit einer Heißluftpistole solange erwärmt, bis sich die kristallinen Bestandteile vollständig gelöst hatten. Sowohl Szintillator als auch Lösungsmittel sollten nach Herstellerangaben einen Wasseranteil unter 65 ppm besitzen. Wasser hat die negative Eigenschaft, dass es durch seine Polarität Elektronen aus dem Szintillationsprozess einfängt und diese dann nicht mehr zur Lumineszenz beitragen. Um eventuell verbliebenes Wasser abzutrennen, wurde die Lösung 30 min auf 120°C erhitzt. Nur vereinzelte Bläschenbildung bei diesem Prozeß bestätigte die Herstellerangabe.

Ein weiterer Effekt, der den Szintillationsprozess und somit effektiv auch die Lichtausbeute negativ beeinflusst, ist das sogenannte *Sauerstoff-Quenching*. Sauerstoff kann sowohl als Gas gelöst, wie auch als Bestandteil von Wasser (H₂O) im Szintillator auftreten

und durch seine Elektronegativität die Elektronenbilanz des Szintillationsprozesses verändern. Um gelösten Sauerstoff aus Flüssigszintillatoren zu entfernen, hat sich ein Spülen mit hochreinem Argon oder Stickstoff bewährt. Nach [Hua-Lin und Jin-Shan, 2009] sind 20 min ausreichend, ein weiteres Spülen erhöht die Lichtausbeute nur noch geringfügig. Eine selbstgefertigte, luftdichte Handschuhbox wurde so präpariert, dass alle Proben gleichzeitig mit hochreinem (99,99999 %) N₂ gespült und anschließend sofort ohne Einströmen von Luft wieder verschlossen werden konnten.

Als Referenzmaterialien wurden der organische Flüssigszintillator NE-213 (vergleichbar mit BC-501A der Firma Saint-Gobain) und der organische Festkörperszintillator Anthracen verwendet. Um die Löslichkeit von LAB und Xylol (Lösungsmittel von NE-213) vergleichen zu können, wurde eine spezielle Probe dieses Szintillators abgefüllt, eingewogen und anschließend über einige Tage an der Luft verdunstet. Xylol und Toluol als Lösungsmittel sind sehr flüchtig, aber zeichnen sich durch ihr hohes Lösungsvermögen aus. Unsere Messung bestätigte diesen Sachverhalt und bestimmte die Konzentration des / der in NE-213 gelösten Szintillator(en) auf $c = 11,22$ g/l (zum Vergleich: die Konzentration an primärem Szintillator in LAB betrug in dieser Arbeit $c = 3,00$ g/l).

Die folgenden Abschnitte gehen gesondert auf die Absorptions- und Fluoreszenzspektroskopie ein.

3.2 UV/VIS- Spektroskopie

Das PerkinElmer® Lambda 35 hat einen Messbereich von 190-1100 nm. Die Monochromatoren garantieren eine Genauigkeit der einfallenden Wellenlänge von 0,1 nm und eine variable Bandbreite von 0,5-4 nm. Die verwendeten Detektoren zeichnen sich durch einen geringen Rauschpegel und eine hohe Stabilität aus. Ferner besitzt das Spektrometer die Möglichkeit, zwei Proben zur gleichen Zeit zu messen. Während eines Messzyklusses wird der Strahl einer definierten Wellenlänge mehrmals abwechselnd auf beide Proben gelenkt und fällt anschließend auf jeweils einen separaten Detektor. Die Messwerte eines Durchgangs werden dann gemittelt, von dem Messwert des jeweils anderen Detektors subtrahiert und am Ende ausgegeben. Diese Relativmessung wird vorwiegend zur Bestimmung der Konzentration eines gelösten Stoffes in einem Lösungsmittel benutzt. In einer der Probenhalterungen befindet sich dabei das Lösungsmittel allein und in der anderen das Lösungsmittel und der Zusatzstoff. Über das LAMBERT-BEERSche Gesetz:

$$E_{\lambda} = -\lg\left(\frac{I}{I_0}\right) = \epsilon_{\lambda}cd \quad (3.2.1)$$

mit E_λ ... Extinktion, I_0, I ... einfallende und gemessene Intensität, ϵ_λ ... dekadischer Extinktionskoeffizient und d ... Schichtdicke, lässt sich somit die Konzentration c des gelösten Stoffes ermitteln. Die Gültigkeit dieses Gesetzes ist jedoch beschränkt, da es nur für monochromatisches Licht und für ideale Lösungen gilt ($c \rightarrow 0$, vgl. [Böcker, 1997]). Für reale Lösungen ist ϵ_λ nicht mehr konzentrationsunabhängig. Es kommt dann zu intermolekularen Wechselwirkungen, die die Linearität zerstören. Deswegen sollten Extinktionswerte über 1,0 (d.h. 10% Transmission, 90% Absorption) bei der Konzentrationsbestimmung vermieden werden. Möchte man jedoch, wie in unserem Falle, nur den qualitativen Verlauf der wellenlängenabhängigen Absorption verfolgen, spielt diese Erkenntnis keine entscheidende Rolle. Deshalb muss die Probe auch nicht weiter verdünnt werden. Aus diesem Grund soll hier auf eine umfassende Fehlerbetrachtung verzichtet werden.

Wird eine ungefüllte Küvette in den Referenzstrahlengang gegeben, so erhält man den qualitativen Verlauf der Absorption. Beide Messprinzipien (Messung gegen eine leere Küvette, sowie gegen eine mit Lösungsmittel gefüllte) wurden durchgeführt. Der Messbereich betrug 200-700 nm, die Schlitze waren jeweils 2 nm geöffnet. Zu Beginn jeder Messung bestimmt das Spektrometer automatisch seinen Offset. Während dieses „Autozero“-Prozesses wird eine komplette Messung ohne Proben in den Halterungen durchgeführt.

In Abbildung 3.2.1 ist das Ergebnis der Messungen relativ zu Luft dargestellt. Es bestätigt sich, dass organische Lösungsmittel unterhalb einer Wellenlänge von 250 nm kein UV-Licht mehr durchlassen [PerkinElmer, 2008]. Bei linearen Alkylbenzenen ist das schon bei etwa 335 nm der Fall. Der Zusatz von primären und sekundären Szintillatoren verschiebt diese Grenze zu größeren Wellenlängen. Das ist auch beabsichtigt, denn der gelöste Szintillator besitzt unter günstigen Bedingungen dort sein Absorptionsmaximum, wo das Lösungsmittel sein Emissionsmaximum vorweist. So wird gewährleistet, dass der Großteil der im Lösungsmittel deponierten Energie auch zum (primären) Szintillator transportiert wird. Für den sekundären Szintillator, dem Wellenlängenschieber, trifft das in ähnlicher Weise zu. Er besitzt dort sein Absorptionsmaximum, wo der primäre sein Emissionsmaximum hat. Bereits jetzt wird darauf hingewiesen, dass PPO bei 360 nm emittiert und bis-MSB bei 423 nm sein Emissionsmaximum erreicht. Die maximale Absorption findet bei LAB+PPO unterhalb von 353 nm und von LAB in Verbindung mit bis-MSB unterhalb von 402 nm statt. Eine Zusammenstellung der gerade beschriebenen Prinzipien ist in Abbildung 3.2.2 dargestellt.

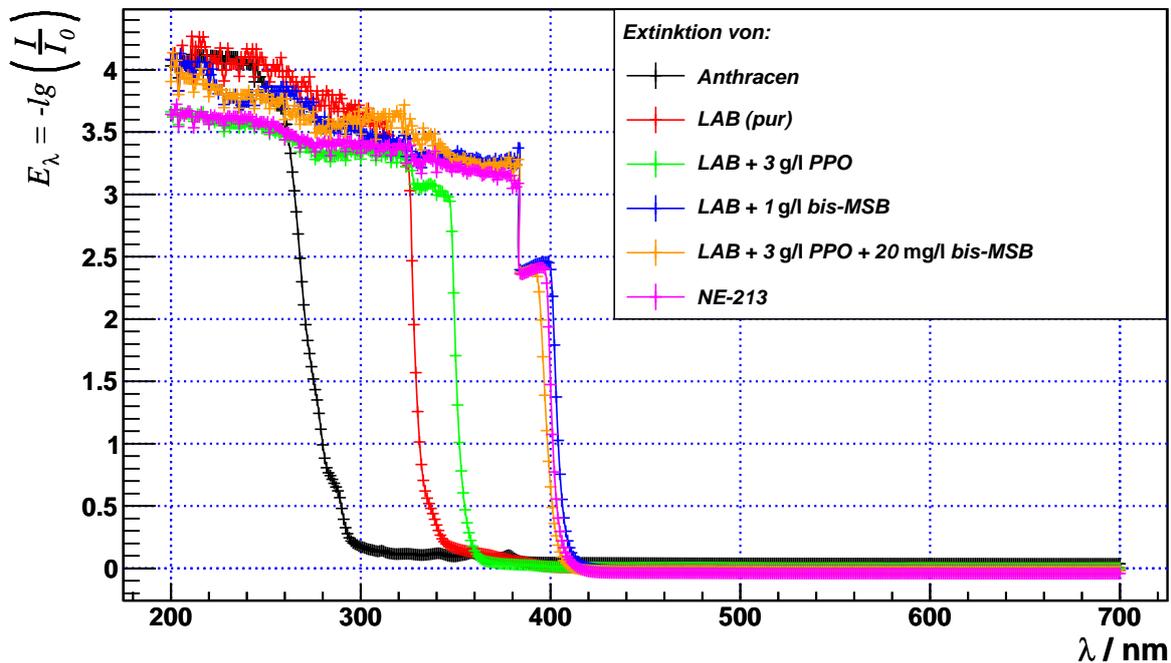


Abbildung 3.2.1: Ergebnisse der UV/VIS-Spektroskopie mit dem PerkinElmer[®] Lambda 35. Dargestellt sind Extinktionen von organischen Flüssigszintillatoren und Anthracen in Abhängigkeit der eingestrahlten Wellenlänge.

Datensatz: /gpfs/data/fwkk/koegler/06.232010/UV_VIS/UVabsorb.C

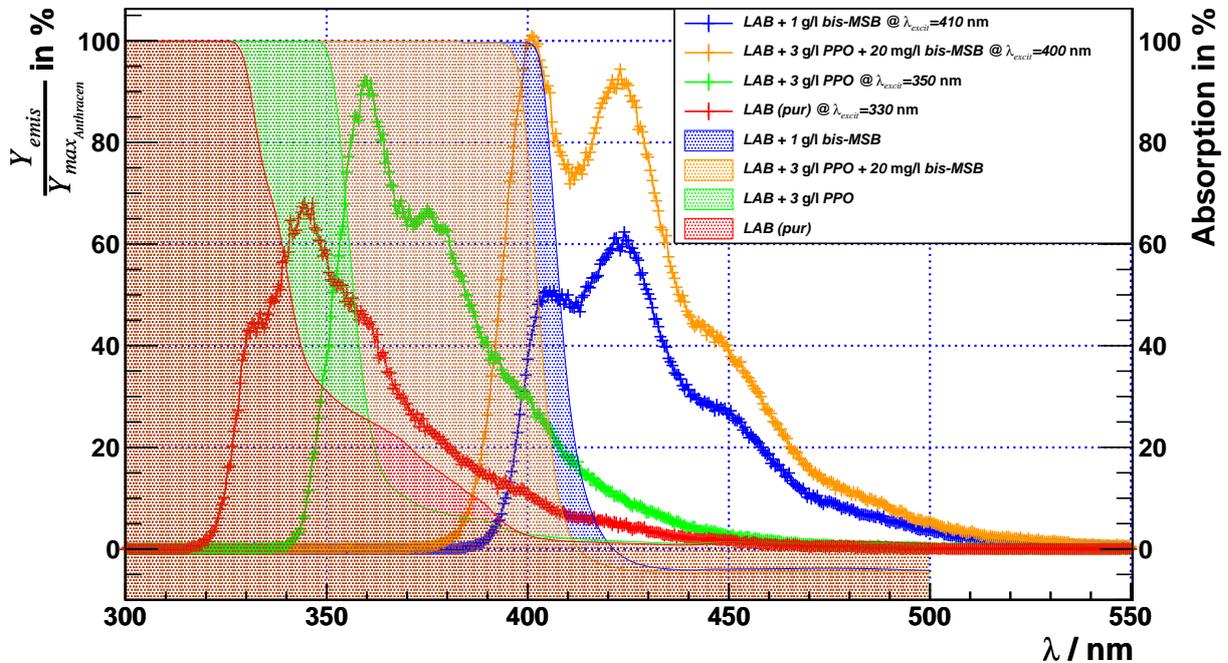


Abbildung 3.2.2: Zusammenstellung von Absorptions- und Fluoreszenzmessungen organischer Szintillatoren auf Basis von linearen Alkylbenzenen. Schraffierte Kurven kennzeichnen Gebiete starker Absorption. Die durch einen Spline verbundenen Kreuze stehen für die Ergebnisse der Fluoreszenzmessungen.

Datensatz: /gpfs/data/fwkk/koegler/06.162010/scinti_absorb.C

3.3 Fluoreszenzspektroskopie

Wie im Kapitel 3.1 bereits erwähnt, ist die Funktionsweise eines Fluoreszenzspektrometers der des UV/VIS-Spektrometers ähnlich. Im Gegensatz zum Absorptionsspektrometer wird hier jedoch das emittierte Licht der Probe detektiert. Um Streulicht größtenteils zu vermeiden, wird deshalb der Detektor unter einen Winkel von 90° positioniert, da der Wirkungsquerschnitt für die Streuung unter diesem Winkel minimal ist.

Das PerkinElmer[®] LS 55 Fluoreszenzspektrometer besitzt ähnlich gute Analyseparameter wie das Lambda 35. Jedoch ist die Empfindlichkeit der verwendeten Detektoren im roten/infraroten Bereich sehr gering, sodass sich sein Messbereich nur von 200-800 nm erstreckt.

Beim Fluoreszenzspektrometer gibt es unterschiedliche Messmodi. Zum einen kann die Wellenlänge des Anregungslichtes fixiert werden und das Emissionslicht über den gewählten Messbereich bestimmt werden. Im zweiten Messmodus wird die Emissionswellenlänge fixiert und die Probe mit unterschiedlichen Frequenzen angeregt. Die dritte Möglichkeit ist die Kombination aus beiden Erstgenannten. Nacheinander werden unterschiedliche Anregungswellenlängen auf die Probe entsandt und dabei für jede Wellenlänge das Emissionsspektrum gemessen. Letztere Methode bietet sich vor allem dann an, wenn man noch nicht genau weiß, in welchem Bereich Anregungs- und Emissionsmaxima liegen.

Um die Proben hinsichtlich ihrer Lichtausbeute vergleichen zu können, musste sichergestellt werden, dass für alle Proben die gleichen Messbedingungen (Öffnung der Schlitze, Emissionskorrekturen, Detektorspannung) gelten. Die wellenlängenintegrierte Lichtausbeute kann als Maß für die relative Lichtausbeute der einzelnen Proben angesehen werden. Als Standard wurde aufgrund der bereits erwähnten historischen Gegebenheiten Anthracen gewählt. Obwohl alle Proben mit einer Wellenlänge in der Nähe des Anregungsmaximums angeregt wurden (Spektrometerschrittweite = 1 nm), bei der sie die größte Emission zeigen, sollte dieses Verhältnis dennoch kritisch betrachtet werden. Es ist kaum möglich den Anteil des Streulichtes in den jeweiligen Messwerten exakt zu bestimmen. Bei den LAB+PPO-basierten Proben fand die maximale Anregung nur etwa 7 nm unterhalb des Emissionmaximums statt. Bei Anthracen sind es hingegen 20 nm. Der Anteil des gestreuten Lichtes wird so im Vergleich zu Anthracen deutlich größer sein. In den Spektren der Flüssigszintillatoren ist das Streumaximum als „Buckel“ in der ansteigenden Flanke des Hauptmaximums enthalten. Alle Versuche, diese Proben bei kleineren Wellenlängen anzuregen, schlugen fehl, da die Anregung dann zu schwach war und das Spektrum durch elektronisches Rauschen der Detektoren dominiert war.

Dennoch lassen die berechneten Ergebnisse vermuten, dass die Lichtausbeute LAB-

basierter Flüssigszintillatoren und von NE-213 größer ist, als die von Anthracen. Von allen untersuchten Proben zeigt LAB+3 g/l die höchste Lichtausbeute bei Anregung durch UV-Licht. Eine Zusammenstellung der Messwerte und der eingestellten Parameter ist in Tabelle 3.3.1 zu finden.

In Zusammenarbeit mit Dr. Valentina Lozza und Belina von Krosigk vom Institut für Kern- und Teilchenphysik der TU Dresden wurden weitere Proben untersucht. Unter anderem auch:

- LAB der Firma Petresa aus Canada
- LAB (Petresa) + PPO
- LAB (Petresa) + PPO + ^{150}Nd

Zusätzlich wurde auch eine Probe LAB+PPO für längere Zeit (≈ 1 Monat) der Umgebungsluft ausgesetzt und die integrierten Spektren bei identischer Versuchsanordnung verglichen. Eine deutliche Veränderung des Emissionsspektrums dieser konnte dabei nicht festgestellt werden². Auch die Unterschiede zwischen Wibarco und Petresa LAB waren vernachlässigbar. Erwartungsgemäß hätte die Lichtausbeute des Wibarco LAB dennoch leicht über der von Petresa liegen sollen, da die Lichtausbeute mit zunehmender Länge der Alkylkette geringer werden sollte (siehe [Birks, 1964, S. 272ff. & Tabelle 8.2]) und das Petresa LAB mehr Benzene mit längeren Alkylketten besitzt. Die mit Neodym versetzte LAB+PPO-Lösung, welche bei SNO+ den neutrinolosen, doppelten β -Zerfall nachweisen soll, enthielt die für Neodym (^{150}Nd) charakteristischen Absorptionsmaximas, verhielt sich ansonsten aber identisch zur einfachen LAB+PPO-Lösung.

Probe	$\lambda_{excit,max}$ / nm	$\lambda_{emis,max}$ / nm	$\sum Y / \sum Y_{\text{Anthracen}}$ / %
Anthracen	360,0	379,2	100
NE-213	402,6	419,0	152,49
LAB (pur)	329,6	346,1	62,86
LAB+3,0 g/l PPO	353,6	361,1	185,08
LAB+0,5 g/l bis-MSB	402,2	423,1	171,32
LAB+3,0 g/l PPO+0,5 g/l bis-MSB	402,1	423,4	168,00
LAB+3,0 g/l PPO+20 mg/l bis-MSB	392,0	400,0	182,41

Tabelle 3.3.1: Messparameter und Ergebnisse der Fluoreszenzspektroskopie. $\lambda_{excit,max}$ steht für die Anregungswellenlänge, bei der die größte Intensität emittiert wurde und $\lambda_{emis,max}$ entspricht dabei der Lage dieses Maximums. $\sum Y$ bezeichnet die integrierte Lichtausbeute (Lichtausbeute ... Y (für englisch yield))

²[O’Keeffe et al., 2011] haben einen Einfluss ungelösten Sauerstoffs auf die Intensitäten und Zerfallskonstanten in LAB+PPO gefunden. Inwieweit die Ergebnisse beider Messungen vereinbar sind, ist noch offen.

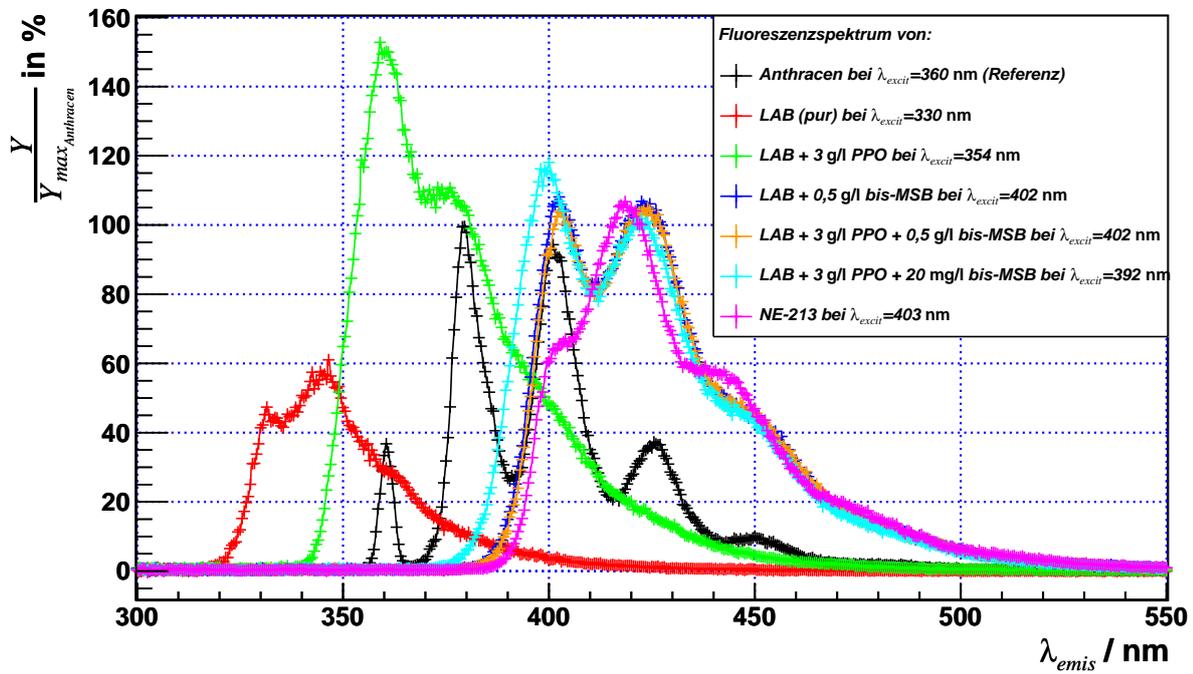


Abbildung 3.3.1: Fluoreszenz-Spektren organischer Szintillatoren.
 Datensatz: /gpfs/data/fwkk/koegler/01.252011/
 Fluoreszenz/scintillation.C

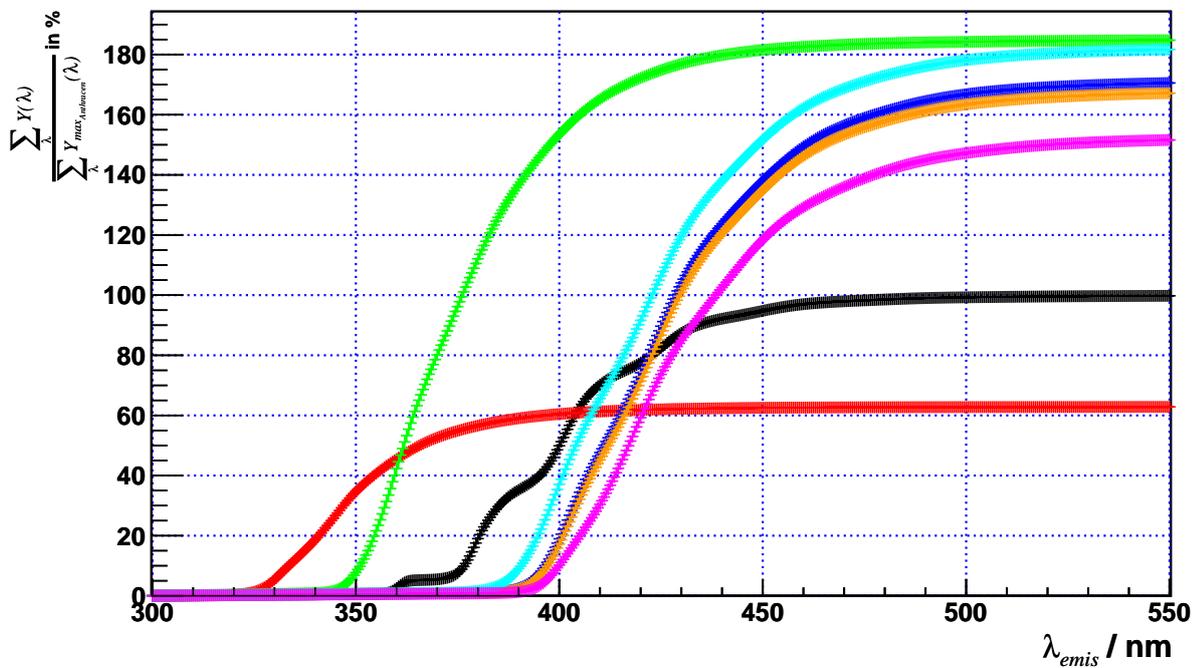


Abbildung 3.3.2: Integrierte Lichtausbeute der oben gezeigten Spektren.
 Datensatz: /gpfs/data/fwkk/koegler/01.252011/
 Fluoreszenz/scintillation.C

3.4 Resultate

Die Ergebnisse der im gesamten Kapitel beschriebenen Messungen lassen wichtige Schlüsse auf den Bau eines Szintillationsdetektors auf Basis von LAB und PPO zu.

1. Die von SNO+ favorisierte Kombination von primären und sekundären Szintillatoren ist bezüglich ihrer Absorptions- und Emissionsspektren kompatibel.
2. Verzichtet man auf Wellenlängenschieber so liegt das Emissionsmaximum im UV-Bereich. Für optische Bauteile und für die Photomultiplier bedeutet das, dass sie in diesem Bereich des Spektrums durchlässig beziehungsweise sensitiv für die emittierten Photonen sein müssen. Alle optischen Elemente sollten deswegen aus Quarzglas bestehen. Die Photomultiplier sollten eine Bialkali- oder Multialkali-Kathode besitzen.
3. Der Zusatz von bis-MSB verschiebt das Lumineszenzspektrum zu größeren Wellenlängen in den blauen Bereich. Bei geringen Konzentrationen (20 mg/l) hat dieser Zusatz kaum Einfluss auf die Lichtausbeute. Bei Konzentrationen über ≥ 500 mg/l kommt es jedoch zu einer deutlichen Reduktion derselben.
4. Das Verhältnis der integrierten Lichtausbeuten von LAB+PPO zu NE-213 bei Anregung durch UV/VIS-Licht beträgt 121 %.
5. Die gemessenen Lichtausbeuten der zwei- und dreikomponentigen Szintillatorlösungen sind größer als die des Anthracen/Naphthalenstandards. Die relative Ausbeute kommerzieller Flüssigszintillatoren in Bezug auf Anthracen wird im Allgemeinen auf die Anregung durch γ -Quanten eines ^{137}Cs - oder ^{60}Co -Prüfstrahlers bezogen. Abweichungen sind
6. Ein 30-minütiges Spülen mit hochreinem Stickstoff ist bei NE-213 notwendig. Das Lumineszenzspektrum von LAB+PPO wurde durch gelösten Sauerstoff nicht beeinflusst.
7. Die unbekannt Zusammensetzung von NE-213 konnte teilweise bestimmt werden. NE-213 enthält 11,22 g/l Feststoff (hauptsächlich primärer und sekundärer Szintillator). Eines der Bestandteile zeigt das gleiche Absorptions- und ein vergleichbares Emissionsspektrum wie bis-MSB.

4 Lichtausbeute

Die Lichtausbeute ist eine entscheidende Eigenschaft eines Szintillationsdetektors. Von ihr hängen viele weitere (Zeitauflösung, Pulsformdiskrimination, u.a.) direkt oder indirekt ab. Deshalb ist es wichtig, neuartige Szintillationsmaterialien auf diese Eigenschaft hin zu untersuchen.

Es gibt viele Möglichkeiten die Lichtausbeute eines Szintillators zu bestimmen. E. Syssoeva hat in seinem Artikel „Comparison of the methods for determination of scintillation light yield“ [[Syssoeva et al., 2002](#)] einige dieser Methoden zusammengestellt. Letztendlich ist man daran interessiert, wie viele Lumineszenzphotonen pro eingetragener Energie erzeugt werden. Dabei unterscheidet man die absolute, relative und technische Lichtausbeute. Die absolute Lichtausbeute (η) gibt die Anzahl der Photonen pro Megaelektronenvolt (MeV) deponierter Energie im Szintillator an. Die technische Lichtausbeute (T) gibt hingegen die Anzahl der Lumineszenzphotonen (pro MeV) an, die das Detektorfenster letztendlich passieren. η und T sind durch den Licht-Sammel-Koeffizienten ($\tau = \frac{T}{\eta}$) miteinander verknüpft. Die relative Lichtausbeute ist dann die absolute oder technische bezogen auf die jeweilige Lichtausbeute eines Standardszintillators. Solche Standards sind Anthracen und NE-213 (vgl. Kapitel 2.4).

Eine absolute Bestimmung der Lichtausbeute erfordert eine 4π -Geometrie und eine bekannte oder nahezu 100 %ige Photonennachweiseffizienz. Die Realisierung eines solchen Versuchsaufbaus und die akkurate Messung dieser Größe ist sehr schwierig. Deshalb beschränkt sich diese Arbeit mit ihren Experimenten auf die Bestimmung der technischen (siehe Kapitel 4.3) und der relativen Lichtausbeute (bezogen auf NE-213, siehe Kapitel 4.1 und 4.2). Am Ende von Kapitel 4.3 wird dennoch versucht, die absolute Lichtausbeute anhand der bestimmten Größen abzuschätzen.

Um eine sehr gute Energieauflösung bei Flugzeitexperimenten zu erreichen, ist es unbedingt notwendig, die genaue Flugstrecke des beteiligten Teilchens zu kennen. Um das zu gewährleisten, muss der Wechselwirkungspunkt im Detektor hinreichend genau bekannt sein. Für unsegmentierte Flüssigszintillatoren bedeutet das, dass es sich um einen Detektor mit sehr kleinem Volumen handeln muss. Da die Neutronenflugstrecke bei nELBE im Vergleich zu anderen Neutronenflugzeitexperimenten (n_ToF am CERN, Gelina in Geel

u.a.) deutlich kürzer ist (nELBE: 6 m, n_ToF: ≈ 200 m, Gelina: 10-400 m), erhält die Zeitauflösung gerade hier große Bedeutung. Um bei 1 MeV eine Energieauflösung $\frac{\Delta E}{E}$ unter 1 % zu erhalten, benötigt man eine Zeitauflösung $\frac{\Delta T}{T}$ von etwa 1 ns. Da der untersuchte Detektor als Alternative zu den erprobten EJ-200 Plastikszintillatoren dienen soll, ist es nur konsequent, einen Detektor mit möglichst geringem Volumen zu untersuchen. Als Gefäß diente uns eine zylindrische Quartz-Küvette der Firma Hellma[®]Analytics (Durchmesser: 18,88 mm, Länge: 100 mm, siehe Abbildung 4.0.1). Die Basis des Flugzeitdetektors, der Szintillator, sollte an die Spezifikationen des SNO+ Experimentes angelehnt sein. In Sudbury wird eine Kombination von LAB und PPO als primärem Szintillator ohne Wellenlängenschieber favorisiert [Lan, 2007, S. 44]. Die Konzentration an PPO in LAB sollte für unseren Detektor 3 g/l betragen.

Bei der Herstellung des Szintillators wurde erneut das unter Kapitel 3.1 bereits erwähnte Wibarcan verwendet, welches auf ganz ähnliche Weise wie dort präpariert wurde. Zuerst wurde das Lösungsmittel auf 120°C erhitzt und das eventuell vorhandene Restwasser bei dieser Temperatur 30 min langsam verdunstet. Anschließend wurden 100 ml kontrolliert abgekühlt und bei ungefähr 60°C 0,3 g PPO hinzugemischt. Verglichen mit Zimmertemperatur führt die erhöhte Temperatur zu einer deutlich besseren Löslichkeit von PPO in LAB. Das Gemisch wurde solange verrührt, bis sich das kristalline PPO vollständig gelöst hatte. Die so entstandene Lösung wurde danach in eine spezielle Flasche (siehe Abbildung 4.0.2) gefüllt und 30 min mit Stickstoff gespült um gelösten Sauerstoff zu verdrängen. Dass dieser auf die Lichtausbeute von LAB+PPO-Lösungen kaum Einfluss hat, wurde erst später festgestellt (vergleiche Kapitel 3.3). Währenddessen wurde die leere Küvette in einen Exsikkator gestellt, die eingeschlossene Luft abgepumpt und anschließend das gesamte Gefäß mit Stickstoff belüftet. In einer ebenfalls mit Stickstoff gefüllten luftdichten Handschuhbox wurde anschließend der Szintillator aus der Flasche direkt in die Küvette gefüllt. Teflonstutzen dienten als Verschluss für die zwei Einfüllöffnungen. Die Küvette wurde danach mit Teflonband umwickelt, um die Reflektivität zu erhöhen. Ein Hohlzylinder aus POM (Polyoxymethylen, ein thermoplastischer Kunststoff) wurde aus Stabilitätsgründen über die Küvette gestülpt (siehe Abbildung 4.0.1). Der Außendurchmesser dieses Kunststoffzylinders hatte dieselbe Größe wie die zwei Hamamatsu R2059-01 Photomultiplier, die an jedes Ende der Küvette platziert werden sollten. Der Zylinder garantierte dabei eine plane Auflagefläche der Röhren auf den Seitenflächen der Küvette. Um Neutronenstreuung an dem Kunststoff zu minimieren, enthielt das Stabilisierungselement eine durchgängige Fräsung.

Die Hamamatsu R2059-01 (selektiert) PMTs zeichnen sich durch eine sehr hohe Verstärkung (Herstellerangabe: $2 \cdot 10^7$) und hohe Kathodensensitivität (Kathoden-Blau-



Abbildung 4.0.1: Küvette mit Stabilisierungszylinder aus Polyoxymethylen (POM).

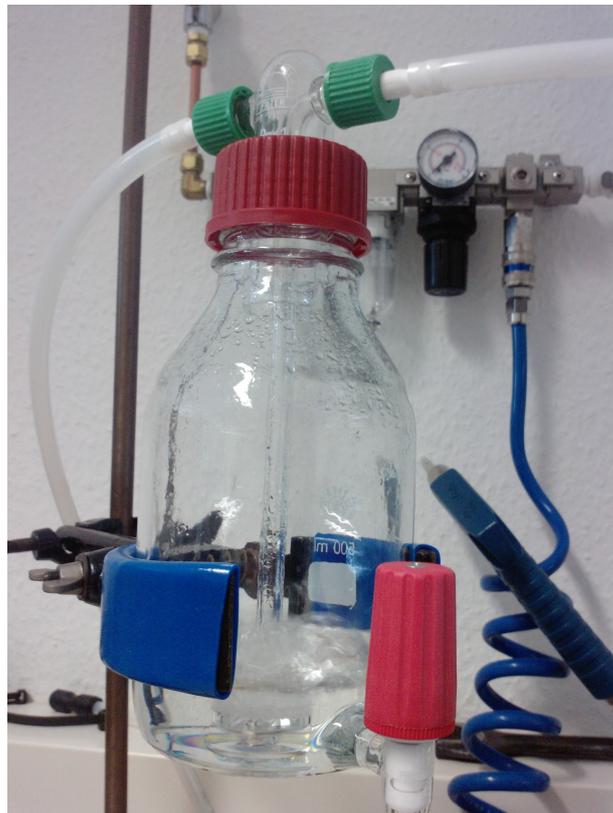


Abbildung 4.0.2: Glasgefäß mit Siebeinsatz. Durch die Zuführungen oben am Gefäß kann Gas durch ein Sieb in die Flasche gelangen. Dort sprudelt es hinaus in die Flüssigkeit und verlässt das Volumen durch einen Schlauch über eine seitliche Öffnung. Der Inhalt des Gefäßes lässt sich durch den im Vordergrund befindlichen roten Hahn dosierbar entleeren. Verwendet wurde diese spezielle Flasche, um NE-213 und LAB+PPO mit reinem Stickstoff zu spülen und gelösten Sauerstoff zu verdrängen.

Sensitivitätsindex = 10.5) im blau/violetten Bereich des Spektrums aus. Sie besitzen einen 12-stufigen Sekundärelektronenvervielfacher (im Folgenden als SEV bezeichnet), an dem eine aktive Hochspannungsversorgung der Firma iseg Spezialelektronik GmbH befestigt wurde. Diese aktive Hochspannungsversorgung erzeugt die Hochspannung über einen patentierten Resonanzwandler, der sich durch einen hohen Wirkungsgrad und geringe Störstrahlenemission auszeichnet. Die aktive Regelung garantiert eine konstante Verstärkung der Photomultiplier über einen langen Zeitraum auch bei hohen Impulsraten. Im Gegensatz zu herkömmlichen Spannungsteilern ist die Verlustleistung am Sockel deutlich kleiner, was zu einer konstant niedrigen Temperatur des Gerätes führt. Das bedeutete, dass ohne zusätzliche Stabilisierung der Verstärkung auch über längere Zeit in einem einfach temperierten Raum gemessen werden konnten.

Zusammen mit den „Aktiv-Basen“ wurden die R2059-01 durch UV-transparentes Silikonöl (Baysilone Öl M 200.000) mit der Küvette verbunden und zwei Lagen Schrumpfschlauch an den Detektor angepasst. Der Schrumpfschlauch vermeidet Lichteinfall und fixiert die Einzelteile des Detektors.

Um einen Vergleich und einen Standard für die Messungen zu haben, wurde unter identischem Aufbau und Ablauf ein zweiter Szintillator mit NE-213 befüllt. Für die Experimente standen somit zwei nahezu identische Detektoren zur Verfügung.

Wie im vorangegangenen Kapitel bereits erwähnt, gibt es mehrere Methoden, um die Lichtausbeute von Szintillatoren zu bestimmen. Technische und absolute Lichtausbeute sind mehr oder weniger Richtwerte, mit der die Güte eines Szintillators angegeben werden kann. Möchte man dann Aussagen über die Lichtausbeute bei anderen Energien machen, so neigt man dazu, eine lineare Abhängigkeit anzunehmen. J. B. Birks hat in seiner grundlegenden Arbeit von 1951, „The Specific Fluorescence of Anthracene and Other Organic Materials“ [Birks, 1951], einen semi-empirischen Zusammenhang zwischen Lichtausbeute pro Weglänge ($\frac{dL}{dx}$) und dem Energieverlust pro Weglänge ($\frac{dE}{dx}$) abgeleitet. Dieser Zusammenhang lautet:

$$\frac{dL}{dx} = \frac{S \cdot \frac{dE}{dx}}{1 + kB \cdot \frac{dE}{dx}} \quad (4.0.1)$$

Für die energieabhängige Lichtausbeute $L(E)$ folgt dann:

$$\begin{aligned} \left(\frac{dL}{dx}\right) \left(\frac{dx}{dE}\right) &= \frac{S}{1 + kB \frac{dE}{dx}} \\ L(E) &= \int_0^{E_{kin}} \frac{S}{1 + kB \frac{dE}{dx}(E')} dE' \end{aligned} \quad (4.0.2)$$

S und kB sind Parameter von (4.0.1) und charakteristisch für den verwendeten Szintillator (kB) beziehungsweise die verwendete Versuchsanordnung (S).

Birks' Gesetz ist nicht nur auf eine Anregung durch Elektronen (Photonen) beschränkt, sondern gilt auch für Protonen (Neutronen), α -Teilchen und leichte Ionen. Für jede Teilchenart besitzt der Szintillator ein charakteristisches kB . Ist dieser Parameter klein und $\frac{dE}{dx}$ nahezu konstant (für minimal ionisierende Teilchen gut realisiert), so kann man Gleichung (4.0.2) zu einem linearen Zusammenhang zwischen Lichtausbeute und Energie vereinfachen. Diese lineare Antwort des Detektors auf den Energieeintrag wäre optimal. Bei großen kB kommt es für kleine ($E < 50$ keV) und große Energien ($E > 50$ MeV) zu Abweichungen von dieser Linearität. Der Szintillationsprozess verliert an Effektivität und man spricht davon, dass der Szintillator „quencht“.

In den folgenden zwei Unterkapiteln werden zwei Methoden diskutiert, mit denen die technische Lichtausbeute bestimmt werden kann. Im Anschluss daran wird versucht, anhand der dort gemessenen Größen eine Abschätzung der absoluten Lichtausbeute vorzunehmen. Am Ende des Kapitels werden die gewonnenen Ergebnisse kurz zusammengefasst und erläutert.

4.1 Analyse der Energiespektren von γ -Prüfstrahlern

Günther Dietze und Horst Klein stellten in ihrem Artikel von 1982, „Gamma-calibration of NE-213 scintillation counters“ [Dietze und Klein, 1982], eine Methode vor, mit der anhand von aufgenommenen Pulshöhenspektren und einer Monte-Carlo-Simulation Flüssigszintillatoren kalibriert und ihre Energieauflösung bestimmt werden kann. Führt man diese Kalibrierung zusätzlich bei einem Standarddetektor durch und vergleicht im Anschluss die Ergebnisse bei 1 MeV, so kann man auf die relative Lichtausbeute in Bezug auf diesen Standard schließen. Man muss dabei jedoch garantieren, dass die Photomultiplier (PMT) bei allen Detektoren die gleiche Verstärkung besitzen. Der experimentelle Aufwand dieser Methode ist eher gering. Wir realisierten sie auf die folgende Weise:

Auf einem der beiden Detektoren wurde mittig zwischen die zwei Photomultiplier ein γ -Prüfstrahler mit diskreten Energien (E_γ) gelegt. Trifft ein γ -Quant den Detektor, wird es vorwiegend (abhängig von E_γ) inkohärent an den Elektronen des Szintillationsmaterials gestreut. Der Wirkungsquerschnitt für diese Reaktion wurde von KLEIN und NISHINA bereits 1928 berechnet [Klein und Nishina, 1928]. Die korrespondierende Energieverteilung bricht bei einer bestimmten Energie ab. An der sogenannten Compton-Kante wird das Photon genau um 180° zur ursprünglichen Flugrichtung gestreut. Das Elektron, das an diesem Photon streute, erhält bei diesem Streuwinkel den maximalen Energiebetrag. Die Lage der

Compton-Kante kann mit Hilfe des Energie- und Impulserhaltungssatzes bestimmt werden. Es ergibt sich für die Energie des Elektrons:

$$E'_e(\varphi = 180^\circ) = \frac{2E_\gamma^2}{m_e c^2 + 2E_\gamma} \quad (4.1.1)$$

Das gestreute Elektron fliegt durch den Szintillator, wird abgebremst und erzeugt Lumineszenzphotonen. Diese werden von den Photomultipliern nachgewiesen. Der Aufbau des Experimentes ist in Abbildung 4.1.1 skizziert.

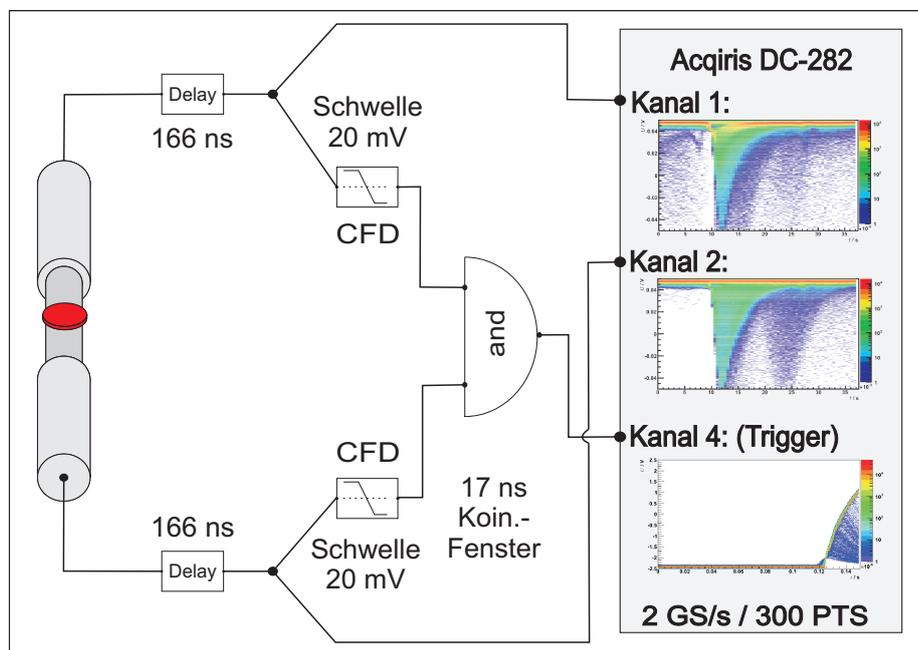


Abbildung 4.1.1: Elektronikaufbau und Datenaufnahme zur Bestimmung der Compton-Kante aus Pulsflächen-Spektren. Der verwendete γ -Prüfstrahler ist in Rot dargestellt. Eine Verzögerung von 166 ns ist prinzipiell nicht erforderlich, wurde aber aufgrund vergleichbarer Signalabschwächung zur Methode des folgenden Kapitels in den Aufbau eingefügt. Aufgenommen wurden pro Ereignis 300 Punkte (PTS) mit einer Rate von 2 GS/s (Gigasamples pro Sekunde).

Die im PMT verstärkten Signale wurden aufgetrennt und jeweils zu einem Proportionaldiskriminator (CFD, Ortec 584) gegeben. Die CFDs wurden mit einer Schwelle knapp über dem elektronischen Rauschen eingestellt, sodass auch kleinste Impulse nachgewiesen werden konnten. Die ausgegebenen TTL-Logik-Signale wurden in eine schnelle Koinzidenzeinheit geleitet (Ortec 414A Fast Coin Unit). Das optimale Koinzidenzfenster wurde auf 17 ns bestimmt. Gelangten die Logik-Signale innerhalb dieses Fensters zur Einheit, erzeugten sie einen Trigger für die digitale Datenaufnahme. Prinzipiell kann mit dem Acqiris DC-282

Fast Digitizer auch direkt per Software-Trigger auf koinzidente Signale getriggert werden. Eine interne Schutzvorrichtung des Gerätes verhindert jedoch Triggerlevel, welche näher als 15 % vom dynamischen Messbereich an der Grundlinie des betreffenden Kanals liegen. Die Konsequenz ist das Verwerfen kleiner Pulse und eine untere Schwelle im Pulshöhen- bzw. Ladungsspektrum. Die Signalformen wurden mit 2 GS/s (Gigasamples pro Sekunde) und 10 Bit digitalisiert und pro Ereignis 300 Punkte gespeichert. In diesen 300 Punkten sind 40 enthalten, die vor dem Auftreten des Triggers geschrieben wurden. Abhängig von der Aktivität der Quelle wurden zwischen 500 MB und 2,5 GB an Daten in ASCII-Dateien aufgenommen. Die verwendeten Prüfstrahler mitsamt ihren γ -Energien und Lage der Compton-Kante sind in Tabelle A.2.1 aufgelistet.

Ein *C++* basiertes *root*¹-Makro wurde zur Auswertung der digitalen Daten erstellt. `Acqiris_ASCII_Readout.C` mit graphischer Oberfläche bietet dem Nutzer dabei folgende Optionen:

- Konvertierung der Acqiris-ASCII-Daten in das binäre und komprimierte *root*-Format im Listmode-Format, in dem alle Informationen für jedes Ereignis gespeichert werden
- Ereignisweise Rekonstruktion der Signalformen aller Kanäle
- Analyse-Tools, Filter und „Shaper“ für die aufgenommenen Daten

Die für diese Arbeit notwendigen Analysemethoden (Pulshöhen- / Pulsflächenanalyse, Bestimmung der Zeitauflösung und Analyse der Pulsform) wurden implementiert und erfolgreich getestet. Das Makro ist durch seine graphische Oberfläche intuitiv bedienbar und lässt sich durch seinen modularen Aufbau beliebig erweitern und konfigurieren.

Bei der Bestimmung der Energiespektren aus den aufgenommenen Pulsformen wurde anstelle der Pulshöhe das Integral unter der Pulsform als energieproportionale Größe verwendet. Prinzipiell enthalten beide Größen eine vergleichbare Information über die im Detektor deponierte Energie. Für die schnellen Signale eines Photomultipliers ist die Bestimmung der Pulshöhe jedoch empfindlicher auf elektronisches Rauschen als die integrale Größe.

Die so ausgewerteten Rohspektren sind zusammen mit dem Spektrum der Untergrundmessung in Abbildung 4.1.2 dargestellt.

Deutlich zu sehen ist die typische Form des Compton-Kontinuums, an dessen Ende sich die Compton-Kante befindet. Aus den Spektren gilt es nun zwei verschiedene Größen zu extrahieren. Einmal ist man an dem Zusammenhang zwischen gemessener Ladung (Integral der Pulsform) und Energie der Compton-Kante interessiert, zum Anderen an der

¹*root* ist ein auf *C/C++* basiertes Programmpaket. Für weitere Informationen siehe [\[The ROOT Team, 2011\]](#).

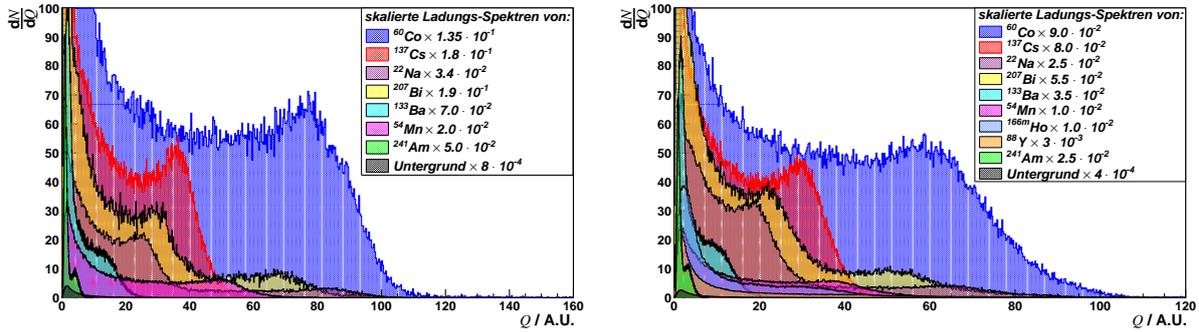


Abbildung 4.1.2: Ladungsspektren einiger γ -Prüfstrahler. Links: NE-213, rechts: LAB+PPO

Energieauflösung des Detektors. Dietze und Klein verwendeten dafür eine Monte-Carlo-Simulation namens GRESP. Die zur eigenen Auswertung selbst geschriebene Simulation `Szinti_energy.C` extrahiert die im Spektrum enthaltenen Informationen auf die folgende Art und Weise:

Unter Verwendung des KLEIN-NISHINA-Wirkungsquerschnitts wird ein für den jeweiligen Prüfstrahler ideales Compton-Spektrum erzeugt. Für nicht-monoenergetische Quellen geschieht das unter Verwendung des korrekten Verzweigungsverhältnisses. Das resultierende Spektrum wird anschließend mit einer Gaußverteilung zur Berücksichtigung der Detektorauflösung gefaltet. Der Nutzer passt daraufhin Höhe, Lage und Auflösung bestmöglich lokal an die Compton-Kante an. Für Quellen mit zwei oder mehr γ -Energien muss das dementsprechend oft wiederholt werden. In Abbildung 4.1.3 (Oben und Mitte) ist dieses Verfahren anhand von ^{207}Bi einmal dargestellt. Das Isotop ^{207}Bi besitzt im Wesentlichen zwei γ -Übergänge, welche zum Spektrum beitragen. Ein dritter ($E_\gamma = 1770 \text{ keV}$) trägt mit einer Photonenemissionswahrscheinlichkeit von 6,87 % nur geringfügig zum dargestellten Spektrum bei.

Diese Prozedur wurde für alle in Tabelle A.2.1 aufgelisteten Isotope ausgeführt und das relative Energieauflösungsvermögen bestimmt (siehe Abbildung 4.1.4). An die Daten beider Detektoren wurde eine Funktion der Form:

$$\frac{\Delta E}{E} = \sqrt{\alpha^2 + \frac{\beta^2}{E} + \left(\frac{\gamma}{E}\right)^2} \quad (4.1.2)$$

angepasst und jeweils die Parameter α , β und γ bestimmt. Multiplizierte man (4.1.2) mit der Energie E hatte man nun einen Ausdruck für das energieabhängige Auflösungsvermögen des Detektors und konnte dieses an das Programm `Szinti_energy.C` übergeben. Nur noch Höhe und Lage des simulierten Spektrums musste nun an das Gemessene angepasst werden. Trotz dieser einfachen Methode konnten die experimentell bestimmten Daten sehr gut wiedergegeben werden (vergleiche Abbildung 4.1.3, unten).

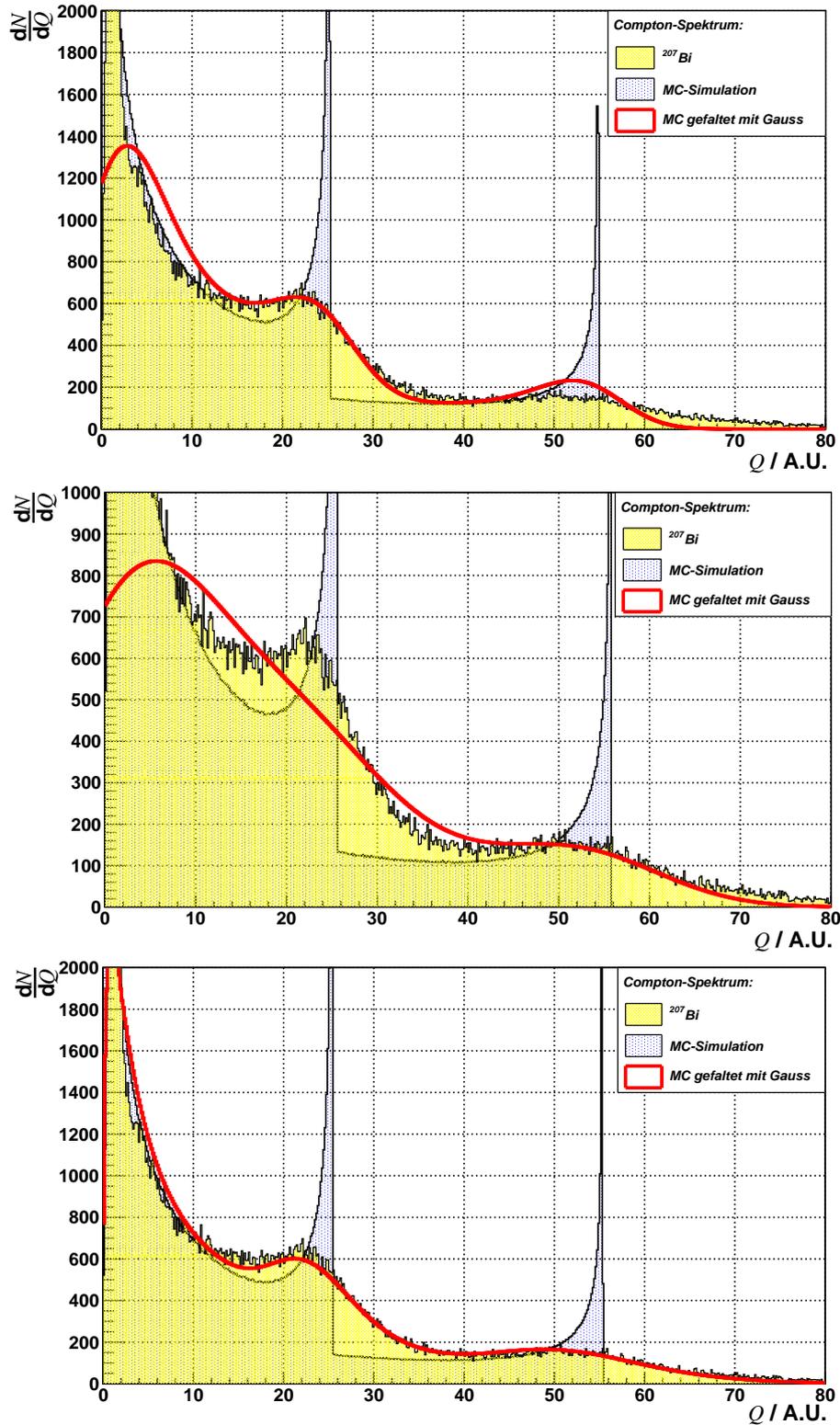


Abbildung 4.1.3: Lokale und globale Anpassung der Monte-Carlo-Simulation (MC) an die Compton-Kanten von ^{207}Bi bei zwei unterschiedlichen Energien. Oben: 570 keV und Mitte: 1064 keV
 Unten: Globale Anpassung der Monte-Carlo-Simulation an das Ladungsspektrum von ^{209}Bi unter Verwendung der unter Abb. 4.1.4 bestimmten Funktion für die Energieauflösung $\Delta E(E)$.

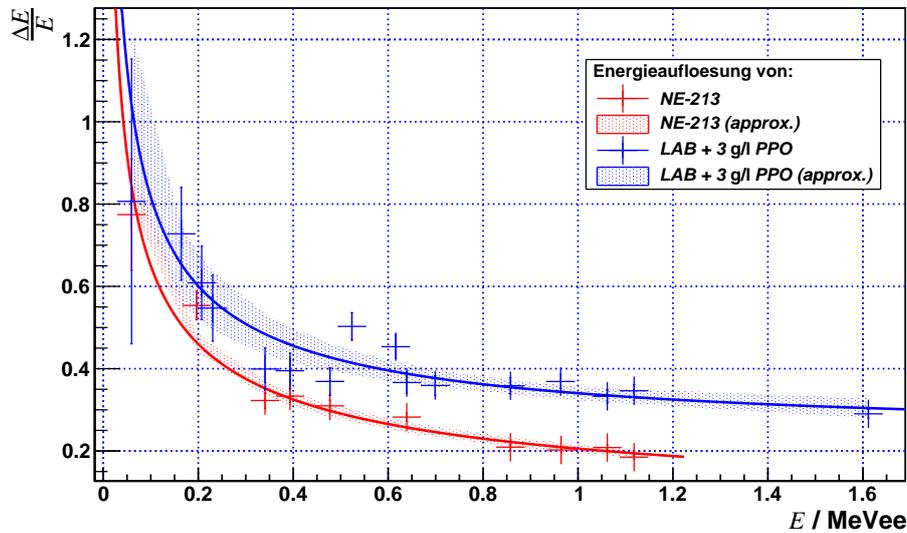


Abbildung 4.1.4: Energieauflösung eines NE-213- (rot) und LAB+PPO-Detektors (blau). Die Konfidenzintervalle des approximierten Auflösungsvermögens (4.1.2) sind schraffiert dargestellt.

Datensatz: /gpfs/data/fwkk/koegler
/Auswertung Lichtausbeute/new_calibration.cpp

Die Lage der Compton-Kante wurde dann im Monte-Carlo-simulierten Spektrum an der Stelle ermittelt, an der 50 % des angrenzenden Maximums erreicht waren. Der Wert von 50 % ist dabei willkürlich gewählt, scheint aber vernünftig. Wichtig ist hierbei nur, bei jeder Compton-Kante den gleichen Wert zu nehmen.

Die Ergebnisse der gerade beschriebenen Auswertung sind zusammen mit denen, der im nächsten Kapitel vorgestellten Methode in Abbildung 4.2.7 dargestellt.

4.2 Compton-Spektrometer

Für kleine Detektoren eignet sich eine weitere Methode zur Bestimmung der Lichtausbeute besonders gut. Geht man davon aus, dass ein γ -Quant nach dem Streuvorgang innerhalb und außerhalb des Detektors keiner weiteren Wechselwirkung unterliegt, so ist bei Kenntnis seines Streuwinkels seine verbleibende Energie klar definiert. Misst man nun diese Energie, so kann man auf die im Szintillator deponierte schließen. Aus der Kombination von Energie- und Impulserhaltungssatz lässt sich die Energie des gestreuten Photons (E'_γ) zu folgendem Ausdruck ermitteln:

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_e c^2} (1 - \cos \varphi)} \quad (4.2.1)$$

Das gestreute Elektron erhält dabei die Energie:

$$\begin{aligned}
 E_e &= E_\gamma - E'_\gamma \\
 &= E_\gamma \left(1 - \frac{1}{1 + \frac{E_\gamma}{m_e c^2} (1 - \cos \varphi)} \right)
 \end{aligned}
 \tag{4.2.2}$$

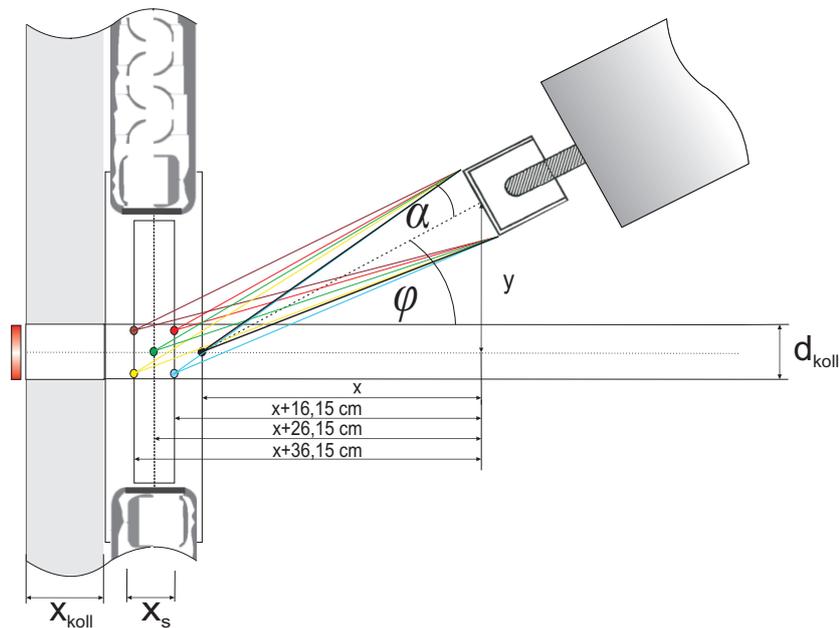


Abbildung 4.2.1: Prinzipskizze zur Streuung im Szintillator. γ -Quanten verlassen den Prüfstrahler (rot) und werden durch einen 10 cm dicken Bleiziegel mit einer Bohrung von 2 cm Durchmesser kollimiert. Innerhalb des Szintillators kann das Photon an unterschiedlichen Stellen streuen. Je nach Ort der Wechselwirkung ist seine Energie nach der Streuung unterschiedlich. Die farbig markierten Strahlen kennzeichnen dabei besondere Punkte, die zur Bestimmung maximaler und minimaler Streuenergie hinzugezogen wurden. Die Messläufe 15° , 33° und 65° beziehen sich dabei auf den Punkt (x,y) , der in Schwarz dargestellt wurde.

Unter Variation des Photonenstreuwinkels φ sind nach diesem Ausdruck alle Energien unterhalb der Energie der Compton-Kante messbar. Die Möglichkeit aufgrund von Compton-Streuung über ein Spektrum von Energien zu messen, verlieh der Versuchsanordnung den Namen Compton-Spektrometer. Um die im Detektor deponierte Energie möglichst genau bestimmen zu können, muss der Detektor, welcher das gestreute Photon misst, über eine sehr gute Energieauflösung und Nachweiseffizienz verfügen. Ein hochreiner Germaniumdetektor (HPGe, engl. für: high purity germanium detector) er-

schien dafür die geeignete Wahl. Vorab musste aber die Realisierbarkeit eines solchen Compton-Spektrometers anhand von Simulationen überprüft werden. Auf Grundlage des KLEIN-NISHINA-Wirkungsquerschnitts wurde die zu erwartende Koinzidenzzählrate zwischen Flüssigszintillator und Germaniumdetektor in Abhängigkeit ihrer Entfernung (siehe Skizze in Abbildung 4.2.1) und des Photonenstreuwinkels abgeschätzt. Parameter der Rechnung waren:

- Dichte ($\rho = 862 \text{ kg/m}^3$), molare Masse ($M = 240,3 \text{ g/mol}$), mittlere Kernladungszahl ($Z = 3,09$) und Photonenschwächungskoeffizient ($\mu = 7,67 \text{ m}^{-1}$) [Berger et al., 2010] von LAB
- Aktivität ($A = 330 \text{ kBq}$), Energie ($E = 661,66 \text{ keV}$) und Emissionswahrscheinlichkeit ($\nu = 0,85$) des favorisierten ^{137}Cs -Prüfstrahlers
- Dicke ($x_s = 2,2 \text{ cm}$) des Szintillators
- Photonennachweiss-effizienz ($\varepsilon \approx 10 \%$) und Durchmesser ($8,0 \text{ cm}$) des Germanium-Detektors
- Dicke des Blei-Kollimators ($x_{koll} = 10 \text{ cm}$), sowie der Durchmesser seiner Bohrung ($d_{koll} = 2 \text{ cm}$)

Da einige dieser Größen (z.B.: ε und Z) nur unzulänglich bekannt waren, birgt die so ermittelte Koinzidenzzählrate auch eine relativ große Unsicherheit. Eine Abschätzung ergab eine relative Unsicherheit von etwa 15 %. Die Ergebnisse dieser Simulation sind in Abbildung 4.2.2 dargestellt. Folgende Erkenntnisse kann man aus ihr gewinnen:

1. Die Koinzidenzzählrate hat die Größenordnung 1s^{-1} . Bei einer minimalen Ereignisanzahl von 150000 wird die daraus resultierende Messzeit unter Berücksichtigung der Untergrundzählraten zwischen 3-9 Tagen liegen.
2. Je kürzer der Abstand zwischen beiden Detektoren, desto höher die Koinzidenzzählrate (Einfluss des Raumwinkels).
3. Die Streuung der Photonen ist stark vorwärtsgerichtet und besitzt bei 90° ein Minimum. Danach steigt sie nur langsam wieder an.
4. Abhängig vom Abstand ist die Energieauflösung für $\varphi = 60 - 80^\circ$ am schlechtesten.

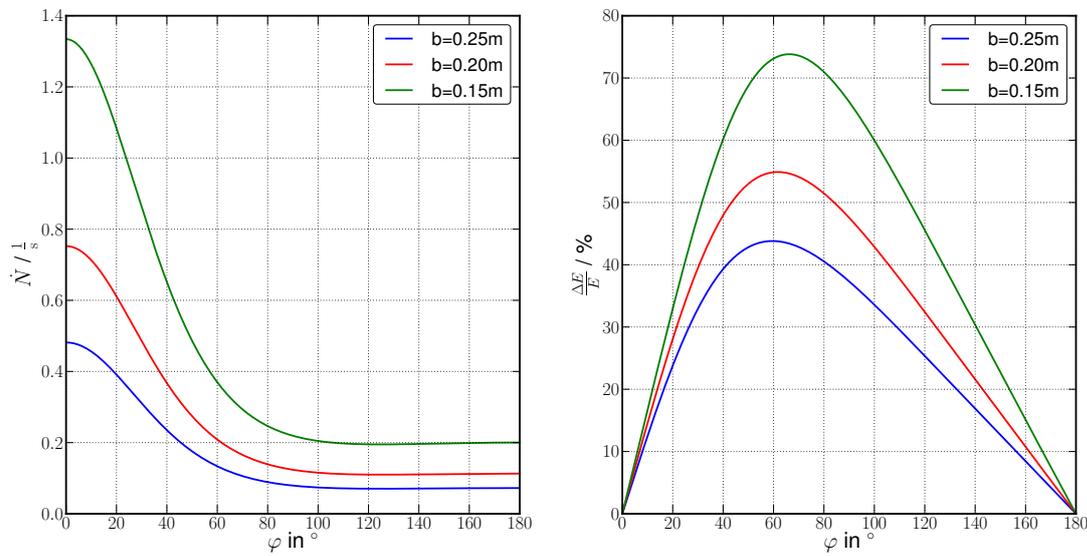


Abbildung 4.2.2: Links: Ergebnisse der Koinzidenzzählratenabschätzung für drei verschiedene Abstände Szintillator - Halbleiterdetektor in Abhängigkeit des Photonenstreuwinkels
 Rechts: Durch den endlichen Durchmesser des Germaniumdetektors bedingte Energieauflösung

Die im Punkt 4. angesprochene Energieauflösung $\frac{\Delta E}{E}$ ist rein geometrischer Natur. Aufgrund des endlichen Durchmessers des Germaniumdetektors werden Photonen unterschiedlicher Winkel detektiert.

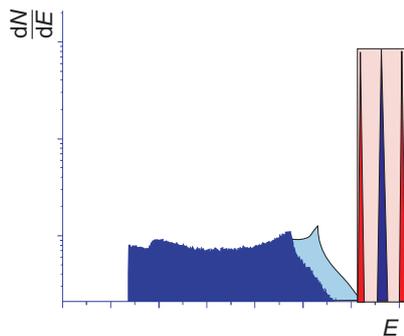


Abbildung 4.2.3: Überlagerung von Compton-Kontinuum und Vollenergiemaximum im Germanium-Detektor

Die dargestellte Energieauflösung beschreibt nun die Differenz zweier Photonen mit maximaler und minimaler Energie in Bezug auf ein Photon, welches den Detektor mittig trifft. Bezüglich des Abstandes muss ein Kompromiss zwischen Zählrate und Energieauflösung gefunden werden. Abgesehen von der Energieauflösung begrenzt ein weiteres Element den minimalen Abstand zwischen beiden Detektoren. Betrachten wir im folgenden zwei unterschiedliche Photonen: Photon 1 besitze wegen seines kleineren Streuwinkels $(\varphi_0 - \alpha)$ eine für den zentralen Winkel φ_0 maximale Energie.

Es trifft auf den Halbleiterdetektor, wird dort an einem Elektron unter 180° gestreut und verlässt anschließend den Detektor. Im Pulshöhenspektrum des Germaniumzählers entspricht das einem Ereignis an der Compton-Kante. Photon 2 habe hingegen eine für φ_0 minimale Energie $(E'_\gamma(\varphi_0 + \alpha))$, welches vollständig von Germaniumdetektor nachgewiesen wird und dort ein Vollenergieereignis auslöst. Die Frage ist nun, ob es eine Kombination

von Abstand b_0 und Winkel φ_0 gibt, bei der nicht mehr zwischen Compton-Kanten- und Vollenergieereignis unterschieden werden kann. Oder anschaulich gesprochen: Wann überschneiden sich Compton-Kante und Vollenergiemaximum im Germaniumdetektor? (siehe Abbildung 4.2.3)

Bestimmt wird dieser Satz von Parametern wie folgt:

$$\begin{aligned}
 E_1 = E_2 \quad \text{mit:} \quad \epsilon = \frac{E_\gamma}{m_e c^2} \quad \text{und (4.2.1)} \\
 \frac{2\epsilon E'_\gamma}{1 + 2\epsilon} = \frac{E_\gamma}{1 + \epsilon(1 - \cos(\varphi_0 + \alpha))} \quad \text{mit:} \quad E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \epsilon(1 - \cos(\varphi_0 - \alpha))} \\
 \frac{E_\gamma}{1 + \epsilon(1 - \cos(\varphi_0 - \alpha))} \frac{2\epsilon}{1 + 2\epsilon} = \frac{E_\gamma}{1 + \epsilon(1 - \cos(\varphi_0 + \alpha))} \quad \text{und:} \quad \sin \alpha = \frac{1}{2} \frac{d_{\text{detektor}}}{b} \\
 \frac{2\epsilon}{1 + 2\epsilon} = \frac{1 + \epsilon(1 - \cos(\varphi_0 - \alpha))}{1 + \epsilon(1 - \cos(\varphi_0 + \alpha))} \quad (4.2.3)
 \end{aligned}$$

Gleichung (4.2.3) kann sowohl numerisch als auch graphisch gelöst werden. Für eine ^{137}Cs -Quelle und einem Abstand $b \geq 20$ cm kommt es für keinen Streuwinkel φ zu einer solchen Überlagerung. Um die Koinzidenzzählrate des Versuches zu maximieren ist $b = 20$ cm die optimale Wahl.

4.2.1 Aufbau

Mit den Erkenntnissen aus der Simulation konnte nun ein Versuchsaufbau realisiert werden. Vorher musste aber noch die Länge des Koinzidenzfensters bestimmt werden. Das NIM-Modul 414A von Ortec bietet die Möglichkeit eine Koinzidenz zwischen 4 Kanälen zu verarbeiten. Es besitzt ein variables Koinzidenzfenster („resolving time“) von maximal 110 ns. Im Versuchsaufbau soll eine 3-fach Koinzidenz zwischen dem Germaniumdetektor und den Signalen der beiden Photomultiplier registriert werden. Während die Signalanstiegszeiten eines Flüssigszintillators im Bereich von 10 ns liegen, besitzt das Signal des Germanium-Halbleiterdetektors eine Anstiegszeit von etwa 200 ns. Selbst bei Vernachlässigung der Flugstrecke des Photons konnten mit der Ortec 414A Fast Coin Unit somit keine Koinzidenzen detektiert werden. Eine sorgfältige Auswertung des Zeitspektrums beider Detektoren ergab einen Zeitunterschied zwischen Halbleiter- und Szintillationsdetektor von ≈ 166 ns, welcher durch das Einfügen von 40 m Verzögerungskabel kompensiert werden konnte. Der komplette Versuchsaufbau ist schematisch in Abbildung 4.2.4 dargestellt. Um auch kleinste Pulsformen mit dem schnellen Digitizer aufnehmen zu können, wurden die Schwellen der drei Proportionaldiskriminatoren erneut nahe der Rauschgrenze (20 mV)

eingestellt. Die Datenaufnahme wurde mit dem TTL-Signal der Ortec 414A (siehe Kapitel 4.1) getriggert. 15000 Punkte wurden pro Ereignis mit einer Frequenz 2 GS/s auf vier Kanälen aufgenommen. In Kanal 1 und 2 wurden die Signale der beiden Photomultiplier des Szintillators digitalisiert. Die Spannung an beiden Röhren wurde so eingestellt, dass sowohl Pulshöhen als auch Untergrundzählraten nahezu identisch waren. Kanal 3 beinhaltete das spektroskopisch verstärkte Signal (2 μ s Pulsformung) des Germaniumdetektors und Kanal 4 das Triggersignal der Koinzidenzeinheit.

4.2.2 Durchführung der Messung

Für den NE-213 und LAB-Detektor gab es je drei Messungen unter $\varphi = 15^\circ$, 33° und 65° . An beiden Detektoren wurden dieselben Röhren verwendet. Nur baugleiche Photomultiplier würden sich in der Verstärkung unterscheiden und zu nicht vergleichbaren Ergebnissen führen. Deshalb war die angelegte Spannung während aller Messungen identisch (PMT 1: -2450 V bzw. PMT 2: -2675 V).

Für jeden Streuwinkel φ wurden etwa 50 GB Daten akquiriert, was einer Anzahl von etwa 150000 Ereignissen entspricht. Die gemessenen Koinzidenzzählraten des LAB Detektors betragen dabei zwischen 0,55 Hz ($\varphi = 15^\circ$) und 0,19 Hz ($\varphi = 65^\circ$) und deckten sich dadurch mit den Vorhersagen der Simulation (siehe Abbildung 4.2.2). Die Zählraten des NE-213-Detektors waren etwa 15-20 % niedriger. Der Zählratenverlust infolge von interner Datenverarbeitung („Totzeit“) belief sich bei beiden Detektoren zwischen 2 und 16 %. Dieser relativ große Anteil ist bedingt durch die Verwendung des Acqiris-Demoprogrammes zur Steuerung des Digitizers.

4.2.3 Auswertung

Nach Beendigung der Datenaufnahme wurden die ASCII-Daten mit dem unter Kapitel 4.1 schon aufgeführten Makro `AcqirisASCII_readout.C` in das root-Dateiformat konvertiert. Im Anschluss erfolgte eine komplexe Datenreduktion, welche die Daten unter folgenden Gesichtspunkten analysierte:

1. Verlässt der Puls den dynamischen Messbereich („clipping“)?
2. Ist die Pulshöhe kleiner als fünf mal das quadratische (Rausch-)Mittel (rms ... engl.: root mean square) der Grundlinie?
3. Gab es weitere Pulsmaxima nach Abklingen des ersten auswertbaren Pulses?
4. Lag ein Pile-Up-Ereignis im Germaniumdetektor vor?

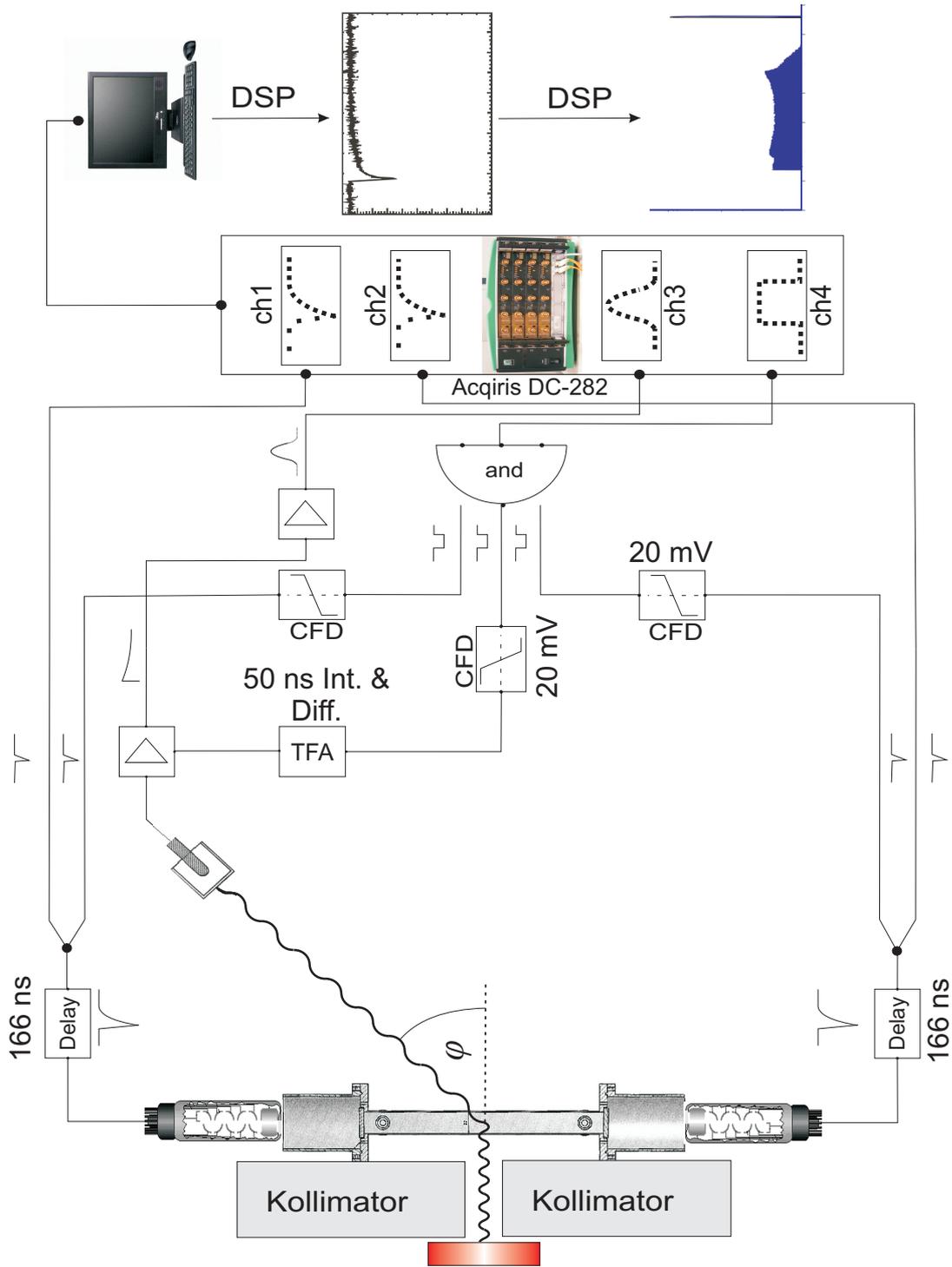


Abbildung 4.2.4: Schematischer Aufbau des Compton-Spektrometers zusammen mit der elektronischen Datenaufnahme. Die verwendete ^{137}Cs -Quelle ist links in Rot symbolisiert. Proportionaldiskriminatoren sind mit CFD („constant fraction discriminator“) und ein schneller Verstärker mit TFA („timing filter amplifier“) abgekürzt. Mit dem Halbleiterdetektor sind sowohl Vorverstärker als auch spektroskopischer Verstärker (CANBERRA 2020) verbunden. Die Datenaufnahme erfolgte mit einem schnellen Digitizer vom Typ Acqiris DC-282. Eine anschließende digitale Signalverarbeitung (DSP ... digital signal processing) ist ebenfalls angedeutet.

Um möglichst „saubere“ Daten zu erhalten, wurden alle Ereignisse, welche eines dieser Kriterien erfüllten, nicht zur Auswertung hinzugezogen. Der Anteil an solch ausgeschlossen Daten belief sich auf noch einmal 15 %.

Der verbliebene Datensatz wurde dann wie folgt ausgewertet. Wie im vorigem Abschnitt, „Analyse der Energiespektren von γ -Prüfstrahlern“ bereits beschrieben, wurden die aufgenommenen Pulsformen des Szintillators integriert und der resultierende Wert in ein Histogramm eingeordnet. Das geometrische Mittel (Wurzel aus dem Produkt beider Werte) repräsentiert die gesamte im Detektor deponierte Ladung und wurde ebenfalls ausgewertet. Das spektroskopisch verstärkte Signal des Halbleiterdetektors konnte lokal mit einer Gauß-Funktion approximiert und mit der Amplitude, als Maß für die Pulshöhe, ebenfalls ein Spektrum erstellt werden. Das Resultat dieser Auswertung ist anhand der 33° -Messung am LAB-Detektor in Abbildung 4.2.5 dargestellt. Das in Grün dargestellte Energiespektrum des Germanium-Detektors zeigt eine gaußförmige Verteilung mit relativ großer Breite. Dieser Sachverhalt ist der oben beschriebenen, geometrischen Energieverbreiterung geschuldet. Abbildung 4.2.1 verdeutlicht die Problematik.

Innerhalb des Szintillators kann das Photon an unterschiedlichen Stellen streuen. Es resultieren unterschiedliche Streuwinkel und Energien. Für jede Versuchsanordnung konnten Extremfälle der Streuung ermittelt werden. Sie bilden die Grenzen für eine detaillierte Auswertung des Pulshöhenspektrums des Germaniums. In Abbildung 4.2.5 ist dieser kinematisch mögliche Bereich für die Photonenergien mit kräftigeren Grüntönen markiert. Innerhalb dieses Bereichs wurden, je nach zentralem Streuwinkel φ , weitere Energieintervalle (z.B. für $\varphi = 33^\circ$ à 27 keV) definiert. Für jedes so abgegrenzte Intervall des Spektrums wurde ein Ladungsspektrum des Szintillators erstellt und das geometrische Mittel der Pulsflächen beider PMTs einsortiert. Der Mittelwert der annähernd gaußförmigen Verteilung war dabei die interessierende Größe des gesamten Versuchs. Ihr Wert wurde zum Zentralwert des jeweiligen Schnitts im Energiespektrum des HPGe-Detektors in Relation gesetzt. Bei den Ereignissen außerhalb des kinematisch möglichen Bereichs handelt es sich um Mehrfachstreuereignisse innerhalb des Detektors oder an der Küvette oder dem POM-Zylinder. Betrachtet man Abbildung 4.2.6 etwas genauer, so stellt man fest, dass mit der Zunahme der Energiedeposition im Detektor mehr Ereignisse von der idealen Normalverteilung abweichen. Dieses Verhalten ist innerhalb einer Messreihe beobachtbar, aber auch zwischen Messungen mit unterschiedlichen φ . Die stärkste Ausprägung eines solchen „Niederenergetails“ ist für die größten Energien bei $\varphi = 65^\circ$ zu finden. Eine Erklärung für dieses Verhalten ist die Entstehung von Tscherenkow-Licht im Szintillator oder im Glas des Photomultipliers.

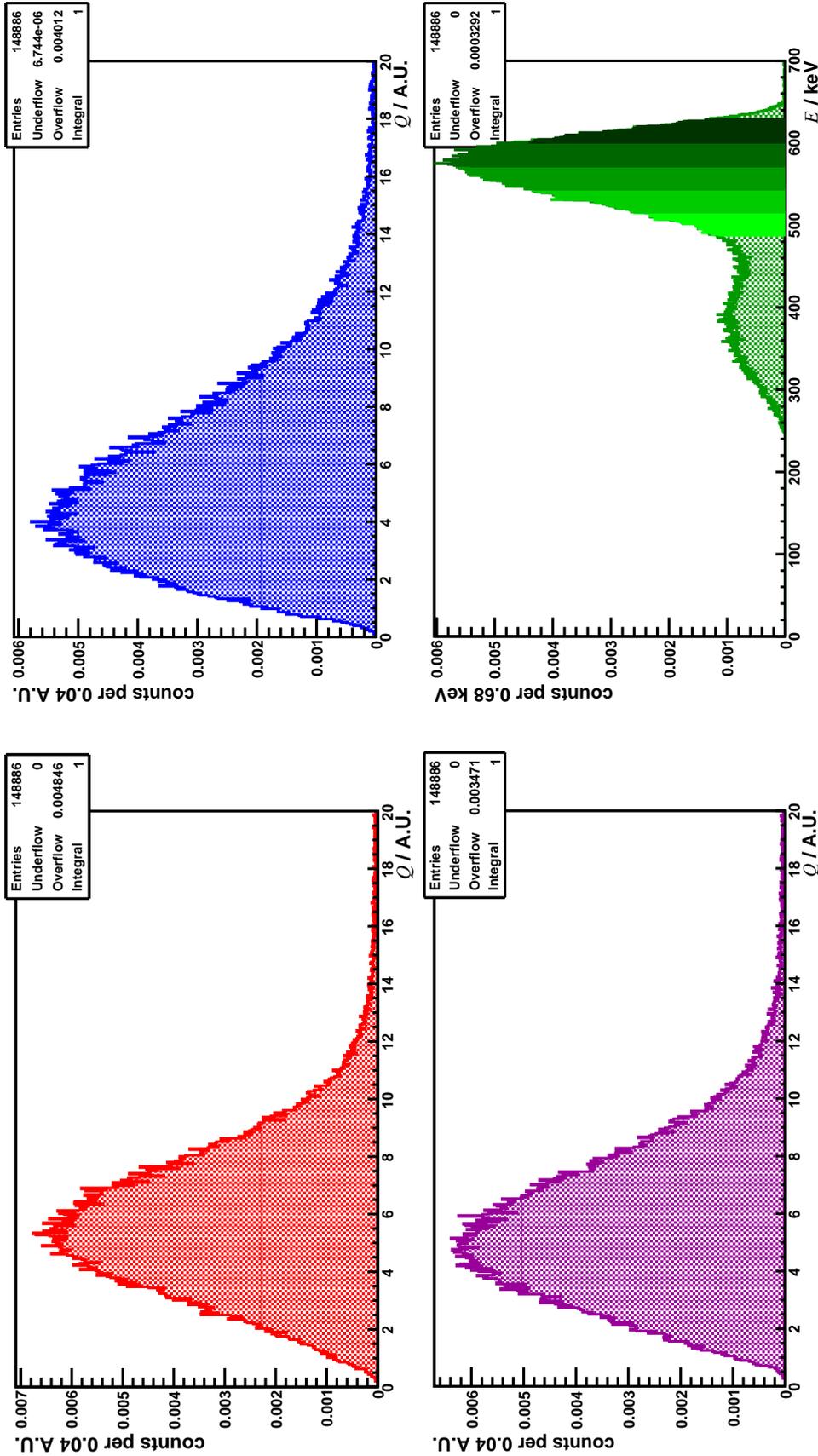


Abbildung 4.2.5: Auswertung 33° Messung des LAB-Küvetten-detektors. Dargestellt sind das Pulsflächenspektrum von Szintillator-PMT 1 (rot) und 2 (blau), geometrisches Mittel der beiden (magenta), sowie Energie- /Puls-höhenspektrum der gestreuten Photonen im Germaniumdetektor (grün schraffiert). In vollen Grün-tönen sind Energieschnitte à 27 keV dargestellt. Gemeinsam definieren sie den durch die Kinematik aufgespannten Energiebereich der gestreuten Photonen.

Datensatz: /gpfs/data/fwkk/koegler/09.102010/33/reduced/All_2GS_15kPTS_33_reduced.root

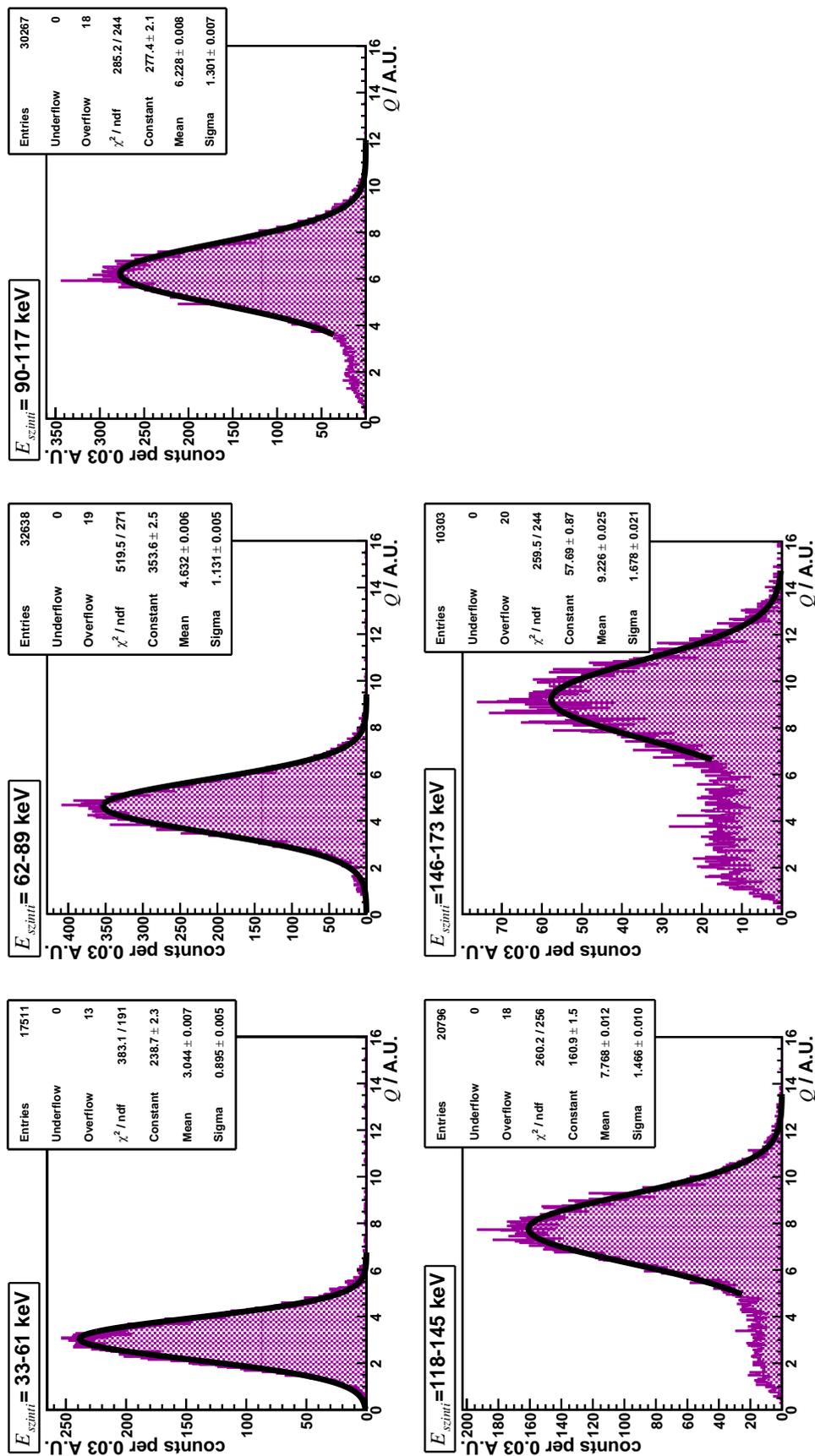


Abbildung 4.2.6: Pulsflächenpektren des LAB-Küvettdetektors für unterschiedliche Elektronenenergien. Die Größe der Intervalle resultieren aus den berechneten Größen für die Elektronenenergie, wenn das dem Ereignis zugehörige Photon unter einem in Abbildung 4.2.5 definierten Energieintervall detektiert wurde. Die Verteilungen wurden um das Maximum lokal mit einer Gauß-Funktion approximiert. Lage (Lichtausbeute) und Breite (Energieauflösung) dieses Maximums wurden für die weitere Auswertung entnommen.
Datensatz: /gpfs/data/fwkk/koegler/09.102010/33/reduced/All_2GS_15kPTS_33_reduced.root

Dringt ein Photon in den Detektor (für Quarzglas sowie LAB ist $n \approx 1,46$) ein und wird anschließend an einem Elektron gestreut, so erhält das Elektron gegebenenfalls soviel Energie, dass seine Geschwindigkeit höher ist als die Lichtgeschwindigkeit im Medium. Da Tscherenkow-Strahlung ein Schwellenverhalten (abhängig von der Geschwindigkeit β des Teilchens und der Brechzahl n des Mediums) besitzt, kann somit die Zunahme an Ereignissen mit größerer Energie erklärt werden. Untergrund aus der natürlichen Radioaktivität muss ebenfalls als Störquelle genannt werden, ist aufgrund der 3-fach Koinzidenz von Szintillator und Germaniumdetektor aber stark unterdrückt.

Die Ergebnisse der Versuche mit dem Comptonspektrometer sind zusammen mit den Resultaten aus Kapitel 4.1 in Abbildung 4.2.7 dargestellt. Da das elektronische Bremsvermögen von Teilchen unterschiedlicher Spezies sehr verschieden ist, man dennoch an einer standardisierten und energieäquivalenten Größe für den Detektor interessiert ist, wird üblicherweise die Einheit Elektronenvolt-Elektronenäquivalent (eVee) verwendet. Ein Teilchen mit 1 eVee hat dabei die gleiche ionisierende Wirkung auf den Detektor wie ein Elektron mit einer Energie von einem Elektronenvolt (eV).

Abbildung 4.2.7 zeigt, dass NE-213 bei 1 MeVee eine um 22 % größere Lichtausbeute besitzt als LAB + 3 g/l PPO. Aufgrund der sehr guten Linearität zwischen Lichtausbeute und deponierter Energie lässt sich schlussfolgern, dass es in dem betrachteten Energiebereich für Photonen kaum Ionisations-Quenching (siehe Kapitel 2.4) gibt. Um ein qualitatives Maß für den Grad der Linearität zu haben, wurde das Funktional (4.0.2) an die jeweiligen Daten angepasst und die Parameter S und kB bestimmt. Dabei gibt der Birks-Parameter kB die Abweichung von einem idealen linearen Verhalten an. Für NE-213 betrug dieser Parameter $(17 \pm 23) \cdot 10^{-4}$ cm/MeVee und ist somit mit Null vertäglich. Bei LAB+PPO ergab die beste Anpassung an die experimentellen Daten einen Wert von $(63 \pm 38) \cdot 10^{-4}$ cm/MeVee. Die relative Lichtausbeute (im Folgenden mit ζ bezeichnet) spiegelt sich im Verhältnis der Parameter S wieder:

$$\zeta = \frac{65 \text{ MeVee}^{-1} \pm 1 \text{ MeVee}^{-1}}{82 \text{ MeVee}^{-1} \pm 1 \text{ MeVee}^{-1}} \quad (4.2.4)$$

$$= \underline{(79 \pm 3)\%} \quad (4.2.5)$$

In Abbildung 4.2.8 sind die Abweichungen der Daten von einem linearen Fit gezeichnet. Für kleine Energien weichen die Datenpunkte von der Geraden ab. Das ist auch zu erwarten, da für kleine Energien der Energieverlust pro Wegstrecke ($\frac{dE}{dx}$) von Elektronen in diesen Materialien wieder zunimmt. Gleiches trifft für hohe Energien jenseits der 10 MeVee zu [NIST, 2011]. Im größten Teil des gemessenen Energiebereichs sind Elektronen jedoch minimal ionisierende Teilchen mit nahezu konstantem Energieverlust. Für NE-213 sind die

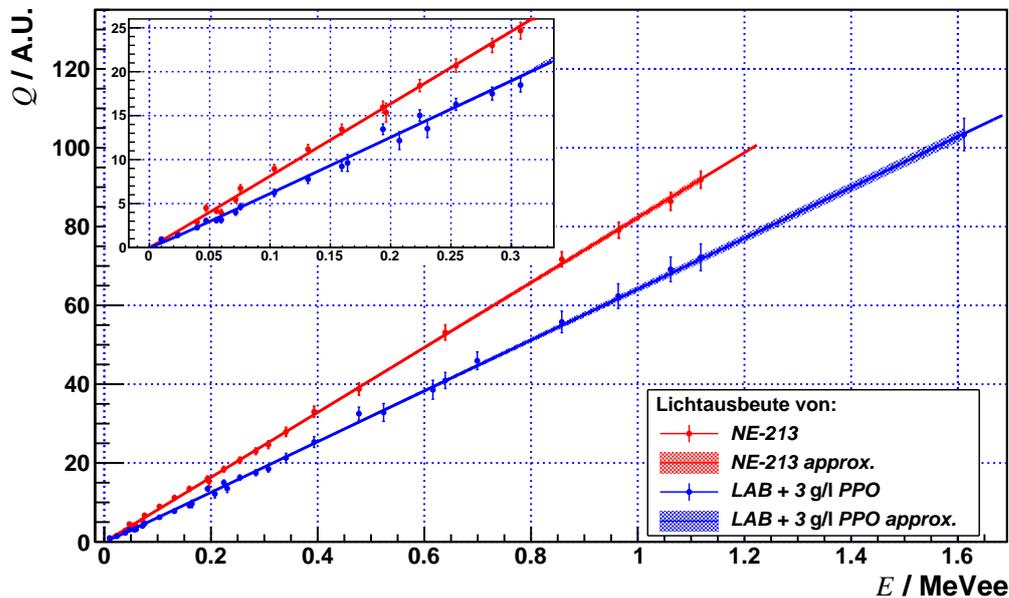


Abbildung 4.2.7: Ergebnisse der Bestimmung der Lichtausbeute aus Kapitel 4.1 und 4.2. In Rot dargestellt: Messpunkte von Compton-Spektrometer und Compton-Kante für NE-213. LAB+PPO in Blau. Schraffiert sind die Konfidenzintervalle einer Anpassung auf Grundlage von Birks-Gesetz. Das Fenster oben links zeigt den niederenergetischen Bereich vergrößert. Datensatz: `/gpfs/data/fwkk/koegler/Auswertung Lichtausbeute/new_calibration.cpp`

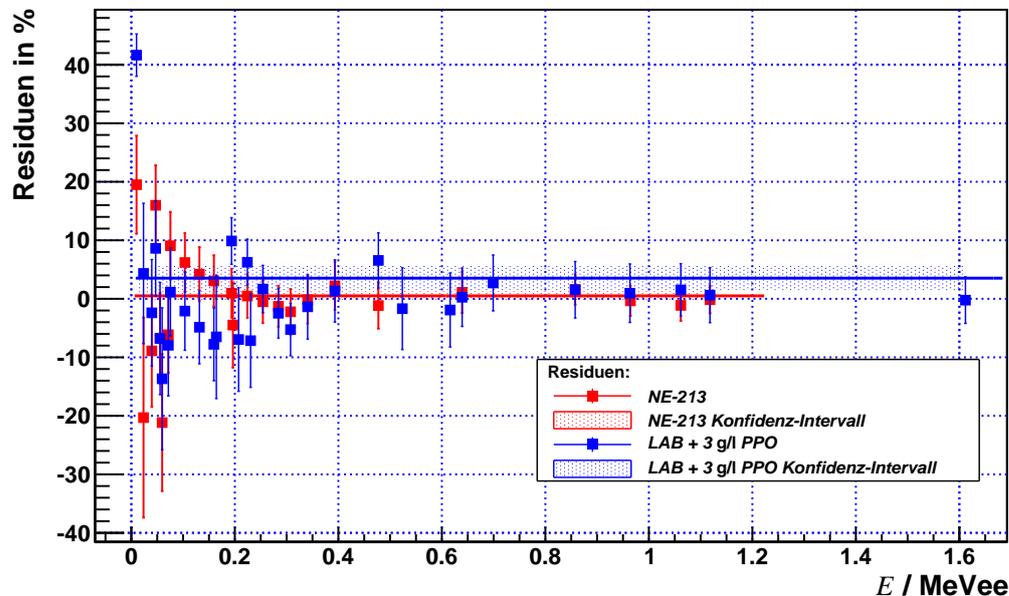


Abbildung 4.2.8: Abweichungen der in Abbildung 4.2.7 dargestellten Messwerte von einem Polynom ersten Grades. Rote Messkreuze beschreiben die Residuen der NE-213 Messung, blaue die von LAB+PPO. Die durch die Abweichungen gelegte Ausgleichsgerade ist ein Maß für die mittlere Abweichung der Datenpunkte von einem linearen Verhalten der Lichtausbeute. Sie beträgt im Falle von NE-213 $(0,5 \pm 0,8) \%$ und für LAB+PPO $(3,5 \pm 1,0) \%$. Datensatz: `/gpfs/data/fwkk/koegler/Auswertung Lichtausbeute/new_calibration.cpp`

Abweichungen mit Null verträglich ($0,5 \pm 0,8$)%. Für LAB+PPO zeigen die Residuen eine systematische Abweichung ($3,5 \pm 1,0$)% hin zu positiven Werten. Diese Abweichung ist ein Hinweis auf das nicht-lineare Verhalten dieses Detektors.

Die Ergebnisse der Compton-Kanten-Bestimmung und des Compton-Spektrometers sind kompatibel zueinander. Je nach verwendeten Quellen und Streuwinkeln decken sie einen großen Bereich des niederenergetischen Spektrums ab. Während die Kantenmethode vor allem oberhalb von 300 keVee sehr gute Resultate liefert, lässt sich mit dem Compton-Spektrometer erfolgreich unterhalb dieser Schwelle bis zu 5 keVee messen. Somit ist diese Methode besonders gut geeignet, die unzureichende Datenlage für organische Szintillatoren in diesem Energiebereich zu füllen.

4.3 Bestimmung des Einzelektronenmaximums

Die einzige Methode, die eine Abschätzung der absoluten Lichtausbeute ohne 4π -Geometrie zulässt, bedient sich der Lage des Einzelektronenmaximums (engl.: Single-Electron-Peak, SEP). Durch thermische Anregung kann ein einzelnes Elektron der Photokathode soviel Energie erhalten, dass es dieselbe verlässt. Ist die anschließende Verstärkung des Sekundärelektronenvervielfachers hoch genug, kann dieses einzelne Elektron auch elektronisch nachgewiesen werden. Das erfordert jedoch Photomultiplier mit sehr großer Verstärkung. Die Hamamatsu R2059-01 sind für diese Einzelektronen sensitiv. Um sie von einzelnen lumineszenzbedingten Signalen zu unterscheiden, bedient man sich einer Antikoinzidenz zwischen zwei PMTs. Da die Entstehung von Einzelektronenereignissen, hervorgerufen durch thermische Anregung, in beiden PMTs statistisch unabhängig von einander sind, Signale infolge einer Lumineszenz aber nicht, wird durch die Antikoinzidenz sichergestellt, dass nur SEP-Ereignisse aufgenommen werden. Da der Verstärkungsprozess jedoch auch statistischen Fluktuationen unterliegt, ist das Maximum im Ladungsspektrum nicht scharf, sondern breit verschmiert. Die Aussagen, die auf Grundlage seiner Lage gewonnen werden, sind dann auch dementsprechend durch große Unsicherheiten gekennzeichnet.

Dennoch lässt sich mit Hilfe dieses Peaks auf die absolute Lichtausbeute schließen, denn nicht nur thermische Anregung führt zu Einzelektronenemission, sondern auch ein einzelnes Lumineszenzphoton. Kennt man die Ladung und Verstärkung solch eines Pulses, lässt sich aus dem Integral eines beliebigen Pulses auf die Anzahl der Photonen schließen, die zu seiner Entstehung beigetragen haben. Die korrekte Verstärkungsfunktion im SEV ist meistens unbekannt. Deshalb handelt es sich im Folgenden um eine Abschätzung.

Die im Detektor deponierte Ladung Q lässt sich über den erzeugten Strom I wie folgt berechnen:

$$Q = \int I dt$$

Nach der Verstärkung des Stroms mit dem Faktor g fällt am Messgerät eine Spannung $U(t)$ über dem Widerstand R ab. Der Digitizer misst die Ladung $Q_{digi} = Q_{kath} \cdot g$. Die Ladung, welche die Kathode verlässt, ergibt sich dann zu:

$$Q_{kath} = \frac{1}{gR} \sum_{i=0}^m U(t_i) \Delta t$$

Dabei steht m für die Anzahl der aufgenommenen Punkte und Δt für den zeitlichen Abstand zweier Punkte („sampling intervall“). Berücksichtigt man noch die Signalabschwächung χ vom Detektor zum Messgerät, muss man diese Gleichung mit dem Faktor $\frac{1}{\chi}$ multiplizieren. Für die Anzahl der Elektronen, die letztendlich zur Signalerzeugung beitragen, ergibt sich:

$$N_{kath} = \frac{1}{ge\chi R} \sum_{i=0}^m U(t_i) \Delta t \quad (4.3.1)$$

Der experimentelle Aufbau war nahezu identisch mit dem in Kapitel 4.1, Abbildung 4.1.1. Jedoch wurde nicht auf das Signal der Koinzidenzeinheit getriggert, sondern auf eine Software-Antikoinzidenz zwischen den Signalen der Photomultiplier. Es wurde bewusst ein vergleichbarer Aufbau zu den beiden vorhergehenden Experimenten benutzt, um gleiche Signalabschwächung entlang der Kabelverbindungen zu garantieren. Die resultierenden Spektren beider Photomultiplier sind in Abbildung 4.3.1 dargestellt. Um die Signalabschwächung zu ermitteln wurde ein schneller Pulser (Hersteller: BNC, Modell: BL-2 Fast Tail Pulse Generator) einmal direkt über ein sehr kurzes Kabel mit dem Digitizer verbunden und ein zweites Mal anstelle des Szintillators in den gesamten Aufbau gebracht. Aus dem Verhältnis der Pulsflächen dieser beiden Messungen wurde der Abschwächkoeffizient bestimmt. Er betrug $\chi = 0,455 \pm 0,006$. Die starke Signalabschwächung ist im Wesentlichen durch die Signalaufspaltung bedingt. Über die Lage des Maximums im Antikoinzidenzspektrum (entspricht der Größe $\sum_{i=0}^m U(t_i)$) konnte mit $R = 50 \Omega$, $\Delta t = 50$ ps (entspricht 1/Sampling-Frequenz, $m \dots$ Anzahl der Punkte im Puls, über die summiert werden soll) und $N_{kath} = 1$ über Gleichung (4.3.1) die Verstärkung g der Photomultiplier bei der angelegten Spannung ($U_1 = 2450$ V und $U_2 = 2675$ V) bestimmt werden. Mit den Verstärkungen bei

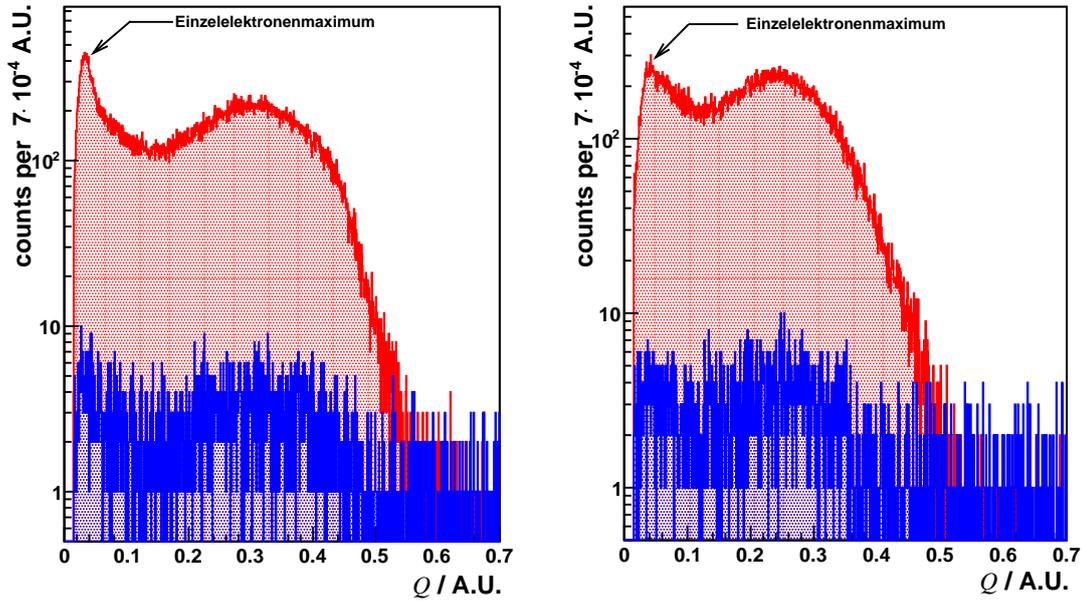


Abbildung 4.3.1: Antikoinzidente Messung zwischen den zwei Photomultipliern des verwendeten Detektors. Dargestellt ist das Ladungsspektrum mit dem Einzelektronenmaximum links. Ereignisse, bei denen PMT 1 oder 2 ein Signal erzeugten sind in rot dargestellt. Koinzidente Ereignisse sind blau gefärbt. Datensatz: `/gpfs/data/fwkk/koegler/09.242010/All_2GS_75PTS_2500V_new.root`

diesen Spannungen ($g_1 = 4,66 \cdot 10^6 \pm 1,57 \cdot 10^6$ und $g_2 = 5,49 \cdot 10^6 \pm 2,82 \cdot 10^6$) konnte nun mit der Pulsfläche bei 1 MeVee die Anzahl der Elektronen berechnet werden, die zu einem Signal bei dieser Energie beitragen. Für den NE-213-Detektor erzeugen 2232 ± 998 Elektronen dieses Signal und beim LAB+PPO-Detektor sind es 1738 ± 786 . Um nun den Zusammenhang zwischen den Elektronen, welche die Kathode des Photomultipliers verlassen und den auf die Kathode auftreffenden Photonen herzustellen, benötigt man eine Aussage über die Quanteneffizienz der Kathode. Hamamatsu gibt für diese wellenlängenabhängige Größe für das Maximum des NE-213-Spektrums $\epsilon_{\text{NE-213}} = (24 \pm 1) \%$ beziehungsweise für LAB $\epsilon_{\text{LAB+PPO}} = (26 \pm 1) \%$ an. Die Werte wurden Abbildung A.4.2 entnommen. Mit einem Licht-Sammel-Koeffizienten² τ von etwa $(60 \pm 18) \%$ beziehungsweise $(70 \pm 20) \%$ folgt dann für die absolute Lichtausbeute:

$$\eta = \frac{T}{\tau} = \frac{N_{\text{det}}}{\tau \epsilon}$$

$$\underline{\eta_{\text{NE-213}} = 15600 \pm 12000} \quad \text{und:} \quad \underline{\eta_{\text{LAB+PPO}} = 9600 \pm 7400}$$

²Die Lichtsammelkoeffizienten τ wurden mit Geant 4 anhand eines vereinfachten Detektormodells, aber unter Berücksichtigung der unter 3 gemessenen Fluoreszenzspektren von Ralph Massarczyk bestimmt.

Beide Werte sind mit dem in der Literatur befindlichen Wert [Nakamura et al. (Particle Data Group), 2010, S. 235] für die absolute Lichtausbeute von ≈ 10000 Photonen pro MeVee verträglich. Die Breite des Einzel-Photoelektronenmaximums und die statistische Unsicherheit auf die Lichtsammelkoeffizienten ergeben die größten Beiträge in der Bestimmung der statistischen Unsicherheit der absoluten Lichtausbeute. Wie schon vermutet, lässt sich dadurch ihr Wert nur grob abschätzen. Dennoch ist erstaunlich, dass mit dem vergleichsweise einfachen Ansatz diese Aussagen getroffen werden können.

4.4 Resultate

Mit zwei unterschiedlichen Methoden konnte die energieabhängige Lichtausbeute für LAB+PPO und NE-213 im Bereich 5-2000 keVee bestimmt werden. Zahlreichen Messdaten unterhalb von 50 keVee helfen den Szintillationsprozess im niederenergetischen Bereich besser zu verstehen. Gerade für diese Energien kommt es zu Abweichungen von der Linearität, die durch Birks' Gesetz erfolgreich beschrieben werden konnten. Die mit diesem Gesetz korrespondierenden Parameter sind für LAB+PPO in Übereinstimmung mit [Tseung, 2009]. Eine Abschätzung der absoluten Lichtausbeute über den Einzelelektronenpeak ist konform mit dem gängigen Wert [Nakamura et al. (Particle Data Group), 2010] von 10000 MeVee^{-1} . Als Ergebnisse wurden gefunden:

1. Für die Birks-Parameter kB wurden folgende Werte ermittelt:

$$kB_{\text{NE-213}} = (17 \pm 23) \cdot 10^{-4} \text{ cm/MeVee} \quad \text{und:}$$

$$kB_{\text{LAB+PPO}} = (63 \pm 38) \cdot 10^{-4} \text{ cm/MeVee}$$

2. Die Abweichung von einem linearen Verhalten waren im Mittel:

$$\text{NE-213:}(0,5 \pm 0,8)\% \quad \text{und für LAB+PPO} \quad (3,5 \pm 1,0)\%$$

Wird der Messpunkt mit der niedrigsten Energie bei der Approximation in Abb. 4.2.8 unterdrückt, sind die Ergebnisse von LAB+PPO ebenfalls mit Null verträglich. Das bedeutet, dass auch der LAB+PPO-Detektor über weite Bereiche der betrachteten Energieskala eine hohe Linearität besitzt.

3. Die relative Lichtausbeute von LAB+PPO in Bezug auf NE-213 beträgt bei 1 MeVee $78 \pm 1 \%$. Der Vergleich zu Kapitel 3.4 zeigt, dass die Anregung durch UV-Licht in einem organischen Flüssigszintillator nicht vergleichbar mit der Anregung durch ionisierende Teilchen ist.
4. Die absolute Lichtausbeute η beträgt für beide Detektoren:

$$\eta_{\text{NE-213}} = 15600 \pm 12000 \quad \text{und:} \quad \eta_{\text{LAB+PPO}} = 9600 \pm 7400$$

Im folgenden Kapitel wird nun die Fähigkeit des Detektors untersucht, anhand der Pulsform zwischen unterschiedlichen Teilchen zu unterscheiden. Dabei wird auf analoge und digitale Möglichkeiten eingegangen dieses zu realisieren.

5 Pulsformdiskrimination

Organische Flüssigszintillatoren zeichnen sich nicht nur durch ihre sehr gute Zeitauflösung und ihre hohe Neutronennachweiseffizienz aus. Ihre Fähigkeit anhand ihrer Pulsform zwischen Teilchen unterschiedlicher Spezies entscheiden zu können, macht sie für eine Vielzahl von Anwendungen so interessant.

Ob in der Reaktorphysik, für die tomographische Bildgebung oder bei Experimenten zur Untersuchung von exotischen Kernen fern ab der β -Stabilität, überall dort, wo gemischte Teilchenfelder auftreten, ist man meistens daran interessiert, diese unterschiedlichen Partikel auch zu unterscheiden. Besonders bei der Kollision von hochintensiven Ionenstrahlen (z.B.: NuSTAR/FAIR) oder bei Neutronen(streu)experimenten (nELBE) kommt es zu einem hohen γ -Untergrund, der mit Hilfe der Pulsformdiskriminierung (engl. pulse-shape discrimination (PSD)) identifiziert und anschließend reduziert werden soll. Vor allem eröffnet diese Fähigkeit auch eine simultane n - γ -Spektroskopie.

Pulsformdiskriminierung war und ist Gegenstand intensiver Forschung in den letzten 40 Jahren. Nur Szintillatoren mit mindestens zwei Komponenten im exponentiellen Abklingen ihrer Lichtausbeute (siehe Seite 11) sind dazu fähig. Der Beitrag dieser Komponenten am Gesamtpuls muss jedoch abhängig vom spezifischen Energieverlust der Teilchen sein. Schwerere Teilchen erzeugen längs ihrer Trajektorie mehr Ionisationen. Diese führen bei anschließender Rekombination häufiger zu Molekülen im Triplett-Zustand. Die Abregung dieser bilden die Grundlage der langsamen Komponente. Es ist aber vor allem der Energietransport innerhalb des Lösungsmittels (siehe Kapitel A.1 und A.1.1), welcher Flüssigszintillatoren eine gute Pulsformdiskriminationsfähigkeit verleihen.

Pulsformen, die durch Protonen (Neutronen) oder durch α -Teilchen verursacht werden, zeichnen sich also durch ein längeres Abklingverhalten des Impulses im Vergleich zu photoneninduzierten aus. In Abbildung 5.0.1 ist das verdeutlicht. Anhand dieser zwei Puls-Prototypen kann nach Methoden gesucht werden, die eine quantifizierte Unterscheidung zwischen beiden zulassen.

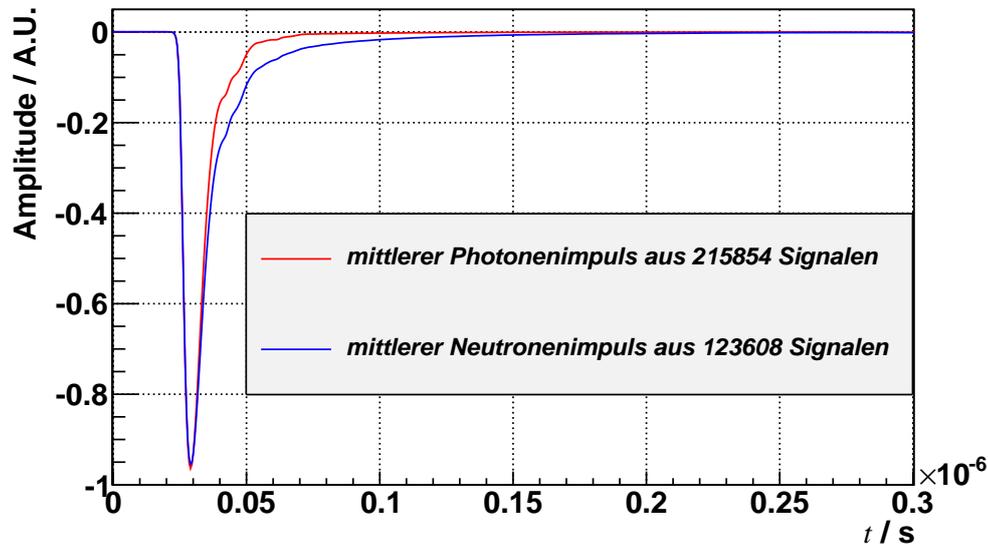


Abbildung 5.0.1: Typische neutronen- (blau) und photoneninduzierte (rot) Pulsformen. Anhand der Flugzeit wurden die Signale vom Detektor diskriminiert, auf ihre Pulshöhe normiert, summiert und anschließend durch ihre Anzahl dividiert. Die Darstellung zeigt Messdaten des NE-213 Küvettendetektors. Datensatz: `/gpfs/data/fwkk/koegler/01.242011/NE_213_ALL_2GS_1kPTS_Cf.root`

5.1 Algorithmen zur digitalen Pulsformdiskrimination

In den vergangenen vier Jahrzehnten wurde eine Vielzahl von analogen und digitalen Methoden zur PSD entwickelt (siehe dazu u.a. [J.H. Heltsley et al., 1988], [Söderström et al., 2008]). Waren am Anfang die Möglichkeiten der digitalen Datenverarbeitung noch durch mangelnde Prozessorleistung und Speichergröße beschränkt, so machen heutige Computer und schnelle Digitizer die Aufzeichnung und Analyse der gesamten Messdaten eines Experiments möglich. Der Vorteil der digitalen Pulsformdiskrimination gegenüber analogen Methoden ist die Möglichkeit, offline die Selektion durch Variation der Parameter zu optimieren. Dabei gilt an analoge, sowie auch digitale Methoden der Anspruch, so stabil und effizient wie möglich zu sein. Stabil heißt in diesem Falle gegenüber elektronischem Rauschen oder Verschiebungen der Grundlinie insensitiv zu sein. Für Online-Analysen der Pulsformen in FPGAs (Field Programmable Gate Array) oder auf Rechenclustern beziehungsweise PCs ist hingegen die „Performance“ eines digitalen Pulsformdiskriminationsalgorithmus (DPSD-Algorithmus) ebenfalls von entscheidender Bedeutung. Kommerzielle Analog-Module zeigen eine Ratenverträglichkeit von bis zu 200 kHz, was mit digitalen Methoden gegenwärtig noch nicht erreicht werden kann. Mit diesen Randbedingungen haben sich nur wenige Methoden etabliert. Einige von ihnen seien im Folgenden diskutiert.

Prinzipiell lassen sich alle Algorithmen in zwei Kategorien (Pulsgradient- und Pulsfrequenzmethoden) untergliedern. Während sich Pulsgradientmethoden auf Veränderungen des Pulses mit der Zeit beschränken, analysieren Pulsfrequenzmethoden die Charakteristika des Pulses im Frequenzraum.

Vor der Anwendung beider Arten von DPSD-Algorithmen wurden die Signale der Photomultiplier auf die folgende Weise für die Auswertung vorbereitet:

1. Anhand einer Mittelung über die ersten Punkte des Pulses wurde die Verschiebung der gesamten Pulsform ermittelt und diese anschließend auf die Grundlinie verschoben.
2. Nur die Summe der Signale beider PMTs des Flüssigszintillationsdetektors enthält die vollständige Information über das ionisierende Teilchen. Deswegen wurden die Signale anschließend zeitlich synchronisiert und addiert. Realisiert wurde das mit einem digitalen Proportionaldiskriminator, der den Zeitpunkt des Pulses bestimmt, bei dem er erstmalig 10 % seiner Pulshöhe überschreitet. Waren beide Pulsformen um die entsprechende Anzahl von Punkten verschoben, konnten die Signale aufaddiert werden.

5.1.1 Pulsgradientmethoden

Die im Folgenden vorgestellten Algorithmen sind im wesentlichen Nachbildungen der in [\[Söderström et al., 2008\]](#) zusammengefassten Pulsgradientmethoden.

Zero-Crossing Viele digitale Algorithmen sind analogen Methoden nachempfunden. Ein wichtiger Vertreter ist der Zero-Crossing-Algorithmus. Eine Vielzahl von kommerziell erhältlichen Modulen basiert auf diesem Algorithmus, der sich den Unterschied in der Anstiegszeit des integrierten Pulses zunutze macht. Über eine Doppelverzögerung („double delay lines“) oder über eine Kombination von Filtern formt das Modul einen bipolaren Puls aus dem Eingangssignal. Der Nulldurchgang dieses geformten Signals ist dann abhängig von der Teilchenart. Zwischen diesem Nulldurchgang und dem Logiksignal eines Proportionaldiskriminators wird die zeitliche Differenz gebildet und als Amplitudenäquivalent ausgegeben.

Die digitale Realisierung ist identisch. Mittels einer Kombination aus RC-CR-CR (Tiefpass-Hochpass-Hochpass, [\[Hannaske, 2009\]](#)) Filtern wird das Signal bipolar geformt, anschließend ein Vorzeichenwechsel gesucht und vom Wert eines digitalen CFD subtrahiert. Die den Filtern zugrunde liegenden Zeitkonstanten bilden die Parameter des Algorithmus. Optimal

für die verwendeten Photomultiplier waren :

$$\tau_{RC} = 10 \text{ ns} \quad \tau_{CR} = 42 \text{ ns}$$

Die Diskriminierungsvariable für diesen Algorithmus (Differenz aus Nulldurchgang und CFD) wird im Folgenden mit t_{ZCO} bezeichnet.

Integrated-Risetime Wie der ZeroCrossing-Algorithmus, bedient sich der Integrated Risetime der Charakteristika des integrierten Pulses. Da sich die Rohpulse in ihrem Abklingverhalten unterscheiden, folgt für die integrierten, dass sie je nach Teilchenart schneller oder langsamer wachsen. Der digitale Algorithmus arbeitet wie folgt:

1. Integration des PMT-Pulses.
2. Normierung des gesamten Integrals auf 1.
3. Bestimmung der Zeitpunkte t_1 und t_2 über einen digitalen CFD. t_s und t_l entsprechen der Zeit von Beginn des Pulses bis zu dem Zeitpunkt, an dem der integrierte Puls eine Schwelle c_1 beziehungsweise c_2 übersteigt.
4. Bestimmung der Differenz von t_1 und t_2 .

Die Diskriminationsvariable ist $t_{rise} = t_2 - t_1$.

Parameter des Algorithmus sind c_1 und c_2 . Optimal für unseren Versuchsaufbau waren $c_1 = 10 \%$ und $c_2 = 72 \%$.

Charge-Comparison Die prinzipiell einfachste Methode zur PSD ist direkt über den abklingenden Puls zu integrieren und den Wert des Integrals mit dem von anderen zu vergleichen. Das macht eine Normierung der Pulsformen auf ihr Extremum (in diesem Falle einem Minimum) notwendig. Bei den normierten Pulsen kommt es jedoch noch darauf an, die passenden Grenzen für die Integration zu finden. Abbildung 5.0.1 ist dabei hilfreich. Digital wurde der Algorithmus wie folgt realisiert:

1. Bestimmung von Lage und Höhe des Pulsminimums.
2. Normierung der gesamten Pulsform auf die Pulshöhe.
3. Ausgehend von diesem Minimum, wird der Punkt gesucht, an dem die Schwelle c im Abklingen des Pulses erreicht ist.
4. Summation der Pulsform über das Zeitfenster Δt .

Die Diskriminationsvariable ist der Wert dieses Integrals Q .

Parameter des Algorithmus sind Schwelle c und Integrationsfenster Δt . Ihr Wert ist entscheidend für die Güte der Diskrimination, denn das Integral kleiner Pulse ist stark veräuscht! Optimal für unsere Detektoren waren $c = 65\%$ und $\Delta t = 250$ ns.

Long-Gate/Short-Gate Die folgende Methode ist ebenfalls weit verbreitet, da sie durch Analogelektronik leicht zu realisieren ist. Long-Gate/Short-Gate (LG/SG) integriert den Puls über zwei unterschiedlich lange Zeitfenster. Realisiert wird das durch zwei QD-Cs mit Integrationszeiten Δt_s und Δt_l . In einer zweidimensionalen Darstellung, bei der der Wert des einen über dem des anderen aufgetragen wird, ergeben sich dann zwei oder mehrere „Zweige“, die den unterschiedlichen Teilchen zugeordnet werden können. In Abbildung 5.2.3 (oben) ist das verdeutlicht. Für die digitale Signalverarbeitung arbeitet der Algorithmus auf identische Weise:

1. Bestimmung des Minimums der Pulsform.
2. Ausgehend von diesem wird über Δt_s und Δt_l summiert. Man erhält die Summen Q_s und Q_l .

Als Diskriminationsvariable bietet sich das Verhältnis (Q_l/Q_s) dieser beiden an.

Die optimalen Parameter des Aufbaus sind die Integrationsfenster $\Delta t_s = 13$ ns und $\Delta t_l = 310$ ns.

Gatti und DeMartini (GDM)-Algorithmus Oft ist es schwierig für Methoden, die auf Integration von Pulsformen basieren, die passenden Grenzen zu finden. Gatti und DeMartini haben in [Gatti und de Martini, 1962] eine Methode entwickelt dieses Problem zu lösen. Sie zeigten, dass sich mit einer geeigneten Wichtungsfunktion die Integrationsgrenzen an Bedeutung im herkömmlichen Sinne verlieren. Gatti und DeMartini vertreten die Ansicht, dass die Integrationsgrenzen natürlich aus den Pulsformen gewonnen werden sollten. Sie bestimmten die optimale Wichtungsfunktion zu

$$w(t) = \frac{\langle n \rangle (t) - \langle \gamma \rangle (t)}{\langle n \rangle (t) + \langle \gamma \rangle (t)} \quad (5.1.1)$$

Dabei beschreiben $\langle n \rangle (t)$ beziehungsweise $\langle \gamma \rangle (t)$ die gemittelten Neutronen- und Photonenpulsformen für die jeweilige Versuchsanordnung. (Vgl. Abb. 5.0.1)

Zusammen mit $w(t)$ können die oben erwähnten Integrationsmethoden dann angewendet werden. Das Integral $Q = \int_{t_1}^{t_2} p(t)dt$ über die Pulsform $p(t)$ wird dann ersetzt

durch $S = \int_0^T w(t) \cdot p(t) dt$ mit T als Länge von $w(t)$. Die Wichtungsfunktion übernimmt dabei nicht nur die Aufgabe der Integrationsgrenzen (analog zur Heaviside-Funktion $\Theta(t-t_1)\Theta(t_2-t)$) sondern wertet Bereiche großer Unterschiede zwischen $\langle n \rangle(t)$ und $\langle \gamma \rangle(t)$ auf oder Regionen geringer Abweichungen ab.

Die Bestimmung von $w(t)$ bedarf jedoch einer unabhängigen Diskriminationsmethode. Bei Flugzeitexperimenten bietet sich hier die Flugzeit der Teilchen an. Da sich massive Teilchen stets langsamer als Lichtgeschwindigkeit bewegen, benötigen sie für die gleiche Strecke mehr Zeit als Photonen. Damit hat man eine Möglichkeit Teilchen anhand ihrer Flugzeit zu diskriminieren.

Für die Realisierung der GDM-Algorithmen wurde $w(t)$ wie folgt bestimmt:

1. Auswertung des Flugzeitspektrums (siehe Abbildung 5.2.2). Ereignisse in $\pm 3\sigma$ um den Mittelwert des normalverteilten Photonen-Peak wurden als Photonen klassifiziert. Im lokalen Minimum zwischen Photonen-Peak und dem Maximum der angrenzenden Verteilung wurde eine Grenze definiert. Alle Ereignisse, die rechts dieser Grenze lagen, wurden als Neutronen deklariert.
2. Nach dieser Unterscheidung wurden Pulse, die die jeweilige Flugzeit besaßen normiert, summiert und am Ende der Auswertung durch ihre jeweilige Anzahl geteilt. Das Ergebnis dieser Auswertung ist in Abbildung 5.0.1 dargestellt.
3. Nach Formel (5.1.1) wurde die Wichtungsfunktion $w(t)$ bestimmt. In Abbildung 5.1.1 ist eine typische für den NE-213 Küvettendetektor dargestellt.
4. Das Produkt aus der Ausgangspulsform und $w(t)$ wurde gebildet und der gewichtete Puls an den Charge-Comparison und LongGate/ShortGate Algorithmus übergeben.

Man sieht, dass der Rechenaufwand dieser Methoden erheblich größer ist. $w(t)$ muss jedoch nur einmal bestimmt werden. Einmal ermittelt, kann die Funktion gespeichert werden und auf jeden neuen Puls derselben PMTs angewendet werden. Die Qualität der Wichtungsfunktion steigt mit der Anzahl der gemittelten Pulsformen (Kompensation des Rauschens). Es ist ebenfalls möglich, ein $w(t)$ zu bestimmen, welche die Charakteristika der Pulse noch besser hervorhebt. Dazu ist es notwendig die Auswahl der zur Mittelung herangezogenen Pulsformen gründlicher auszuwählen.

In der Auswertung der Messungen konnten die GDM-basierten Algorithmen die Ergebnisse der Diskrimination gegenüber den ungewichteten Methoden leicht verbessern. Bei allgemein schlechter Diskrimination konnten sie trotz guter Flugzeitinformation jedoch das Ergebnis nicht stark beeinflussen. Auch der in der Theorie vorhergesagte Bedeutungsverlust der Integrationsgrenzen konnte so nicht bestätigt werden, da die Güte der Diskrimination

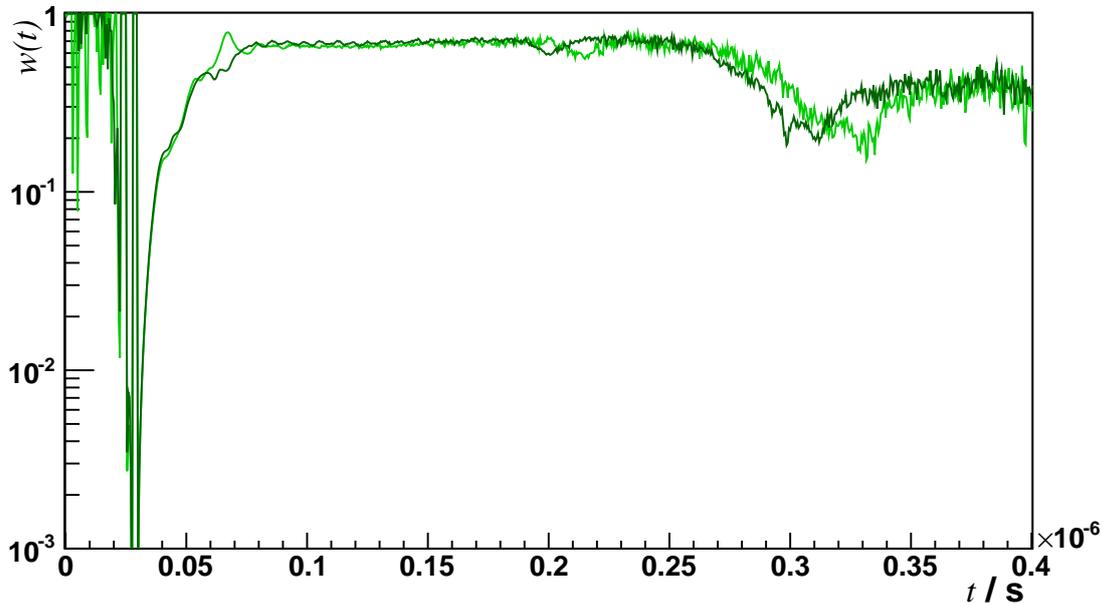


Abbildung 5.1.1: Wichtungsfunktionen $w(t)$ beider Photomultiplier des NE-213-Detektors. Datensatz: `/gpfs/data/fwkk/koegler/01.242011/NE_213_ALL_2GS_1kPTS_Cf.root`

noch stark von diesem abhing.

GDM-Charge-Comparison: Diskriminationsvariable S_{GDM}

Optimale Parameter: $c_{GDM} = 65\%$ und $\Delta t_{GDM} = 250$ ns

Die Integration des GDM-Long-Gate/Short-Gate-Algorithmus startet im Gegensatz zum ungewichteten Verfahren zu Beginn der aufgenommenen Pulsform und nicht erst nach Erreichen des Maximums. Der Einfluss der Datenpunkte davor ist gering, da sie durch die Wichtungsfunktion kompensiert werden.

GDM-Long-Gate/Short-Gate: Diskriminationsvariable S_{GDM_s}/S_{GDM_l}

Optimale Parameter: $\Delta t_{GDM_s} = 40$ ns und $\Delta t_{GDM_l} = 250$ ns

5.1.2 Pulsfrequenzmethoden

Während eine Vielzahl von PSD-Algorithmen Unterschiede in der zeitlichen Veränderung der Pulsformen ausnutzen (siehe oben), gibt es hingegen kaum Verfahren, die die Eigenheiten von Pulsen unterschiedlicher Teilchen im Frequenzraum untersuchen.

S. Yousefi et al. kombinierten in ihren 2008 erschienen Artikeln [[Yousefi et al., 2009](#)] und [[Yousefi und Lucchese, 2009](#)] die Vorteile beider Prinzipien. Mit der Wavelet-

Transformation ist es ihnen gelungen eine vergleichbare Diskrimination und größere Stabilität im Vergleich zu den etablierten Pulsgradientmethoden zu erreichen. Wavelet-Transformationen sind in der digitalen Datenverarbeitung eine gängige Methode, um bei nichtstationären Signalen, wie bei denen eines Photomultipliers, elektronisches Rauschen zu minimieren. Aber auch in der Bild-, Audio- und Datenkompression findet diese Transformation ihre Anwendung. Wavelet-Kompressionsmethoden sind zum Beispiel Teil der JPEG2000-Norm (siehe [Ansorg, 2011]).

Die Bildungsvorschrift für die Wavelet-Transformierten der Pulsform $p(t)$ lautet:

$$W_p(a, b) = \int_{-\infty}^{\infty} p(t) \frac{1}{\sqrt{a}} \varphi^* \left(\frac{t-b}{a} \right) dt \quad (5.1.2)$$

Dabei muss sichergestellt werden, dass $p(t) \in L^2(\mathbb{R}^2)$ (Raum der quadratintegriblen Funktionen über den reellen Zahlen) und das Integral über das Wavelet $\varphi^* \left(\frac{t-b}{a} \right)$ null ist. Dabei sind Verschiebung b und Streckung a Parameter des Wavelets. Mit $\psi_{a,b} = \frac{1}{\sqrt{a}} \varphi^* \left(\frac{t-b}{a} \right)$ kann diese Transformation auch als Skalarprodukt $\langle p, \psi_{a,b} \rangle$ der Funktionen p und ψ geschrieben werden.

S. Yousefi et al. nutzten für ihre Analysen die sogenannten Haar-Wavelets, die elementarste Form einer ganzen Klasse von Funktionen. Es handelt sich bei ihr um eine einfache Stufenfunktion die 1909 von Alfred Haar [Haar, 1910] vorgeschlagen wurde. Das „Vaterwavelet“ über dem Intervall $[0, T)$ ($T \dots$ Länge der Pulsform $p(t)$) hat die Darstellung:

$$\psi = \begin{cases} 1 & 0 \leq t < \frac{T}{2} \\ -1 & \frac{T}{2} \leq t < T \\ 0 & \text{sonst} \end{cases}$$

Die Transformation ist nun eine Abfolge von Integrationen, bei der sich für jedes a die Länge des Integrationsintervalls ändert. Für größer werdende a wird das Intervall immer kürzer. Für jedes a wird zusätzlich das gesamte Intervall über $[0, T)$ hinweg verschoben. b gibt dabei die Größe der Verschiebung an. Mit zunehmendem a erhalten die Ergebnisse der Integration immer weniger Gewicht ($\frac{1}{\sqrt{a}}$). Der Vorteil gegenüber Pulsgradientmethoden ist somit ersichtlich: Es werden sowohl das Abklingen des gesamten Pulses als auch Unterschiede anderer Frequenzen berücksichtigt, ohne dass das Ergebnis durch elektronisches Rauschen zu sehr beeinflusst wird.

S. Yousefi et al. zeigten weiterhin in ihrer Arbeit, dass die Funktion:

$$P(a) = \frac{1}{1 + n_b} \sum_{j=0}^{n_b} |W_{\psi}^p(a, b_j)|^2 \quad (5.1.3)$$

geeignet ist, um die Haar-transformierten Pulse von einander zu separieren.

Da die oben beschriebene kontinuierliche Haar-Transformation sehr rechenaufwendig ist, wurde beschlossen für die Analyse die schnelle Wavelet-Transformation (FWT) zu verwenden. Diese verspricht bei deutlich weniger Rechenaufwand dennoch eine vergleichbare Qualität der Diskrimination. Der einzige Unterschied zur oben beschriebenen kontinuierlichen Transformation ist, dass das Intervall, über welches summiert wird, bei jedem Schritt halbiert wird. Das erfordert jedoch Signale, die die Länge 2^j ($j \in \mathbb{N}_0^+$) haben. Für die Signalaufbereitung hieß das, dass die Signale bis zur nächsten vollständigen Zweierpotenz mit Nullen aufgefüllt werden mussten. Diese Prozedur ist im Vergleich zum Gewinn an Rechenzeit jedoch fast vernachlässigbar. Die digitale Realisierung der Wavelet-Transformation und der anschließenden Diskrimination der transformierten Signale ist in Kapitel A.5 / Listing A.7 aufgeführt.

5.1.3 Test der Algorithmen / Simulationen

Alle oben beschriebenen Algorithmen wurden mit künstlich generierten Pulsformen vor Beginn der eigentlichen Messungen ausgiebig getestet und optimiert. Diese Art von Überprüfung half die Funktionsweise der Algorithmen, den Einfluss ihrer Parameter und die Auswirkung von verrauschten Signalen auf das Ergebnis besser zu verstehen. Die Grundlage der Simulation bildete ein Eventgenerator, der dem späteren Flugzeitexperiment konsequent nachempfunden war. Anhand der gemessenen Abklingkonstanten und Intensitäten der vorhandenen Komponenten für unterschiedliche Teilchen von LAB+PPO [O’Keeffe et al., 2011]¹ und eines BaF₂ Kristalls [Saint-Gobain Homepage, 2011] wurden pro Ereignis vier Pulse generiert. Für die Szintillatoren bildete ein Puls mit gaußförmigem Signalanstieg und exponentiellen Abklingen mit zwei (BaF₂) beziehungsweise drei Komponenten (LAB+PPO) die Grundlage. Ein viertes Signal stellte das von der Koinzidenzeinheit ausgegebene Logiksignal dar. Zu Beginn eines Ereignisses wurde gewürfelt, um welche Art von Teilchen es sich handeln soll. Das Verhältnis von Photonen- und Neutronenpulsformen konnte dabei frei gewählt werden. War die Wahl auf eines dieser Teilchen gefallen, wurden die Amplituden und die für das jeweilige Teilchen charakteristischen Intensitäts-

¹Hierbei sollte jedoch erwähnt werden, dass O’Keeffe et al. die Zerfallskonstanten für γ - und α -Anregung (²⁴¹Am) bestimmten. Die Konstanten für neutroneninduzierte Pulse wurden für diese Arbeit interpoliert.

verhältnisse in ihrem Abklingverhalten innerhalb ihrer Schwankungsbreiten ausgewürfelt. Anhand eines typischen Flugzeitspektrums wurde auch das zeitliche Auftreten des Pulses korrekt implementiert. Waren alle Pulsformen fertig modelliert, wurden sie mit einer Normalverteilung gefaltet, um die Detektoraufösung zu berücksichtigen. Der letzte Schritt der Signalerzeugung bildete das Hinzufügen eines definierten Rauschanteils zum Puls. Mit diesem Verfahren konnten unterschiedliche Datensätze generiert und anschließend wie experimentelle Daten behandelt werden.

5.2 Experimente

Nach den Simulationen konnten erste experimentelle Daten aufgenommen werden. Da NE-213 (BC-501A, EJ-301) nachgewiesen ausgezeichnete Pulsformdiskrimination besitzt [Winyard et al., 1971], wurde der Aufbau und die Analyse vorerst anhand dieses Szintillators getestet. Dazu wurde der im Kapitel Lichtausbeute bereits erwähnte Detektor verwendet. Da der Stabilisierungszylinder aus POM das Neutronenspektrum des ^{252}Cf -Prüfstrahler moderiert hätte, wurde dieser durch eine Aluminiumhalterung ersetzt. Gleiches geschah mit dem LAB+PPO-Detektor. Für die DPSD wurden an die Küvette mit NE-213 zwei zum LAB+PPO-Detektor baugleiche R2059-01 Hamamatsu Photomultiplier montiert. Da eine zu der in Kapitel 4.2.2 beschriebene, identische Verstärkung für diesen Versuchsteil nicht zwingend notwendig war, konnte somit schnell zwischen den beiden Detektoren im Aufbau gewechselt werden. Es musste dennoch darauf geachtet werden, dass Unterschiede in der Verstärkung beider Röhren so klein, wie möglich sein sollten.

Wie oben bereits erwähnt, handelte es sich beim realisierten Aufbau um ein Flugzeitexperiment. Neben den Algorithmen der DPSD sollte ein unabhängiges Unterscheidungskriterium über die Art des Teilchens in den Messdaten enthalten sein. Vor allem war dieses zusätzliche Kriterium aber für die GDM-basierenden Algorithmen zur Ermittlung der optimalen Wichtungsfunktion notwendig. Der Aufbau des Flugzeitexperimentes ist in Abbildung 5.2.1 dargestellt. Der Cf-Prüfstrahler wurde direkt vor einem BaF_2 -Detektor mit gleicher R2059-01 Photomultiplier-Röhre positioniert. Diese Art von Detektor eignet sich aufgrund seiner hohen Photonennachweiseffizienz und sehr guter Zeitaufösung hervorragend als Startdetektor. Die γ -Quanten der spontanen Spaltung von ^{252}Cf interagieren fast instantan mit dem BaF_2 und starten die Zeiterfassung. Nach einer Flugstrecke von 40 cm trifft ein Photon oder ein Neutron desselben Spaltereignisses auf den Szintillator, dessen Signal die Zeitnahme stoppt. Trägt man die Häufigkeit der Zeitdifferenzen von BaF_2 und Flüssigszintillator in einem Histogramm ein (siehe Abbildung 5.2.2 links), so erhält man ein scharfes, normalverteiltes Maximum. Genannt wird dieses Maximum „Photonenflash“.

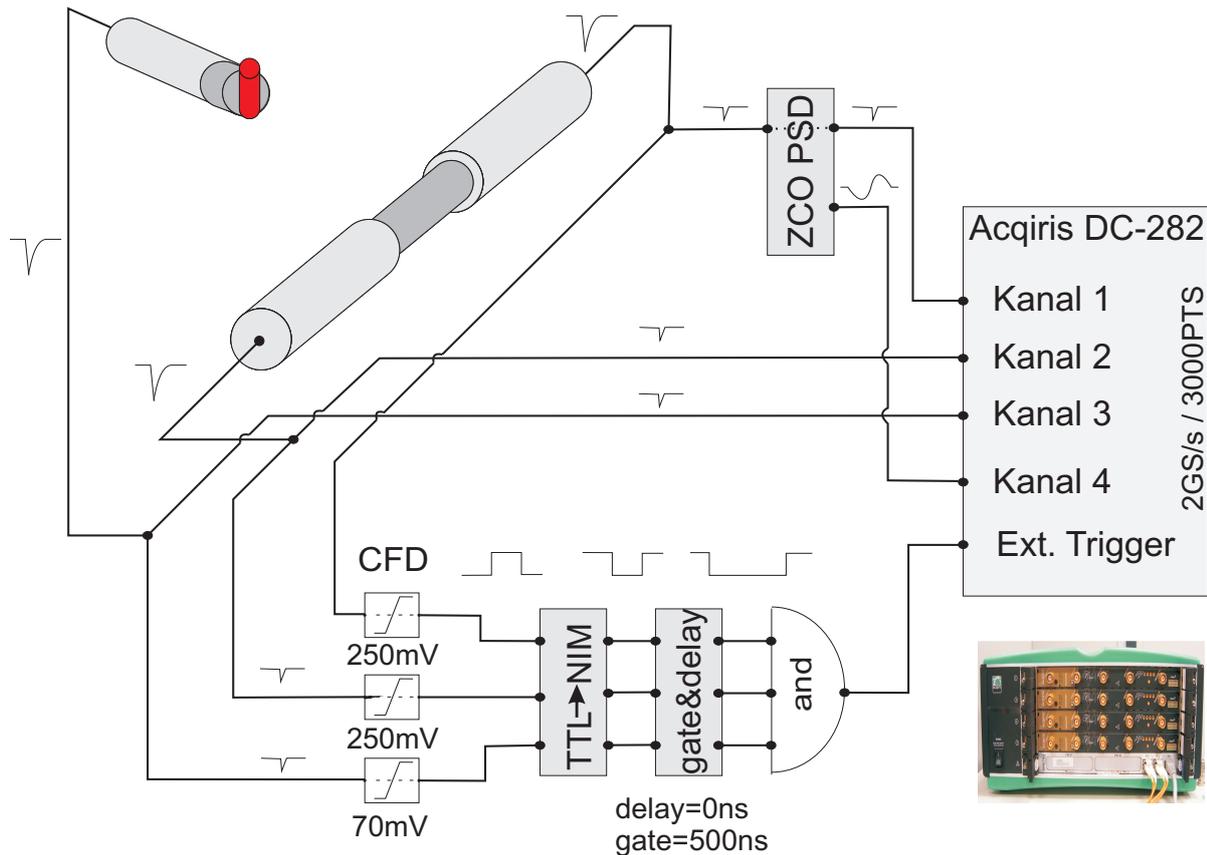


Abbildung 5.2.1: Signalverarbeitung bei dem verwendeten Flugzeitexperiment. Oben links befindet sich der Start-Detektor (BaF₂). Direkt vor ihm platziert wurde ein ²⁵²Cf-Prüfstrahler. Er produziert ein gemischtes n - γ -Feld, welches isotrop emittiert wird [Hotzel et al., 1996]. Treffen Teilchen aus diesem Feld den im Abstand von 40 cm befindlichen Szintillator und kommt es zu einer Wechselwirkung, so erzeugen die Photomultiplier ein elektrisch verstärktes Signal, welches als Stoppsignal genommen werden kann. Die Datenaufnahme wird durch eine Koinzidenz aller drei Photomultipliersignale gestartet. Das Koinzidenzfenster betrug 200 ns.

Gefolgt wird dieses von einer breiteren Verteilung, die den Neutronenflugzeiten zugeordnet werden kann. Umgerechnet in kinetische Energie, entspricht diese Verteilung dem schnellen Spaltspektrum des Prüfstrahlers (siehe Abbildung 5.2.2 rechts).

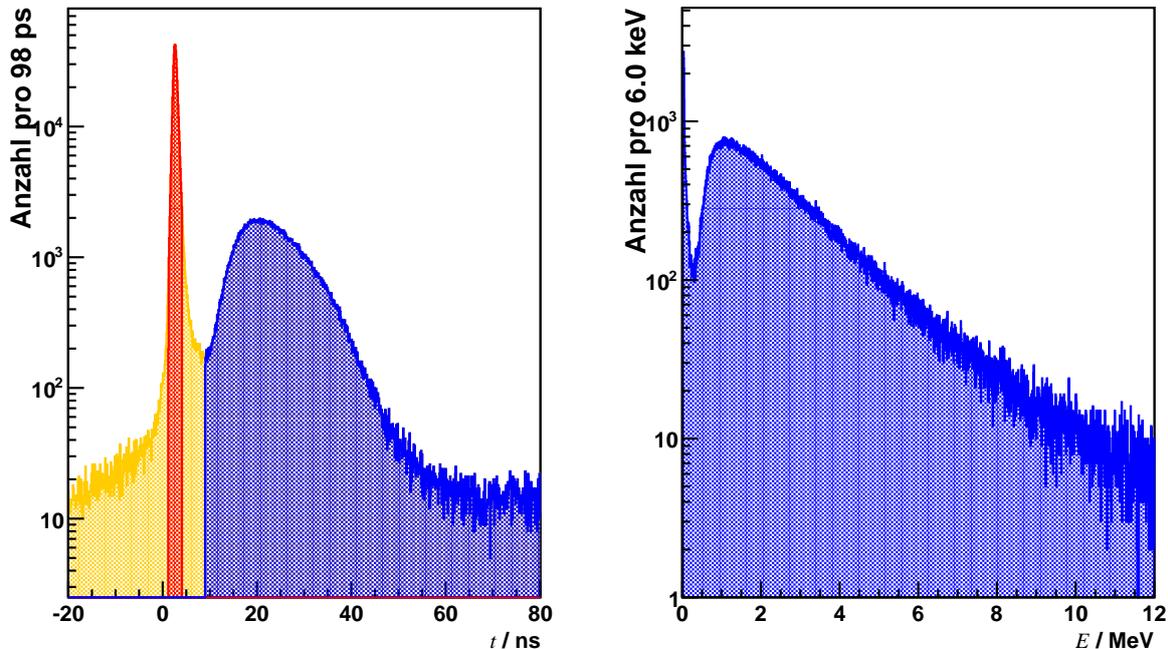


Abbildung 5.2.2: Flugzeit- und Energiespektrum eines ^{252}Cf -Prüfstrahlers. Aufgenommen wurden diese Spektren mit einem LAB+PPO+bis-MSB-Detektor, dessen Aufbau unter 5.2.1 skizziert wurde.

Links: Flugzeitspektrum. Das komplette Spektrum ist in Orange dargestellt. Rot markiert sind Photonenergebnisse, die zur Erzeugung der Wichtungsfunktion der GDM-basierten Algorithmen verwendet wurden. Der Bereich umfasst alle Ereignisse $\pm 3\sigma$ um den normalverteilt angenommenen „Photonenflash“. Der blau markierte Bereich definiert Ereignisse, denen Neutronen als erzeugende Teilchen zugeordnet wurden.

Rechts: Neutronenspektrum des ^{252}Cf -Prüfstrahlers. Die Ereignisse nahe $E = 0$ sind Artefakte der quadratischen Transformation. Sie entsprechen dem flachen Untergrund ganz rechts im Flugzeitspektrum bis zu 200 ns. Datensatz: `/gpfs/data/fwkk/koegler/01.282011/LAB_ALL_2GS_1kPTS_Cf.root`

Die Signale der Photomultiplier wurden aufgetrennt. Eine Hälfte des Signals wurde mit einem Ortec Diskriminator in ein TTL-Logik-Signal konvertiert. Anschließend wurde dieses in das schnelle NIM-Format umgewandelt, durch eine Ortec GG8010 (Gate-and-Delay-Generator) auf 200 ns gestreckt und anschließend in eine Logik-Einheit (Ortec CO4020) gegeben. Lagen alle drei Signale innerhalb von 200 ns am Eingang dieser Einheit vor, so wurde die Datenaufnahme im Digitizer gestartet. In mehreren Testläufen wurde mit Hilfe

des Diskriminatorlevels das „Signal-zu-Rauschverhältnis“ sorgsam optimiert. Dabei wurde aber auch beachtet nicht zuviele Ereignisse zu verwerfen. Ebenso wurde eine optimale Spannung der Photomultiplier bestimmt ($U_1 = 2675$ V, $U_2 = 3000$ V und $U_3 = 2200$ V). Die Simulationen haben gezeigt, dass die Algorithmen mit Pulsformen großer Amplituden besser umgehen können, als mit kleinen. Deshalb wurde die Verstärkung an den Röhren maximiert, auch im Bewusstsein, dass somit ebenfalls der Rauschanteil im Puls vergrößert werden würde. Um die Güte der Diskrimination zusätzlich überprüfen zu können, wurde ein Kanal des Flüssigszintillators in eine analoge PSD-Einheit gegeben. Diese beruht auf dem Zero-Crossing Algorithmus. Das Monitor-Signal dieser Einheit wurde in dem freien Kanal des Digitizers ebenfalls mit aufgenommen und ausgewertet. Die Funktionsweise dieses Moduls aus dem SENECA-Experiment ist in [Pai et al., 1989] beschrieben.

5.2.1 Auswertung und Diskussion

In zwei Messläufen wurden unter jeweils identischen Bedingungen die Daten des NE-213 und LAB+PPO-Detektors aufgenommen. Im Anschluss erfolgte die Analyse der Pulsformen mit den in Kapitel 5.1.1 und 5.1.2 beschriebenen Methoden. Vorab wurde jedoch mit der Long-Gate / Short-Gate- Methode überprüft, welche Pulsformdiskriminationsfähigkeit der Detektor prinzipiell besitzt. In Abbildung 5.2.3 sind die Ergebnisse dieser Auswertung dargestellt. Man erhält daraus schon wesentliche Erkenntnisse:

1. Die DPSD von NE-213 ist wie erwartet gut. Für Pulsformen, die kleiner als 10 A.U. sind, wird die Trennung von Neutronen- und Photonenpulsen jedoch deutlich schwieriger.
2. Der LAB+PPO-Detektor hingegen zeigt über den gesamten (Energie-) Bereich keine sichtbare Separation der Pulsformen.

Um ein qualitatives Maß für die Güte der Diskrimination zu haben, führt man die Größe „figure of merit“ (M , oder FoM) ein. Sie definiert sich wie folgt:

$$\text{FoM} = M = \frac{|X_\gamma - X_n|}{\text{FWHM}_\gamma + \text{FWHM}_n} \quad (5.2.1)$$

Dabei stehen die Größen X_γ und X_n für die Erwartungswerte der Normalverteilungen der n - γ Diskriminierungsvariablen. Je größer die FoM desto besser ist die Teilchendiskriminierung.

Die Daten beider Detektoren wurden nach dieser ersten Analyse ausführlich ausgewertet. Die Auswertung der LAB+PPO-Detektor-Daten mit den Algorithmen der DPSD

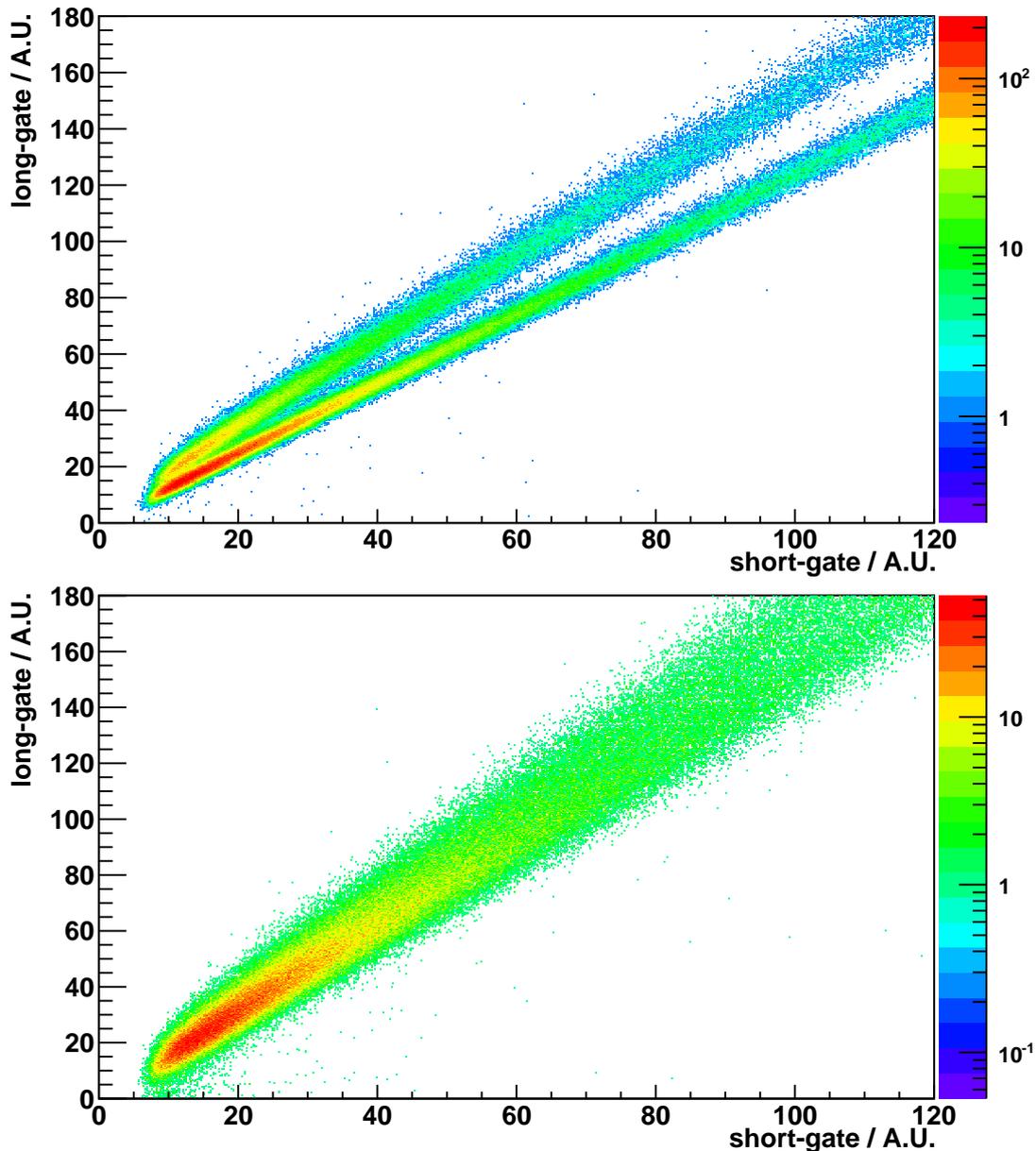


Abbildung 5.2.3: Long-Gate / Short-Gate- Integration für einen NE-213 (oben) und LAB+PPO-Detektor (unten). Die Pulsformen beider Detektoren wurden jeweils einmal 13 ns (short gate) und 310 ns (long gate) integriert. Als Startpunkt dieser Integration wurde der Wert des digitalen CFD genommen, der den Zeitpunkt des Pulses bestimmt, bei dem er erstmalig 10 % seiner Pulshöhe übersteigt. Die zwei Äste im Bild oben können Neutronen (oben)- und Photonenpulshöhen (unten) zugeordnet werden. Für den LAB+PPO Detektor ist eine solche Unterscheidung nicht möglich.

Datensatz:

`/gpfs/data/fwkk/koegler/01.242011/NE_213_ALL_2GS_1kPTS_Cf.root`
bzw.

`/gpfs/data/fwkk/koegler/01.282011/LAB_ALL_2GS_1kPTS_Cf.root`

brachte das gleiche Resultat wie in der oben beschriebenen Analyse. Eine Unterscheidung von Neutronen- und Photonimpulsen war mit diesem Detektor nicht möglich. Der volle Datensatz des NE-213 Experimentes ließ eine Separation der Teilchenpulse zu (siehe Abbildung 5.2.4, oben), blieb aber hinter den Ergebnissen der Messungen anderer Experimente ([Yousefi und Lucchese, 2009], [Söderström et al., 2008] und [Kaschuck und Esposito, 2005]) zurück. Da die Diskrimination für kleine Pulsformen schlechter wird, wurde ein Schnitt auf die Daten gesetzt. Nur Pulsformen, deren kurze Integration einen Wert zwischen 50 und 110 A.U. ergab, wurden daraufhin in der Auswertung berücksichtigt. Die Ergebnisse konnten somit deutlich verbessert und auf das Niveau der Messungen anderer Gruppen ($\text{FoM} > 1$) gehoben werden (siehe Abbildung 5.2.4, unten). Die vom Hersteller angegebenen Werte ($\text{FoM} = 3, 5$, in Bezug auf die Messung von [Kuchnir und Lynch, 1968]), liegen von den gemessenen dennoch weit entfernt. Das kann folgende Gründe haben:

1. Verringerung der Pulsformdiskrimination durch Sauerstoff-Quenching. Für NE-213 ist die Reduzierung der Pulsformdiskrimination durch den Einfluss von gelöstem Sauerstoff beobachtbar. Der verwendete NE-213 wurde 20 min mit reinem Stickstoff gespült. Es ist jedoch möglich, dass nach dem Befüllen des Detektors Sauerstoff der Umgebungsluft in den Detektor strömt. Die verwendeten Teflonstutzen verschließen das Gefäß zwar, ob sie die Küvette jedoch auch vor dem Gas verschließen, ist nicht sicher.
2. Das verwendete NE-213 war viele Jahre unbenutzt. Es lagerte lichtdicht verschlossen in einem Stahlkanister. Das Lösungsmittel Xylol ist jedoch eine stark flüchtige Flüssigkeit. Über die Jahre ist ein Teil des Lösungsmittels verdunstet und hat die Zusammensetzung des Szintillators verändert. Da keine genauen Angaben über die Bestandteile von NE-213 vorliegen, konnte dieser Fakt durch eine erneute Bestimmung der Zusammensetzung nicht überprüft werden.
3. Elektronisches Rauschen des Photomultipliers hat ebenfalls Einfluss auf die Güte der Diskrimination. Die sehr hohe Verstärkung der R2059-01 Photomultiplier hat einen vergleichsweise hohen Dunkelstrom zur Folge. Die Photomultiplier ähnlicher Messungen (wie z.B. [O’Keeffe et al., 2011] und [Söderström et al., 2008]) unterscheiden sich in diesem Wert zu dem hier verwendeten teilweise um zwei Größenordnungen. Die Simulationen haben gezeigt, dass elektronisches Rauschen das Ergebnis der Diskrimination negativ beeinflussen kann. Besonders bei kleinen Pulsformen (niedriges Signal-zu-Rauschverhältnis) wirkt sich dieser Umstand deutlich aus. Für die Flugzeitmessungen von nELBE sind jedoch Photomultiplier mit dieser Verstärkung notwendig, um eine möglichst niedrige Detektorschwelle erreichen zu können.

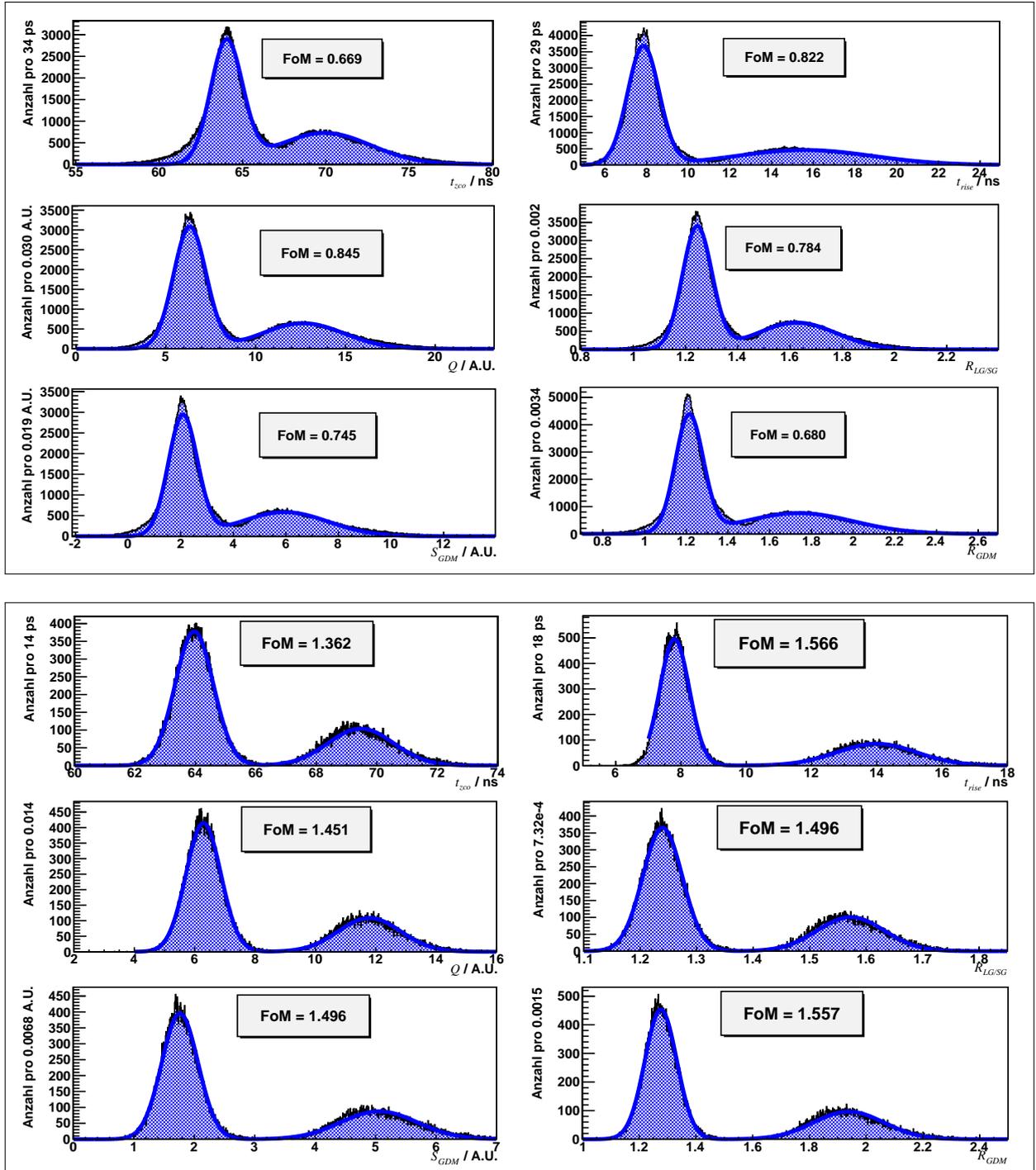


Abbildung 5.2.4: Ergebnisse der digitalen Pulsformdiskrimination am NE-213-Detektor mit vollem Datensatz (oben) und ausgewählten Pulsformen (unten). Jeweils von links oben nach rechts unten: Ergebnisse des Zero-Crossing, Integrated-Risetime, Charge-Comparison, Long-Gate/Short-Gate und den beiden GDM-basierten Algorithmen. In der obigen Darstellung wird das Ergebnis durch Pulsformen kleiner Amplitude verschlechtert. Ein Schnitt in Darstellung (5.2.3, oben) (50 A.U. <short gate<110 A.U.) verbessert die Güte der Diskrimination erheblich. In den Fenstern ist der jeweilige Wert der „figure of merit“ angegeben. Datensatz: /gpfs/data/fwkk/koegler/01.242011/NE_213_ALL_2GS_1kPTS_Cf.root

Die fehlende Pulsformdiskrimination des LAB-Detektors kann allein durch diese oben genannten Gründe jedoch nicht erklärt werden.

Mit den Erkenntnissen aus Kapitel 3 über die Zusammensetzung von NE-213 sollte versucht werden die PSD von NE-213 auf den LAB-Detektor zu übertragen. Der Zusatz des Wellenlängenschiebers bis-MSB könnte diese Verbesserung bewirken. In der Hoffnung, dass allein die Eigenschaften dieses sekundären Szintillators für die sehr gute Pulsformdiskriminierung verantwortlich sind, wurden zusätzlich zu den 3 g/l PPO die hohe Konzentration von 0,5 g/l bis-MSB in LAB gelöst. Die gebräuchliche Konzentration dieses Szintillators in Kombination von LAB und PPO beträgt 20 mg/l. Eine Messung unter identischen Bedingungen, wie bei den vorangegangenen, brachte jedoch ebenfalls keinen Erfolg. Die durch die Flugzeit diskriminierten und gemittelten Pulse aus Abbildung 5.2.5 unterstreichen diese Aussage. Im Vergleich zu NE-213 sind die Unterschiede von neutronen- und photoneninduzierten Pulsformen einfach zu gering, um sie anhand der Algorithmen erfolgreich zu diskriminieren. Um Fehler in der digitalen Datenanalyse auszuschließen, wurde,

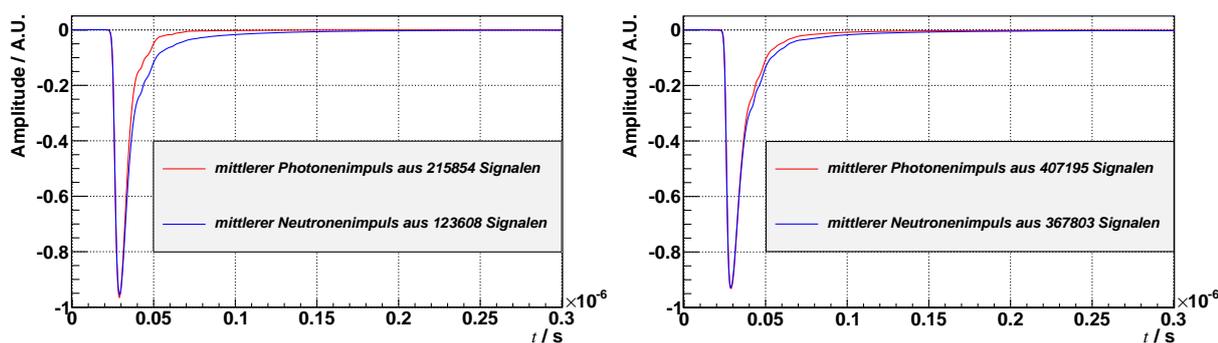


Abbildung 5.2.5: Gemittelte Pulsformen des NE-213 (links) und LAB+PPO+bis-MSB (rechts) Detektor. Dargestellt sind die anhand des Flugzeitpektrum diskriminierten Pulsformen für Neutronen- (blau) und Photonensignalen (rot). Im LAB-Detektor sind die Unterschiede zwischen ihnen zu klein, um eine gute Diskrimination mit den vorgestellten Methoden zu erreichen.

Datensatz:

```
/gpfs/data/fwkk/koegler/01.242011/NE_213_ALL_2GS_1kPTS_Cf.root  
bzw.  
/gpfs/data/fwkk/koegler/01.282011/LAB_ALL_2GS_1kPTS_Cf.root
```

wie oben beschrieben, zusätzlich das Monitorsignal der SENECA-Einheit mit aufgenommen und ausgewertet. Der Nulldurchgang des bipolaren Signals ist für Neutronen- und Photonen verschieden. Durch einen einfachen Algorithmus wurde ein Vorzeichenwechsel zwischen lokalem Minimum und Maximum gesucht und die zeitliche Differenz zum digitalen Diskriminator gebildet. Die Ergebnisse dieser Methode verifizieren die voll digitalen Algorithmen. In der Güte der Diskrimination lieferten die digitalen Methoden durchweg

bessere Ergebnisse als die semianalogen (siehe dazu Kapitel A.3 Abb. A.3.1).

Da eine Aufgabe der Diplomarbeit darin bestand eine energieabhängige Pulsformdiskrimination eines LAB+PPO-Detektors durchzuführen, sei an dieser Stelle folgendes bemerkt: Eine energieabhängige Pulsformdiskrimination erfordert die Kalibrierung des Detektor für Neutronen- und Photonenanregung. Über die Flugzeit kann die Energie der Neutronen hinreichend genau bestimmt werden. Jedoch sollte man bedenken, dass ein niederenergetisches Neutron durch einen zentralen Stoß mit einem Proton eine Pulsform erzeugen kann, die der eines schnelleren Neutrons, welches nichtzentral stößt, entsprechen kann. Allein die Pulshöhe muss also nicht proportional zur Energie sein. Dieser Umstand hat somit auch indirekt Auswirkung auf die PSD, da diese für große Pulsformen ja nachweislich bessere Resultate liefert.

Für die Kalibrierung von γ -Strahlung kann wie in Kapitel 4 aufgezeigt, vorgegangen werden. Dabei muss jedoch beachtet werden, dass dann die gleiche Verstärkung auch für die PSD-Messungen verwendet werden muss. Hätten die Ergebnisse der zweidimensionalen Long-Gate/Short-Gate-Auswertung auf eine Pulsformsdiskriminationsfähigkeit von LAB-basierten Detektoren hingedeutet, wäre dieser erheblich größere Aufwand betrieben worden. Da dies aber nicht der Fall war, sei die Verfahrensweise hier nur erwähnt.

5.3 Resultate

Anhand eines Flugzeitexperiments mit einem ^{252}Cf -Prüfstrahler wurde die Pulsformdiskrimination eines NE-213-, LAB + 3 g/l PPO- und LAB + 3 g/lPPO + 0,5 g/l bisMSB-Detektor getestet. Aus den Messdaten und Simulationen lassen sich folgende Schlussfolgerungen ziehen:

1. Anhand der in [O’Keeffe et al., 2011] gemessenen Zerfallskonstanten und Intensitäten konnten mithilfe eines Pulsgenerators Pulsformen eines LAB+PPO-Detektors generiert werden. Nach diesen Messungen sollte eine Diskrimination zwischen Photonen und Neutronen prinzipiell möglich sein. Leider lagen für die Simulation keine eigenen Messwerte vor, sodass auf die Messung von O’Keeffe et al. vertraut werden muss.
2. Die sehr gute Pulsformdiskrimination von NE-213 konnte bestätigt werden. Die Ergebnisse sind mit anderen Experimenten ([Yousefi und Lucchese, 2009], [Söderström et al., 2008], [Kaschuck und Esposito, 2005]) in Übereinstimmung. Die vom Hersteller referierte „figure of merit“ von 3,5 konnte jedoch nicht erreicht werden.
3. Die Algorithmen der digitalen Pulsformdiskrimination liefern vergleichbare Werte. Für ausgewählte Daten erreicht der GDM-Long-Gate/Short-Gate- Algorithmus die besten Resultate
4. Die Ergebnisse von Yousefi et al. bezüglich Stabilität und Güte eines Algorithmus basierend auf der Wavelet-Transformation konnten nicht bestätigt werden. In allen Experimenten blieben die Ergebnisse (siehe Abbildung A.3.3 in Kapitel A.3) dieser Methode hinter den in [Yousefi und Lucchese, 2009] beschriebenen zurück.
5. Die Ergebnisse der DPSD konnten durch ein semianaloges Verfahren verifiziert werden. Die Güte der Separation ist bei den digitalen Methoden besser.
6. Leider zeigten die beiden LAB-Detektoren keine Fähigkeit Photonen und Neutronen anhand ihrer Pulsformen zu unterscheiden.
7. Aufgrund dieser schlechten PSD-Eigenschaften wurde auf eine Bestimmung der Energieabhängigkeit dieser Größe verzichtet.

6 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Diplomarbeit wurde die Eignung von linearen Alkylbenzenen als Lösungsmittel für neuartige Flüssigszintillatoren untersucht. Dazu wurden Proben dieser Substanz in Kombination mit unterschiedlichen primären und sekundären Szintillatoren spektroskopiert. Fluoreszenz- und Absorptionsspektrum konnten so bestimmt und eine geeignete Lösung für einen Detektor mit den nELBE Photomultipliern (Hamamatsu R2059-01) ausgewählt werden. Ein doppelseitig ausgelesener Küvetten-Detektor auf Basis von LAB + 3 g/l PPO wurde konstruiert und mehreren Analysen unterzogen. Mit einer kombinierten Methode aus Compton-Spektrometer und Compton-Kantenbestimmung im Ladungsspektrum unterschiedlicher Prüfstrahler konnte die relative Lichtausbeute des Flüssigszintillators bis hin zu 5 keVee bestimmt werden. Nur wenige Messungen zeigen das Verhalten eines organischen Szintillators bei Photonenanregung bis zu dieser Energie. Der untersuchte Detektor zeichnet sich im betrachteten Energiebereich (5-2000 keVee) durch eine sehr gute Linearität zwischen deponierter Energie und Fläche der korrespondierenden Pulsform aus. Aus den Daten konnte ebenfalls der Birks-Parameter sowie die relative Lichtausbeute im Vergleich zu NE-213 bestimmt werden. Die Ergebnisse zeigen eine vergleichbare Lichtausbeute zu diesem Standard auf Xylolbasis. Die absolute Lichtausbeute des Detektors konnte mit Hilfe des Einzel-Photoelektronen-Maximums abgeschätzt werden. Sie ist mit dem gängigen Wert von etwa 10^4 Photonen pro MeVee in Übereinstimmung.

Für die digitale Datenanalyse zukünftiger nELBE-Experimente wurden sieben Algorithmen zur Pulsformdiskrimination implementiert. Fast alle zeigen eine vergleichbare Fähigkeit Neutronen- von Photonenpulsformen zu unterscheiden. Leider konnte die vielversprechende Wavelet-Transformation in der erzeugten Realisierung die Ergebnisse von Yousefi et al. nicht bestätigen. Die GDM-basierten Algorithmen zeigen die besten Resultate. Sie sind jedoch weniger robust als andere Pulsgradientenmethoden und benötigen ein unabhängiges Diskriminationskriterium, wie die Flugzeit. Alle Algorithmen wurden mit simulierten und experimentellen Daten ausgiebig getestet und mit einer analogen Diskriminationseinheit des SENECA-Experiments verifiziert. Gegenüber dieser analogen Standardmethode zeigten sich die digitalen Methoden bezüglich der Güte der Diskrimination überlegen.

Die Fähigkeit des Detektors, anhand der erzeugten Pulsformen zwischen den Photonen

und Neutronen eines ^{252}Cf -Prüfstrahlers zu unterscheiden, wurde in einem Flugzeitexperiment überprüft. Leider konnte sowohl bei dem LAB+PPO-Detektor als auch bei einem Detektor mit zusätzlich hinzugefügtem Wellenlängenschieber keine Pulsformdiskriminationsfähigkeit erkannt werden.

In Hinblick auf die offenen Fragen dieser Arbeit wäre es gut, wenn LAB-Detektoren weiterhin untersucht würden. Wie verhält sich die Lichtausbeute im Vergleich zu Plastikszintillatoren? Können Linearität, Lichtausbeute und Zeitauflösung auch auf größere Detektortypen übertragen werden? Können die Intensitäten und Zerfallskonstanten der SNO+ Messung für WIBARCO-LAB und PPO bestätigt werden oder weichen diese ab? In Hinblick auf die endgültige Klärung der Pulsformdiskriminationsfähigkeit der Detektoren wären die Ergebnisse einer Messung der Szintillationslichtabklingzeiten nach [Bollinger und Thomas, 1961] sehr aufschlussreich.

Trotz der vielen positiven Eigenschaften der untersuchten LAB-Detektoren (Linearität, Zeitauflösung, Lichtausbeute, Umweltverträglichkeit, Handhabung und Preis) bieten sie für die Nutzung bei nELBE keine Vorteile gegenüber den bereits erprobten EJ-200 Plastikszintillatoren. Die Hoffnung, Pulsformdiskrimination mit den Eigenschaften der Plastikszintillatoren verknüpfen zu können, wird durch die untersuchten Detektoren leider nicht erfüllt.

Dennoch besitzen LAB-basierte Flüssigszintillatoren ein großes Potential und in Zukunft mit Sicherheit auch ein breites Anwendungsfeld. Für großangelegte Neutrinoexperimente sind sie zu Recht die bevorzugte Wahl.

A Anhang

A.1 Der Szintillationsmechanismus in mehrkomponentigen Szintillatoren

Wie in Unterkapitel 2.4 erwähnt wurde, kann der Szintillationsmechanismus in mehrkomponentigen Szintillatoren auf die Reaktionen in unitären, binären und tertiären Systemen zurückgeführt werden. Bezeichnet man das Lösungsmittel mit X , den primären Szintillator mit Y und den sekundären mit Z , so lassen sich diese Systeme vereinfacht durch die Terme X , $X + Y$, $X + Y + Z$ darstellen. Der Mechanismus selbst kann in zwei unterschiedliche Prozesse gegliedert werden. Unter dem primären Prozess versteht man die direkte Anregung oder sogar die Ionisation der Komponenten durch das ionisierende Teilchen. Explizit sind dabei folgende Prozesse möglich:

1. Anregung eines π -Elektrons
2. Ionisation eines π -Elektrons
3. Anregung eines anderen Elektrons (zum Beispiel eines σ -Elektrons oder eines 1s-Elektrons des Kohlenstoffs)
4. Ionisation eines andersartigen Elektrons

Wie in Kapitel 2.3 bereits erwähnt, sind direkte Anregungen von Triplet-Zuständen verboten. Jedoch sind 75% der nach Prozess 2 wieder rekombinierten Moleküle in einem angeregten Triplet-Zustand. Während man Prozess 1 als Grundlage der schnellen Szintillationskomponente ansehen muss, muss man Prozess 2 eindeutig als Grundlage der langsamen Komponente betrachten. (Bemerkung: Elektronen, die in Singulett-Zustände rekombinieren, machen nur einen Bruchteil des emittierten Szintillationslichtes aus). Weiterhin ist zu bemerken, dass Prozess 3 und 4 nicht zur Emission von Szintillationslicht führen, da sie sich vorwiegend thermisch abregen (vgl. [Buck und Swank, 1958]). Da Y und Z meistens nur in geringer Konzentration im Lösungsmittel X gelöst sind, kann man eine direkte Anregung dieser beiden vernachlässigen.

Im sekundären Prozess werden alle Vorgänge zusammengefasst, die zum primären in Konkurrenz stehen. Dazu zählen:

1. Energietransfer zu anderen Molekülen von X
2. Energietransfer zu Molekülen von Y bzw. Z
3. Quenching und interne Konversion
4. Fluoreszenz

Das Besondere an diesen Effekten ist, dass sie unabhängig von der Art der Anregung sind. Es ist also belanglos, ob die Anregung durch ein ionisierendes Teilchen passierte, oder durch Bestrahlung mit UV-Licht. Dieser Umstand führte auch dazu, dass primärer und sekundärer Prozess unterschieden wurden.

A.1.1 Energietransfer zu Molekülen von Y beziehungsweise Z

Im Folgenden sei der Energietransfer von Molekülen der Spezies X zu Molekülen der Spezies Y oder Z etwas genauer betrachtet. Anhand der Anregung durch ein schnelles Elektron soll der Transfer konkret nachvollzogen werden.

Dringt ein schnelles Elektron in den Szintillator ein, so deponiert es einen Teil seiner Energie in ihm. Die Anregung über den primären Prozess ist vollzogen. Nun hängt es maßgeblich von der Konzentration und Kombination der verwendeten Komponenten ab, welche Art des Energietransports vollzogen wird. Hauptsächlich kommt es dabei zu:

- Kollisionen zwischen Molekülen und dem damit verbundenen Energieaustausch,
- Emission von Fluoreszenzphotonen mit nachfolgender
 - Absorption durch ein weiteres Molekül der Spezies X oder
 - Absorption durch ein Molekül der Spezies Y bzw. Z oder
 - internem Quenching, sowie
 - dem Verlust durch Verlassen des Systems
- internem Quenching,
- einem direkten Übergang von einem angeregten Molekül zu einem benachbarten Molekül im Grundzustand
- oder vor allem in Flüssigszintillatoren, einem strahlungslosen Transfer durch eine weitreichende Dipol-Dipol-Wechselwirkung (Förster-Transfer).

Letzteres wird begünstigt, wenn die Anregungsenergie von X möglichst effektiv in den Einflussbereich der Dipol-Dipol-Wechselwirkung transportiert wird. Das geschieht im Wesentlichen auf zwei Arten. Einmal durch direkten Austausch, Dipol-Dipol und Multipol-Multipol-Wechselwirkungen zwischen den Molekülen des Lösungsmittels oder durch Diffusion von Lösungsmittel- und Szintillatormolekülen. Vor allem der letzte Prozess hängt dabei stark von Temperatur und Viskosität des Lösungsmittels ab. Die Ausprägung dieser Eigenschaften im Flüssigszintillator im Vergleich zum Plastiksintillator ist die Ursache für die Möglichkeit Teilchen hinsichtlich ihrer Pulsform zu unterscheiden (siehe Kapitel 5). Hat die Anregungsenergie den primären Szintillator erreicht, so gibt es eine Reihe von weiteren Prozessen, die den oben erwähnten prinzipiell ähnlich sind. In die Bilanzgleichung muss jedoch noch der Transfer zu Molekülen der Spezies Z mit einbezogen werden. Von dort kann es erneut zu allen beschriebenen Formen der Energieübertragung kommen. Für weiterführende Bemerkungen und detaillierte Ausführungen zum Energietransfer in tertiären Systemen sei der Leser an dieser Stelle auf das Buch von J.B. Birks [[Birks, 1964](#)], Unterkapitel 3.8, 3.9, sowie 3.10 verwiesen.

A.2 Verwendete radioaktive Prüfstrahler

Isotop	E_γ/keV	E_{CE}/keV	Photonenemissionswahrscheinlichkeit / %
^{22}Na	511,0	340,7	200
	1274,5	1061,7	99,44
^{54}Mn	834,9	639,2	99,98
^{60}Co	1173,2	963,4	99,97
	1332,5	1118,1	99,99
^{88}Y	898,0	699,1	94
	1836,1	1611,8	99
^{133}Ba	81,0	19,5	34,06
	302,9	164,3	18,34
	356,0	207,3	62,05
	383,9	230,5	8,94
^{137}Cs	661,7	477,3	85,1
$^{166\text{m}}\text{Ho}$	184,4	77,3	72,67
	280,4	146,8	29,77
	711,7	523,7	55,32
	810,3	616,0	58,08
^{207}Bi	569,7	393,3	97
	1063,7	857,6	74
^{241}Am	59,5		

Tabelle A.2.1: Verwendete γ -Prüfstrahler samt der wesentlichen Photonen-Energien (E_γ), korrespondierenden Compton-Kanten E_{CE} und Photonenemissionswahrscheinlichkeiten für die Kalibrierung des NE-213- und LAB-Detektors. Für Isotope mit dicht liegenden γ -Energien, die aufgrund der Detektorauflösung im Spektrum nicht trennbar waren, wurden gewichtete Mittel gebildet. Das Photon des Isotops ^{241}Am wechselwirkt neben der inkohärenten Streuung auch über den Photoeffekt mit den Szintillatoren. Sein Pulsflächenspektrum besitzt ein Vollenergiemaximum. Bermerkung: $^{166\text{m}}\text{Ho}$ und ^{88}Y standen nur der Messung mit dem LAB-Detektor zur Verfügung. Entnommen aus [LUNDS Universitet, 1999]

A.3 Ergebnisse der digitalen Pulsformdiskrimination (Fortsetzung)

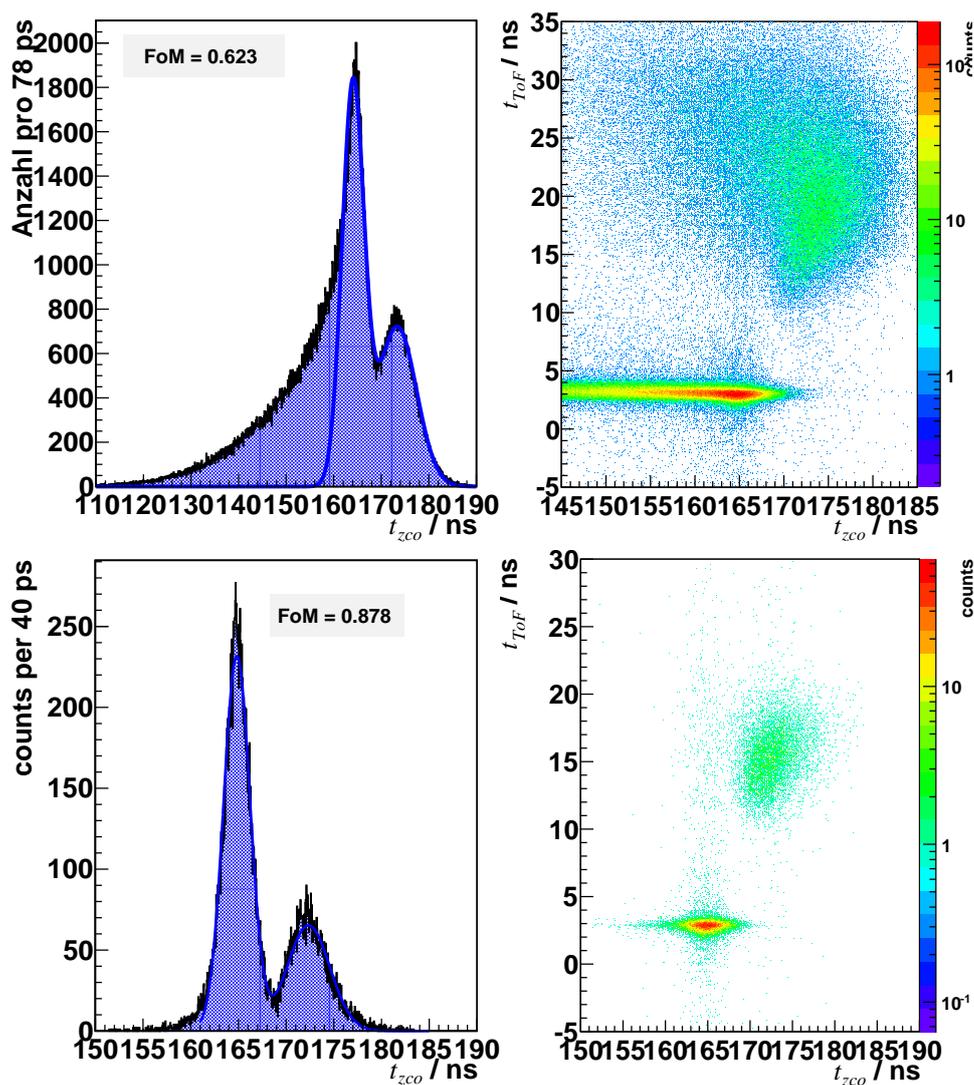


Abbildung A.3.1: Pulsformdiskrimination mit dem semi-analogen Verfahren. Das Monitor-Signal einer SENECA-Pulsformdiskriminationseinheit wurde während der Experimente digitalisiert. Der Nulldurchgang des bipolaren Signals ist charakteristisch für die erzeugende Teilchenart. Über einen digitalen Algorithmus wurde dieser Nulldurchgang bestimmt und das Ergebnis in ein Histogramm eingefügt. Die Güte der Diskrimination ist schlechter als bei der digitalen Realisation (vergleiche rechts mit Abb. 5.2.4 oben). Der „ausgewaschene Schwanz“ jeweils links im Bild, würde unter Berücksichtigung das Ergebnis noch weiter verschlechtern. Die Darstellungen beziehen sich auf die Messung mit dem NE-213-Küvettedetektor. Im Bild links ist der volle Datensatz ausgewertet. Rechts wurden nur Pulsformen berücksichtigt, deren Pulsflächen größer als 50 und kleiner als 110 A.U. waren.

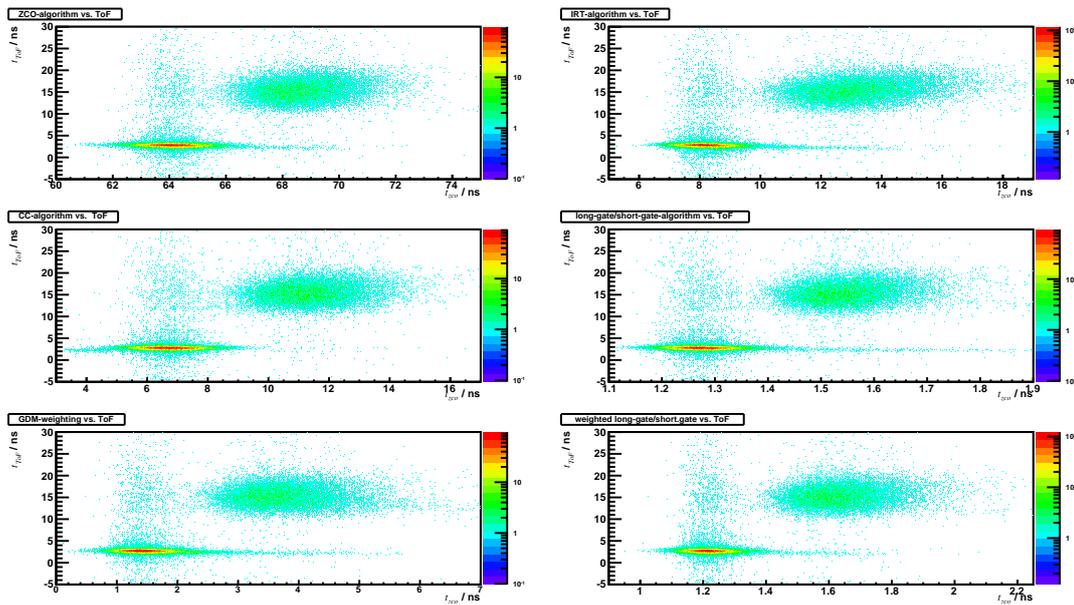


Abbildung A.3.2: Zweidimensionale Darstellung der Flugzeit und der Diskriminationsvariablen unterschiedlicher DPSD-Algorithmen. Die Darstellung zeigt die Ergebnisse der Auswertung des Flugzeitexperiments des NE-213-Küvettdetektors. Deutlich erkennbar ist die sehr gute Diskriminationsfähigkeit des Detektors. Im unteren linken Bereich eines jeden Diagramms sind Ereignisse konzentriert, die als Photonen interpretiert werden können. Die breitere Verteilung weiter oben repräsentiert Neutronenereignisse.

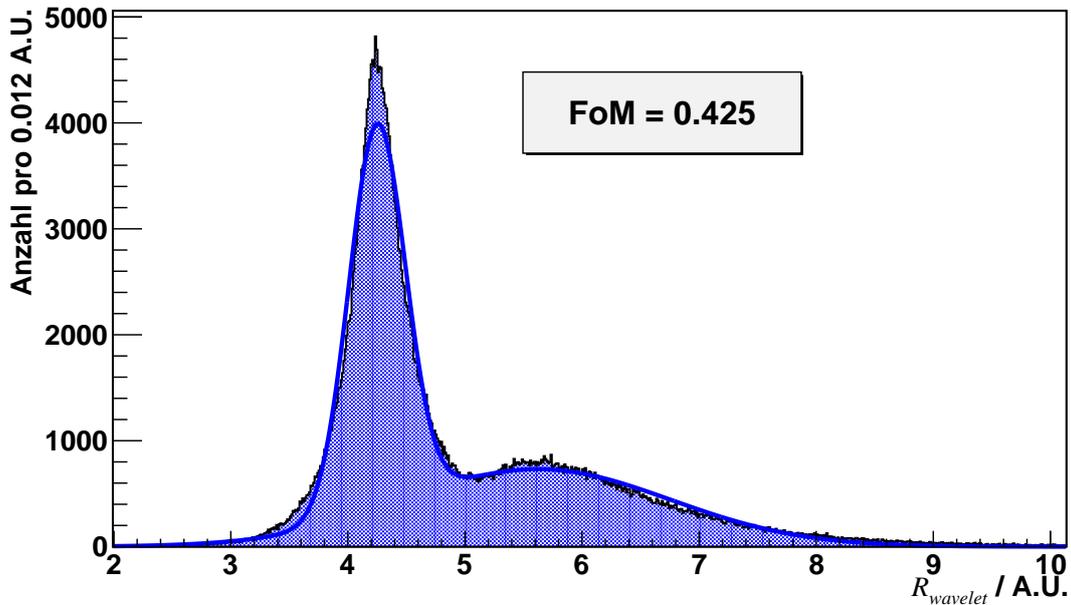


Abbildung A.3.3: Ergebnisse der Wavelet-Analyse. Analysiert wurden Impulsformen des NE-213-Detektors mit dem unter 5.1 vorgestellten Algorithmus. Im Vergleich zu den Pulsgradientmethoden (vgl. Abbildung 5.2.4 oben) schneidet dieser Algorithmus schlechter ab.

A.4 Diverses



**Chemische Fabrik
WIBARCO GmbH**

Chemische Fabrik WIBARCO GmbH - Postfach 16 62 - 49466 Ibbenbüren

Musterversand

05.10.2009

Abnahmeprüfzeugnis nach DIN EN 10204 3.1

Produkt: Wibarcan
Probe: L-2009/10/05-07:02-Q-0604A-01
Freigabe am: 05.10.2009
Prüfer: Frau Fischer

Tank :
Menge:

Spezifikationsprüfung	Methode	Prüfwert	Spezifikation	Einheit
Aussehen	Visuell	klar	klar	
Farbe nach Saybolt	DIN 51 411	30	>=30	
Hazenfarbe	DIN ISO 6271	8	<=10	
Molgewicht	DIN 51 405	240.3	238.0 - 244.0	g/mol
Bromaufnahme	DIN 51 774	0.001	<0.050	%
Wasser	DIN 51 777	65	<200	ppm
C-Kettenverteilung	DIN 51 405			
Phenyl-nonan		<0.1	<0.1	%
Phenyl-decan		12.2	<=18.0	%
Phenyl-undecan		37.9	25.0 - 40.0	%
Phenyl-dodecan		31.5	25.0 - 40.0	%
Phenyl-tridecan		18.3	15.0 - 28.0	%
Phenyl-tetradecan		0.1	<=1.0	%
Phenyl-pentadecan		<0.1	<0.1	%
2-phenyl-Anteil		30.9	25.0 - 35.0	%

Das Zertifikat wurde maschinell erstellt und ist ohne Unterschrift gültig
i.A Heinz Wehkamp (Abnahmebeauftragter)

Die o.a. Angaben basieren auf unseren derzeitigen Kenntnissen. Sie befreien den Anwender nicht von einer Eingangskontrolle. Die Eignung für konkrete Anwendungszwecke kann daraus nicht abgeleitet werden.
Schutzrechte, Gesetze und Bestimmungen sind zu beachten.

Verwaltung und Betrieb:
Industriegebiet 49479 Ibbenbüren-Uffeln
Hauptstraße 21
Telefon: (0 54 59) 9 10-0
Telefax: (0 54 59) 9 10-1 04
eMail: info.wibarco@wibarco.de
Internet: www.wibarco.de

Banken:
LFP Landesbank Rheinland-Pfalz, Mainz
Konto-Nr. 110 157 351 (BLZ 650 500 00)
IBAN: DE97 5505 0000 0110 1573 51
S.W.I.F.T.-Code: MALADE5555
Commerzbank AG, Filiale Ibbenbüren
Konto-Nr. 2 139 550 (BLZ 403 400 30)
IBAN: DE79 4034 0030 0213 8550 00
S.W.I.F.T.-Code: COBADEFF 403

Geschäftsführung:
Thomas Pfisterer
Sitz der Gesellschaft: Ibbenbüren
Eingetragen unter B 5352 im Handelsregister
beim Amtsgericht Steinfurt
USt.-IdNr. DE 811122785
Steuer-Nr. 336/5750/1537

AUDI - 1393

Abbildung A.4.1: Zertifikat Wibarcan der Firma Wibarco

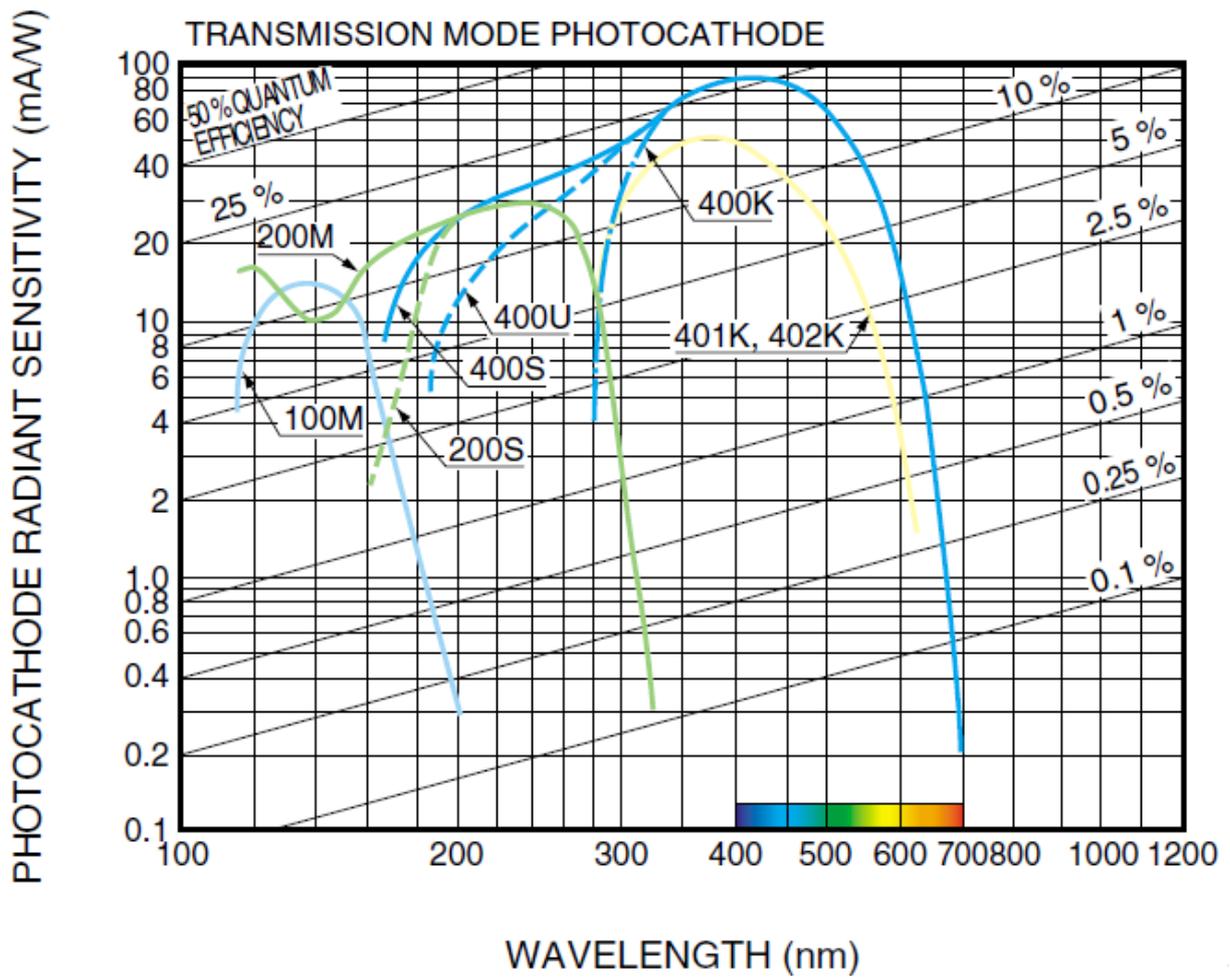


Abbildung A.4.2: Quanteneffizienz und Strahlungsempfindlichkeit der Hamamatsu R2059-01 Photokathode (400S). Entnommen aus [Hamamatsu Homepage, 2011, S. 116].

A.5 Algorithmen der digitalen Pulsformdiskrimination (C++ Quellcode)

```

1 void module_CR_diff_HP (const vector<float> *v, vector<float> *s,
2     int npts, double dt, double tau)
3 { //digital representation of a high-pass-filter
4     //inputs: signal v, number of samples npts, sampling intervall
5     dt and integration constant tau
6     //output: filtered signal s
7     int i; s->clear();
8     double alpha=tau/(tau+dt);
9     s->push_back(0); //under the condition, that signal
10    does not vary much between first two points
11    for (i=1;i<v->size();i++) s->push_back(alpha*(s->at(i-1) + v->
12    at(i) - v->at(i-1)));
13 }
14 //-----
15 void module_RC_int_LP (const vector<float> *v, vector<float> *s,
16     int npts, double dt, double tau)
17 { //digital representation of a low-pass-filter
18     //inputs: signal v, number of samples npts, sampling intervall
19     dt and integration constant tau
20     //output: filtered signal s
21     int i; s->clear();
22     double alpha=dt/(tau+dt);
23     s->push_back(v->at(0));
24     for (i=1;i<v->size();i++)
25         s->push_back((1-alpha)*s->at(i-1) + alpha*v->at(i));
26 }
27 //-----
28 double module_zct (const vector<float> *v, vector<float> *s,
29     vector<float> *p,int sign, double tau, int start, int stop,
30     double dt, double no_success)
31 { //digital representation of the zero-crossing algorithm
32     //inputs: signal v, number of samples npts, sign of v, start[
33     points] and stop[points] of roi, sampling intervall dt and

```

```

    integration constant tau
25 //output: shaped signal s, point of zero-crossing
26 int i, j, i_min=0, i_max=0;
27 double tau1, tau2, tau3;
28 p->clear(); s->clear();
29 //bipolar shaping of input-signal v
30 module_CR_diff_HP(v, s, v->size(), dt, tau1);
31 module_RC_int_LP (s, p, s->size(), dt, tau2);
32 module_RC_int_LP (p, s, p->size(), dt, tau3);
33
34 //module for determining the point at which waveform reaches its
    maximum/minimum
35 i_max=func_extreme_value(s,0,s->size(), 1, sign);
36 //check for zero-crossing
37 for (i=i_max+1; i<s->size(); i++)
38 {   if (s->at(i-1)*s->at(i)<0) return func_interpolate(s, i-1,
    0, dt);
39 //linear interpolation of waveform s between point i-1 and i
40 }
41 //if there is no zero-crossing return no_success
42 return no_success;
43 }

```

Listing A.1: Zero-Crossing

Hoch- sowie Tiefpass-Filter wurden [\[Hannaske, 2009\]](#) entnommen.

```

1 double module_irt (const vector<float> *v, vector<float> *s, int
    sign, double start, double stop, double dt, double no_success)
2 { //digital representation of the integrated-risetime algorithm
3 //input: signal v, sign of v, start[seconds] and stop[seconds]
    of roi, sampling intervall dt
4 //output: integrated and normalized signal s, risetime of
    integrated waveform
5 int i, iat10=0, iat72=0; double t_at10=0.0, t_at72=0.0; s->clear
    ();
6 int i_start=start/dt, i_stop=stop/dt;

```

```

7  if ((i_start < 0) || (i_start > v->size()) || (i_stop < 0)) return
    no_success;
8  if (i_stop > v->size()) i_stop = v->size();
9
10 s->push_back(0);
11 for (int i=1; i < v->size(); i++)
12 { if (i < i_stop - i_start) s->push_back(s->at(i-1) + v->at(i+i_start)
    );
13     else s->push_back(s->at(i-1));
14 }
15
16 double norm = s->at(s->size()-1);
17 for (int i=0; i < s->size(); i++) s->at(i) = sign * s->at(i) / norm;
18 i=0;
19 while ((i < s->size()) && (iat72 == 0))
20 { if ((sign * s->at(i) > 0.10) && (iat10 == 0)) iat10 = i;
21     if ((sign * s->at(i) > 0.72) && (iat72 == 0)) iat72 = i;
22     i++;
23 }
24 //determine interpolated point at which waveform reaches 10\%
    and 72 \%
25 t_at10 = func_interpolate(s, iat10, sign * 0.10, dt);
26 t_at72 = func_interpolate(s, iat72, sign * 0.72, dt);
27
28 if ((t_at10 == no_success) || (t_at72 == no_success)) return
    no_success;
29 //risetime
30 return fabs(t_at72 - t_at10) * 1e9;
31 }

```

Listing A.2: Integrated Risetime

```

1 double module_cc (const vector<float> *v, vector<float> *s, int
    sign, double dt, double no_success)
2 { //digital representation of the charge-comparison algorithm
3   //input: signal v, sign of v, sampling intervall dt

```

```

4  //output: integrated and normalized (pulse height) signal s,
      integral of the slow component of the waveform
5  int i_start, i_stop, i_end, i_max; double v_max=0;
6  //module for determining the point at which waveform reaches it
      maximum/minimum
7  i_max=func_extreme_value (v,0,v->size(),1,sign);
8  //Maximum
9  v_max=v->at(i_max);
10 int i=i_max;
11 //determines point at which waveform has fallen to 50\% of its
      pulse height
12 while ((v->at(i)<0.5*v_max) && (i<v->size()-1) && (i>=0)) i++;
13
14 i_start=i; i_stop=i_start+500; if (i_stop>v->size()) i_stop=v->
      size();
15
16 if ((i_start<0) || (i_start>v->size())) return 0.0;
17
18 s->clear();
19 s->push_back(0);
20 //sum over 500 samples of waveform starting at 50\% of
      waveforms pulseheight
21 for (i=i_start; i<i_stop; i++)
22 { s->push_back(s->at(i-i_start)+v->at(i)/v_max);
23 }
24 //return the sum
25 return s->at(s->size()-1);
26 }

```

Listing A.3: Charge-Comparison

```

1 double module_cc_LSG (const vector<float> *v, int sign, double
      t_short, double t_long, double dt, double no_success)
2 { //digital representation of the long-gate/short-gate algorithm
3   //input: signal v, sign of v, integration limits t_short and
      t_long, sampling intervall dt
4   //output: ratio of long to short summation

```

```

5  int i;
6  int i_start=func_extreme_value (v,0,v->size(),1,sign);
7  int i_short=i_start+(int)(t_short/dt);
8  int i_long =i_start+(int)(t_long/dt);      if (i_long>v->size())
      i_long=v->size();
9  double q_short=0;
10 if ((i_start<0) || (i_start>v->size()) || (i_short<0) || (
      i_short>v->size()) || (i_long<0))
11 return no_success;
12 else
13 { for (i=i_start; i<i_short; i++) q_short+=v->at(i); //
      ShortGate Integration
14
15     double q_long=q_short;
16
17     for (i=i_short; i<i_long; i++) q_long+=v->at(i); //
      LongGate Integration
18     return q_long/q_short;
19 }
20 }

```

Listing A.4: Long-Gate / Short-Gate

```

1 double module_GDM (const vector<float> *v, vector<float> *s, int
      sign, double dt, double no_success)
2 { //digital representation of the gatti and de martini algorithm
3   //input: weighted signal v, sign of v, sampling intervall dt
4   //output: see charge-comparision
5   int i_start, i_stop, i_end,i_max; double v_max=0;
6   //module for determining the point at which waveform reaches it
      maximum/minimum
7   i_max=func_extreme_value (v,0,v->size(),1,sign);
8   v_max=v->at(i_max);
9   int i=i_max;
10  while ((v->at(i)<0.99*v_max) && (i<v->size()-1) && (i>=0)) i++;
11

```

```

12 i_start=i; i_stop=i_start+600; if (i_stop>v->size()) i_stop=v->
    size();
13
14 if ((i_start<0) || (i_start>v->size())) return 0.0;
15
16 s->clear();
17 s->push_back(0);
18
19 for (i=i_start; i<i_stop; i++)
20 { s->push_back(s->at(i-i_start)+v->at(i)/v_max);
21 }
22 return s->at(s->size()-1);
23 }

```

Listing A.5: GDM-weighting

```

1 double module_GDM_LSG (const vector<float> *v, const vector<float
    > *weighting, int sign, double t_short, double t_long, double
    dt, double no_success)
2 { //digital representation of the gatti and de martini algorithm
3 //input: signal v, weighting function weighting, sign of v,
    integration limits t_short and t_long, sampling intervall
    dt
4 //output: see long-gate / short-gate
5 int i;
6 //module for determining the point at which waveform reaches it
    maximum/minimum
7 int i_start=func_extreme_value (v,0,v->size(),1,sign);
8 int i_short=i_start+(int)(t_short/dt); if ((i_short+i_start)
    >v->size()) i_short=i_start;
9 int i_long =i_start+(int)(t_long/dt); if ((i_long+i_start)>
    v->size()) i_long=v->size()-i_start-1;
10 double q_short=0;
11 if ((i_start<0) || (i_start>v->size()) || (i_short<0) || (
    i_short>v->size()) || (i_long<0) || (i_long>v->size()))
12 return no_success;
13 else

```

```

14 { for (i=i_start; i<i_short; i++)
15     { if (weighting->at(i)==weighting->at(i)) q_short+=
16         weighting->at(i)*v->at(i); //ShortGate Integration
17         else q_short+=v->at(i);
18     };
19 }
20 double q_long=q_short;
21
22 for (i=i_short; i<i_long; i++)
23 { if (weighting->at(i)==weighting->at(i)) q_long+=weighting
24     ->at(i)*v->at(i); //LongGate Integration
25     else q_long+=v->at(i);
26 }
27 return q_long/q_short;
28 }
29 }

```

Listing A.6: GDM-weighting Long-Gate / Short-Gate

```

1 void module_signal_for_wavlet(const vector<float> *signal_in ,
2     vector<float> *signal_out , int dim_t, int sign)
3 { //signal preparing for wavelet-transformation
4     //input: signal_in , dimension of array, sign of signal_in
5     //output: normalized (pulse height) signal, refilled with zeros
6     signal_out->clear();
7     int i_max = func_extreme_value(signal_in , 0, signal_in->size(),
8         1, sign);
9     double norm = signal_in->at(i_max);
10    if (norm == 0.0)
11        norm = 1.0;
12    int i_num_of_samples = pow(2, dim_t);
13    for (int i = 0; i < i_num_of_samples; i++) {
14        if (i < signal_in->size())
15            signal_out->push_back(signal_in->at(i) / norm);
16        if ((i >= signal_in->size()) && (i < i_num_of_samples))
17            signal_out->push_back(0.0);
18    }
19 }

```

```

17 }
18
19 /* haar transformation
   ***** */
20
21 Float_t haar_transformation(const vector<float> *signal, int a, int
   b, const int n)
22 { //haar transformation
23 //input: signal_in, stretch a, shift b, num_of_samples in
   signal_in
24 //output: wavelet-transformed signal
25 Float_t w = 0;
26 Float_t z = 0;
27 int intervall = n/(2*a); // length of summing intervall
28 int start = 2*b*intervall; // starting point of sum
29 int middle = start+intervall; // middle point where wavelet
   // changes sign
30
31 int end = start+2*intervall; //summing endpoint
32 int m = 0; // loop variable
33 Float_t scale = sqrt(a); // opt. normalization scale
34 // factor
35
36 for(m=start; m<middle ;m++)
37 { // loop for numerical integration
38 w += signal->at(m);
39 }
40
41 for(m=middle ; m<end; m++)
42 { // loop for numerical integration
43 z += signal->at(m);
44 }
45
46 return scale*(w-z);
47 }

```

Listing A.7: Wavelet-Transformation

Literaturverzeichnis

- [Altstadt et al., 2007] Altstadt, E., Beckert, C., Freiesleben, H., Galindo, V., Grosse, E., Junghans, A. R., Klug, J., Naumann, B., Schneider, S., Schlenk, R., Wagner, A., und Weiss, F.-P. (2007). A photo-neutron source for time-of-flight measurements at the radiation source ELBE. *Ann. Nucl. Energy*, 34(1-2):36 – 50.
- [Ansorg, 2011] Ansorg, J. (2011). WAVELETS - Transformationskodierung, JPEG 2000 - ISO / IEC-Standard 15444-1. <http://www.fh-jena.de/contrib/fb/et/personal/ansorg/ftp/wavelet/wavelet.htm>.
- [Berger et al., 2010] Berger, M., Hubbell, J., Seltzer, S., Chang, J., Coursey, J., Sukumar, R., Zucker, D., und Olsen, K. (2010). XCOM: Photon Cross Sections Database. <http://www.nist.gov/pml/data/xcom/index.cfm>.
- [Bethe, 1930] Bethe, H. (1930). Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie. *Ann. Phys.*, 397:325–400.
- [Beyer et al., 2007] Beyer, R., Grosse, E., Heidel, K., Hutsch, J., Junghans, A. R., Klug, J., Légrády, D., Nolte, R., Röttger, S., Sobiella, M., und Wagner, A. (2007). Proton-recoil detectors for time-of-flight measurements of neutrons with kinetic energies from some tens of keV to a few MeV. *Nucl. Instrum. Methods A*, 575(3):449 – 455.
- [Birks, 1951] Birks, J. B. (1951). The Specific Fluorescence of Anthracene and Other Organic Materials. *Phys. Rev.*, 84(2):364–365.
- [Birks, 1964] Birks, J. B. (1964). *Theory and Practice of Scintillation Counting*. Pergamon Press, Oxford, 1.ed. Auflage.
- [Böcker, 1997] Böcker, J. (1997). *Spektroskopie*, Band 1. Vogel, Würzburg.
- [Bollinger und Thomas, 1961] Bollinger, L. M. und Thomas, G. E. (1961). Measurement of the Time Dependence of Scintillation Intensity by a Delayed-Coincidence Method. *Rev. Sci. Instrum.*, 32(9):1044–1050.

- [Buck und Swank, 1958] Buck, W. und Swank, R. (1958). Use of Isopropylbiphenyl as Solvent in Liquid Scintillators. *Rev. Sci. Instrum.*, 29:252.
- [Condon, 1926] Condon, E. U. (1926). A theory of intensity distribution in band systems. *Phys. Rev.*, 28:1182–1201.
- [Condon, 1928] Condon, E. U. (1928). Nuclear motions associated with electron transitions in diatomic molecules. *Phys. Rev.*, 32:858–872.
- [Die FAST Kollaboration, 2010] Die FAST Kollaboration (2010). Das FAST (Fibre Active Scintillator Target) Experiment. <http://fast.web.cern.ch/fast/>.
- [Dietze und Klein, 1982] Dietze, G. und Klein, H. (1982). Gamma-calibration of NE 213 scintillation counters. *Nucl. Instrum. Methods*, 193(3):549 – 556.
- [dissident-media.org, 2010] dissident-media.org (2010). Titelbild der Arbeit von Sir William Crookes zur Entwicklung des Spinthariscopes. http://www.dissident-media.org/infonucleaire/Spin_LR_n4_avril1904.jpg.
- [Franck, 1926] Franck, J. (1926). Elementary processes of photochemical reactions. *Trans. Faraday Soc.*, 21:536–542.
- [Gatti und de Martini, 1962] Gatti, E. und de Martini, F. (1962). Optimum linear filter for pulse-shape recognition in the presence of thermal noise. In *Nucl. Electron.*, Band 2, Seite 265. IAEA.
- [Haar, 1910] Haar, A. (1910). Zur Theorie der orthogonalen Funktionensysteme. *Ann. Math.*, 69:331–371.
- [Hamamatsu Homepage, 2011] Hamamatsu Homepage (2011). http://sales.hamamatsu.com/assets/pdf/catsandguides/PMT_TPM00005E03.pdf.
- [Hannaske, 2009] Hannaske, R. (2009). Fast Digitizing and Digital Signal Processing of Detector Signals. Diplomarbeit, TU Dresden.
- [Hotzel et al., 1996] Hotzel, A., Thierolf, P., Ender, C., Schwalm, D., Mutterer, M., Singer, P., Klemens, M., Theobald, J., Hesse, M., Gönnerwein, F., und Ploeg, H. (1996). High-energy gamma-rays accompanying the spontaneous fission of ^{252}Cf . *Z. Phy. A*, 356:299–308. 10.1007/BF02769233.
- [Hua-Lin und Jin-Shan, 2009] Hua-Lin, X. und Jin-Shan, D. (2009). Oxygen quenching in LAB based liquid scintillator and nitrogen bubbling model. arXiv:0904.1329v4.

- [Immel, 2010] Immel, S. (2010). <http://csi.chemie.tu-darmstadt.de/ak/immел/index.html>.
- [J.H. Heltsley et al., 1988] J.H. Heltsley, L. B., Galonsky, A., Heilbronn, L., Remington, B., Langer, S., Molen, A. V., Yurkon, J., und Kasagi, J. (1988). Particle identification via pulse-shape discrimination with a charge-integrating ADC. *Nucl. Instrum. Methods A*, 263(2-3):441 – 445.
- [Junghans, 2010] Junghans, A. R. (2010). Scriptum zur Vorlesung Physik mit Neutronen.
- [Kaschuck und Esposito, 2005] Kaschuck, Y. und Esposito, B. (2005). Neutron / γ -ray digital pulse shape discrimination with organic scintillators. *Nucl. Instrum. Methods A*, 551(2-3):420 – 428.
- [Klein und Nishina, 1928] Klein, O. und Nishina, T. (1928). Über die Streuung von Strahlung durch freie Elektronen nach der neuen relativistischen Quantendynamik von Dirac. *Z. Phy. A*, 52(11-12):853–868.
- [Krammer, 2005] Krammer, M. (2005). Detektoren in der Hochenergiephysik. <http://www-linux.gsi.de/~wolle/Schuelerlabor/TALKS/DETEKTOREN/V0-5-Szintillatoren.pdf>.
- [Kraus, 2006] Kraus, C. (2006). SNO with liquid scintillator: SNO+. *Prog. Part. Nucl. Phys.*, 57(1):150 – 152.
- [Kuchnir und Lynch, 1968] Kuchnir, F. T. und Lynch, F. J. (1968). Time Dependence of Scintillations and the Effect on Pulse-Shape Discrimination. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 15(3):107 –113.
- [Lan, 2007] Lan, C. (2007). *SNO+ and Geoneutrino Physics*. PhD thesis, Queen’s University.
- [Leo, 1994] Leo, W. R. (1994). *Techniques for Nuclear and Particle Physics*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg München, 2. Auflage.
- [LUNDS Universitet, 1999] LUNDS Universitet (1999). WWW Table of Radioactive Isotopes. <http://ie.lbl.gov/toi/>.
- [Mortimer und Müller, 2003] Mortimer, C. E. und Müller, U. (2003). *Chemie - Das Basiswissen der Chemie*. Thieme, Marburg, 8. Auflage.

- [Nakamura et al. (Particle Data Group), 2010] Nakamura et al. (Particle Data Group) (2010). The Review of Particle Physics. *J. Phys. G* 37, 075021 (2010), G 37.
- [NIST, 2011] NIST (2011). estar - stopping-power and range tables for electrons. <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/ESTAR.html>.
- [O’Keeffe et al., 2011] O’Keeffe, H. M., O’Sullivan, E., und Chen, M. C. (2011). Scintillation decay time and pulse shape discrimination in oxygenated and deoxygenated solutions of linear alkylbenzene for the SNO+ experiment. *ArXiv e-prints:1102.0797*.
- [Pai et al., 1989] Pai, S., Piel Jr., W. F., Fossan, D., und Maier, M. (1989). A versatile electronic pulse-shape discriminator. *Nucl. Instrum. Methods A*, 278(3):749 – 754.
- [PerkinElmer, 2008] PerkinElmer (2008). *The PerkinElmer Lambda 35 Manual*.
- [Platt, 1949] Platt, J. (1949). The perimeter free-electron model. *J. Chem. Phys.*, 17:484.
- [Saint-Gobain Homepage, 2011] Saint-Gobain Homepage (2011). http://www.detectors.saint-gobain.com/uploadedFiles/SGdetectors/Documents/Product_Data_Sheets/BaF2-Data-Sheet.pdf.
- [SNOLAB Homepage, 2011] SNOLAB Homepage (2011). <http://www.snolab.ca>.
- [Söderström et al., 2008] Söderström, P.-A., Nyberg, J., und Wolters, R. (2008). Digital pulse-shape discrimination of fast neutrons and γ -rays. *Nucl. Instrum. Methods A*, 594(1):79 – 89.
- [Sysoeva et al., 2002] Sysoeva, E., Tarasov, V., und Zelenskaya, O. (2002). Comparison of the methods for determination of scintillation light yield. *Nucl. Instrum. Methods A*, 486(1-2):67 – 73.
- [The ROOT Team, 2011] The ROOT Team (1995-2011). <http://root.cern.ch/drupal/content/about>.
- [Tseung, 2009] Tseung, H. S. W. C. (2009). Energy scale of alphas.
- [wikienergia.pt, 2011] wikienergia.pt (2011). Sir william crookes. http://www.wikienergia.pt/~edp/index.php?title=William_Crookes.
- [Winyard et al., 1971] Winyard, R., Lutkin, J., und McBeth, G. (1971). Pulse shape discrimination in inorganic and organic scintillators. *Nucl. Instrum. Methods*, 95(1):141 – 153.

- [Yousefi und Lucchese, 2009] Yousefi, S. und Lucchese, L. (2009). A wavelet-based pulse shape discrimination method for simultaneous beta and gamma spectroscopy. *Nucl. Instrum. Methods A*, 599(1):66 – 73.
- [Yousefi et al., 2009] Yousefi, S., Lucchese, L., und Aspinall, M. (2009). Digital discrimination of neutrons and gamma-rays in liquid scintillators using wavelets. *Nucl. Instrum. Methods A*, 598(2):551 – 555.

Erklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe. Die aus fremden Quellen direkt oder indirekt übernommenen Gedanken sind als solche kenntlich gemacht. Die Arbeit wurde bisher weder im Inland noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Toni Kögler

Dresden, 28. Februar 2011