

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ УКРАЇНИ  
ХАРКІВСЬКИЙ НАЦІОНАЛЬНИЙ УНІВЕРСИТЕТ РАДІОЕЛЕКТРОНІКИ

**НЕПОКУПНА ТЕТЯНА АНАТОЛІЇВНА**



УДК [539.1.074.3:546.22/.24:678.746.2]+621.383.292

**ТЕХНОЛОГІЯ ВИРОБНИЦТВА КОМБІНОВАНИХ ДЕТЕКТОРІВ  
ІОНІЗУЮЧОГО ВИПРОМІНЮВАННЯ**

**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 скінтіляційних матеріалів НАН України.

Науковий керівник: доктор технічних наук,  
**Бояринцев Андрій Юрійович**,  
Інститут скінтіляційних матеріалів НАН України,  
заступник директора.

Офіційні опоненти: доктор технічних наук, професор,  
**Борщов Вячеслав Миколайович**,  
ТОВ «НВП «ЛТУ», перший заступник генерального  
директора-головний конструктор;

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

Захист відбудеться «9» вересня 2021 р. о 13<sup>00</sup> 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 «4» серпня 2021 р.

Вчений секретар  
спеціалізованої вченої ради



Є. М. Одаренко

## ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

**Актуальність теми.** На сьогоднішній день для реєстрації надмалих потоків іонізуючого випромінювання використовують сцинтиляційні та напівпровідникові детектори з великою площею активної поверхні. В ході вирішення завдання збільшення чутливості реєстрації радіонуклідів особливу увагу приділяють конструкції детекторів і технології їхнього виготовлення. Одним з технологічних рішень є використання великогабаритних мультidetекторних систем, які складаються з декількох окремих детектуючих елементів. Але, виготовлення подібних пристроїв пов'язано з певними технологічними складнощами, оскільки габаритні розміри таких детекторів обмежені типом конструкції та умовами збирання світла в детекторі. Іншим вирішенням є використання багатошарових детекторів, які складаються з різних сцинтиляційних матеріалів для селективної реєстрації певного типу випромінювання (альфа, бета, гамма тощо).

До основних вимог, яким мають відповідати детектори, що реєструють дуже малі потоки іонізуючого випромінювання, належать висока чутливість реєстрації іонізуючого випромінювання, велика площа входної детектуючої поверхні та стабільність сцинтиляційних параметрів під час експлуатації детекторів в інтервалі температур від  $-50^{\circ}\text{C}$  до  $+70^{\circ}\text{C}$ .

Поряд з мультidetекторними системами та багатошаровими детекторами задовольнити зазначені вимоги можуть комбіновані детектори великої площі, які складаються з оптично з'єднаних сцинтиляційного неорганічного та світлопровідного органічного шарів. Світлопровідний шар також може містити люмінесцентні домішки та додатково реєструвати радіонукліди.

Отже, незважаючи на достатню кількість досліджень в області розробки та виробництва обладнання для радіаційного моніторингу, залишається не повністю вирішеним завдання виготовлення високочутливих детекторів, які можуть визначати радіонуклідний склад джерел забруднення в широкому діапазоні щільностей потоків іонізуючого випромінювання.

Аналіз сучасних приладів радіаційного контролю показав, що зараз необхідні детектори для радіаційних порталних моніторів (РПМ), які реєструють надмалі дози фотонів гамма-випромінювання та мають чутливість реєстрації вище, ніж у розповсюджених детекторів з кристалічного йодиду натрію, активованого талієм ( $\text{NaI:Tl}$ ), або детекторів на основі пластмасових сцинтиляторів (ПС). Залишаються затребуваними ефективні детектори для реєстрації альфа- та бета-випромінювання, що є особливо небезпечними для людей через високу проникаючу та іонізуючу здатність. Для виготовлення альфа-бета-детекторів найчастіше використовують дрібнодисперсний фосфор сульфід цинку, активований сріблом ( $\text{ZnS:Ag}$ ). Недоліками  $\text{ZnS:Ag}$  є енергетичне розділення більше 40% через значну реабсорбцію власного сцинтиляційного сигналу та висока фосфоресценція. Також у цей час необхідні плоскочасові детектори великої площі для медичної цифрової рентгенографії з просторовим розділенням від 3,5 пар ліній/мм, які складаються з тонкошарового сцинтиляційного екрану, волоконно-оптичної пластини та фоточутливої матриці. Для виготовлення сцинтиляційних екранів детекторів затребувані малокоштовні сцинтиляційні

порошки з високим світловим виходом та низьким післясвітінням замість колончатих структур йодиду цезію, активованого талієм (CsI:Tl) або кераміки на основі оксисульфїду гадолінію, активованого тербієм (Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb).

Таким чином, розроблення технології виробництва комбінованих сцинтиляційних детекторів з високою чутливістю реєстрації малих потоків іонізуючого випромінювання 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 «Розробка методів отримання композитних сцинтиляторів» (2017–2021 рр., номер держреєстрації № 0117U000988), науково-дослідного проекту «Нові сцинтиляційні композиційні детектори для медичної рентгенівської діагностики» (договір № Ф79/125-2017, договір № Ф-79/57-2018, 2017-2018 рр., номер держреєстрації № 0118U001505), інноваційного проекту НАН України «Розроблення детекторів для реєстрації альфа- та альфа-бета випромінювань» (2020 р., номер держреєстрації № 012U100629).

**Метою дисертаційної роботи** є підвищення чутливості реєстрації сцинтиляційних детекторів альфа-, бета-частинок і фотонів гамма-випромінювання, а також просторового розділення детекторів для реєстрації фотонів низькоенергетичних рентгенівських квантів шляхом розробки технології виробництва комбінованих детекторів великої площі на основі сцинтиляційного неорганічного шару, оптично з'єданого зі світлопровідним органічним або неорганічним шаром, який може містити люмінесцентні домішки.

Для досягнення поставленої мети було необхідно вирішити такі **задачі**:

1. Провести огляд та аналіз вимог до сучасних детекторів альфа- та бета-частинок, а також фотонів гамма- та рентгенівського випромінювання. Сформулювати основні вимоги до комбінованих детекторів іонізуючого випромінювання великої площі. Визначити складові елементи комбінованих детекторів і встановити основні технологічні операції їхнього виготовлення.

2. Удосконалити технологічний процес виготовлення лічильних комбінованих детекторів великої площі для реєстрації фотонів гамма-випромінювання на основі оптично з'єднаних шарів з органічних та неорганічних сцинтиляційних матеріалів, що забезпечить вищу чутливість реєстрації порівняно з детекторами на основі сцинтиляційного полістиролу або монокристалів NaI:Tl.

3. Розробити технологічний процес виробництва спектрометричних комбінованих детекторів великої площі для реєстрації фотонів гамма-випромінювання, що складаються з оптично з'єднаних шарів з органічних та неорганічних сцинтиляторів, з чутливістю реєстрації вище, ніж у детекторів на основі монокристалів NaI:Tl.

4. Удосконалити технологічні операції виготовлення спектрометричних комбінованих детекторів альфа- та бета-частинок великої площі на основі неорганічного гетерогенного сцинтиляційного шару, оптично з'єданого зі світлопровідним органічним шаром, що забезпечить роздільну реєстрацію альфа- та бета-частинок та підвищення чутливості реєстрації порівняно з детекторами на основі ZnS:Ag та пластмасого сцинтилятора.

5. Удосконалити технологічний процес виробництва комбінованих детекторів великої площі для реєстрації фотонів низькоенергетичних рентгенівських квантів (для візуалізації об'єктів) на основі тонкошарового неорганічного сцинтилятора та волоконно-оптичної пластини, який дозволить збільшити просторове розділення порівняно з плоскопанельними детекторами з матрицею на тонкоплівкових транзисторах на основі екранів CsI:Tl та Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb.

**Об'єкт дослідження** – технологічні процеси виробництва комбінованих детекторів для реєстрації альфа- та бета-частинок, фотонів гамма-випромінювання, а також низькоенергетичних фотонів рентгенівських квантів (для візуалізації об'єктів).

**Предмет дослідження** – фізико-технічні та функціональні параметри комбінованих детекторів на основі шару неорганічного або органічного сцинтилятора, який оптично з'єднаний з неорганічним або органічним світлопровідним шаром.

**Методи дослідження.** Дослідження і прогнозування властивостей комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання проводилося з використанням математичного моделювання методом Монте-Карло. Для дослідження структурних характеристик сцинтиляційних матеріалів використовували метод порошкової рентгенівської дифракції, для оптичних характеристик сцинтиляційних матеріалів – методи спектрофлуориметрії та рентгенолюмінесценції, для сцинтиляційних характеристик матеріалів та детекторів – метод спектрів амплітуд імпульсів сцинтиляцій, для визначення просторового розділення детекторів – експериментальний стенд для дослідження просторового розділення.

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

1. Вперше запропоновано технологію виробництва складових елементів комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання з площею вхідної поверхні від 1000 см<sup>2</sup> на основі оптично з'єднаних неорганічних та органічних матеріалів, що відрізняються за лінійними коефіцієнтами теплового розширення у 4,5–7 разів, яка забезпечує стабільність функціональних параметрів детекторів у температурному інтервалі від -50<sup>0</sup>C до +70<sup>0</sup>C.

2. Набув подальшого розвитку технологічний процес виготовлення лічильних комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання з площею вхідної поверхні від 1000 см<sup>2</sup>, які складаються з монокристалічних пластин NaI:Tl або композиційних сцинтиляторів CsI:Tl, оптично з'єднаних з пластиною сцинтиляційного полістиролу, що забезпечує більшу на 30–80% чутливість реєстрації фотонів гамма-квантів з енергією 20–3000 кеВ, порівняно з детекторами на основі монокристалу NaI:Tl або сцинтиляційного полістиролу.

3. Вперше розроблено технологічний процес виробництва спектрометричних комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання з площею вхідної поверхні від 1000 см<sup>2</sup> на основі кристалічних пластин NaI:Tl та пластини сцинтиляційного полістиролу, який забезпечує ідентифікацію радіонуклідів за рахунок наявності в спектрі амплітуд імпульсів детекторf піку повного поглинання від NaI:Tl та додаткового піку зворотного розсіювання в NaI:Tl та в сцинтиляційному

полістиролі. Енергетичне розділення комбінованого детектора від колімованого джерела  $^{137}\text{Cs}$  не перевищує 8,5% ( $E_\gamma=662$  кеВ).

4. Удосконалено технологічний процес виготовлення комбінованих детекторів альфа- та бета-частинок з площею вхідної поверхні до  $180\text{ см}^2$  на основі гетерогенних шарів  $\text{ZnSe:Al}$ , який забезпечує спектрометрію та чутливість реєстрації альфа-частинок від джерела  $^{239}\text{Pu}$  на 26% більше та чутливість реєстрації бета-частинок від джерела  $^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$  на 14% більше, ніж у детектора на основі  $\text{ZnS:Ag}$  та пластмасового сцинтилятора.

5. Набув подальшого розвитку технологічний процес виготовлення комбінованих детекторів для реєстрації фотонів низькоенергетичного рентгенівського випромінювання (для візуалізації об'єктів) з площею вхідної поверхні до  $400\text{ см}^2$  на основі композиційного сцинтилятора  $\text{GAGG:Ce}$ , оптично з'єднаного з волоконно-оптичною пластиною, який забезпечує просторове розділення на 25% вище, ніж у плоскпанельних детекторів з матрицею на тонкоплівкових транзисторах, виготовлених на основі екранів  $\text{CsI:Tl}$  або  $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S:Tb}$ .

**Практична цінність отриманих результатів:** Отримані в дисертації результати з розроблення технологічних процесів виготовлення комбінованих детекторів іонізуючого випромінювання дозволяють виробляти високоефективні детектори з великою площею вхідної поверхні за рахунок розробленої технології та удосконалених методик, зокрема:

– розроблено лічильні комбіновані детектори для реєстрації фотонів гамма-випромінювання з площею вхідної поверхні від  $1000\text{ см}^2$  на основі сцинтиляційного шару з полірованих гранул  $\text{CsI:Tl}$ , оптично з'єднаного зі світлопровідним шаром зі сцинтиляційного полістиролу, які мають чутливість реєстрації вище, ніж у детекторів на основі сцинтиляційного полістиролу з аналогічними розмірами вхідної поверхні та еквівалентним об'ємом сцинтилятора (підтверджено патентом на корисну модель України 126169);

– розроблено лічильні комбіновані детектори для реєстрації фотонів гамма-випромінювання з площею вхідної поверхні від  $1000\text{ см}^2$  на основі оптично з'єднаних сцинтиляційного шару з монокристалічних пластин  $\text{NaI:Tl}$  та світлопровідного шару із сцинтиляційного полістиролу, які мають чутливість реєстрації вище, ніж у детекторів на основі монокристалів  $\text{NaI:Tl}$  з еквівалентним об'ємом сцинтилятора;

– розроблено спектрометричні комбіновані детектори для реєстрації фотонів гамма-випромінювання з площею вхідної поверхні від  $1000\text{ см}^2$ , які складаються з оптично з'єднаних шарів з монокристалічних пластин  $\text{NaI:Tl}$  та сцинтиляційного полістиролу, що мають енергетичне розділення від колімованого джерела  $^{137}\text{Cs}$  менше, ніж 8,5% ( $E_\gamma = 662$  кеВ);

– розроблено спектрометричні комбіновані детектори з роздільною реєстрацією альфа- та бета-частинок з площею вхідної поверхні до  $180\text{ см}^2$ , що мають чутливість реєстрації вище, ніж у детекторів на основі  $\text{ZnS:Ag}$  та пластмасового сцинтилятора. Розроблений в роботі технологічний процес впроваджено в Інституті сцинтиляційних матеріалів НАН України, м. Харків (акт від 17.12.2020 р., лабораторний регламент № 15:2020, лабораторний регламент № 24:2020);

– отримані практичні результати дозволили здійснити постачання комбінованих детекторів альфа- та бета-частинок підприємству «НВП Спарінг-Віст Центр» (Україна), що працює у галузі радіаційного моніторингу, згідно з договором № О/18-20;

– розроблені комбіновані детектори альфа- та бета-частинок можуть бути використані під час виготовлення приладів радіаційного контролю в підприємствах ТОВ «НВП «Тетра» (акт № Т-010-008 від 04.06.2021 р.) та ТОВ «Позитрон GMBH» (акт № 08/93 від 03.06.2021 р.);

– розроблено комбіновані детектори для реєстрації низькоенергетичних фотонів рентгенівського випромінювання (для візуалізації об'єктів) з площею вхідної поверхні до 400 см<sup>2</sup> на основі композиційних сцинтиляторів GAGG:Ce з гранул, отриманих твердофазним синтезом, які мають просторове розділення вище, ніж у плоскопанельних детекторів з матрицею на тонкоплівкових транзисторах, виготовлених на основі екранів CsI:Tl або Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb.

**Особистий внесок здобувача.** Основні наукові результати, наведені у дисертаційній роботі, отримані здобувачем самостійно. У публікаціях, написаних у співавторстві, особистий внесок здобувача такий: [1,2,5–7] – вдосконалення технологічних операцій процесу виробництва лічильних великогабаритних комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання на основі композиційних сцинтиляторів CsI:Tl та сцинтиляційного полістиролу, вдосконалення методики хімічної поліровки поверхні гранул CsI:Tl, досліджено сцинтиляційні характеристики розроблених детекторів; [5,14] – розроблення технологічного процесу виробництва спектрометричних комбінованих детекторів великої площі для реєстрації фотонів гамма-випромінювання на основі монокристалічних пластин NaI:Tl та сцинтиляційного полістиролу, дослідження сцинтиляційних характеристик розроблених детекторів; [4,12,13] – удосконалення технологічного процесу виробництва спектрометричних комбінованих детекторів великої площі для роздільної реєстрації альфа- та бета-частинок на основі гетерогенних шарів ZnSe:Al, дослідження сцинтиляційних характеристик розроблених детекторів; [3,9–11] – здобувачем удосконалено технологічні операції виробництва комбінованих детекторів для реєстрації фотонів низькоенергетичного рентгенівського випромінювання на основі тонкошарових композиційних сцинтиляторів з монокристалічних гранул CsI:Tl або гранул GAGG:Ce, отриманих твердофазним синтезом, визначено оптимальний склад та режими твердофазного синтезу сцинтиляційних гранул GAGG:Ce, досліджено параметри розроблених детекторів. У всіх роботах здобувач брала участь в обробці та обговоренні отриманих результатів, підготовці та написанні статей.

**Апробація результатів дисертації.** Основні результати дисертаційної роботи доповідалися та обговорювалися на таких науково-технічних конференціях і симпозиумах: The Fifth and Sixth International Conference Engineering and Radiation Technologies ISMART (2016, 2018, м. Мінськ, Беларусь), OMEG (2017, м. Львів, Україна), IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (2017, м. Атланта, США; 2018, м. Сідней, Австралія; 2019, м. Манчестер, Великобританія, 2020 Virtual IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference.

**Публікації.** За темою дисертації з викладенням основних її результатів опубліковано 14 наукових праць, у тому числі 5 статей у наукових виданнях України (серед них 3 реферовано в наукометричній базі Scopus), 1 патент України, 8 тез доповідей у збірниках праць міжнародних науково-технічних конференцій.

**Структура та обсяг дисертації.** Дисертаційна робота є рукописом і складається із вступу, п'яти розділів, висновків, переліку джерел посилення із 127 найменувань, 66 рисунків, 28 таблиць. Загальний обсяг роботи складає 160 сторінки, з них 129 сторінок основного тексту.

## ЗМІСТ РОБОТИ

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

**Перший розділ** дисертації присвячено огляду сучасних детекторів для реєстрації малих потоків альфа-, бета-частинок і фотонів гамма- та рентгенівського випромінювання, а також формулюванню вимог до функціональних параметрів детекторів.

На основі проведеного аналізу визначено основні вимоги до сучасних радіометричних детекторів. Це висока чутливість реєстрації іонізуючого випромінювання, яка забезпечується великою площею вхідної поверхні детектору, та стабільність функціональних параметрів в інтервалі температур від  $-50^{\circ}\text{C}$  до  $+70^{\circ}\text{C}$ . Зазначені вимоги частково задовольняють мультидетекторні системи, які складаються з декількох окремих детектуючих елементів, а також детектори, що складаються з декількох шарів сцинтиляційних матеріалів. Також розповсюджені комбіновані детектори на основі тонкого шару сцинтилятора, з'єданого з оптичним світловодом або органічним сцинтилятором. Зокрема, такі детектори реєструють альфа- та бета-частинки в лічильному режимі та використовуються для рентгенівської візуалізації.

Встановлено, що одним з напрямків використання детекторів, які реєструють малі потоки іонізуючого випромінювання, є транспортні та пішохідні радіаційні портальні монітори, які виявляють приховані джерела радіації. Для цього в моніторах застосовують великогабаритні детектори на основі ПС або монокристалів  $\text{NaI:Tl}$ . Іншою областю використання високочутливих детекторів є радіометричне обладнання для визначення альфа- та бета-частинок з низькою активністю – це прилади, які використовують на атомних електростанціях, а також детектори, що визначають альфа-радіоактивні ізотопи в матеріалах навколишнього середовища та у воді. Для виявлення джерел альфа- та бета-випромінювання в цей час використовують комерційні детектори на основі  $\text{ZnS:Ag}$  та ПС. Третя область застосування детекторів, що реєструють слабкі потоки випромінювання – доглядове рентгенівське обладнання для сканування людини та багажу. В цих приладах застосовуються плоскпанельні детектори, виготовлені на основі сцинтиляційних або напівпровідникових матеріалів.

Визначено, що покращити функціональні параметри (чутливість, просторове розділення) детекторів іонізуючого випромінювання можна за рахунок



збільшення площі детектуючої поверхні та шляхом використання сцинтиляційних матеріалів з високим світловим виходом та низьким післясвітінням.

Проведений аналіз дозволив визначити завдання для розроблення технологічних процесів виготовлення нових економічно ефективних комбінованих детекторів, а також сформулювати напрямки для досліджень.

У **другому розділі** запропоновано технологічні процеси виробництва складових елементів комбінованих детекторів іонізуючого випромінювання з площею вхідної поверхні від  $1000 \text{ см}^2$  для роботи при температурах від  $-50^\circ\text{C}$  до  $+70^\circ\text{C}$ . До комбінованого детектора належить сцинтиляційний сендвіч, відбивач світла, захисний корпус та фотоприймач. Сцинтиляційний сендвіч складається з неорганічного сцинтиляційного шару та органічного або неорганічного світлопровідного шару, які оптично з'єднані між собою (рис. 1). Світлопровідний шар також може містити люмінесцентні домішки

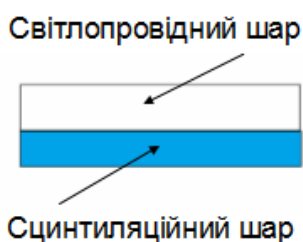


Рисунок 1 – Схема сцинтиляційного сендвічу комбінованого детектора

Сформульовано основні вимоги до сцинтиляційного сендвічу:

- висока чутливість реєстрації іонізуючого випромінювання;
- площа вхідної детектуючої поверхні від  $1000 \text{ см}^2$ ;
- стабільність сцинтиляційних характеристик при температурах від  $-50^\circ\text{C}$  до  $+70^\circ\text{C}$ .

Виготовлення сцинтиляційного шару з цільного кристалу, у якого один з лінійних розмірів більше  $500 \text{ мм}$ , є складним для реалізації завданням через високу вартість технологічного процесу їхнього вирощування. Також експериментально встановлено, якщо сцинтиляційний сендвіч складається з неорганічного сцинтилятора з максимальним лінійним розміром більше  $350 \text{ мм}$  та органічного світлопровідного шару, то після тривалого охолодження та нагрівання сендвічу в інтервалі температур  $-50^\circ\text{C} - +70^\circ\text{C}$  відбувається порушення цілісності шару оптичного клею. Основною причиною цього є велика відмінність в коефіцієнтах теплового розширення (КТР) клею та матеріалів шарів сендвічу.

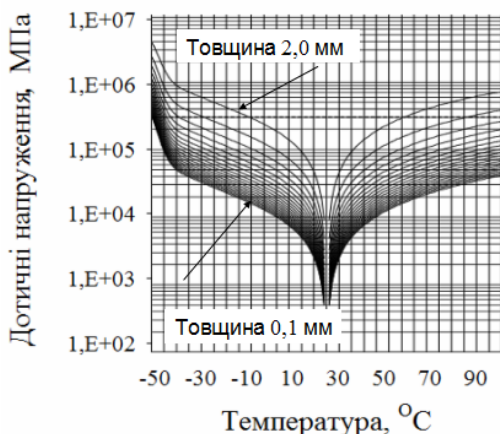


Рисунок 2 – Температурна залежність дотичних напружень в Sylgard 184

Для вирішення завдання з усунення відшарувань в сцинтиляційному сендвічі були розраховані дотичні напруження в шарі оптичного клею товщиною  $0,1 - 2 \text{ мм}$  при температурах від  $-50^\circ\text{C}$  до  $+70^\circ\text{C}$  з урахуванням КТР, модулів пружності та модулів зсуву усіх матеріалів сендвічу (рис. 2).

Як модельний зразок був обраний сендвіч комбінованого детектора для реєстрації фотонів гамма-випромінювання, який складається зі сцинтиляційного шару  $\text{NaI:Tl}$ , світлопровідного шару з полістиролу та шару клею з хімічно інертного полісилоксану Sylgard 184.

Розрахунки зроблені згідно з рівнянням:

$$\tau_{\text{Sylgard184}} - T^{(T,a)} = \tau_{\text{Sylgard184}} (\alpha L_{\text{NaI}}, \alpha L_{\text{ПС}}, T - T_0, G_{\text{Sylgard184}}(T), a, E_{\text{NaI}}, E_{\text{ПС}}(T), b_{\text{NaI}}, b_{\text{ПС}}, x)$$

де  $\tau$  – дотичні напруження,  $\alpha L$  – коефіцієнт температурного розширення,  $G$  – модуль зсуву,  $E$  – модуль пружності,  $T$  та  $T_0$  – початкова ( $20^{\circ}\text{C}$ ) та поточна температура,  $a$  – товщина шару клею,  $b$  – товщина шару NaI:Тl та ПС.

За результатами розрахунків та експериментів визначено загальні умови, що мінімізують напруження в шарі оптичного клею у сендвічі на основі NaI:Тl, полісилоксанового клею та полістиролу при температурах від  $-50$  до  $+70^{\circ}\text{C}$ :

- максимальний лінійний розмір пластин NaI:Тl складає до 350 мм;
- між пластинами NaI:Тl є технологічний зазор шириною 1–2 мм;
- товщина шару оптичного клею дорівнює 0,3–0,5 мм;
- необхідно використовувати полісилоксановий клей зі структурою гелю, що полімеризується за реакцією гідросилірування.

Для створення великої площі вхідної поверхні комбінованих детекторів, сцинтиляційний шар необхідно виготовляти у вигляді мозаїки з декількох кристалічних пластин (рис.3,а), або як композиційний шар на основі сцинтиляційних гранул та оптично прозорої еластичної основи (рис. 3,б).

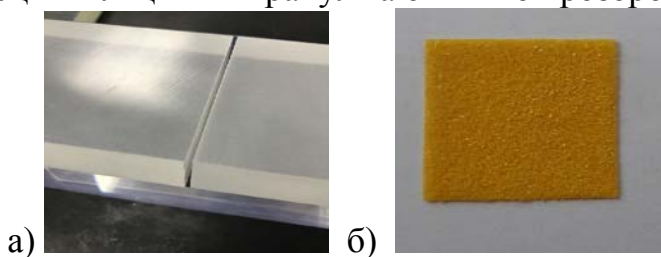


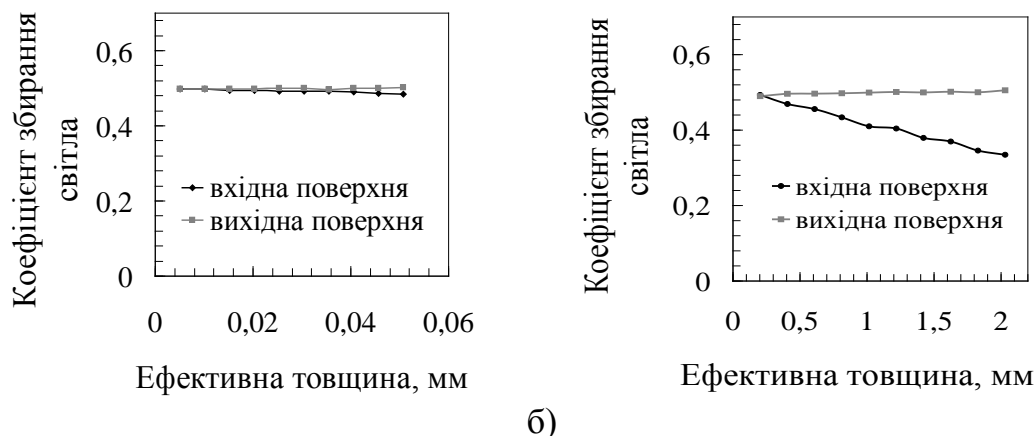
Рисунок 3 – Сцинтиляційний шар:

а) – мозаїка; б) – композиційний сцинтилятор

Мозаїчний дизайн підійде для виготовлення сцинтиляційних шарів з ефективною товщиною більше 1 мм, якщо необхідне повне поглинання випромінювання, а саме для реєстрації фотонів гамма-та рентгенівських квантів з енергією більше 100 кеВ, а також для виробництва спектрометричних

детекторів альфа- та бета-частинок. Композиційні шари товщиною 0,1–0,5 мм підійдуть для виготовлення комбінованих детекторів з високою однорідністю та поверхневою щільністю сцинтиляційних гранул, наприклад, для реєстрації альфа- та бета-частинок або фотонів рентгенівських квантів з енергією до 100 кеВ.

Композиційні сцинтилятори, що складаються з гранул та оптичної основи, мають низьку прозорість внаслідок розсіювання світла. В роботі проведено математичне моделювання умов збирання світла в композиційних шарах залежно від значень показників заломлення гранул та оптичної основи. Ослаблення світла після проходження через композиційні шари описана законом Бугера-Ламберта-Бера та виражено через коефіцієнти збирання світла. Встановлено, що під час виготовлення композиційних шарів товщиною до 100 мкм з гранул розміром 5–15 мкм, показники заломлення гранул ( $n_{\text{гранули}}$ ) та оптичної основи ( $n_{\text{основа}}$ ) мають бути максимально близькими (рис. 4,а).



а) б)  
Рисунок 4 – Залежність коефіцієнтів збирання світла від товщини шару:  
а)  $n_{\text{гранули, 5 мкм}} = 1,8 / n_{\text{основа}} = 1,8$ ; б)  $n_{\text{гранули, 200 мкм}} = 1,8 / n_{\text{основа}} = 1,4$ .

У даному випадку середовище має високу прозорість, тому коефіцієнти збирання світла біля вхідної поверхні шару (поруч з джерелом радіації) та біля вихідної поверхні шару (поруч з фотоприймачем) мало відрізняються. Прозорість композиційних шарів товщиною  $\geq 1$  мм з гранул розміром 100–500 мкм є низькою, але коефіцієнт збирання світла збільшується, якщо показник заломлення оптичної основи нижче, ніж у гранул (рис. 4,б). Цей ефект пояснюється дифузним відбиванням світла у віддаленій від фотоприймача частині шару, в результаті чого покращуються умови збирання світла. Для виготовлення сцинтиляційних композиційних шарів необхідні малокоштовні гранули зі світловим виходом більше 50000 фотонів/MeV, які мають форму, наближену до сферичної, та максимально прозору поверхню. Встановлено, що зазначеним вимогам відповідають кристалічні гранули CsI:Tl та гранули галій-гадолінієвого гранату, активованого церієм (GAGG:Ce), отримані твердофазним синтезом.

Для збільшення прозорості композиційних шарів та гранул CsI:Tl, розроблено операції технологічного процесу хімічного полірування поверхні гранул CsI:Tl етиленгліколом. У результаті прозорість композиційних шарів CsI:Tl товщиною 1 мм з гранул розміром 63–300 мкм збільшилася у 2,5–3 рази (рис. 5), а світловий вихід підвищився на 30% (рис. 6).

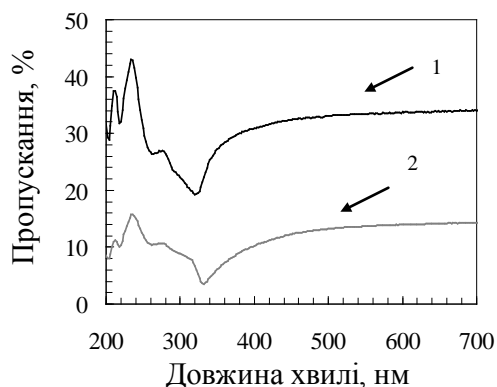


Рисунок 5 – Спектри пропускання CsI:Tl, гранули 63–300 мкм:  
1 – поліровані; 2 – необроблені

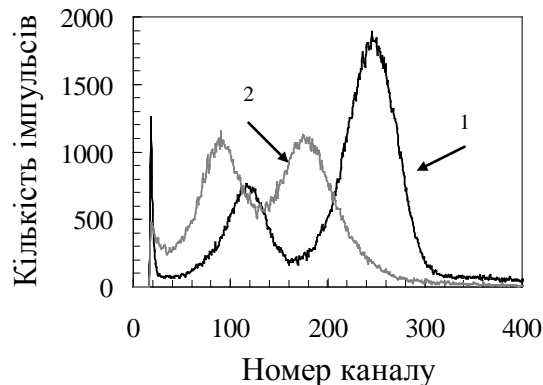


Рисунок 6 – Амплітудні спектри CsI:Tl (джерело  $^{241}\text{Am}$ ), гранули 63–300 мкм:  
1 – поліровані; 2 – необроблені

Розроблено технологічні операції процесу отримання гранул GAGG:Ce складу  $(\text{Gd}_{1-x}\text{Ce}_x)_3(\text{Al}_{0,48}\text{Ga}_{0,52})_5\text{O}_{12}$  ( $x=0,05-0,9$  ат.%) методом твердофазного синтезу. За результатами рентгенофазного аналізу вміст основної фази GAGG:Ce склав 99,6 %. (рис. 7). Встановлено, що концентрація  $\text{Ce}^{3+} = 0,12$  ат.% забезпечує найбільшу інтенсивність люмінесценції гранул GAGG:Ce (рис. 8).

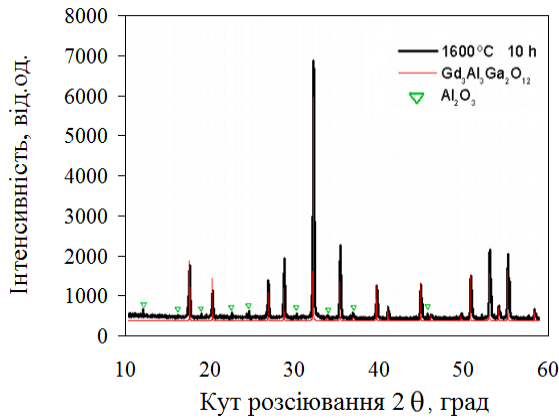


Рисунок 7 – Дифрактограма гранул GAGG:Ce

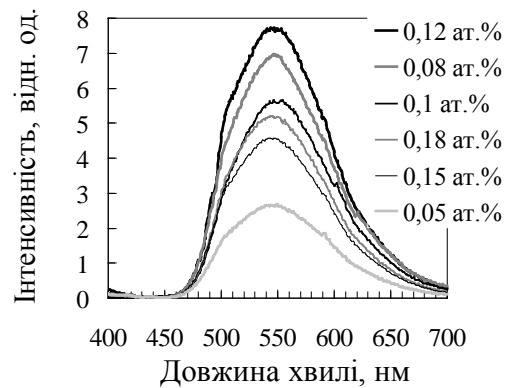


Рисунок 8 – Нормовані спектри люмінесценції композиційних шарів GAGG:Ce

Вирішення поставлених завдань дозволило розробити технологічні процеси виробництва складових елементів детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання з площею вихідної поверхні від  $1000 \text{ cm}^2$  для роботи при температурах від  $-50^\circ\text{C}$  до  $+70^\circ\text{C}$  та вдосконалити технологічні процеси отримання гранул CsI:Tl та GAGG:Ce для виготовлення сцинтиляційних шарів комбінованих детекторів, які реєструють фотони гамма-випромінювання та фотони низькоенергетичних рентгенівських квантів.

**Третій розділ** присвячений розробленню технологічних процесів виготовлення комбінованих детекторів великої площі для реєстрації надмалих потоків фотонів гамма-випромінювання. Сендвіч детекторів складається зі сцинтиляційного шару NaI:Tl або CsI:Tl, світлопровідного шару на основі сцинтиляційного полістиролу та полісилоксанової гель-композиції між ними. Запропонований детектор поєднує переваги NaI:Tl та ПС: спектрометрію та високу ефективність реєстрації фотонів гамма-квантів у діапазоні енергій 20 – 3000 кеВ. Встановлено, що відносна ефективність реєстрації комбінованого детектора вище, якщо шар NaI:Tl розташований зі сторони вхідної поверхні.

Математичне моделювання сцинтиляційних процесів у комбінованому детекторі на основі NaI:Tl та ПС методом Монте Карло дозволило оцінити перспективу об'єднання сцинтиляторів NaI:Tl та ПС в одному комбінованому детекторі для РПМ. Під час симуляцій враховано фізичні параметри матеріалів детектора, довжина пробігу фотонів, види обробки поверхні та форма поверхні сцинтиляторів. У результаті отримано загальні спектри амплітуд імпульсів комбінованого детектора та складові спектра від NaI:Tl, ПС та одночасно від NaI:Tl з ПС. Встановлено, що відносна ефективність реєстрації комбінованого детектора на основі NaI:Tl та ПС для енергій 20 – 150 кеВ удвічі вище, ніж у NaI: Tl та в 4 рази вище, ніж у ПС. Це пояснюється тим, що під дією радіаційного

джерела в шарі ПС виникають гамма-кванти зворотного розсіювання  $\gamma'$ , які потім реєструються в шарі NaI:Tl (рис.9). Наприклад, ідентифікація  $^{137}\text{Cs}$  здійснюється за рахунок наявності в спектрі піку повного поглинання від NaI:Tl ( $E_\gamma=662$  кеВ) та додаткового піку зворотного розсіювання в NaI:Tl та ПС ( $E_\gamma=290$  кеВ) (рис. 10). Відповідно до розрахункових даних, кількість таких подій дорівнює  $\sim 20\%$ .

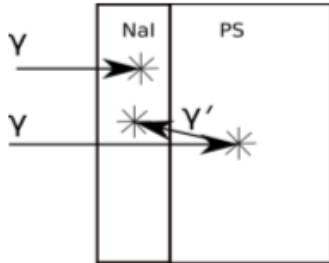


Рисунок 10 – Схема сцинтиляційних процесів у комбінованому детекторі

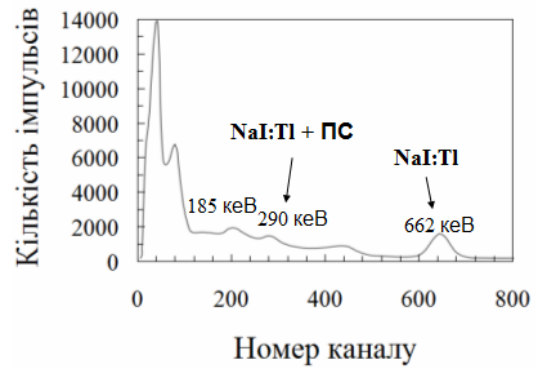


Рисунок 9 – Амплітудний спектр комбінованого детектора (моделювання)

За результатами досліджень розроблено два типи комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання, що працюють в лічильному та спектрометричному режимах визначення радіонуклідів.

Технологічний процес виготовлення лічильних комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання на основі композиційного шару CsI:Tl та сцинтиляційного полістиролу UPS-923A (CsI:Tl –ПС) включає такі етапи:

- виготовлення та обробка поверхонь заготовки ПС;
- отримання та полірування гранул CsI:Tl розміром 100–500 мкм в етиленгліколі, висушування гранул при  $+100^{\circ}\text{C}$  та відносній вологості повітря 0–2% протягом шести годин, відділення гранул CsI:Tl з розміром 63–300 мікрон;
- виготовлення композиційних сцинтиляторів CsI:Tl товщиною 1 мм;
- оптичне склеювання ПС з композиційними шарами CsI:Tl, формування відбивача світла та упаковка сцинтиляційного сендвічу CsI:Tl-ПС у корпус;
- монтаж фотоприймача R1306 Hamamatsu у світлозахисному корпусі;
- вимірювання сцинтиляційних характеристик комбінованого детектора.

Чутливість реєстрації комбінованого детектора CsI:Tl-ПС (рис. 11) вище на 22% під час опромінення джерелом  $^{137}\text{Cs}$  та вище на 78% під час опромінення джерелом  $^{241}\text{Am}$  порівняно з детектором на основі ПС (таблиця 1).



Рисунок 11 – Лічильний комбінований детектор CsI:Tl-ПС для реєстрації фотонів гамма-випромінювання

Таблиця 1 – Чутливість детекторів CsI:Tl-ПС та ПС

Тип детектора	Чутливість, імп/с·кБк	
	$^{241}\text{Am}$	$^{137}\text{Cs}$
CsI:Tl-ПС (51x500x1000 мм)	13,65	35,03
ПС (50x500x1000 мм)	7,64	28,59

Технологічний процес виробництва лічильних і спектрометричних комбінованих детекторів гамма-випромінювання з кристалічних пластин NaI:Tl та сцинтиляційного полістиролу UPS-923A (NaI:Tl-ПС) й включає такі етапи:

- виготовлення та обробка поверхонь заготовки ПС;
- шліфування та полірування заготовок NaI:Tl, матування вхідної поверхні пластин NaI:Tl дрібнодисперсним абразивом;
- оптичне склеювання заготовки ПС та пластин NaI:Tl за допомогою полісилоксанової гель-композиції;
- формування шару відбивача світла на поверхні сендвічу NaI:Tl-ПС;
- пакування сендвічу NaI:Tl-ПС у герметичний світлозахисний корпус;
- монтаж одного фотоприймача R1306 у світлозахисному корпусі (для реєстрації фотонів гамма-випромінювання в лічильному режимі);
- монтаж двох фотоприймачів R1306 у світлозахисному корпусі (для реєстрації фотонів гамма-випромінювання в спектрометричному режимі);
- вимірювання сцинтиляційних характеристик комбінованого детектора.

Чутливість комбінованого детектора NaI:Tl-ПС вище на 68% порівняно з детектором ПС та вище на 30% порівняно з детектором NaI:Tl під час опромінення джерелом  $^{137}\text{Cs}$ . Під час опромінення джерелом  $^{241}\text{Am}$  чутливість детектора у 6 разів вище, ніж у ПС та на 67% вище, ніж у NaI:Tl. Під час опромінення джерелом  $^{232}\text{Th}$  чутливість детектора на 75% вище порівняно з ПС та на 50% вище порівняно з NaI:Tl (табл. 2). Під час опромінення колімованим джерелом  $^{37}\text{Cs}$  енергетичне розділення детектора NaI:Tl-ПС не перевищує 8,5% ( $E_\gamma = 662 \text{ кеВ}$ ).



Рисунок 12 – Спектрометричний комбінований детектор NaI:Tl-ПС для реєстрації фотонів гамма-випромінювання

Таблиця 2 – Чутливість детекторів NaI:Tl-ПС, NaI:Tl та ПС

Тип детектора	Чутливість, імп/с·кБк		
	$^{137}\text{Cs}$	$^{241}\text{Am}$	$^{232}\text{Th}$
NaI:Tl-ПС (60x100x1000 мм)	4,22	0,90	0,21
NaI:Tl (50x100x400 мм)	3,23	0,54	0,14
ПС (50x100x1000 мм)	2,50	0,15	0,12

У результаті досліджень розроблено два типи комбінованих детекторів для РПМ, що працюють в спектрометричному та лічильному режимах реєстрації фотонів гамма-випромінювання. Визначено фізико-технічні параметри виготовлення комбінованих детекторів. Розроблені в роботі технологічні операції обробки поверхні сцинтиляторів, а також використання двох фотоприймачів забезпечили спектрометрію гамма-радіонуклідів та неоднорідність світлового виходу комбінованих детекторів  $\pm 7\%$ .

**Четвертий розділ** присвячено розробленню технології виготовлення комбінованих детекторів для реєстрації альфа- та бета-частинок на основі гетерогенного сцинтиляційного шару з селеніду цинку, активованого алюмінієм ( $\text{ZnSe:Al}$ ) та світлопровідного шару з поліметилметакрилату (ПММА). В цей час

для реєстрації альфа- та бета-частинок широко використовують детектори на основі двох сцинтиляторів: фосфору ZnS:Ag та ПС, але недоліком ZnS:Ag є висока фосфоресценція та реєстрація радіонуклідів переважно в лічильному режимі.

Основні вимоги, які висувають до альфа-бета-детекторів – це висока чутливість реєстрації альфа- та бета-частинок та їхня спектрометрична ідентифікація, відсутність фосфоресценції у сцинтиляційному матеріалі, площа детектуючої поверхні від 30 см<sup>2</sup> та неоднорідність світлового виходу по детектуючій поверхні  $\pm 2\%$ . Використання сцинтилятора ZnSe:Al дозволяє виготовити детектори, що задовольняють зазначені вимоги, на основі одного альфа-бета-чутливого матеріалу.

В роботі розроблено технологічний процес виготовлення комбінованих детекторів ZnSe:Al, що спектрометрично визначають альфа- та бета-частинки. Висока чутливість реєстрації детектора забезпечується за рахунок запропонованого в роботі гетерогенного шару з гранул ZnSe:Al, який складається з альфа-чутливого та бета-чутливого підшарів та одночасно реєструє обидва типи випромінювання. Розроблення гетерогенного шару ZnSe:Al проведено з урахуванням довжин пробігу альфа- та бета-частинок у сцинтиляторі та умов збирання світла в слабкопрозорих композиційних шарах. Для збирання та передачі світла на фотоприймач, у конструкції детекторів використаний світлопровідний шар з ПММА, який не має полос поглинання в області люмінесценції ZnSe:Al. Встановлено, що максимальна чутливість реєстрації альфа-частинок комбінованим детектором ZnSe:Al забезпечується, якщо альфа-чутливий підшар має товщину 0,1 мм та такий склад: розмір гранул 40 – 63 мкм, вміст гранул – 80 ваг.%, вміст акрилатного лаку – 20 ваг.%. Використання водорозчинного акрилатного лаку як оптичної основи для гранул забезпечує ефективне поглинання альфа-частинок безпосередньо у гранулах. Встановлено, що після випаровування розчинника лаку на поверхні гранул ZnSe:Al утворюється шар лаку товщиною 1–3 мкм, який знижує величину чутливості реєстрації детектора не більше, ніж на 5%. Розроблений бета-чутливий підшар товщиною 0,7 мм має склад: розмір гранул 100–140 мкм, вміст гранул – 80 ваг.%, вміст водорозчинного акрилатного лаку – 20 ваг.%. Підшар даного складу пропускає не менш ніж 11% світла, що забезпечує відносну ефективність реєстрації бета-частинок  $\sim 30\%$  та однорідність світлового виходу по площі більше, ніж 95%.

Технологічний процес виготовлення комбінованих детекторів альфа- та бета-частинок складається з таких етапів:

- отримання гранул ZnSe:Al розміром  $\leq 40$  мкм, 40–63 мкм, 100–140 мкм;
- виготовлення водно-спиртової суспензії з гранул розміром  $\leq 40$  мкм, отримання гранул розміром 5–15 мкм, 15–40 мкм та їхнє просушування;
- змішування гранул розміром 100–140 мкм з водорозчинним акрилатним лаком та нанесення отриманої суміші на світлопровідний шар з ПММА;
- нанесення другого шару з суміші гранул розміром 5–15 мкм або 15–40 або 40–63 мкм з акрилатним лаком;
- монтаж світлозахисної металізованої поліетилентерефталатної плівки зі сторони гетерогенного шару ZnSe:Al, монтаж фотоприймача у світлозахисному корпусі з протилежної сторони світлопровідного шару з ПММА;
- вимірювання функціональних параметрів комбінованого детектора.

Встановлено, що форма амплітуди сцинтиляцій від джерела  $^{239}\text{Pu}$  для комбінованого детектора (рис. 13) подібна до розподілу Гаусса (рис. 14).



Рисунок 13 – Комбінований детектор для реєстрації альфа- та бета-частинок на основі гетерогенного шару ZnSe:Al

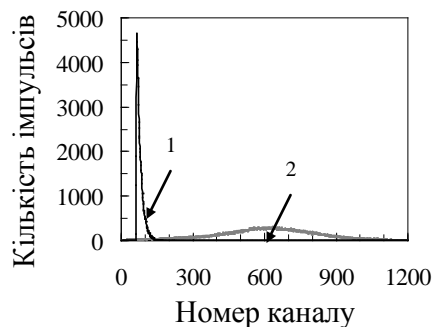


Рисунок 14 – Амплітудні спектри детектора ZnSe:Al (гранули 40-63 мкм, 100–140 мкм):  
1 –  $^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$ , 2 –  $^{239}\text{Pu}$

Детектор розділяє ізотопи  $^{239}\text{Pu}$  та  $^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$  за енергією та має чутливість реєстрації вище, ніж у детектора на основі ZnS:Ag та ПС (табл. 3).

Таблиця 3 – Сцинтиляційні характеристики альфа- бета-детекторів

Сцинтилятор	Розмір гранул, мкм	Чутливість, імп./с·Бк		Неоднорідність світлового виходу, %	
		$^{239}\text{Pu}$	$^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$
ZnSe:Al	40 – 63, 100 – 140	0,32	0,34	±2,0	±2,2
ZnS:Ag – ПС	5	0,25	0,30	-	-

Таким чином, розроблені технологічні процеси дозволили виготовити комбіновані детектори на основі гетерогенних шарів ZnSe:Al з роздільною реєстрацією альфа- та бета-частинок та чутливістю реєстрації альфа-частинок на 26% більше та бета-частинок на 14% більше, ніж у детекторів на основі фосфору ZnS:Ag, нанесеного на сцинтиляційну пластмасу.

**П'ятий розділ** присвячено розробленню технологічних процесів виготовлення комбінованих детекторів великої площі для реєстрації фотонів низькоенергетичних рентгенівських квантів (для візуалізації об'єктів). Основою детекторів є сцинтиляційний сендвіч, на основі композиційного шару товщиною 80–100 мкм з гранул GAGG:Ce або CsI:Tl розміром 1–15 мкм та волоконно-оптичної пластини (рис. 15), що забезпечує такі параметри:

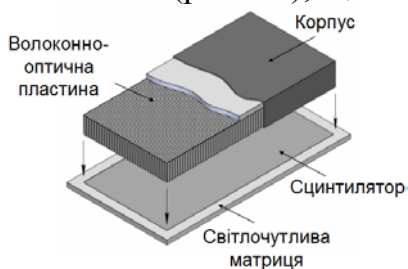


Рисунок 15 – Схема комбінованого детектора для реєстрації фотонів низькоенергетичних рентгенівських квантів

- високий світловий вихід та просторове розділення більше 3,5 пар ліній/мм;

- неоднорідність світлового виходу по входній детектуючій поверхні ±2%.

Визначені способи підвищення прозорості та просторового розділення комбінованих детекторів:



- 1) за рахунок оптимізації концентрації активатора в гранулах;
- 2) за рахунок зменшення різниці показників заломлення матеріалів гранул та оптичного клею.

Підвищення просторового розділення комбінованих детекторів GAGG:Ce виконано за рахунок оптимізації концентрації  $\text{Ce}^{3+}$  в сцинтиляційних гранулах. Значення просторового розділення ( $SR$ ) детекторів розраховано згідно з рівнянням:  $SR = 1/D$ , де  $D$  – сума діаметру дроту та відстані між дротами еталонного зразка EN 462-5 Duplex IQ. Залежність численних значень просторового розділення комбінованих детекторів GAGG:Ce від концентрації  $\text{Ce}^{3+}$  показана в таблиці 4. Отримані результати підтверджують, що оптимальна концентрація  $\text{Ce}^{3+}$  в гранулах GAGG:Ce складає 0,12 ат.%, та забезпечує просторове розділення комбінованого детектора 3,85 пар ліній/мм.

Таблиця 4 – Залежність просторового розділення ( $SR$ ) детекторів GAGG:Ce від концентрації  $\text{Ce}^{3+}$

Концентрація $\text{Ce}^{3+}$ , ат.%	Номер дроту	$SR$ , пар ліній/мм
0,02	7D	2,50
0,05	7D	2,50
0,08	8D	3,13
0,12	9D	3,85
0,15	8D	3,13
0,18	8D	3,13

Вирішене завдання підвищення ефективної товщини композиційного шару GAGG:Ce за рахунок використання волоконно-оптичної пластини марки В7D61-6 (INCOM, Inc.). Це дозволило збільшити на 25% просторове розділення детекторів на основі сцинтиляційних шарів GAGG:Ce товщиною 0,1 – 0,25 мм (табл. 5).

Таблиця 5 – Залежність просторового розділення ( $SR$ ) комбінованих детекторів на основі гранул від наявності волоконно-оптичного світловоду

Світловод	Товщина сцинтиляційного шару, мм	Номер дроту	$SR$ , пар ліній/мм	Неоднорідність світлового виходу, %
Немає	0,10	8D	3,13	7
В7D61-6	0,10	9D	3,85	6
Немає	0,25	6D	2,00	5
В7D61-6	0,25	7D	2,50	5

Просторове розділення комбінованих детекторів GAGG:Ce та CsI:Tl також підвищено шляхом зменшення різниці показників заломлення матеріалу сцинтиляційних гранул та оптичного клею. При збільшенні показника заломлення оптичного клею з 1,40 до 1,55 просторове розділення детекторів підвищується на 30% (табл. 6).

Таблиця 6 – Залежність просторового розділення ( $SR$ ) комбінованих детекторів на основі гранул GAGG:Ce від показника заломлення оптичного клею

Показник заломлення $n$		Номер дроту	$SR$ , пар ліній/мм	
GAGG:Ce / CsI:Tl	Оптичний клей		GAGG:Ce	CsI:Tl
1,80 / 1,79	1,40	9D	3,85	3,85
1,80 / 1,79	1,55	10D	5,00	5,00

Проведені дослідження дозволили розробити технологічний процес виготовлення комбінованих детекторів для реєстрації фотонів рентгенівських квантів з площею вхідної поверхні до 400 см<sup>2</sup>, який складається з таких етапів:

- отримання сцинтиляційних гранул GAGG:Ce методом твердофазного синтезу;
- отримання сцинтиляційних гранул CsI:Tl шляхом подрібнення монокристалів, полірування гранул CsI:Tl етиленгліколем;
- відділення сцинтиляційних гранул з розміром 1–15 мкм;
- виготовлення композиційного шару товщиною 0,1 мм (рис.16);

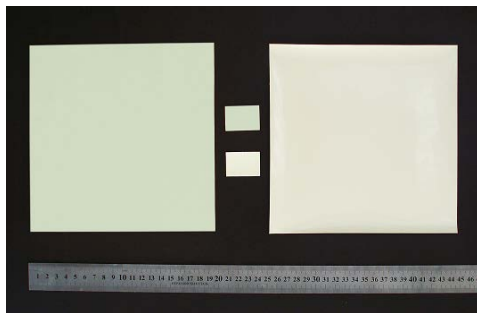


Рисунок 16 – Сцинтиляційні композиційні шари GAGG:Ce (ліворуч) та CsI:Tl (праворуч)

- формування відбивача світла на вхідній поверхні композиційного шару;
- склеювання сцинтиляційного шару зі світлопровідним шаром (волоконно-оптичною пластиною);
- монтаж фотоприймача на вхідну поверхню сцинтиляційного сендвічу;
- монтаж захисного корпусу детектора;
- вимірювання функціональних параметрів детекторів.

Проведено 30 циклів «нагрівання-охолодження» сцинтиляційних сендвічей на основі гранул GAGG:Ce та оптичного клею СКТН-мед та клею Magic Crystal при температурах від -50<sup>o</sup>C до +70<sup>o</sup>C. Через 12 місяців після виготовлення просторове розділення комбінованих детекторів не змінилося (табл. 7).

Таблиця 7 – Просторове розділення ( $SR$ ) комбінованих детекторів на основі гранул GAGG:Ce після температурних випробувань -50<sup>o</sup>C – +70<sup>o</sup>C

Оптичний клей	Показник заломлення GAGG:Ce / клей	$SR$ , пар ліній/мм	
		Після виготовлення	Через 12 місяців
Полісилоксановий клей	1,80 / 1,40	3,85	3,85
Епоксидний клей	1,80 / 1,55	5,00	5,00

Просторове розділення комбінованих детекторів GAGG:Ce складає 5 пар ліній/мм (рис. 17, а), що на 25% краще, ніж у плоских панельних детекторів CsI:Tl або Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb (табл. 8).

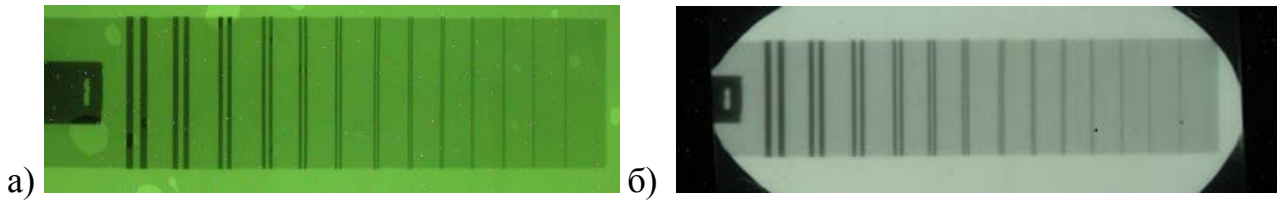


Рисунок 17 – Тіньове рентгенівське зображення комбінованих детекторів на основі: а) композиційного шару GAGG:Ce; б) композиційного шару CsI:Tl

Просторове розділення комбінованих детекторів CsI:Tl дорівнює 3,85 пар ліній/мм (рис. 17,б), що співпадає з даними для екранів KYOKKO Blue High Plus (табл. 8).

Таблиця 8 – Просторове розділення (*SR*) комбінованих детекторів для реєстрації фотонів рентгенівських квантів для візуалізації об'єктів

Тип детектора	Сцинтилятор	Довжина / ширина, мм	<i>SR</i> , пар ліній/мм
Комбінований	GAGG:Ce	200x200	5,00
Комбінований	CsI:Tl	200x200	3,85
Екран KYOKKO Blue High Plus	CaWO <sub>4</sub> + BaFBr:Eu	300x400	3,85
AirDR <sup>TM</sup> LE	CsI:Tl / Gd <sub>2</sub> O <sub>2</sub> S:Tb	432x432	3,50
PaqScan 2520DX	CsI:Tl / Gd <sub>2</sub> O <sub>2</sub> S:Tb	250x80	3,94

Результати досліджень підтверджують вирішення завдання розроблення технологічного процесу виготовлення комбінованих детекторів для рентгенівської візуалізації з функціональними параметрами краще, ніж у комерційних аналогів.

## ОСНОВНІ ВИСНОВКИ ТА РЕЗУЛЬТАТИ РОБОТИ

У дисертаційній роботі вирішено завдання підвищення чутливості реєстрації детекторів альфа-, бета-частинок і фотонів гамма-випромінювання, а також просторового розділення детекторів для реєстрації фотонів низькоенергетичних рентгенівських квантів шляхом розроблення технології виробництва комбінованих детекторів великої площі на основі сцинтиляційного сендвічу з органічних та неорганічних матеріалів.

При цьому отримано такі наукові та практичні результати:

1. Запропоновано технологію виробництва складових елементів комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-квантів з площею вхідної поверхні від 1000 см<sup>2</sup> на основі сцинтиляційного та світлопровідного шарів з неорганічних та органічних матеріалів, що відрізняються за лінійними коефіцієнтами теплового розширення у 4,5–7 разів. Спектрометричне визначення

радіонуклідів та стабільність функціональних параметрів детекторів при інтервалі температур від  $-50^{\circ}\text{C}$  до  $+70^{\circ}\text{C}$  забезпечується, якщо:

- для оптичного склеювання сцинтиляційного та світлопровідного шарів використовують полісілоксанові композиції зі структурою гелю, які полімеризуються за реакцією гідросилірування;
- товщина оптичного клею між сцинтиляційним та світлопровідним шарами дорівнює 0,3 – 0,5 мм для зменшення втрат сцинтиляційного світла;
- між пластинами неорганічного сцинтиляційного шару з максимальним лінійним розміром до 350 мм є технологічний зазор шириною 1 – 2 мм, який забезпечує зниження дотичних напружень в клейовому шві до розрахункових допустимих значень.

2. Визначено фізико-технічні параметри технологічного процесу виготовлення лічильних комбінованих детекторів великої площі на основі шарів NaI:Tl або CsI:Tl та сцинтиляційного полістиролу:

- наявність сцинтиляційного шару з пластин NaI:Tl товщиною 5–10 мм або композиційного шару CsI:Tl товщиною 1–2 мм з гранул розміром 63–300 мкм на поверхні шару сцинтиляційного полістиролу забезпечує чутливість реєстрації фотонів гамма-квантів з енергією 20–3000 кеВ на 30–80% вище, ніж у детекторів на основі монокристалу NaI:Tl або сцинтиляційного полістиролу;
- після хімічної поліровки поверхні гранул CsI:Tl етиленгліколем світловий вихід композиційного шару CsI:Tl товщиною 1 мм, виготовленого на основі гранул розміром 63–300 мкм, збільшується на 30%;
- для композиційних сцинтиляційних шарів товщиною 1 мм та вище з гранул розміром 100–500 мкм, коефіцієнт збирання світла підвищується на 17%, якщо показник заломлення оптичної основи нижче на 30%, ніж у гранул; це пов'язано з дифузним відбиванням світла в частині сцинтиляційного шару, віддаленій від фотоприймача.

3. Розроблено технологічний процес виробництва спектрометричних комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-квантів з площею вхідної поверхні від  $1000\text{ см}^2$  на основі монокристалічних пластин NaI:Tl та сцинтиляційного полістиролу. Детектори мають енергетичне розділення не більше 8,5% та ідентифікують радіонуклід  $^{137}\text{Cs}$  за рахунок наявності в спектрі амплітуд імпульсів піку повного поглинання від NaI:Tl ( $E_{\gamma}=662\text{ кеВ}$ ) та додаткового піку зворотного розсіювання в NaI:Tl та сцинтиляційному полістиролі ( $E_{\gamma}=290\text{ кеВ}$ ). Неоднорідність світлового виходу детектора по довжині складає  $\pm 7\%$  за рахунок використання двох фотоприймачів та обробки вхідної поверхні пластин NaI:Tl дрібнодисперсними абразивами.

4. Визначено фізико-технологічні параметри процесу виготовлення комбінованих детекторів для роздільної реєстрації альфа- та бета-частинок з площею вхідної поверхні до  $180\text{ см}^2$  на основі гетерогенного шару ZnSe:Al:

- склад та товщина гетерогенного шару ZnSe:Al комбінованих детекторів розроблений з урахуванням довжини пробігу альфа- та бета-частинок та умов збирання світла в гетерогенних системах, що розсіюють світло;
- використання альфа-чутливого підшару ZnSe:Al товщиною 0,10 мм з гранул розміром 40–63 мкм, бета-чутливого підшару ZnSe:Al товщиною 0,7 мм з

гранул розміром 100–140 мкм та водорозчинного акрилатного лаку забезпечує чутливість реєстрації альфа- та бета-частинок більше на 26% та 14%, ніж у детектора на основі ZnS:Ag та пластмасового сцинтилятора.

5. Удосконалено технологічні процеси виготовлення комбінованих детекторів великої площі для реєстрації низькоенергетичних фотонів рентгенівського випромінювання (для візуалізації об'єктів) на основі тонкошарового композиційного сцинтилятора GAGG:Ce з гранул, отриманих твердофазним синтезом, оптично з'єданого з волоконно-оптичною пластиною. Просторове розділення комбінованих детекторів на 25% краще, ніж у плоскопанельних детекторів з матрицею на тонкошарових транзисторах, виготовлених на основі сцинтиляційних екранів CsI:Tl або Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb за рахунок того, що:

- оптимальна концентрація Ce<sup>3+</sup> дорівнює 0,12 ат.%;
- прозорість композиційного шару товщиною 0,1 мм з гранул розміром 1–15 мкм збільшена шляхом підвищення показника заломлення оптичної основи.

## ПЕРЕЛІК ПРАЦЬ, ОПУБЛІКОВАНИХ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

1. 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*, Q3).
2. 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*.)
3. Gerasymov I., Nepokupnaya T., Boyarintsev A., Opolonin O., Tretyak S. GAGG:Ce composite scintillators for X-ray imaging. *Optical Materials*. 2020. Vol. 109, 110305 (*Scopus*, Q1)
4. Непокупна Т.А., Бояринцев А.Ю., Галкін С.М., Сібілева Т.Г., Онуфрієв Ю.Д., Колесніков О.В. Сучасна інженерія детекторів альфа- та бета-випромінювання. *Радиоелектроника и інформатика*, 2020, Т.91, № 4, С.4–10.
5. Непокупна Т.А., Колесніков О.В., Бояринцев А.Ю., Тарасов В.О., Тавровський І.І. Особливості реєстрації гамма-випромінювання комбінованими сцинтиляційними детекторами. *Радиоелектроника и інформатика*, 2020, Т. 90, № 3, С. 4–9.
6. Бояринцев А.Ю., Непокупна Т.А., Онуфрієв Ю.Д., Сібілева Т.Г. Комбінований детектор гамма-випромінювання: пат. 126169 Україна. №u20171289; заявл. 26.12.2017; опубл. 11.06.2018; Бюл.№ 11.
7. Ananenko A., Boyarintsev A., Bobovnikov A., Gektin A., Kovalchuk S., Nepokupnaya T., Onufriyev Yu., Pedash V. Combined detectors for registration of low-energy  $\gamma$ -radiation: матеріали *The Fifth International Conference on Engineering of scintillation materials and radiation technologies ISMART 2016*, (Minsk, 2016.). Minsk, 2016. P.16.
8. Boyarintsev A., Bobovnikov A., Gektin A., Gerasimov Ya., Kovalchuk S., Nepokupnaya T., Onufriyev Yu., Tarasov V., Composite scintillators for neutron and

X-ray detection: матеріали *2016 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference*, (Strasbourg, 2016). Strasbourg 2016. P.29.

9. Gerasymov Ia., Nepokupnaya T., Boyarintsev A., Sidletskiy O., Kurtsev D., Voloshyna O., Onufriyev Yu., Grynko T., Trubaeva O., Pedash V. Materials based on oxide compounds for composite scintillators: матеріали *International Conference on Oxide Materials for Electronic Engineering – fabrication, properties and application OMEE-2017* (Lviv, 2017.). Lviv, 2017. P. 132.

10. Boyarintsev A., Bobovnikov A., Gektin A., Gerasimov Ia., Kovalchuk S., Nepokupnaya T., Onufriyev Yu., Opolonin O. Composite films for X-ray imaging: матеріали *2017 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference*, (Atlanta, 2017.). Atlanta 2017. P.2238.

11. Nepokupnaya T.A., Boyarintsev A.Yu., Galkin S.N., Gektin A.V., Gerasymov Ia., Kovalchuk S.N., Minenko S.S., Onufriyev Yu.D., Sibilieva T.G., Tretyak S.E. New composite detectors for medical x-ray diagnostics: матеріали *The Sixth International Conference on Engineering of scintillation materials and radiation technologies ISMART 2018*, (Minsk, 2018). Minsk, 2018. P.75.

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

13. Boyarintsev A.Yu., Grynyov B.V., Nepokupnaya T.A., Onufriyev Yu.D., Sibilieva T.G., Zelenskaya O.V. Large area high-efficient spectroscopic alpha/beta detector: матеріали *2019 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference*, (Manchester, 2019). Manchester, 2019. P.1103.

14. Sobolev O., Boyarintsev A., Grynyov B., Nepokupnaya T., Onufriyev Y. High-efficient large-size gamma detector for radiation portal monitors: матеріали *Virtual IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference*, 2020. P.1872.

## АНОТАЦІЯ

**Непокупна Т.А. Технологія виробництва комбінованих детекторів іонізуючого випромінювання. – 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, 2021 р.

У роботі вирішено науково-прикладне завдання підвищення чутливості реєстрації детекторів альфа-, бета-частинок і фотонів гамма-випромінювання, а також просторового розділення детекторів для реєстрації фотонів рентгенівських квантів (для візуалізації об'єктів) за рахунок розроблення технологічних процесів виготовлення комбінованих детекторів великої площі.

У дисертаційній роботі проведено огляд та аналіз вимог до сучасних детекторів іонізуючого випромінювання, сформульовано вимоги до складових елементів комбінованих детекторів, а також встановлено технологічні операції

їхнього виготовлення. Запропоновано технологію виробництва складових елементів комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання з площею вхідної поверхні від  $1000 \text{ см}^2$  на основі матеріалів, що відрізняються за лінійними коефіцієнтами теплового розширення у 4,5 – 7 разів для роботи в інтервалі температур від  $-50^\circ\text{C}$  до  $+70^\circ\text{C}$ .

Розроблено технологічний процес виробництва спектрометричних та лічильних комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання з площею вхідної поверхні від  $1000 \text{ см}^2$  на основі монокристалічних пластин  $\text{NaI:Tl}$ , оптично з'єднаних з пластиною сцинтиляційного полістролу. Енергетичне розділення комбінованого детектора не перевищує 8,5% під час опромінення колімованим джерелом  $^{137}\text{Cs}$  ( $E_\gamma = 662 \text{ кеВ}$ ). Чутливість реєстрації фотонів гамма-квантів на 30% – 67% більше, ніж у детектора  $\text{NaI:Tl}$  ( $E_\gamma = 33 \text{ кеВ} - 2600 \text{ кеВ}$ ).

Вдосконалено технологічні операції виготовлення лічильних комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання з площею вхідної поверхні від  $1000 \text{ см}^2$  на основі композиційного сцинтилятора  $\text{CsI:Tl}$ , оптично з'єднаного з пластиною сцинтиляційного полістролу. Детектори мають чутливість реєстрації фотонів гамма-квантів на 22% більше під час опромінення джерелом  $^{137}\text{Cs}$  та на 78% більше під час опромінення джерелом  $^{241}\text{Am}$  порівняно з детектором на основі сцинтиляційного полістиролу.

Удосконалено та впроваджено у виробництво технологічний процес виготовлення спектрометричних комбінованих детекторів альфа- та бета-частинок з площею вхідної поверхні до  $180 \text{ см}^2$  на основі гетерогенного шару  $\text{ZnSe:Al}$  та світлопровідного шару з ПММА. Оптимальне поглинання альфа-частинок детектором забезпечується за рахунок альфа-чутливого підшару товщиною 0,05 – 0,1 мм, що складається з гранул  $\text{ZnSe:Al}$  розміром 5–63 мкм та водорозчинного акрилатного лаку як основи. Для виготовлення бета-чутливого підшару комбінованого детектора використаний композитний сцинтилятор  $\text{ZnSe:Al}$  товщиною 0,7 мм з гранул розміром 100–140 мкм, що пропускає не менш ніж 11% світла та забезпечує відносну ефективність реєстрації бета-частинок  $\sim 30\%$ . Детектори мають чутливість реєстрації альфа- та бета-частинок 0,32 імп/с·Бк та 0,34 імп/с·Бк під час опромінення джерелами  $^{239}\text{Pu}$  та  $^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$ , відповідно, що на 26% та 14% більше, ніж у детекторів на основі  $\text{ZnS:Ag}$  та сцинтиляційної пластмаси.

У роботі удосконалено технологічні операції виготовлення комбінованих детекторів фотонів низькоенергетичного рентгенівського випромінювання (для візуалізації об'єктів) з площею вхідної поверхні до  $400 \text{ см}^2$  на основі композиційного сцинтиляційного шару товщиною 0,1 мм з гранул  $\text{GAGG:Ce}$  або  $\text{CsI:Tl}$  розміром 1–15 мкм, який з'єднаний з волоконно-оптичною пластиною. Удосконалено процес твердофазного синтезу гранул  $\text{GAGG:Ce}$ , в результаті чого визначено оптимальну концентрацію  $\text{Ce}^{3+}$ , що забезпечує максимальний світловий вихід сцинтиляційного шару  $\text{GAGG:Ce}$ . Розроблені комбіновані детектори  $\text{GAGG:Ce}$  мають просторове розділення 5 пар ліній/мм, що на 25% краще, ніж у плоскопанельних детекторів з матрицею на тонкоплівкових транзисторах, виготовлених на основі екранів  $\text{CsI:Tl}$  або  $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S:Tb}$ .

**Ключові слова:** іонізуюче випромінювання, комбіновані сцинтиляційні детектори, чутливість реєстрації, просторове розділення, технологічний процес.

## АННОТАЦІЯ

**Непокупная Т.А. Технология производства комбинированных детекторов ионизирующего излучения. – Рукопись.**

Диссертация на соискание научной степени кандидата технических наук по специальности 05.27.06 – технология, оборудование и производство электронной техники. – Харьковський національний університет радіоелектроніки, г. Харьков, 2021 г.

В работе решена научно-прикладная задача повышения чувствительности регистрации детекторов альфа-, бета-частиц и фотонов гамма-излучения, а также пространственного разрешения детекторов для регистрации фотонов низкоэнергетических рентгеновских квантов (для визуализации объектов) за счет разработки технологических процессов изготовления комбинированных детекторов большой площади.

В диссертационной работе проведен обзор и анализ требований к современным детекторам ионизирующего излучения, сформулированы требования к составляющим элементам комбинированных детекторов. Предложена технология производства составляющих элементов комбинированных детекторов для регистрации фотонов гамма-излучения с площадью входной поверхности от 1000 см<sup>2</sup> на основе материалов, у которых линейные коэффициенты теплового расширения отличаются в 4,5 – 7 раз, для работы в интервале температур от –50<sup>0</sup>С до +70<sup>0</sup>С. Разработан и усовершенствован технологический процесс производства спектрометрических и счетных комбинированных детекторов для регистрации фотонов гамма-излучения с площадью входной поверхности от 1000 см<sup>2</sup> на основе NaI:Tl, CsI:Tl и сцинтилляционного полистирола с чувствительностью регистрации выше, чем у детекторов на основе NaI:Tl или сцинтилляционного полистирола. Энергетическое разрешение детекторов не превышает 8,5% при облучении коллимированным источником <sup>137</sup>Cs (E<sub>γ</sub> = 662 кеВ). Усовершенствован и внедрен в производство технологический процесс изготовления спектрометрических комбинированных детекторов для регистрации альфа- и бета-частиц с площадью входной поверхности до 180 см<sup>2</sup> на основе гетерогенного слоя ZnSe:Al и светопроводящего слоя из ПММА. Чувствительность регистрации детекторов выше, чем у детектора на основе ZnS:Ag и пластмассового сцинтиллятора. Усовершенствованы технологические операции изготовления комбинированных детекторов для регистрации фотонов низкоэнергетических рентгеновского излучения (для визуализации объектов) с площадью входной поверхности до 400 см<sup>2</sup> на основе композиционного слоя из гранул GAGG:Ce, полученных твердофазным синтезом, или кристаллических полированных гранул CsI:Tl, соединенного с волоконно-оптической пластиной. Пространственное разрешение детекторов выше, чем у плоскостовельных детекторов с матрицей на тонкопленочних транзисторах, изготовленных на основе экранов CsI:Tl или Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb.

**Ключевые слова:** ионизирующее излучение, комбинированные сцинтилляционные детекторы, чувствительность регистрации, пространственное разрешение, технологический процесс.



## SUMMARY

### **Nepokupnaya T.A. Technology of production of combined detectors of ionizing radiation. - 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, 2021.

The scientific and applied problem of increasing of sensitivity of detectors of alpha and beta particles and gamma photons, as well as increasing of spatial resolution of low-energy X-ray photons detectors (for objects visualizing) was solved in the work by developing of technological processes of large area combined detectors manufacturing.

The requirements for the elements of combined detectors were formulated. The technological process of production of elements of gamma radiation combined detectors with size of input window from 1000 cm<sup>2</sup> based on materials which differ of coefficients of linear thermal expansion by 4.5 – 7 times for operation in the temperature range from -50°C to + 70°C was developed. The technological process of production of spectrometric gamma radiation combined detectors with size of input window from 1000 cm<sup>2</sup> based on NaI:Tl single crystal plates and scintillation polystyrene was developed. The energy resolution was 8.5% when irradiated with collimated <sup>137</sup>Cs source ( $E_{\gamma} = 662$  keV) and sensitivity was higher than that of the NaI:Tl detector. The technological operations of production of counting gamma radiation combined detectors with size of input window from 1000 cm<sup>2</sup> based on CsI:Tl composite scintillator and scintillation polystyrene were improved. Sensitivity of detectors was higher than that of detector based on scintillation polystyrene. The technological process of production of alpha-beta spectrometric combined detectors with size of input window up to 180 cm<sup>2</sup> based on ZnSe:Al heterogeneous layers and PMMA light guide layer was improved. Sensitivity of detectors was higher than that of detector based on ZnS:Ag and plastic scintillator. Technological operations of production of combined detectors of low energy X-ray radiation (for objects visualizing) with size of input window up to 400 cm<sup>2</sup> were improved. Detectors based on composite scintillator made of GAGG:Ce granules obtained by solid-phase synthesis or CsI:Tl polished crystal granules and coupled with fiber-optic plate. The spatial resolution of detectors were better than that of X-ray flat panel detectors with a Thin-Film Transistor array based on CsI:Tl or Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb scintillation screens.

**Key words:** *ionizing radiation, combined detector, sensitivity, spatial resolution, technological process.*

Підп. до друку 30.07.21. Формат 60x84 1/16. Умов. друк. арк. 1,4.  
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.  
[er.zakaz@gmail.com](mailto:er.zakaz@gmail.com)  
тел. 063-993-62-73