

Міністерство освіти і науки України

Харківський національний університет радіоелектроніки

ОНУФРІЄВ ЮРІЙ ДМИТРОВИЧ

УДК 539.1.074.3+620.179.155

**ТЕХНОЛОГІЯ ВИРОБНИЦТВА РАДІАЦІЙНОСТІЙКИХ
СЦИНТИЛЯЦІЙНИХ ДЕТЕКТОРІВ ДЛЯ
ФІЗИЧНИХ ЕКСПЕРИМЕНТІВ**

**05.27.06 – технологія, обладнання та виробництво
електронної техніки**

АВТОРЕФЕРАТ

дисертації на здобуття наукового ступеня
кандидата технічних наук

Харків 2021

Дисертацією є рукопис.

Робота виконана в Інституті сцинтиляційних матеріалів НАН України.

Науковий
керівник:

кандидат технічних наук,
Бояринцев Андрій Юрійович,
Інститут сцинтиляційних матеріалів НАН України,
заступник директора.

Офіційні опоненти:

доктор технічних наук, професор,
Борщов В'ячеслав Миколайович,
перший заступник генерального директора –
головний конструктор ТОВ «НВП «ЛТУ»;

кандидат технічних наук, доцент,
Когдась Максим Григорович,
Кременчуцький національний університет
ім. Михайла Остроградського МОН України,
доцент кафедри автоматизації та інформаційних
систем.

Захист відбудеться « 11 » березня 2021 р. о 10-00 годині на засіданні спеціалізованої вченої ради Д 64.052.04 Харківського національного університету радіоелектроніки за адресою: 61166, м. Харків, просп. Науки, 14.

З дисертацією можна ознайомитися в бібліотеці Харківського національного університету радіоелектроніки, за адресою: 61166, м. Харків, просп. Науки, 14

Автореферат розіслано « 09 » лютого 2021 р.

Вчений секретар
спеціалізованої вченої ради

Є. М. Одаренко

ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

Актуальність теми. Вже перші роки експлуатації експериментальних установок на Великому адронному колайдері показали нагальну необхідність заміни окремих їхніх частин внаслідок радіаційного пошкодження елементів і матеріалів детекторів. Разом з тим, починаючи з 2020 року, для виконання програми експериментів на Великому адронному колайдері буде потрібно збільшувати світність прискорювача – по 300 фбн^{-1} (зворотний фемтобарн – кількість частинок, які пройшли за час роботи машини через одиницю площі поперечного перерізу пучка в зоні зіткнення зустрічних пучків) у рік, з тим, щоб до 2030 року світність досягла 3000 фбн^{-1} . З такою світністю заряджені адрони надаватимуть безумовне пошкодження матеріалів.

Стосовно детекторів для експериментів з фізики високих енергій, можна виділити специфічні вимоги, такі як перекриття великих площин, швидкодія, висока стійкість до радіації. Сцинтиляційні лічильники на основі пластмасового сцинтилятора є одними з основних детекторів в експериментах фізики високих енергій. Добре розроблена сучасна технологія виробництва сцинтиляторів дозволяє виготовляти у великій кількості протяжні сцинтилятори (стрипи, в яких один розмір у рази більший, ніж розміри поперечного перерізу) і пластини різних розмірів і форм (тайли, в яких один розмір у рази менший, ніж розміри поперечного перерізу), які найбільш затребувані в сучасних експериментах. З введенням в дію нових прискорювачів, з їхнім зростанням енергій і світністю зростає потреба в детекторах з поліпшеними характеристиками в енергетичному, просторовому і часовому розділеннях, що мають велику надійність, компактність і можливість високої сегментації, відносну дешевизну і простоту виготовлення, довготривалу стабільність характеристик. Сцинтиляційні лічильники на основі пластмасових сцинтиляторів багато в чому відповідають цим вимогам. Але сцинтиляційна пластмаса, яка використовується в адронних калориметрах компактного мюонного соленоїду (ЦЕРН, Швейцарія), особливо торцевому, що працюють в умовах надвеликих потоків іонізуючих випромінювань, має низьку радіаційну стійкість. Більш того, зі зростанням активації експериментальних установок залишається все менше можливостей для періодичної заміни та обслуговування елементів детекторів, що неминуче призводить до вимоги більш обґрунтованої оцінки ризиків втрати працездатності детекторів внаслідок їхнього радіаційного пошкодження.

Проблему радіаційної стійкості вже вирішено застосуванням кристалічних неорганічних сцинтиляторів, наприклад, оксидних сцинтиляторів. Недоліком порівняно з пластмасовими сцинтиляторами є відсутність технологій вирощування великогабаритних монокристалів, а отже, і перекриття великих площин. Тому домінуючим фактором у процесі вибору сцинтиляційного матеріалу є ціна таких детекторів.

Альтернативою можуть виступати композиційні сцинтилятори на основі гранул радіаційностійких монокристалів, введених у полімерну матрицю, яким останнім часом приділяється багато уваги. Такі сцинтилятори успадковують властивості монокристалів, такі як радіаційна стійкість, часи загасання,

люмінесценція. Але, як і монокристали, такі композиційні сцинтилятори не відрізняються дешевим виробництвом, тому що вимагають вирощування монокристалів, що накладає обмеження на їхнє використання.

Таким чином, розробка технологічного забезпечення виробництва радіаційно-стійких сцинтиляційних елементів, як компонентів систем детектування великих площин для фізичних експериментів, є актуальним завданням.

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами. Робота виконувалась відповідно до тематичних планів науково-дослідних робіт Інституту сцинтиляційних матеріалів НАН України в рамках держбюджетних тем «Інженерія детекторів на основі композиційних сцинтиляторів для фізики високих енергій» (2016 р., номер держреєстрації № 0116U002617), «Розробка методів отримання композитних сцинтиляторів» (2017–2021 рр., номер держреєстрації № 0117U000988), «Радіаційно-стійкі композиційні сцинтилятори та процеси, які визначають їх радіаційну стійкість» (2017–2019 рр., номер держреєстрації № 0117U001286), «Розроблення нових радіаційно-стійких матеріалів для експериментів з фізики високих енергій та потреб атомної галузі» (2019–2021 номер держреєстрації № 0119U101858), проекту «Розробка композиційних сцинтиляційних елементів для фізики високих енергій» (договір № ЦО-1-11, 2016–2017 рр., номер держреєстрації № 0116U006760) в рамках цільової програми співробітництва НАН України з ЦЕРН «Ядерна матерія в екстремальних умовах» на 2016–2017 рр., проекту «Розроблення сцинтиляційних модулів для фізики високих енергій» (договір № ЦО-1-19, номер держреєстрації № 0119U102069) в рамках цільової програми наукових досліджень НАН України «Фундаментальні дослідження з фізики високих енергій та ядерної фізики (міжнародна співпраця)» на 2018–2020 рр.

Метою дисертаційної роботи є розробка сцинтиляційних детекторів великої площі для фізичних експериментів за рахунок конструкторсько-технологічного забезпечення виробництва сцинтиляційних елементів, створених з матеріалів, отриманих без стадії вирощування монокристалів та матеріалів, що витримують значні радіаційні навантаження.

Для досягнення мети були поставлені такі **завдання**:

– провести дослідження рівня радіаційної стійкості гранул ортосилікату ітрію, активованого церієм $Y_2SiO_5:Ce$ (далі YSO:Ce) та алюмо-ітрий галієвого гранату, активованого церієм $Y_3Al_{5-x}Ga_xO_{12}:Ce$ (далі YAGG:Ce), отриманих методом твердофазного синтезу;

– провести дослідження залежності величини відносного світлового виходу сцинтиляційного композиційного шару на основі гранул YSO:Ce або YAGG:Ce від розміру, концентрації цих гранул у композиційному шарі і його товщини, та наявності світлопровідного шару над композиційним шаром;

– розробити технологічний процес створення радіаційно-стійкого сцинтиляційного елементу з віддаленим фотоприймачем, у якому світло з сцинтиляційного елементу збирається за допомогою радіаційно-стійкого спектрозміщуючого волокна;

- розробити технологічний процес створення радіаційно-стійкого сцинтиляційного елементу з безпосереднім з'єднанням з фотоприймачем;
- провести експериментальні дослідження сцинтиляційних характеристик та радіаційної стійкості прототипів сцинтиляційних детекторів.

Об'єкт дослідження – технологічні процеси виробництва радіаційно-стійких сцинтиляційних детекторів для фізичних експериментів.

Предмет дослідження – параметри технологічних процесів виготовлення радіаційно-стійких сцинтиляційних елементів детекторів для фізичних експериментів.

Методи дослідження. Дослідження і прогнозування властивостей композиційних сцинтиляційних елементів проводилося із використанням математичного моделювання методом Монте-Карло. Для дослідження оптичних характеристик використовували методи спектрофлуориметрії та рентгенлюмінесценції, для сцинтиляційних – метод спектрів амплітуд імпульсів сцинтиляцій. Для оцінки механічних властивостей використовували кліматичні випробування.

Наукова новизна отриманих результатів. Під час виконання дисертаційної роботи отримано такі нові результати:

1. Вперше визначено рівень відносного світлового виходу сцинтиляційних гранул YSO:Ce та YAGG:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу, після опромінення електронами з енергією 8,3MeV, який становить 60% для YSO:Ce та 55% для YAGG:Ce від світлового виходу відповідних гранул до опромінення при накопичених дозах у 100Мрад, що забезпечує виготовлення радіаційно-стійких детекторів для використання у сучасних фізичних експериментах.

2. Набув подальшого розвитку метод виробництва композиційного шару з оптимальними розміром та концентрацією гранул YSO:Ce або YAGG:Ce в композиційному шарі, що на відміну від існуючих забезпечить відносний світловий вихід композиційного сцинтилятора, який складає 70% від відповідних монокристалів.

3. Удосконалено метод створення радіаційно-стійкого композиційного світловідбиваючого покриття, яке складається з порошку TiO₂, концентрація якого становить 10–20ваг%, введеного в радіаційно-стійку оптично прозору полісилоксанову основу, що забезпечує коефіцієнти відбивання 92–95% в діапазоні 400–800нм при радіаційних навантаженнях до 100Мрад.

4. Вперше створено сцинтиляційні елементи, що містять гранули YSO:Ce або YAGG:Ce, з різними конструктивними особливостями, що забезпечують однорідність відносного світлового виходу не менш 85% та залишаються радіаційно-стійкими до доз опромінення у 100Мрад.

5. Набув подальшого розвитку технологічний процес виробництва радіаційно-стійких сцинтиляційних детекторів великої площі на основі пластмасового або композиційного сцинтиляторів для різних радіаційних навантажень, що забезпечується шляхом удосконалення процесу формування світловідбиваючого покриття.

Практична цінність. Практичне значення мають такі результати:

- доведено можливість використання гранул YSO:Ce та YAGG:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу, для створення економічно ефективних радіаційно-стійких композиційних сцинтиляторів;

- розроблено та впроваджено технологічний процес виготовлення радіаційно-стійкого дифузного відбивача з коефіцієнтом відбивання 92–95% в діапазоні 400–800нм;

- розроблено та впроваджено технологічний процес створення сцинтиляційних елементів на основі гранул YSO:Ce з світлопровідним шаром з кварцового скла або лейкосапфіру для роботи з віддаленим фотоприймачем, коли світло з сцинтиляційного елемента збирається спектрзміщуючим волокном з монокристала YAGG:Ce;

- розроблено та впроваджено технологічний процес створення радіаційно-стійких сцинтиляційних елементів на основі гранул YAGG:Ce з світлопровідним шаром на основі полісилоксану та безпосереднім з'єднанням з фотоприймачем;

- розроблено та впроваджено технологічний процес створення багатоелементного сцинтиляційного детектора на основі пластмасових сцинтиляційних елементів з безпосереднім з'єднанням з фотоприймачем;

- розроблено та впроваджено технологічний процес створення багатоелементного сцинтиляційного детектора на основі радіаційно-стійких сцинтиляційних елементів на основі гранул YAGG:Ce з світлопровідним шаром на основі полісилоксану та з безпосереднім з'єднанням з фотоприймачем;

- отримані практичні результати дозволили здійснити постачання зразків багатоелементних сцинтиляційних детекторів на основі сцинтиляційних елементів з гранул неорганічних сцинтиляторів та пластмасових сцинтиляторів підприємствам у галузі фізики високих енергій (договір № О/55-16).

Результати, отримані в дисертаційній роботі, впроваджені в Інституті сцинтиляційних матеріалів НАН України (м. Харків, акт від 20.03.2020 р), а також у навчальний процес на кафедрі комп'ютерно-інтегрованих технологій, автоматизації та мехатроніки ХНУРЕ (акт від 13.04.2020 р).

Особистий внесок здобувача. Основні наукові результати, наведені у дисертаційній роботі, отримані здобувачем самостійно. У публікаціях, написаних у співавторстві, внесок здобувача полягає: [6, 14] – досліджено рівень радіаційної стійкості гранул YSO:Ce, отриманого методом твердофазного синтезу та алмазу для створення сцинтиляційних елементів; [5] – досліджено радіаційну стійкість композиційних сцинтиляторів, на основі гранул YSO:Ce та YAGG:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу; [2–4, 11, 17] здобувачем встановлено вплив складових композиційного сцинтилятора на оптимальне світлозбирання, а саме вплив розміру гранул, концентрації цих гранул у композиційному сцинтиляторі та його товщини; [1, 7–10, 12–13, 15] – розроблено технологічні процеси створення сцинтиляційних елементів та проведено оцінку їхньої радіаційної стійкості; [16] – розроблено радіаційно-стійкий світловідбивач, досліджено його радіаційну стійкість.

Апробація результатів дисертації. Основні результати дисертаційної роботи доповідалися й обговорювалися на таких науково-технічних конференціях і симпозиумах: 4th International Scientific and Technical Conference for young Scientist LUMCOS (2015, м.Харків, Україна), The 17th International Conference on Calorimetry in Particle Physics (2016, м. Тегу, Південна Корея), The Fifth and Sixth International Conference Engineering and Radiation Technologies ISMART (2016, 2018, м. Мінськ, Беларусь), OMEE (2017, м. Львів, Україна), IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (2016, м. Страсбург, Франція; 2018, м. Сідней, Австралія).

Публікації. За темою дисертації з викладенням основних її результатів опубліковано 17 наукових праць, у тому числі 3 патенти України, 6 статей у наукових фахових виданнях України (серед них 3 реферовано в наукометричній базі Scopus), 8 тез доповідей у збірниках праць міжнародних науково-технічних конференцій.

Структура та обсяг дисертації. Дисертаційна робота є рукописом і складається із вступу, 5 розділів, висновків, переліку використаних джерел із 109 найменувань, 68 рисунків, 28 таблиць. Загальний обсяг роботи складає 143 сторінки, з них 110 сторінок основного тексту.

ЗМІСТ РОБОТИ

У **вступі** визначено актуальність теми дисертаційної роботи, сформульовано мету та основні завдання дослідження, наведено наукову новизну отриманих результатів та їхнє практичне значення, а також вказані дані про апробацію роботи та публікації автора.

Перший розділ дисертації присвячено огляду та аналізу вимог до сцинтиляційних детекторів для нової генерації калориметрів. На основі проведеного аналізу визначено, що сцинтиляційні детектори на основі органічних пластичних сцинтиляторів належать до основних детекторів, що використовуються в більшості експериментів фізики високих енергій. Наведено, що неорганічні сцинтиляційні матеріали, які відповідають вимогам сучасних експериментів фізики високих енергій, мають обмеження в використанні завдяки відсутності технологій вирощування великогабаритних монокристалів та використання коштовних тиглів. Проведений аналіз дозволив визначити концепцію розробки сцинтиляційних детекторів великої площі на основі сцинтиляційних матеріалів без стадії вирощування монокристалів, що відповідають вимогам сучасних експериментів фізики високих енергій та сформулювати основні напрямки дослідження.

Другий розділ присвячено дослідженню сцинтиляційних характеристик гранул YSO:Ce та YAGG:Ce, отриманих без стадії вирощування відповідних монокристалів після опромінення електронами з енергією 8,3MeV до накопичених доз у 100Mrad. Для отримання сцинтиляційних гранул обрано метод твердофазного синтезу як найбільш технологічний. Метод твердофазного синтезу передувє стадії вирощування монокристалів і включає такі етапи (рис.1):

- прокалювання початкових оксидів для видалення H_2O та CO_2 ;
- змішування оксидів у стехіо-метричному співвідношенні;

- помел та пресування;
- високотемпературний відпал у відновлювальній середовищі ($T=1300^{\circ}\text{C}$ для YSO:Ce; $T=1650^{\circ}\text{C}$ для YAGG:Ce) для утворення фази сцинтиляційного матеріалу;

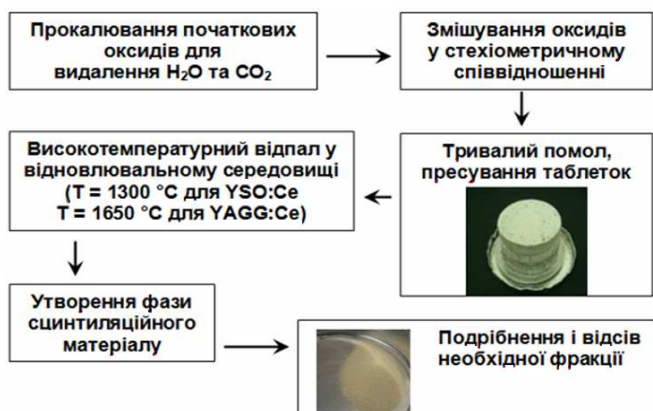


Рисунок 1 – Етапи отримання сцинтиляційних гранул YSO:Ce та YAGG:Ce методом твердофазного синтезу

- отримання необхідної фракції за допомогою каліброваних сит.

Метод не потребує використання вартісних іридієвих та вольфрамових тиглів, витрати електроенергії, яка необхідна на вирощування монокристалу. Також не потребує попереднього розчину компонентів та випарювання, що використовують, наприклад, під час синтезу золь-гель методом.

В таблиці 1 наведено вплив технології отримання сцинтиляційного матеріалу на коефіцієнт використання сировини.

Коефіцієнт розраховується як співвідношення маси початкового матеріалу до маси отриманого виробу відповідною технологією.

Таблиця 1 – Залежність коефіцієнта використання сировини від технології отримання сцинтиляційного матеріалу

Коефіцієнт сировини	Монокристалічний сцинтилятор	Композиційний сцинтилятор з монокристалічних гранул	Композиційний сцинтилятор з гранул, отриманих без стадії вирощування монокристалу
	3:1	2,5:1	~1:1

Для зразків сцинтиляційних гранул, отриманих методом твердофазного синтезу (рис. 2) було отримано спектри фотолюмінесценції та рентгенлюмінесценції. Смуга люмінесценції гранул YSO:Ce має максимум на довжині хвилі у 415нм (рис.3, а), а YAGG:Ce – 510нм (рис. 3, б), що властиво відповідним монокристалом. За отриманими спектрами (рис. 3а, б) не виявлено додаткових центрів світіння.

Під час аналізу якості отриманих сцинтиляційних гранул YSO:Ce та YAGG:Ce було перевірено час загасання люмінесценції. Для гранул YSO:Ce час загасання склав 50нс, для YAGG:Ce – 22нс. Аналіз результатів за спектрами люмінесценції та часу загасання засвідчує, що гранули YSO:Ce та YAGG:Ce, отримані методом твердофазного синтезу, подібні відповідним монокристалом та можуть використовуватися для вирішення встановлених завдань.

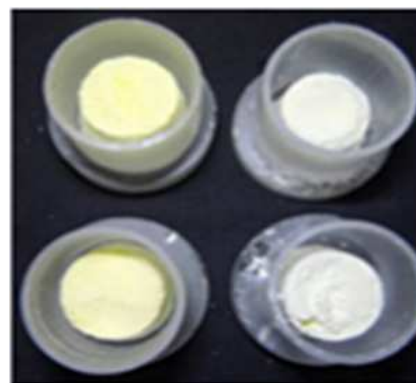


Рисунок 2 – Зразки гранул YAGG:Ce (ліворуч) та YSO:Ce (праворуч)

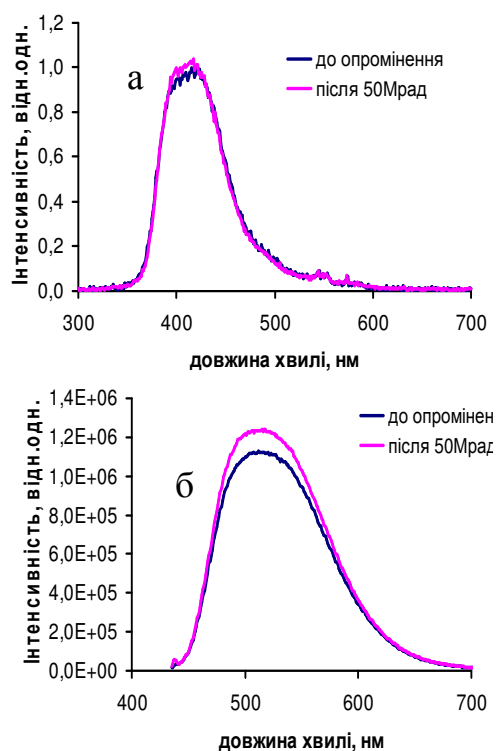


Рисунок 3 – Спектри рентгенлюмінесценції гранул YSO:Ce (а) та YAGG:Ce (б), отриманих методом твердофазного синтезу

Основним впливом на зміну відносного світлового виходу сцинтиляційних гранул YSO:Ce та YAGG:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу, будуть радіаційні навантаження. Опромінення гранул YAGG:Ce та YSO:Ce електронами з початковою енергією 8,3MeV, середній струм пучка 800÷820 мкА з темпом набору дози 1500±5 Мрад/год дозволило визначити їх рівень радіаційної стійкості. Відомо, що радіаційна стійкість монокристалів YSO:Ce та YAGG:Ce складає більше ніж 100Мрад. Проведено дослідження радіаційної стійкості гранул YSO:Ce та YAGG:Ce, отриманих дробленням монокристала та методом твердофазного синтезу. Залежність зміни відносного світлового виходу від накопиченої дози наведено на рис. 4.

Так, при накопиченій дозі в 50Мрад сцинтиляційні гранули, отримані дробленням монокристалу, мають зниження величини відносного світлового виходу не більш ніж 5% (YSO:Ce) та 10% (YAGG:Ce), при 100Мрад – не більше, ніж 15% та 20% відповідно. Гранули YSO:Ce та YAGG:Ce,

отримані методом твердофазного синтезу, мають більш низький рівень радіаційної стійкості. Так, під час опромінення до накопиченої дози у 50Мрад втрата у відносному світловому виході складає біля 20% для YSO:Ce та 30% для YAGG:Ce, а при 100Мрад – зменшується на 40% та 45% відповідно.

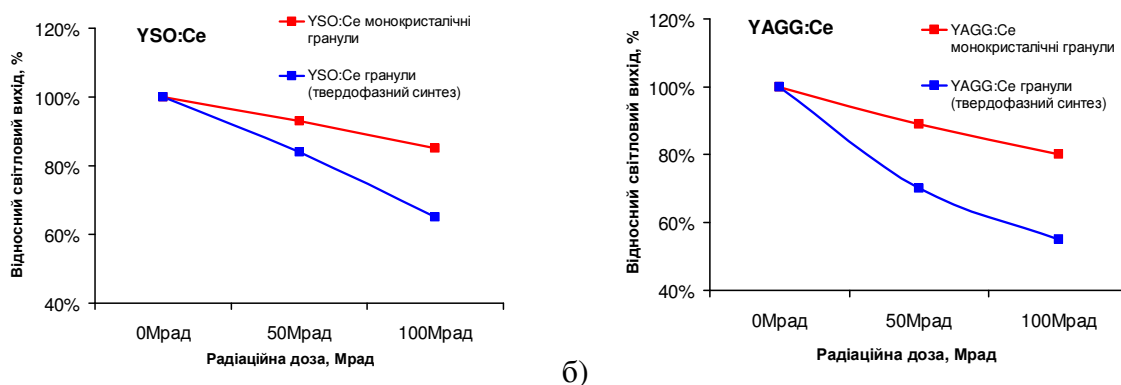


Рисунок 4 – Відносний світловий вихід гранул YSO:Ce (а) та YAGG:Ce (б), отриманих методом твердофазного синтезу, залежно від накопиченої дози

Результати дослідження вказують, що сцинтиляційні гранули, отримані методом твердофазного синтезу, за спектрами люмінесценції, кінетичними параметрами та рівнем радіаційної стійкості можуть використовуватися для створення радіаційно-стійких композиційних сцинтиляторів.

Третій розділ присвячено визначенню фізико-технічних параметрів композиційного шару на основі гранул YSO:Ce та YAGG:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу, з оптимальними сцинтиляційними характеристиками.

Композиційний сцинтилятор являє введені в оптично прозору основу сцинтиляційні гранули. Як оптично прозору основу обирають кремнійорганічні полісилоксанові компаунди завдяки радіаційної стійкості до 100Мрад. Основним недоліком цих компаундів є їхній коефіцієнт заломлення 1.41–1.46, який дуже відрізняється від показників заломлення YSO:Ce (1.8) та YAGG:Ce (1.8), що суттєво впливає на світлозбирання в гетерогенному середовищі. Для усунення або мінімізації проблеми світлозбирання розраховано модель композиційного сцинтилятора. Встановлено зв'язок коефіцієнта світлозбирання з розміром сцинтиляційних гранул, концентрації гранул в оптично прозорій основі, та товщиною сцинтиляційного шару.

Для моделювання проходження світла в гетерогенній системі композиційного сцинтилятора використовувався метод Монте Карло з використанням геометричних моделей сцинтилятора (рис.5).

Для оцінки вірогідності «віддзеркалення-заломлення» на межах сцинтиляційна гранула – оптично прозора основа використовувався закон Френеля у вигляді опису частини віддзеркаленої енергії $F(\lambda, \zeta)$:

$$F(\lambda, \zeta) = \frac{1}{2} \left(\sqrt{\frac{\cos \zeta_j - \eta \cos \zeta_\tau}{\cos \zeta_j + \eta \cos \zeta_\tau}} + \sqrt{\frac{\eta \cos \zeta_j - \cos \zeta_\tau}{\eta \cos \zeta_j + \cos \zeta_\tau}} \right), \quad (1)$$

де ζ_j і ζ_τ – кути падіння і заломлення променя, відповідно,

η – відносний показник заломлення.

Наведена математична модель та експериментальні дослідження зразків композиційних сцинтиляторів дозволили визначити умови отримання оптимального світлозбирання в композиційному сцинтиляторі. Показана залежність відносного світлового виходу від розміру сцинтиляційних гранул (рис.6), концентрації гранул в оптичній основі та товщини композиційного сцинтилятора. В результаті дослідження було виявлено, що концентрація гранул в оптичному середовищі з показником заломлення 1,41–1,46 має складати 75–80мас.%, оптимальний розмір гранул має становити 45–63мкм та оптимальна товщина композиційного шару 0,6–1,2мм.

Але композиційний сцинтилятор є структурою з суттєвим розсіюванням світла на поверхні. Для покращення світлозбирання з композиційного шару на його вихідну поверхню запропоновано додати світлопровідний шар з оптично прозорого матеріалу. Як оптичні середовища були досліджені полісилоксанові

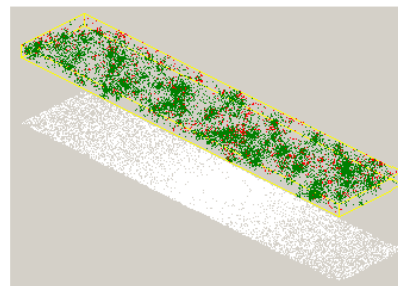


Рисунок 5 – Модель проходження світла для розрахунку світлозбирання у гетерогенному сцинтиляторі

компаунди, кварцове скло, лейкосапфір, полістирол. Основному критерію високої радіаційної стійкості відповідають полісилоксанові компаунди, кварцове скло, лейкосапфір, які не втрачають своїх оптичних властивостей до накопичених доз у 100Мрад в інтервалі довжини хвиль люмінесценції YSO:Ce та YAGG:Ce.

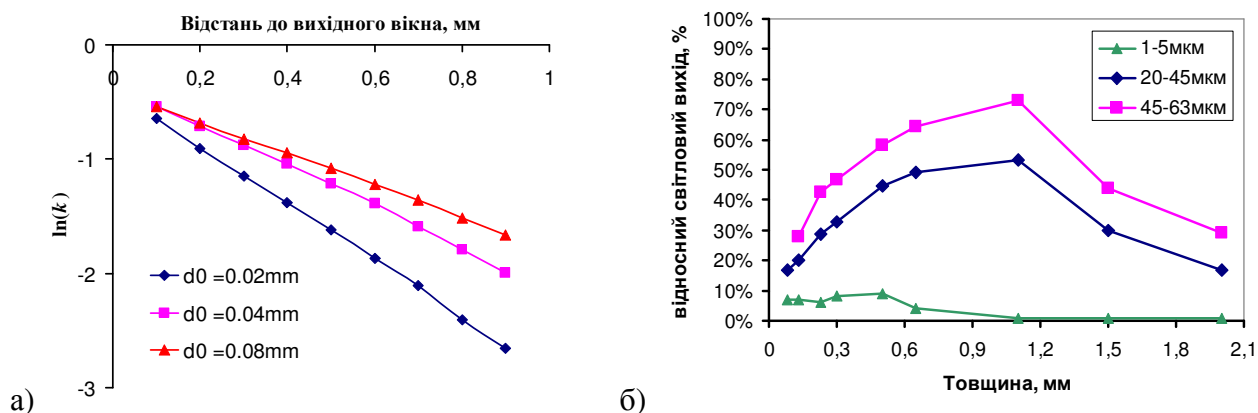


Рисунок 6 – Залежності відносного світлового виходу від розміру гранул та товщини композиційного сцинтилятора:
а) – математична модель, б) – експеримент

Визначено залежність відносного світлового виходу композиційного сцинтилятора від показників заломлення матеріалів світлопровідного шару (табл. 2).

Таблиця 2 – Значення відносного світлового виходу композиційного сцинтилятора YSO:Ce залежно від матеріалу світлопровідного шару

Тип сцинтилятора	Світлопровідний шар	Відносний світловий вихід
Пластмасовий сцинтилятор UPS-923A	-	100%
YSO:Ce композиційний	полісилоксан	250%
YSO:Ce композиційний	кварцове скло	120%
YSO:Ce композиційний	лейкосапфір	50%

За отриманими результатами можна зробити висновок, що визначені в розділі оптимальні конструктивні параметри композиційного шару та наявність світлопровідного шару забезпечують оптимальне світлозбирання.

Четвертий розділ присвячено конструктивним та технологічним рішенням створення сцинтиляційного елемента на основі гранул YSO:Ce для радіаційно навантажених ділянок калориметрів, коли фотоприймач має бути поза зоною радіаційних навантажень, тобто його характеристики не відповідають умовам радіаційної стійкості. Особливістю таких конструкцій є те, що в сцинтиляторі зроблено канавку, в яку розміщують спектрозміщуюче волокно для збирання світла (рис. 7). Тобто склад сцинтиляційного елемента має включати такі компоненти:

- композиційний сцинтилятор на основі радіаційно-стійких гранул;
- радіаційно-стійкий світлопровідний шар з оптично прозорих матеріалів;
- радіаційно-стійке спектрозміщуюче волокно.

Процес механічної обробки пластмасових сцинтиляторів дозволяє одночасне виготовлення сцинтиляційного елемента з канавкою під спектрзміщуюче волокно. В ході використання композиційного сцинтилятора важливим завданням є виготовлення канавки під спектрзміщуюче волокно. Конструкційно-технологічні рішення дозволили визначити підхід до виготовлення канавки. Так, для сцинтиляційного елемента з світлозбираючим шаром з полісилоксану канавка формується в процесі виготовлення цього шару шляхом розміщення спектрзміщуючого волокна в полісилоксані до його полімеризації. Тобто полімеризація світлопровідного шару проходить разом з волокном. Виготовлення канавки в твердих оптичних матеріалах, таких як кварцове скло або лейкосапфір потребують іншого підходу. Запропоноване конструкторсько-технологічне рішення полягало у виготовленні двох плоских пластин, які полірували з усіх боків, та приклеювали на композиційний сцинтилятор з проміжком між ними для розміщення спектрзміщуючого волокна.

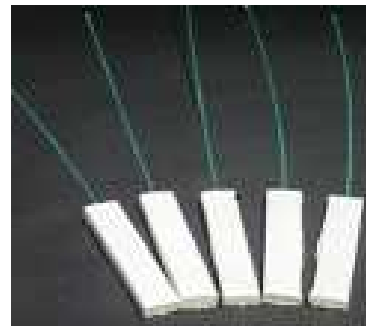


Рисунок 7 –

Сцинтиляційні елементи з спектрзміщуючим волокном

Математичне моделювання дозволило визначити:

а) коефіцієнти збирання світла залежно від відстані місця сцинтиляційного спалаху у композиційному сцинтиляторі та спектрзміщуючим волокном;

б) залежність параметрів оптичних матеріалів світлопровідного шару та ширини канавки для розміщення спектрзміщуючого волокна на світлозбирання.

Виготовлено дослідні зразки та визначено:

- товщину оптичного матеріалу світлопровідного шару, яка склала 1–3мм;
- оптимальну ширину канавки 2мм під спектрзміщуюче волокно.
- умови світлозбирання залежно від матеріалу світлопровідного шару.

Нерадіаційностійке спектрзміщуюче волокно типу Y-11 компанії Kuraray (Японія), яке найбільш поширено використовується в системах детектування, має механізм передачі світла, що полягає в поглинанні світла на довжині хвилі люмінесценції сцинтилятора та висвічуванні на більшій довжині хвилі.

Дослідження впливу радіаційних навантажень на спектрзміщуюче волокно Y-11 проводилися на серії зразків сцинтиляційних елементів, які містили гранули YSO:Ce з світлопровідним шаром на основі полісилоксану. Для дози 25-26Мрад падіння відносного світлового виходу на рівні 20% зумовлено радіаційними ушкодженнями органічного спектрзміщуючого волокна Y-11.

Проведений аналіз спектрів поглинання та люмінесценції радіаційно-стійких монокристалів дозволив визначити сцинтилятори YAGG:Ce або YAG:Ce, як такі, що мають суттєве перекриття спектру поглинання зі спектром емісії YSO:Ce (рис.8).

Проведений аналіз спектрів поглинання та люмінесценції радіаційно-стійких монокристалів дозволив визначити сцинтилятори YAGG:Ce або YAG:Ce, як такі, що мають суттєве перекриття спектру поглинання зі спектром емісії YSO:Ce (рис.8).

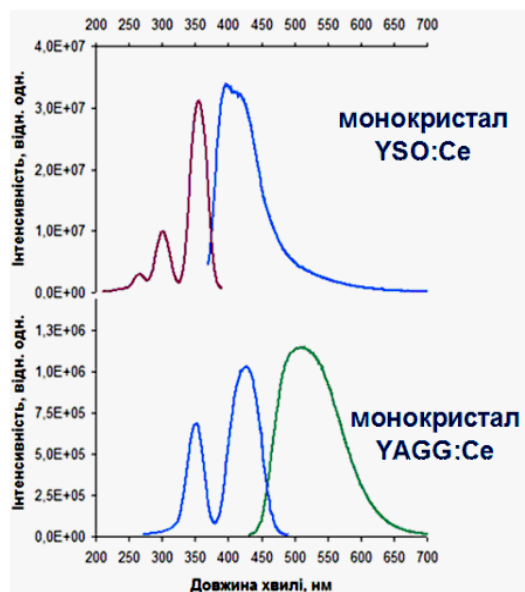


Рисунок 8 – Спектри збудження і люмінесценції кристалів YSO:Ce і YAGG:Ce

Розроблено технологічний процес виготовлення радіаційно-стійкого сцинтиляційного елементу (рис. 9): порошок YSO:Ce, отриманий твердофазним синтезом, механічно подрібнюють на гранули. Шляхом просіювання через калібровані сита відбирають фракцію гранул розміром 45–63мкм. Розраховану кількість гранул відібраної фракції вводять в імерсійне середовище – силіконовий еластомер Sylgard 184. Масова частка сцинтиляційних гранул дорівнює 75мас.%, масова частка імерсійного середовища дорівнює 25мас%.

Композиційну суміш гранул з імерсійним середовищем ретельно перемішують та викладають в технологічний контейнер. Зразки полімеризують. Після закінчення процесу полімеризації композиційні сцинтилятори вилучають з технологічних контейнерів. Беруть дві поліровані з усіх боків плоскі пластини кварцового скла або лейкосапфіру товщиною 2мм та поміщають їх у технологічний контейнер для формування каналу розміром 2мм для спектросміщуючого волокна та оптично з'єднують їх з композиційним сцинтилятором за допомогою силіконового еластомеру Sylgard 184.

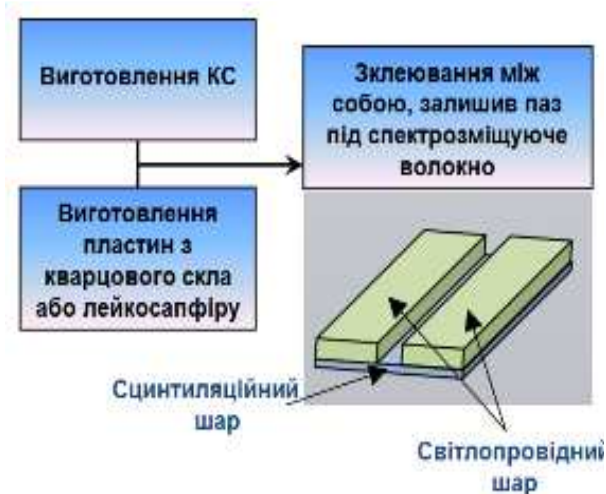


Рисунок 9 – Технологія виготовлення сцинтиляційного елементу з віддаленим фотоприймачем

Сцинтиляційний елемент вилучають з технологічного контейнеру. Для тестування в каналі розміщують спектросміщуюче волокно з монокристалу YAG:Ce або YAGG:Ce, сцинтиляційний елемент обгортають світловідбиваючою плівкою Tyvek.

У ході тестування було визначено, що YAGG:Ce повністю поглинає світло з композиційного сцинтилятора на основі YSO:Ce. Час загасання сигналу становить 22нс. Це пов'язано з тим, що народжене в YSO:Ce світло поглинається волокном YAGG:Ce та має відповідний механізм загасання. На рис. 10 наведено форми імпульсів радіолюмінесценції композиційного

сцинтиляційного елемента, який містить гранули монокристалу YSO:Ce в оптичному еластомері Sylgard-184, із монокристалічним спектрзміщуючим волокном YAGG:Ce (2) і без нього (1) при збудженні фотонами гамма-випромінювання від радіонуклідного джерела ^{137}Cs із енергією 661,7 кеВ.

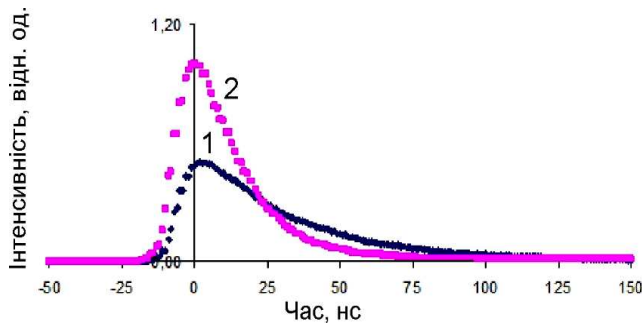


Рисунок 10 – Форми імпульсів радіолумінесценції композиційного сцинтиляційного елемента

роботи з віддаленим фотоприймачем, які містили гранули YSO:Ce з світлопровідним шаром на основі кварцового скла (рис. 11, а, б, в) з спектрзміщуючим волокном з монокристалу YAG:Ce, з площею $12 \times 60 \text{ мм}^2$ (рис.11, а), з спектрзміщуючим волокном з монокристалу YAGG:Ce з площею $20 \times 40 \text{ мм}^2$ (рис.11, б) та $100 \times 150 \text{ мм}^2$ (рис.11, в).

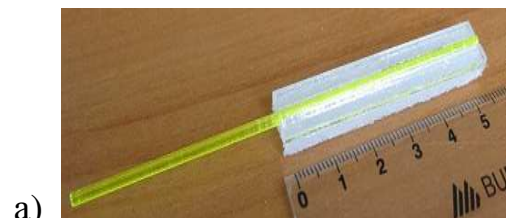
Зразки було опромінено до дози у 20Мрад, за яких пластмасовий сцинтилятор вже непридатний для використання. Відносний світловий вихід сцинтиляційних елементів на основі композиційного сцинтилятора з гранул YSO:Ce, світлопровідного шару з кварцового скла та з спектрзміщуючим волокном з монокристалу YAG:Ce, зменшився на 2–5% (табл. 3).

Подальші дослідження радіаційної стійкості сцинтиляційного елемента на основі композиційного сцинтилятора з гранул YSO:Ce з світлопровідним шаром з кварцового скла та спектрзміщуючим волокном YAGG:Ce (рис. 11, б) визначили можливість роботи до накопиченої дози у 50Мрад і більше.

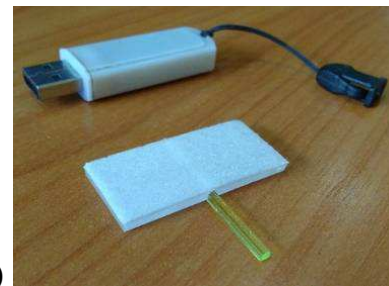
Дослідження неоднорідності відносного світлового виходу по площині сцинтиляційного елемента

За результатами досліджень визначено, що використання монокристалічного спектрзміщуючого волокна дозволяє збільшити відносний світловий вихід у 2–3 рази порівняно з спектрзміщуючим волокном Y-11.

Виготовлено прототипи сцинтиляційних елементів для



а)



б)



в)

Рисунок 11 – Сцинтиляційний елемент з спектрзміщуючим волокном з монокристалу YAG:Ce (а) та з спектрзміщуючим волокном з монокристалу YAGG:Ce (б) до нанесення відбивача, та сцинтиляційний детектор великої площі з спектрзміщуючим волокном з монокристалу YAGG:Ce

проведено за схемою, наведеною на рис. 12.

Таблиця 3 – Відносний світловий вихід сцинтиляційних елементів до та після опромінення електронами 8,3 МеВ, інтегральна доза $20 \pm 0,5$ Мрад

Сцинтиляційний елемент	Відносний світловий вихід, %	
	До опромінення	Після 20Мрад
Композиційний сцинтилятор на основі гранул YSO:Ce, світлопровідний шар – кварцове скло, спектрзміщуюче волокно – YAG:Ce	100%	95-98%

Порівняно неоднорідність відносного світлового виходу сцинтиляційного елемента залежно від типу спектрзміщуючого волокна (рис. 13). Використання Y-11 призводить до 90% неоднорідності сигналу, отриманого з різних місць сцинтиляційного елемента. Використання волокна YAGG:Ce у складі того ж сцинтиляційного елемента дозволяє знизити неоднорідність до 15%. На рис. 13 наведено такі позначення: 1 – сцинтиляційний елемент YSO:Ce зі світлопровідним шаром з кварцового скла і спектрзміщуючим волокном з YAGG:Ce; 2 – сцинтиляційний елемент YSO:Ce зі світлопровідним шаром з кварцового скла і спектрзміщуючим волокном Y-11.

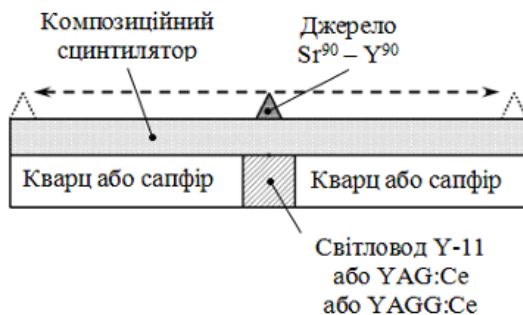


Рисунок 12 – Схема вимірювань неоднорідності світлового виходу по площині сцинтиляційного елемента

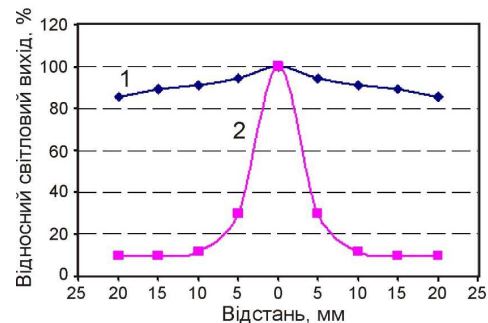


Рисунок 13 – Залежність відносного світлового виходу від положення джерела збудження $Sr^{90}-Y^{90}$ на сцинтиляційному елементі

Вирішене завдання створення радіаційно-стійких сцинтиляційних детекторів великої площі за рахунок конструкторсько-технологічного забезпечення виробництва сцинтиляційних елементів з спектрзміщуючим волокном для роботи з віддаленим фотоприймачем, що відповідають умовам

сучасних фізичних експериментів.

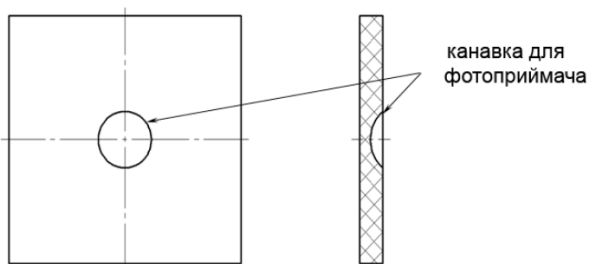


Рисунок 14 – Схема сцинтиляційного елемента

У п'ятому розділі описано конструктивні та технологічні рішення створення сцинтиляційних детекторів великої площі на основі радіаційно-стійких сцинтиляційних елементів з безпосереднім з'єднанням з фотоприймачем для

роботи в зоні радіаційних навантажень.

Сучасна технологія SiPM-on-tile використовує пряме збирання світла від сцинтиляційної плитки за допомогою кремнієвого фото-помножувача SiPM, який збирає світло через заглиблення (ямку) на поверхні сцинтиляційної плитки. Ямка забезпечує механічний простір для встановлення SiPM і покращує однорідність відгуку на плитці, зменшуючи відгук для частинок, які проходять дуже близько до SiPM порівняно із частинками, які проходять на більшій відстані (рис. 14).

В концепції виготовлення композиційного сцинтилятора був розроблений відбивач світла на основі порошку діоксиду титану TiO_2 , введеного в полісилоксанову основу. На відміну від промислових відбивачів такий відбивач, у першу чергу, витримує радіаційні навантаження до 100Мрад без зміни відбиваючих властивостей. Може бути виготовлений великої площі, а також виконувати функцію як конструкційний матеріал під час виготовлення детекторів великої площі. Розроблений відбивач схематично наведений на рис. 15, на якому прийняті такі позначення: 1 – радіаційно-стійке оптичне середовище; 2 – пігмент, що відбиває світло (позначений білими кружечками).

Методика виготовлення відбивача світла (рис.16) включала такі етапи:

1. Механічне перетирання пігменту TiO_2 з полісилоксановим каучуком СКТН-мед. у співвідношенні 20 ваг% та 80 ваг% відповідно.
2. Додавання до суміші каталізатора К-68 (5ваг%) та ретельне перемішування.
3. Вакуумування суміші для видалення повітряних бульбашок.
4. Переміщення суміші у технологічне обладнання для подальшої полімеризації протягом 24 годин при кімнатній температурі.

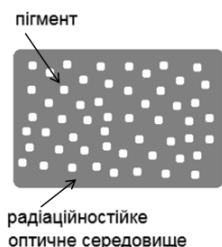


Рисунок 15 – Схема композиційного відбивача світла



Рисунок 16 – Зразки дифузного відбивача на основі полісилоксану з TiO_2

На рис. 17 наведено спектри відбивання світла залежно від накопиченої дози опромінення, які доводять, що радіаційна стійкість виготовленого дифузного відбивача складає 100Мрад.

Проведений аналіз вимог фізичних експериментів дозволив визначити базовий підхід для створення детекторів великої площі. Згідно з концепцією, детектор великої площі залежно від радіаційних навантажень має включати:

- сцинтиляційний елемент (композиційний сцинтилятор зі світлопровідним шаром, якщо радіаційні навантаження сягають десятків Мрад або пластмасовий сцинтилятор для радіаційних навантажень у декілька Мрад з ямкою під фотоприймач;
- поверхневий відбивач світла;

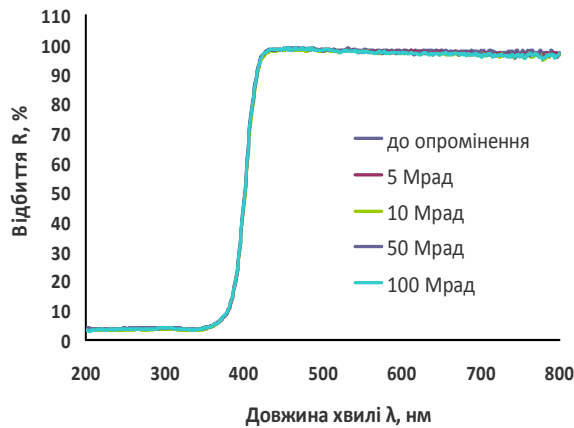


Рисунок 17 – Спектри відбивання світла дифузного відбивача на основі полісилоксану з TiO_2 залежно від накопиченої дози

світла по сцинтиляційних елементах наведена на рис. 18. У разі з'єднання елементів між собою за допомогою відбивача перетікання світла було відсутнє. Таким чином, таке рішення з'єднання елементів застосовували для з'єднання як пластмасових сцинтиляційних елементів, так і елементів на основі композиційного сцинтилятора.

Визначені наступні етапи технологічного процесу виготовлення багатоелементного сцинтилятора на основі пластмасового сцинтилятора або композиційного сцинтилятора (рис. 19).

Технологічний процес виготовлення багатоелементного сцинтиляційного детектора на основі пластмасового сцинтилятора включає:

- виготовлення пластмасового сцинтилятора у вигляді листа з припуском 1,0–1,5мм від номінальної товщини;
- фрезкування пазів шириною 1мм (обумовлено ріжучим елементом) та глибиною більш на 0,5мм, ніж необхідна товщина сцинтилятора;
- виготовлення канавок під фотоприймач;
- формування відбивача між сцинтиляційними елементами та витримка технологічного часу до його повної полімеризації;
- фрезкування залишку сцинтиляційного матеріалу до необхідної товщини сцинтилятора;
- формування поверхневого відбивача.

Технологічний процес виготовлення багатоелементного сцинтиляційного детектора на основі композиційного сцинтилятора включає такі етапи:

- виготовлення композиційного сцинтилятора, як визначено у розділі 3;

- відбивач світла між сцинтиляційними елементами.

Необхідність отримання сцинтиляційного детектора великої площі ставить завдання міцного з'єднання сцинтиляційних елементів між собою. Для пластмасових сцинтиляційних елементів розглянуто випадок, коли між елементами залишався сцинтиляційний матеріал у вигляді перемички товщиною 0.5мм. Залежно від місця розташування перемички перетікання світла з суміжного каналу складало від 1 до 16%. Схема вимірювань перетікання

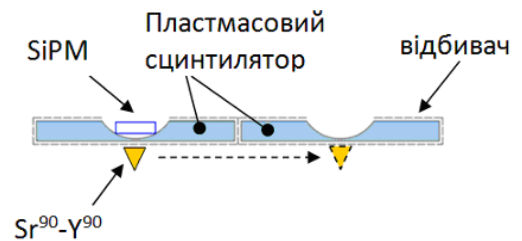


Рисунок 18 – Схема вимірювань перетікання світла по елементах сцинтилятора

- виготовлення світлопровідного шару та оптичне з'єднання з композиційним сцинтилятором за допомогою силіконового еластомеру Sylgard 184;

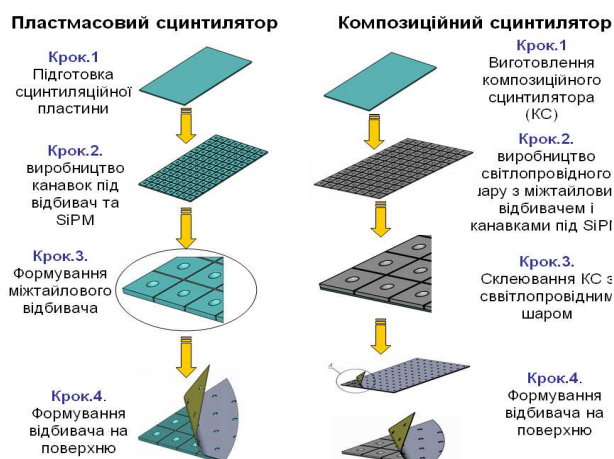


Рисунок 19 – Етапи отримання багатоелементного сцинтиляційного детектору

дзеркальний відбивач).

У табл. 4 наведено відносний світловий вихід залежно від обробки поверхонь та типу відбивача світла.

Таблиця 4 – Відносний світловий вихід пластмасового сцинтиляційного елемента залежно від методу отримання, обробки поверхонь та типу відбивача

Технологія	Обробка поверхні + відбивач									
	всі поверхні з-під верстата		всі поверхні полірування, торець з-під верстата		всі поверхні полірування, торець з-під верстата + фарба на торці		Всі поверхні полірування, торець полірування		всі поверхні полірування, торець полірування + фарба на торці	
	ESR	Tyvek	ESR	Tyvek	ESR	Tyvek	ESR	Tyvek	ESR	Tyvek
Блокова полімеризація		100%	142%	129%	147%	133%	151%	-	155%	139%
Лиття під тиском	120%	100%	111%	97%	119%	109%	120%	-	124%	109%

Запропоновано метод формування дзеркального відбивача (рис. 20), який полягав у лазерному розрізанні заготовки відбивача та наданні форми для утворення матриці, в отвори якої розміщують сцинтиляційні елементи.

Такий підхід забезпечує наявність дзеркального відбивача на всіх гранях сцинтиляційних елементів.

Виготовлено зразки сцинтиляційних елементів для роботи з безпосереднім з'єднанням з фотоприймачем, які містили гранули YAGG:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу з світлопровідним шаром на основі полісилоксану (рис. 21).

Результати дослідження радіаційної стійкості сцинтиляційного елемента (рис.21, б) наведено у таблиці 5.

- формування відбивача в заздалегідь сформовані канавки між сцинтиляційними елементами та витримка технологічного часу до його повної полімеризації;

- формування поверхневого відбивача.

З огляду на низький світловий вихід пластмасового сцинтилятора необхідно було збільшити параметр відношення сигнал / шум, тобто оцінити вплив технології отримання пластмасового сцинтилятора, обробки його поверхонь та типу відбивача (Tyvek – дифузний відбивач, ESR –



Рисунок 20 –
Дзеркальний відбивач



а)



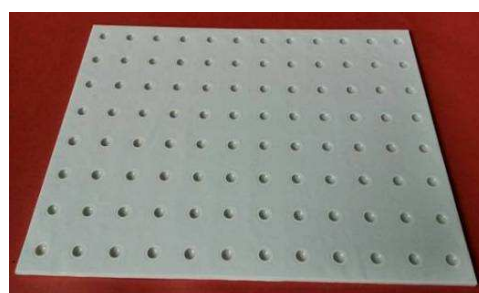
б)

Рисунок 21 – Сцинтиляційний елемент з композиційного сцинтилятора на основі гранул YAGG:Ce з світлопровідним шаром з полісилоксану до нанесення відбивачу (а) та в радіаційностійкому дифузному відбивачі (б)

За розробленими технологічними процесами виготовлено прототипи багатоелементних сцинтиляційних детекторів на основі сцинтиляційних елементів з композиційного або пластмасового сцинтиляторів. Зовнішній вигляд детекторів наведено на рис. 22.



а)



б)

Рисунок 22 –Прототипи багатоелементні сцинтиляційні детектори у дзеркальному (б) та дифузному (в) відбивачах

Умови фізичних експериментів потребують роботи сцинтиляційних елементів з безпосереднім контактом з фотоприймачем при температурі -30°C . Проведені 15 циклів кліматичних випробувань виготовлених багатоелементних сцинтиляційних детекторів у діапазоні температур $-30^{\circ}\text{C} \dots +60^{\circ}\text{C}$ довели механічну міцність такої конструкції. Неоднорідність відносного світлового виходу між елементами складала 8%.

Таблиця 5 – Відносний світловий вихід сцинтиляційних елементів до та після опромінення електронами 8,3 МеВ, інтегральна доза $50 \pm 0,5 \text{Mrad}$

Сцинтиляційний елемент	Відносний світловий вихід, %	
	До опромінення	Після 50Mrad
Композиційний сцинтилятор на основі гранул YAGG:Ce, світлопровідний шар – полісилоксан, відбивач світла – TiO_2 у полісилоксані.	100%	90%

Вирішене завдання створення радіаційно-стійких сцинтиляційних детекторів великої площі на основі композиційних або пластмасових сцинтиляторів за рахунок конструкторсько-технологічного забезпечення виробництва сцинтиляційних елементів, які безпосередньо з'єднуються з фотоприймачем, що відповідають умовам сучасних фізичних експериментів.

ОСНОВНІ ВИСНОВКИ ТА РЕЗУЛЬТАТИ РОБОТИ

У дисертаційній роботі вирішено завдання конструкторсько-технологічного забезпечення виробництва сцинтиляційних детекторів великої площі для систем детектування фізичних експериментів.

При цьому отримано такі наукові та практичні результати:

1. Запропоновано технологічне забезпечення для створення радіаційно-стійких сцинтиляційних елементів з композиційних сцинтиляторів на основі сцинтиляційних гранул, що полягало у:

- значному зменшенні вартості отримання радіаційно-стійких сцинтиляційних гранул YSO:Ce та YAGG:Ce завдяки використанню методу твердофазного синтезу без стадії вирощування монокристалів, спроможних витримувати дози опромінення у 100Мрад;

- визначенні фізико-технічних параметрів для отримання оптимального відносного світлового виходу композиційного сцинтилятора, не менш 70% від відповідних монокристалів, залежно від розміру сцинтиляційних гранул, концентрації гранул у композиційному шарі та товщини композиційного шару;

- покращенні світлозбирання з композиційного сцинтилятора завдяки наявності світлопровідного шару над композиційним сцинтилятором.

2. Розроблено та впроваджено у виробництво технологічний процес виготовлення радіаційно-стійкого дифузного відбивача на основі порошку TiO_2 , введеного у полісилоксанове оптично прозоре середовище, з коефіцієнтом відбиття у 92–95%, що витримує радіаційні навантаження у 100Мрад.

3. Для різних радіаційних навантажень розроблено і впроваджено у виробництво технологічні процеси виготовлення:

- сцинтиляційного елементу на основі гранул YSO:Ce з світлопровідним шаром з кварцового скла або лейкосапфіру для роботи з віддаленим фотоприймачем, коли світло з сцинтиляційного елементу збирається спектрозміщуючим волокном з монокристала YAGG:Ce;

- радіаційно-стійкого сцинтиляційного елементу на основі гранул YAGG:Ce з світлопровідним шаром на основі полісилоксану та з безпосереднім з'єднанням з фотоприймачем;

- багатоелементного сцинтиляційного детектора на основі пластмасових сцинтиляційних елементів з безпосереднім з'єднанням з фотоприймачем;

- багатоелементного сцинтиляційного детектора на основі радіаційно-стійких сцинтиляційних елементів на основі гранул YAGG:Ce з світлопровідним шаром на основі полісилоксану та з безпосереднім з'єднанням з фотоприймачем.

4. Із використанням розроблених технологій було виготовлено прототипи радіаційно-стійких сцинтиляційних детекторів та проведено їхні експериментальні дослідження, що показали позитивні результати для використання у сучасних фізичних експериментах.

5. Прототип багатоелементного сцинтиляційного детектору на основі пластмасового сцинтилятора проходить тестування в експериментах фізики високих енергій в рамках виготовлення сцинтиляційної частини калориметра.

СПИСОК ОПУБЛІКОВАНИХ ПРАЦЬ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

1. Boyarintsev A.Yu., Nepokupnaya T.A., Onufriyev Yu.D., Tarasov V.A. Composite scintillator. *Springer Proceedings in Physics*, 2017.Vol. 200. P. 167–194 (*Scopus*).
2. Nepokupnaya T.A., Ananenko A.A., Boyarintsev A.Yu., Bobovnikov A.A., Gektin A.V., Kovalchuk S.N., Onufriyev Yu.D., Pedash V.Yu. Large area detector of low-energy gamma radiation. *Functional Materials*. 2017. Vol. 24. No. 4. P. 678–681 (*Scopus*).
3. Онуфриев Ю., Бояринцев А., Гектин А., Гринев Б., Ковальчук С., Непокупная Т. Светосбирание в композиционном детекторе для физики высоких энергий. Функциональные материалы: Аспекты сцинтилляционной техники: Харьков, 2017. С. 141–148.
4. Бояринцев А., Бобовников А., Гектин А., Ковальчук С., Непокупная Т., Онуфриев Ю., Тарасов В. Композиционный детектор $6\text{LiI}(\text{Eu})$ для регистрации тепловых нейтронов. Функциональные материалы: Аспекты сцинтилляционной техники: Харьков, 2017. С.132–140.
5. Boyarintsev A.Yu, Galunov N.Z., Levchuk L.G., Martynenko E.V., Nepokupnaya T.A., Onufriyev Yu.D., Popov V.F., Voloshyna O.V. Radiation resistance of composite scintillators containing $\text{Y}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ or $\text{Y}_2\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$ obtained by solid-state synthesis. *Functional Materials*. 2018. Vol.25. № 1. P. 6–12 (*Scopus*).
6. Lysenko O.G., Grushko V.I., Mitskevich E.I., Ilnitska G.D., Boyarintsev A.Yu., Onufriyev Yu.D., Popov V.F., Levchuk L.G., Kazuchits N.M., Rusetsky M.S., Lysakovskiy V.V., Ivakhnenko S.A. Luminescent and radiation characteristics of monocrystalline diamond powders. *Journal of Superhard Materials*. 2019. Vol.41. No.1. P. 17–23.
7. Спосіб виготовлення радіаційно-стійкого сцинтиляційного елемента: пат. 120649 Україна. №u201705435; заявл. 02.06.2017; опубл. 10.11.2017; Бюл.№ 21.
8. Радіаційно стійкий сцинтиляційний елемент: пат. 119798 Україна. №a201705477; заявл. 02.06.2017; опубл. 10.10.2017; Бюл.№ 19.
9. Радіаційно стійкий сцинтиляційний елемент: пат. 140451 Україна. №u20190872; заявл. 19.07.2019; опубл. 25.02.2020; Бюл.№ 4.
10. Onufriyev Yu., Nepokupnaya T., Boyarintsev A., Kovalchuk S.N., Bobovnikov A. A. Composite scintillation element based on $\text{GPS}:\text{Ce}$, $\text{LYSO}:\text{Ce}$ and $\text{YSO}:\text{Ce}$ for High Energy Physics: *4th International Scientific and Technical Conference for young Scientist LUMCOS*, (Kharkov, 07-09 October 2015.). Kharkov, 2015. P. 34.
11. Boyarintsev A., Bobovnikov A., Gektin A., Kovalchuk S., Nepokupnaya T., Onufriyev Yu., Tarasov V. Light-collection in the scintillation element for HEP: *The Fifth International Conference on Engineering of scintillation materials and radiation technologies ISMART 2016*, (Minsk, 26-30 September, 2016.). Minsk, 2016. P.33.

12. Boyarintsev A., Grynyov B., Gektin A., Nepokupnaya T., Onufriyev Yu. Last development of composite detectors is proposed for HEP application: *The 17th International Conference on Calorimetry in Particle Physics* (Daegu, 15-20 May 2016.). Daegu, 2016. P. 33.

13. Boyarintsev A., Bobovnikov A., Gektin A., Gerasimov Ya., Grynyov B., Kovalchuk S., Levchuk L., Nepokupnaya T., Onufriyev Yu., Popov V., Sidletskiy O., Tarasov V. Radiation hard composite element for high energy physics: *IEEE-2016 Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference* (Strasbourg, 2016.). Strasbourg, 2016. P. 176.

14. Nepokupnaya T., Boyarintsev A., Onufriyev Yu., Grynko T., Trubaeva O., Ponomarenko T., Rebrov A. YSO:Ce powder for composite scintillators: *International Conference on Oxide Materials for Electronic Engineering – fabrication, properties and application OMEE-2017* (Lviv, 2017.). Lviv, 2017.

15. Boyarintsev A., Bobovnikov A., Gektin A., Gerasimov Ya., Grynyov B., Kovalchuk S., Nepokupnaya T., Onufriyev Yu., Sidletskiy O. Composite scintillators for high energy physics: *14th International Conference on Scintillating Materials and their Applications SCINT-2017*, (Chamonix, 2017.). Chamonix, 2017. S03.

16. Onufriyev Yu.D., Boyarintsev A.Yu., Galunov N.Z., Kovalchuk S.N., Minenko S.S., Nepokupnaya T.A., Sibilieva T.G., Zhmurin P.N. Radiation hard reflectors for scintillation modules for HEP: *The Sixth International Conference on Engineering of scintillation materials and radiation technologies ISMART 2018*, (Minsk, 2018.). Minsk, 2018. P.78.

17. Ananenko A., Boyarintsev A., Gektin A., Kovalchuk S., Minenko S., Nepokupnaya T., Onufriyev Yu., Sibilieva T., Tarasov V. Light collection in composite scintillators for radiation detectors: *2018 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference*, (Sydney, 2018.). Sydney, 2018. P.290.

18. Сцинтиляційний елемент та спосіб його виготовлення: пат. 111455, Україна. №а201506128; заявл. 22.06.2015; опубл. 25.04.2016; Бюл. №8.

АНОТАЦІЯ

Онуфрієв Ю. Д. Технологія виробництва радіаційно-стійких сцинтиляційних детекторів для фізичних експериментів. – Рукопис.

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата технічних наук за спеціальністю 05.27.06 – технологія, обладнання та виробництво електронної техніки. – Харківський національний університет радіоелектроніки, м. Харків, 2020 р.

У роботі вирішено науково-прикладне завдання виготовлення радіаційно-стійких сцинтиляційних детекторів для фізичних експериментів за рахунок розробки технологічних процесів створення радіаційно-стійких сцинтиляційних елементів.

У дисертаційній роботі визначено рівень радіаційної стійкості гранул YSO:Ce та YAGG:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу, до накопичених доз до 100Мрад, що дозволяє виготовлення композиційних сцинтиляторів і детекторів на їхній основі для сучасних фізичних експериментів.

Визначено конструктивні параметри сцинтиляційного шару з гранул YSO:Ce та YAGG:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу, введених у радіаційностійку оптично прозору основу, що забезпечують оптимальне світлозбирання. Розроблений радіаційно-стійкий відбивач світла, що забезпечує коефіцієнти відбивання 88–92% в діапазоні довжин хвиль 400–800нм під час радіаційних навантажень до 100Мрад та дозволяє вкривати сцинтиляційні елементи великої площі.

В роботі розроблено технологічні процеси виготовлення радіаційно-стійких сцинтиляційних елементів на основі композиційних сцинтиляторів, що містять гранули YSO:Ce або YAGG:Ce, для різних значень радіаційних навантажень для випадків, коли фотоприймач винесено за межі зон радіаційних навантажень та коли фотоприймач безпосередньо з'єднано із сцинтиляційним елементом. Удосконалено технологічні процеси створення радіаційно-стійких сцинтиляційних детекторів великої площі на основі сцинтиляційних елементів з композиційних або пластмасових сцинтиляторів. Виготовлено прототипи сцинтиляційних детекторів великої площі, радіаційна стійкість та сцинтиляційні характеристики яких відповідають умовам сучасних експериментів фізики високих енергій.

Ключові слова: радіаційна стійкість, композиційний сцинтилятор, спектрозміщуюче волокно, сцинтиляційний елемент, технологічний процес.

АННОТАЦІЯ

Онуфриев Ю.Д. Технология производства радиационно-стойких сцинтилляционных детекторов для физических экспериментов. – Рукопись.

Диссертация на соискание ученой степени кандидата технических наук по специальности 05.27.06 – технология, оборудование и производство электронной техники. – Институт сцинтилляционных материалов НАН Украины. – Харьковский национальный университет радиоэлектроники, г. Харьков, 2020.

В работе решена научно-прикладная задача производства радиационно-стойких сцинтилляционных детекторов для физических экспериментов за счет разработки технологических процессов создания радиационно-стойких сцинтилляционных элементов.

В диссертационной работе определен уровень радиационной стойкости сцинтилляционных гранул YSO:Ce и YAGG:Ce, полученных без стадии выращивания монокристаллов. Метод твердофазного синтеза получения гранул значительно снижает стоимость изготовления радиационно-стойких сцинтилляционных элементов на их основе, способных выдерживать дозы облучения в 100Мрад, что обеспечивает их применение в современных физических экспериментах.

В зависимости от размера сцинтилляционных гранул, концентрации гранул в композиционном слое и его толщины достигнут относительный световой выход композиционного сцинтиллятора не менее 70% от соответствующих монокристаллов. Определено, что для оптимального

светового выхода сцинтилляционных гранул YSO:Ce и YAGG:Ce, полученных методом твердофазного синтеза, размер сцинтилляционных гранул составляет 45-63 мкм, концентрация сцинтилляционных гранул в оптически прозрачной основе должна быть 75 масс%, а оптимальная толщина композиционного слоя составляет 0,6–1,2 мм. Обосновано наличие светопроводящего слоя над композиционным сцинтиллятором и выбраны оптические материалы для его изготовления, которые остаются прозрачными на длине волн люминесценции сцинтилляционных гранул YSO:Ce и YAGG:Ce до накопленных доз в 100 Мрад.

Разработан и внедрен в производство технологический процесс изготовления радиационно-стойкого диффузного отражателя на основе порошка TiO₂, введенного в полисилоксановую оптически прозрачную среду, что обеспечивает коэффициент отражения в 92–95% на длине волн люминесценции сцинтилляционных гранул YSO:Ce и YAGG:Ce, и выдерживает радиационные нагрузки в 100 Мрад без изменения отражающих свойств. Полученный диффузный отражатель за счет особенностей формирования позволяет конструкционно соединять сцинтилляционные элементы между собой при производстве детекторов большой площади.

В работе разработан технологический процесс изготовления радиационно-стойкого сцинтилляционного элемента на основе композиционного сцинтиллятора, содержащего гранулы YSO:Ce, и светопроводящего слоя из кварцевого стекла или лейкосапфира для случая, когда фотоприемник вынесен за пределы зоны радиационных нагрузок. Использование спектросмещающего волокна из монокристалла YAGG:Ce позволило увеличить однородность относительного светового выхода до 85%, что в 4–5 раз лучше, чем у существующих аналогов спектросмещающих волокон.

Разработан технологический процесс изготовления радиационно-стойкого сцинтилляционного элемента на основе композиционного сцинтиллятора, содержащего гранулы YAGG:Ce для случая, когда фотоприемник непосредственно соединен с сцинтилляционным элементом. Разработаны технологические процессы создания радиационно-стойких сцинтилляционных детекторов большой площади на основе сцинтилляционных элементов из композиционных или пластмассовых сцинтилляторов за счет особенностей формирования радиационно-стойкого диффузного отражателя.

Усовершенствован метод изготовления сцинтилляционных элементов на основе пластмассового сцинтиллятора в зависимости от технологии полимеризации, механической обработки поверхностей и типа отражателя, что позволило увеличить относительный световой выход на 30–55% по сравнению с существующими аналогами.

Разработан технологический процесс изготовления многоэлементного радиационно-стойкого сцинтилляционного детектора на основе пластмассового сцинтиллятора.

Предложен метод формирования зеркального отражателя, который обеспечивает наличие зеркального отражателя на всех гранях сцинтилляционных элементов. Лазерный раскрой заготовки зеркального

отражателя и автоматическое придание необходимой формы в виде ячеек позволяет размещать в них сцинтилляционные элементы.

На основе разработанных технологий изготовлены прототипы сцинтилляционных детекторов большой площади, радиационная стойкость и сцинтилляционные характеристики которых соответствуют условиям современных экспериментов физики высоких энергий.

Прототип многоэлементного сцинтилляционного детектора на основе пластмассового сцинтиллятора с сформированным радиационно-стойким диффузным отражателем проходит тестирование в экспериментах физики высоких энергий в рамках изготовления сцинтилляционной части калориметра.

Ключевые слова: радиационная стойкость, композиционный сцинтиллятор, спектросмещающее волокно, сцинтилляционный элемент, технологический процесс.

SUMMARY

Onufriiev Yu.D. Technology of production of radiation-resistant scintillation detectors for physical experiments. – Manuscript.

Thesis for the degree of the candidate of technical sciences, specialty 05.27.06 – Technology, equipment and production of electronics. – Kharkiv National University of Radio Electronics, Kharkiv, 2020.

The scientific and applied problem of production radiation-resistant scintillation detectors for physical experiments is solved in the work on developing technological processes of creating radiation-resistant scintillation elements.

The dissertation determines the level of radiation resistance of YSO:Ce and YAGG:Ce granules obtained by solid-phase synthesis for accumulated doses up to 100Mrad that allows the manufacture of composite scintillators and detectors based on them for modern physical experiments. The parameters of design of the scintillation layer from YSO:Ce and YAGG:Ce granules introduced into a radiation-resistant optically transparent base providing optimal light collection were determined. radiation-resistant light reflector with reflection coefficients of 88-92% in the range of wavelengths 400-800nm at radiation loads up to 100Mrad was developed and allows to cover scintillation elements of a large area.

The technological processes of production radiation-resistant scintillation elements based on composite scintillators containing YSO:Ce or YAGG:Ce granules for different values of radiation loads for cases when the photodetector is taken out of radiation load zones and when the photodetector is directly connected to the scintillation element were developed. Technological processes of creation of radiation-resistant scintillation detectors of large area on the basis of scintillation elements from composite or plastic scintillators were developed. Prototypes of large-area scintillation detectors were developed. The radiation resistance and scintillation characteristics of prototypes correspond to the conditions of modern experiments of high-energy physics.

Key words: radiation resistance, composite scintillator, wavelength shifting fiber, scintillation element, technological process.

Підп. до друку 04.02.21. Формат 60x84 1/16. Умов. друк. арк. 1,5.
Тираж 100 прим. Ціна договірна.

Віддруковано в типографії ФОП Андреев К.В.
61157, Харків, вул. Богомольця, 9, кв. 50.
Свідоцтво про державну реєстрацію
№24800170000045020 від 30.05.2003 р.
ep.zakaz@gmail.com
тел. 063-993-62-73