

НАЦІОНАЛЬНА АКАДЕМІЯ НАУК УКРАЇНИ  
ІНСТИТУТ СЦИНТИЛЯЦІЙНИХ МАТЕРІАЛІВ

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ УКРАЇНИ  
ХАРКІВСЬКИЙ НАЦІОНАЛЬНИЙ УНІВЕРСИТЕТ РАДІОЕЛЕКТРОНІКИ

Кваліфікаційна наукова праця  
на правах рукопису

ОНУФРІЄВ ЮРІЙ ДМИТРОВИЧ

УДК539.1.074.3+620.179.155

## ДИСЕРТАЦІЯ

ТЕХНОЛОГІЯ ВИРОБНИЦТВА РАДІАЦІЙНО-СТІЙКИХ  
СЦИНТИЛЯЦІЙНИХ ДЕТЕКТОРІВ ДЛЯ ФІЗИЧНИХ ЕКСПЕРИМЕНТІВ

05.27.06 – технологія, обладнання та виробництво електронної техніки  
технічні науки

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата технічних наук

Дисертація містить результати власних досліджень. Використання ідей,  
результатів і текстів інших авторів мають посилання на відповідне джерело  
\_\_\_\_\_ Ю. Д. Онуфрієв

Науковий керівник: Бояринцев Андрій Юрійович, кандидат технічних наук

Цей примірник дисертаційної роботи  
ідентичний за змістом з іншими,  
поданими до спеціалізованої вченої ради Д 64.052.04

Вчений секретар спецради Д 64.052.04

Є. М.Одаренко

Харків 2021

## АНОТАЦІЯ

*Онуфрієв Ю.Д.* Технологія виробництва радіаційно-стійких сцинтиляційних детекторів для фізичних експериментів. – Кваліфікаційна наукова праця на правах рукопису.

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата технічних наук за спеціальністю 05.27.06 – технологія, обладнання та виробництво електронної техніки. – Інститут сцинтиляційних матеріалів НАН України. – Харківський національний університет радіоелектроніки, м. Харків, 2021.

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

У дисертаційній роботі розглянуто метод твердофазного синтезу для отримання сцинтиляційних гранул YSO:Ce та YAGG:Ce, що дозволяє використання сцинтиляційного матеріалу без стадії вирощування монокристалів. Досліджено оптичні, кінетичні та сцинтиляційні параметри цих гранул до та після опромінення до накопичених доз у 100 Мрад. За спектрами люмінесценції, часом загасіння сцинтиляційного імпульсу та зміною світлового виходу визначено, що радіаційна стійкість гранул, отриманих методом твердофазного синтезу, дозволяє їхнє використання у сучасних фізичних експериментах.

Проведено математичне моделювання та отримані експериментальні дані дозволили визначити конструктивні параметри сцинтиляційного шару з гранул YSO:Ce та YAGG:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу, введених в радіаційно-стійку оптично прозору основу. Досліджено вплив розміру сцинтиляційних гранул, їхню концентрацію в оптично прозорій основі та товщину композиційного шару, що забезпечують оптимальний світлозбір. Визначено, що розмір сцинтиляційних гранул має складати від 45 до 63 мкм, концентрація сцинтиляційних гранул в оптично прозорій основі має бути 75 ваг %, а оптимальна товщина композиційного шару становить від 0,6 до

1,2 мм. Використання світлопровідного шару над композиційним сцинтилятором залежно від показника заломлення дозволяє до 2,5 разів збільшити світловий вихід. У дисертаційній роботі для створення світлопровідного шару запропоновані радіаційно-стійкі оптично прозорі матеріали: полісилоксановий гель, кварцове скло та лейкосапфір. За змінами спектрів пропускання світла на довжинах хвиль від 400 до 800 нм до та після опромінення досліджено, що наведені матеріали залишаються радіаційно-стійкими до накопичених доз від 100 до 150 Мрад.

Запропоновано дизайн радіаційно-стійких сцинтиляційних елементів для випадків, або коли існує безпосереднє з'єднання сцинтиляційного елемента із фотоприймачем або коли світло від сцинтиляційного елемента передається до фотоприймача волокном, яке зміщує спектр сцинтиляцій.

Розроблено конструктивно-технологічне забезпечення виробництва сцинтиляційних елементів на основі композиційних сцинтиляторів з гранул YSO:Ce, введених в оптично прозору радіаційно-стійку основу, та світлопровідним шаром з полісилоксану, кварцового скла або лейкосапфіру з використанням волокна, яке зміщує спектр сцинтиляцій. Досліджено математичну модель, за якою розглянуто вплив конструктивних параметрів сцинтиляційного елемента на світловий вихід. Проведено аналіз радіаційної стійкості сцинтиляційного елемента, за яким визначено низьку радіаційну стійкість органічного волокна, що зміщує спектр сцинтиляцій. Проаналізовано спектри люмінесценції монокристалів YAG:Ce або YAGG:Ce, що мають радіаційну стійкість до накопичених доз у 100 Мрад та визначено суттєве перекриття їхніх спектрів поглинання зі спектром світіння YSO:Ce. Зпропоновано використання монокристалів YAG:Ce або YAGG:Ce як волокно, що зміщує спектр сцинтиляцій. Експериментально встановлено, що використання монокристалічних волокон з YAG:Ce або YAGG:Ce мають кращий світлозбір порівняно з органічним волокном, що забезпечує покращені сцинтиляційні параметри елемента. Досліджено неоднорідність світлового виходу залежно від розміщення джерела випромінювання на поверхні сцинтиляційного елемента. Визначено, що

однорідність світлового виходу складає 85 % з використанням монокристалічних волокон та близько 10 % з органічним волокном.

Розроблено конструктивно-технологічне забезпечення виробництва сцинтиляційних елементів на основі композиційних сцинтиляторів з гранул YAGG:Ce, введених в оптично прозору радіаційно-стійку основу, та світлопровідним шаром з полісилоксану або з пластмасового сцинтилятора з безпосереднім з'єднанням з фотоприймачем.

Проведений аналіз вимог фізичних експериментів дозволив визначити базовий підхід для створення детекторів великої площі. Згідно з концепцією детектори великої площі залежно від радіаційних навантажень має включати сцинтиляційний елемент на основі композиційного сцинтилятора зі світлозбираючим шаром, що є радіаційно-стійким до накопичених доз не менш ніж 50 Мрад або пластмасовий сцинтилятор, що витримує радіаційні навантаження до 5 Мрад.

Розроблено технологічний процес створення вищезазначених детекторів з дзеркальним відбивачем світла, що включає такі операції, як лазерний розкрій заготовки відбивача, автоматичне надання форми для утворення матриці, в отвори якої поміщають сцинтиляційні елементи. Такий підхід забезпечує наявність дзеркального відбивача на всіх гранях сцинтиляційних елементів. Вагомим недоліком промислових відбивачів світла (дифузних або дзеркальних) є їхня низька радіаційна стійкість. У дисертаційній роботі було розроблено композиційний дифузний відбивач на основі радіаційно-стійкого полісилоксану СКТН-мед (марка Е) з додаванням пігменту  $TiO_2$ . За спектрами відбиття світла до та після опромінення до накопичених доз у 100 Мрад визначено, що коефіцієнт відбиття складає більш 90 %, тобто відбивач світла є радіаційно-стійким.

Досліджено сцинтиляційні характеристики сцинтиляційних елементів з пластмасового сцинтилятора. Показано, що сцинтиляційні характеристики залежать від багатьох факторів. Так, для збільшення відносного світлового виходу сцинтиляційного елементу розглядався вплив способу отримання матеріалу сцинтилятора, а також обробка поверхонь та типу відбивача.

Механічна обробка алмазним інструментом зразка з блочкової полімеризації та полірований зразок, отриманий на термопластавтоматі (якість поверхні забезпечена обладнанням) не дають різниці у світловому виході. Поліровка плоских поверхонь зразка з блочкової полімеризації збільшує світловий вихід майже на 30 %. Поліровка бокових поверхонь та лунки під фотоприймач SiPM додають ще 6 % та 3 % відповідно. Всі вимірювання здійснювалися у дифузному відбивачі TYVEK. Дзеркальний відбивач ESR збільшує світловий вихід на 10 % порівняно з дифузним відбивачем TYVEK. Але, під час нанесення на бокові поверхні тайлу дифузного відбивача (пласкі поверхні у дзеркальному відбивачі ESR) світловий вихід збільшується ще на 3 %. Таким чином, залежно від обробки поверхонь та типу відбивача відносний світловий вихід тайлу можливо збільшити від 30 до 55 %.

Досліджено вплив залишку сцинтиляційного матеріалу між елементами. Залишок сцинтиляційного матеріалу товщиною 0,5 мм між елементами дозволяє «перетікати» 16 % світла з суміжного елемента. Такий саме залишок у нижній частині пропускає 1 %. Відсутність сцинтиляційного матеріалу не дає перетікання світла.

Розроблено конструктивно-технологічне забезпечення виробництва багатоелементного сцинтилятора на основі пластмасового або композиційного сцинтиляторів. Проведено кліматичні випробування у діапазоні температур від  $-30^{\circ}\text{C}$  до  $+60^{\circ}\text{C}$  для конструкції багатоелементного сцинтиляційного детектору з композиційним дифузним міжтайловим відбивачем, що доводять міцність такої конструкції. Тобто конструктивні та технологічні рішення, а саме використання створеного радіаційно-стійкого відбивач світла, специфіка його формування на багатоелементний сцинтиляційний детектор для неможливості перетікання світла між елементами, дозволяють виробляти сцинтиляційні детектори великої площі з безпосереднім контактом сцинтилятор – фотоприймач для роботи в зоні радіаційних навантажень.

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

**СПИСОК ПУБЛІКАЦІЙ ЗДОБУВАЧА**

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.
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.
3. Онуфриев Ю., Бояринцев А., Гектин А., Гринев Б., Ковальчук С., Непокупная Т. Светособирание 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. No. 1. P. 6–12.
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 радіаційностійкого 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. Радіаційностійкий 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 GPS:Ce, LYSO:Ce and YSO: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.

## ABSTRACT

*Onufriev Yu.D.* Technology of production of radiation-resistant scintillation detectors for physical experiments. – Qualification scientific paper, manuscript.

The dissertation on competition of a scientific degree of the candidate of technical sciences on a specialty 05.27.06 – technology, the equipment and manufacture of electronic equipment. – Kharkiv National University of Radio Electronics, Kharkiv, 2021.

The scientific-applied problem of production of radiation-resistant scintillation detectors for physical experiments by development of technological processes of creation of radiation-resistant scintillation elements is solved in the work.

In the dissertation work the method of solid – phase synthesis for obtaining scintillation granules YSO:Ce and YAGG:Ce is considered, which allows the use of scintillation material without the stage of growing single crystals. The optical, kinetic and scintillation parameters of these granules before and after irradiation to the accumulated doses of 100 Mrad were studied. According to the luminescence spectra, the attenuation time of the scintillation pulse and the change in light output, it was determined that the radiation resistance of the granules obtained by the method of solid-phase synthesis allows their use up to the accumulated doses of 100 Mrad.

Mathematical modeling was performed and the obtained experimental data allowed to determine the design parameters of the scintillation layer from YSO:Ce and YAGG:



Ce granules obtained by the method of solid-phase synthesis, introduced into a radiation-resistant optically transparent base. The influence of the size of scintillation granules, their concentration in an optically transparent base and the thickness of the composite layer, which provide optimal light collection, was studied. It is determined that the size of the scintillation granules should be 45-63  $\mu\text{m}$ , the concentration of scintillation granules in an optically transparent base should be 75 wt %, and the thickness of the composite layer should be 0.6-1.2 mm. The use of a light-conducting layer on a composite scintillator, depending on the refractive index, allows increasing the light output up to 2.5 times. In the dissertation work to create a light-conducting layer, radiation-resistant optically transparent materials are proposed: polysiloxane gel, quartz glass and leuco-sapphire. According to the changes in the light transmission spectra at the wavelength of 400-800 nm before and after irradiation, it was investigated that the above materials remain radiation-resistant to the accumulated doses of 100-150 Mrad.

The design of radiation-resistant scintillation elements is proposed for cases either when there is a direct contact of the scintillation element with the photodetector or when light from the scintillation element is transmitted to the photodetector by a fiber that shifts the scintillation spectrum.

Structural and technological support for the production of scintillation elements based on composite scintillators made of YSO:Ce granules, introduced into an optically transparent radiation-resistant base, and a light-conducting layer of polysiloxane, quartz glass or leuco sapphire using fiber that shifts the scintillation spectrum. A mathematical model is investigated, according to which the influence of the structural parameters of the scintillation element on the light output is considered. The analysis of radiation resistance of the scintillation element is carried out, according to which the low radiation resistance of the organic fiber shifting the scintillation spectrum is determined. The luminescence spectra of YAG:Ce or YAGG:Ce single crystals with radiation resistance to accumulated doses of 100 Mrad were analyzed and a significant overlap of their absorption spectra with the YSO:Ce luminescence spectrum was determined. The use of single crystals of YAG:Ce or YAGG:Ce as a fiber that shifts the scintillation

spectrum is proposed. It has been experimentally established that the use of single-crystal fibers with YAG:Ce or YAGG:Ce have a better light collection compared to organic fiber, which provides improved scintillation parameters of the element. The inhomogeneity of the light output depending on the location of the radiation source on the surface of the scintillation element is investigated. It was determined that the inhomogeneity of the light output is 15 % with the use of single-crystal fibers and about 90 % with an organic fiber.

Structural and technological support for the production of scintillation elements based on plastic scintillator or composite scintillators made of YAGG:Ce granules introduced into an optically transparent radiation-resistant base and a light-conducting layer made of polysiloxane with direct contact with a photodetector has been developed.

The analysis of the requirements of physical experiments allowed to determine the basic approach for the creation of large area detectors. According to the concept, large area detectors, depending on radiation loads, should include a scintillation element based on a composite scintillator with a light-collecting layer that is radiation-resistant to accumulated doses of at least 50 Mrad or a plastic scintillator that can withstand radiation loads up to 5 Mrad.

The technological process of creating the above detectors with a mirror reflector has been developed, which includes the following operations, such as laser cutting of the reflector blank, automatic shaping to form a matrix, in the holes of which scintillation elements are placed. This approach ensures the presence of a mirror reflector on all faces of the scintillation elements. The disadvantages of industrial light reflectors (diffuse or mirror) are their low radiation resistance and high cost. In the dissertation work, composite diffuse reflectors based on radiation-resistant polysiloxane SKTN-honey (brand E) with the addition of  $\text{TiO}_2$  pigment were developed. According to the light reflection spectra before and after irradiation to the accumulated doses of 100 Mrad, it was determined that the reflection coefficient is more than 90 %, and the light reflectance is radiation resistant.

The characteristics of scintillation elements from a plastic scintillator are investigated. It is shown that scintillation characteristics depend on many factors. To

increase the light output of scintillation elements from a plastic scintillator obtained by different methods of polymerization, as well as the influence of surface treatment and type of reflector were studied.

Machining with a diamond tool of the sample from block polymerization and the polished sample received on the automatic molding machine (quality of a surface is provided with the equipment) do not give a difference in a light output. Polishing the flat surfaces of the block polymerization sample increases the light output by almost 30 %. Polishing of side and holes under the SiPM photodetector add 6 % and 3 % respectively. All measurements were performed in a TYVEK diffuse reflector. The ESR mirror reflector increases the light output by 10 % compared to the diffuse reflector. But when applying a diffuse reflector (flat surfaces in the ESR mirror reflector) on the side surfaces of the tile, the light output increases by another 3 %. Thus, depending on the surface treatment and the type of reflector, the relative light output of the tile can be increased from 30 % to 55 %.

The influence of the scintillation material residue between the elements is investigated. The rest of the scintillation material with a thickness of 0.5 mm between the elements allows "flow" 16 % of light from the adjacent element. The same residue at the bottom passes 1%. The absence of scintillation material does not allow light to flow.

Structural and technological support for the production of a scintillator based on a plastic or composite scintillators has been developed. Climatic tests were performed in the temperature range  $-30^{\circ}\text{C} \dots + 60^{\circ}\text{C}$  for the design of a scintillation module with a composite diffuse tile reflector, which prove the strength of such a structure. That is, design and technological solutions, namely the use of the created radiation-resistant reflector, the specifics of its formation on a scintillation module for the impossibility of light flow between the elements, allow to produce large area scintillation modules with direct contact scintillator-photodetector to work in the radiation zone.

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

## ЗМІСТ

Вступ.....	15
Розділ 1. Огляд інформаційних джерел за темою дисертаційної роботи.....	22
1.1 Детектори в експериментах фізики високих енергій.....	22
1.2 Сцинтиляційні матеріали в експериментах фізики високих енергій..	25
1.2.1 Радіаційна стійкість сцинтиляційних матеріалів .....	25
1.2.2 Обмеження на використання монокристалічних неорганічних сцинтиляторів.....	26
1.3 Кінетичні властивості оксидних сцинтиляційних матеріалів.....	30
1.4 Технології виготовлення детекторів на основі композиційних сцинтиляторів.....	31
1.5 Спектросміщуючі волокна .....	35
1.6 Висновки до розділу 1.....	36
Розділ 2. Радіаційна стійкість сцинтиляційних гранул, отриманих без стадії вирощування монокристалів.....	38
2.1 Вибір методу синтезу сцинтиляційних гранул оксидних сполук.....	38
2.2 Отримання сцинтиляційних гранул методом твердофазного синтезу	40
2.2.1 Отримання сцинтиляційних гранул YSO:Ce.....	41
2.2.2 Сцинтиляційні характеристики гранул YSO:Ce.....	44
2.2.3 Отримання сцинтиляційних гранул YAGG:Ce.....	47
2.2.4 Сцинтиляційні характеристики гранул YAGG:Ce.....	49
2.3 Радіаційна стійкість сцинтиляційних гранул YSO:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу.....	52
2.3.1 Сцинтиляційні характеристики гранул YSO:Ce під дією радіаційних навантажень.....	54
2.3.2 Спектрально-кінетичні характеристики гранул YSO:Ce під дією радіаційних навантажень.....	55
2.4 Радіаційна стійкість сцинтиляційних гранул YAGG:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу.....	57

2.4.1 Сцинтиляційні характеристики гранул YAGG:Ce під дією радіаційних навантажень.....	58
2.4.2 Спектрально-кінетичні характеристики гранул YAGG:Ce під дією радіаційних навантажень.....	60
2.5 Висновки до розділу 2.....	62
Розділ 3. Свілозбирання у композиційному сцинтиляторі.....	63
3.1 Моделювання світлозбирання в композиційному сцинтиляторі.....	63
3.2 Експериментальне дослідження сцинтиляційних характеристик композиційного сцинтилятора.....	73
3.2.1 Технологічний процес виготовлення зразків композиційних сцинтиляторів на основі гранул YSO:Ce та YAGG:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу.....	73
3.2.2 Сцинтиляційні характеристики композиційних сцинтиляторів на основі гранул YSO:Ce, отриманих методом твердофазним синтезом.....	75
3.3 Вибір матеріалів світлопровідного шару для роботи в умовах радіаційних навантажень.....	76
3.4 Сцинтиляційний елемент на основі композиційного сцинтилятора..	78
3.5 Висновки до розділу 3.....	80
Розділ 4. Технологія виробництва сцинтиляційних детекторів з віддаленим фотоприймачем.....	82
4.1 Моделювання світлозбирання в сцинтиляційному елементі.....	83
4.2 Технологія виготовлення сцинтиляційних елементів з віддаленим фотоприймачем.....	86
4.3 Кінетичні характеристики сцинтиляційного елементу.....	88
4.4 Експериментальні дослідження характеристик сцинтиляційних елементів.....	90
4.5 Радіаційна стійкість сцинтиляційних елементів із віддаленим фотоприймачем.....	94
4.6 Висновки до розділу 4.....	96

Розділ 5. Технологія виготовлення сцинтиляційних детекторів з безпосереднім з'єднанням з фотоприймачем.....	98
5.1 Конструкційні особливості сцинтиляційних детекторів.....	98
5.2 Технологія виготовлення відбивача світла.....	100
5.3 Технологія виготовлення сцинтиляційних елементів на основі композиційних сцинтиляторів YAGG:Ce.....	105
5.3.1 Технологічний процес виготовлення сцинтиляційного елементу.....	105
5.3.2 Сцинтиляційні характеристики сцинтиляційного елементу.....	106
5.3.3 Радіаційна стійкість сцинтиляційного елементу.....	108
5.4 Технологія виготовлення багатоелементного сцинтиляційного детектора.....	109
5.4.1 Світлозбирання у сцинтиляційному елементі.....	110
5.4.2 Оптимізація з'єднання сцинтиляційних елементів для виготовлення детекторів великої площі.....	115
5.4.3 Формування відбивача світла на поверхні сцинтиляційного детектора великої площі.....	117
5.4.4 Технологія виготовлення сцинтиляційного детектора великої площі на основі сцинтиляційних елементів з полістиролу.....	119
5.4.5 Механічні властивості детекторів великої площі.....	121
5.4.6 Сцинтиляційні характеристики детектора великої площі.....	121
5.5 Висновки до розділу 5.....	124
Висновки.....	125
Перелік джерел посилання.....	127
Додаток А. Список опублікованих праць за темою дисертаційної роботи....	139
Додаток Б. Акти впровадження.....	142

## ВСТУП

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 світимість прискорювача – по  $300 \text{ фбн}^{-1}$  (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 світимість досягла  $3000 \text{ фбн}^{-1}$ . З такою світимістю 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, відносно 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 радіаційно-стійких 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 елемента з віддаленим фотоприймачем, у якому світло з сцинтиляційного елемента збирається за допомогою радіаційно-стійкого спектрозміщуючого волокна;
- розробити технологічний процес створення радіаційно-стійкого сцинтиляційного елемента 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 100 Мрад, 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 TiO<sub>2</sub>, 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 100 Мрад.

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 100 Мрад.

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 симпозіумах: 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, Біларусь), ОМЕЕ (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.

# РОЗДІЛ 1.

## ОГЛЯД ІНФОРМАЦІЙНИХ ДЖЕРЕЛ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЙНОЇ РОБОТИ

### 1.1 Детектори в експериментах фізики високих енергій

На Великому адронному колайдері працюють два великих (ATLAS і CMS) [1,2] і два середніх (ALICE і LHCb) [3,4] експерименти, а також кілька експериментів невеликого масштабу. Серед головних поставлених завдань на великому адронному колайдері були пошук і виявлення нових частинок і, перш за все, бозонів Хіггса (ATLAS, CMS) і рідкісних розпадів  $\beta$ -мезонів (LHCb), а також дослідження кварк-глюонної плазми у взаємодіях важких ядер (ALICE).

Для того щоб відновити картину зіткнення елементарних частинок, потрібно не просто дізнатися, які частинки народилися, але і з великою точністю виміряти їхні характеристики, перш за все, траєкторію, імпульс і енергію. Все це вимірюється за допомогою різних типів детекторів, які концентричними шарами оточують місце зіткнення частинок. Детектори елементарних частинок можна розбити на дві групи: трекові детектори, які вимірюють траєкторію частинок, і калориметри, які вимірюють їхні енергії. Трекові детектори намагаються простежити за рухом частинок, не вносячи при цьому ніяких спотворень. Калориметри, навпаки, повинні повністю поглинути частинку, щоб виміряти її енергію. В результаті виникає стандартна компоновка сучасного детектора: всередині розташовано декілька шарів трекових детекторів, а зовні – кілька шарів калориметрів, а також спеціальні мюонні детектори. Загальний вигляд типового сучасного детектора наведено на рис. 1.1.

Калориметрична система великих спектрометрів складається зазвичай з розташованих один за одним електромагнітних (ECAL) і адронних (HCAL) калориметрів.

Калориметри використовуються для вимірювання енерговиділення частинок і злив, їхніх координат, а також як тригери при відборі певних подій. Калориметри складаються або з пасивного і активного поглиначів у гетерогенних калориметрах, або з одного поглиначя в гомогенних калориметрах, який поєднує в собі роль обох поглиначів. Поглинання енергії частинок відбувається переважно в пасивному поглиначі, розміри якого мають бути досить великими для поглинання якомога більшої енергії частинок.

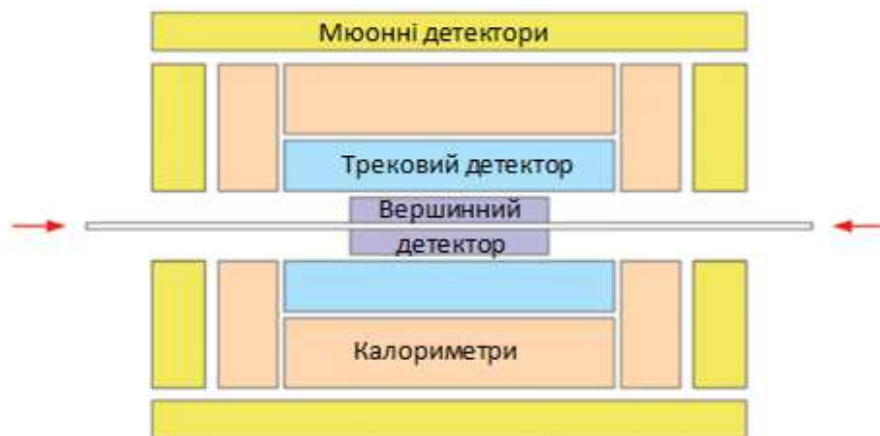


Рисунок 1.1 – Схема загального вигляду в розрізі типового сучасного детектора елементарних частинок

Наприклад, адронний тайл-калориметр спектрометра ATLAS [1] є «сендвіч»-калориметром, складеним із пластів пластин зі сталі та полістирольного сцинтилятора. Тайл-калориметр має три секції циліндричної форми, його внутрішні і зовнішні радіуси дорівнюють відповідно 2,28м і 4,25м. У калориметрі було використано близько 460тис. трапецеподібних тайлів 11 типорозмірів.

У детекторі CMS [2] барельні та торцеві калориметри складаються з гомогенного електромагнітного калориметра, зібраного з  $\sim 80\ 000$  кристалів  $\text{PbWO}_4$  і адронного калориметра типу «сендвіч», зібраного з шарів латунних і полістирольних тайлів, що чергуються між собою.

Подальші дослідницькі програми на великому адронному колайдері вимагають значного збільшення світимості прискорювача до  $300\ \text{фбн}^{-1}$  щороку [5] з 2021 року. При такій яскравості заряджені адрони, які після 2021 року зможуть

виробляти цілісний потік з щільністю, що досягає  $10^{14}$  частинок /  $\text{см}^2$ , стають важливим пошкоджуючим компонентом іонізуючого випромінювання поблизу зони зіткнення частинок. У загальному вигляді розподіл по зонах опромінення можна навести наступним чином (рис. 1.2). Зі збільшенням світимості близько 10 % площі детекторів ( $S_1$ ) опромінюватимуться до доз близько 100 Мрад. В цей час в цій області використовують неорганічні монокристали [2] або кремнієві сенсори [6]. Ще близько 25 % площі ( $S_3$ ) з радіаційними навантаженнями до 5 Мрад займають дешеві пластмасові сцинтилятори. Для найбільшої площі детекторів ( $S_2$ ), що складає близько 65 %, з радіаційними навантаженнями, що можуть досягати 50–70 Мрад, не можна використовувати пластмасові сцинтилятори у зв'язку з їхньою низькою радіаційною стійкістю [7], а обмеження для використання неорганічних радіаційно-стійких монокристалів – це висока вартість перекриття великих площ у сотні квадратних метрів за рахунок відсутності технологій з вирощування великогабаритних монокристалів і висока вартість їхнього отримання і обробки.

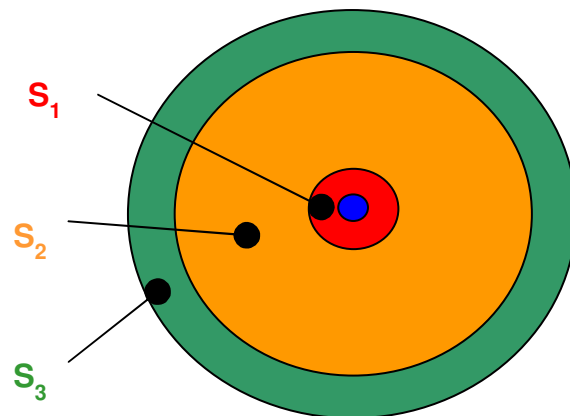


Рисунок 1.2 – Схематичне розташування зон радіаційних навантажень.  
 $S_1$ ,  $S_2$ ,  $S_3$  – площі детекторів, що можуть опромінюватися до доз близько 100 Мрад, до 70 Мрад та до 5 Мрад відповідно

Таким чином, вибір сцинтиляційних матеріалів з помірними радіаційними пошкодженнями під час опромінення високоенергетичними адронами, та створення детектуючих елементів на їхній основі є основним завданням під час підготовки наукового підґрунтя модернізації детекторів великого адронного колайдери.



## 1.2 Сцинтиляційні матеріали в експериментах фізики високих енергій

Майбутнє експериментів на великому адронному коллайдері протягом наступних кількох десятиліть цілком може зажадати детекторів, які можуть витримувати послідовно все вищу та вищу світність. Вже в експериментах ATLAS та CMS на великому адронному коллайдері стало зрозуміло, що будуть необхідні серйозні модернізації компонентів детектора, щоб дозволити їм витримати інтегровану світність у  $3000 \text{ фбн}^{-1}$  до 2025–30 років.

У зв'язку з цим до матеріалів детекторів висувають такі вимоги [8]:

- радіаційна стійкість компонентів калориметра для інтегрованих потоків більш  $10^{15}$  частинок /  $\text{см}^2$ ;
- швидкість детектора (швидка сцинтиляційна реакція матеріалу для можливості боротьби з накладанням імпульсів;
- достатній світловий вихід елементу детектора для мінімізації стохастичного внеску в роздільну здатність.

### 1.2.1 Радіаційна стійкість сцинтиляційних матеріалів

На сьогоднішній день пластикові сцинтиляційні детектори є одними з найбільш широко використовуваних приладів для виявлення частинок у ядерній фізиці та фізиці частинок високих енергій. Їхній швидкий час відгуку робить їх особливо привабливими для контрольно-вимірювальних приладів для експериментів з адронними коллайдерами з високою світністю. Різні дослідження показали, що вихід світла в пластиковому сцинтиляторі зменшується із збільшенням інтегрованого впливу іонізуючого випромінювання [9]. Цей ефект може бути спричинений деградацією полімеру або легуючої речовини. Подальші дослідження показали, що більшість з найбільш часто використовуваних легуючих домішок не деградують під дією опромінення, але деградує полімер. Більше того, радіаційно-індуковані пошкодження в полімері є більш значними в

синьо-фіолетовій спектральній області, де випромінює більшість стандартних пластикових сцинтиляторів.

Дослідженню радіаційної стійкості неорганічних сцинтиляційних матеріалів присвячено багато робіт. У роботах [10–12] наведено літературні дані рівня радіаційної стійкості деяких неорганічних сцинтиляторів. Так, для лужногалоїдних сцинтиляторів NaI(Tl), CsI(Tl) дози опромінення, що викликають помітне зниження сцинтиляційного світлового виходу, за критеріями, вказаними у [13], складають 0,1–1 Мрад. Вольфрамати ( $\text{PbWO}_4$ ,  $\text{CdWO}_4$ ,  $\text{ZnWO}_4$ ) витримують дози до 5 Мрад. Оксидні монокристали, такі як  $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ ,  $\text{Gd}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ ,  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$  [14–17] витримують радіаційні навантаження більше 10 Мрад. У роботі [18] зазначено, що властивості кристалів систематизовані, не в останню чергу завдяки властивостям симетрії, їхня залежність від атомного складу досить добре вивчена і може бути врахована під час його зміни, та отримані дані для окремих кристалічних сполук можуть бути екстрапольовані на їхні класи, що дозволяє виявити основні тенденції при розвитку ефектів радіаційного пошкодження. Таким чином, результати, отримані для кристала  $\text{Lu}_2\text{SiO}_5$ , можуть бути застосовні і до його структурного аналогу  $\text{Y}_2\text{SiO}_5$ , але з урахуванням суттєвої різниці в атомному номері першого катіона. Аналогічно екстраполяція може бути використана для кристалів перовскитів  $\text{YAlO}_3$  і  $\text{LuAlO}_3$ , гранатів  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  і  $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ , олівинів  $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  і  $\text{Bi}_4\text{Si}_3\text{O}_{12}$  та ін.

### **1.2.2 Обмеження на використання монокристаличних неорганічних сцинтиляторів**

Неорганічні сцинтиляційні матеріали становлять великий інтерес, як з точки зору застосування в детекторах іонізуючого випромінювання, так і як інструмент розвитку матеріалознавства. Серед них монокристали на основі оксидних сполук складної структури користуються все більшим попитом у промисловості, ядерної медицини та наукових дослідженнях. Зараз ці монокристали широко використовуються. Параметри стійкості сцинтиляційних матеріалів в

радіаційному середовищі є одними з найважливіших особливостей їхнього застосування в точних електромагнітних калориметричних детекторах. Головною перевагою синтетичних монокристалічних матеріалів є можливість контролювати їхні властивості шляхом регулювання умов синтезу кристалів [18]. У більшості випадків оксиди мають температуру плавлення до 2000°C або навіть більше.

Ріст штучних кристалів гранату добре відомий протягом десятиліть [19], і прийнято вважати, що зростання ітрій-алюмінієвого граната  $Y_3Al_5O_{12}$  (YAG) із розплаву може бути успішно здійснено практично будь-якою технікою росту з розплаву. З точки зору росту кристалів, YAG можна розглядати як типову кристалічну речовину, яка може відігравати роль еталонного матеріалу. Його аналог вищої щільності,  $Lu_3Al_5O_{12}$  (LuAG), має однакову кристалографічну структуру та фізико-хімічні властивості, що робить його вирощування порівняно простим. У роботі [20] було отримано об'ємні монокристали  $Lu_3Al_5O_{12}:Pr$  діаметром 2 дюйми та довжиною 110мм з використанням іридієвого тиглю, що мав розміри  $\varnothing 100 \times 100$  мм<sup>2</sup> і захищався від окислення атмосферою аргону (Ar).

Ще одним поширеним у використанні є гранат GAGG. Так у роботі [21] нелеговані кристали  $Gd_3(Ga_{1-x}Al_x)_5O_{12}$  отримували в атмосфері  $N_2 + 2\% O_2$  із порівняно невеликих розмірів, індукційно нагрітого, іридієвого тигля розміром  $\varnothing 50 \times 50$  мм<sup>2</sup>. Кристал, отриманий з розплаву  $Gd_{3.02}(Ga_{0.7}Al_{0.3})_{4.98}O_{12}$ , мав діаметр близько 30мм і довжину 60мм, і демонстрував розумну оптичну якість і не мав видимих дефектів.

$Y_3Al_{5-x}Ga_xO_{12}:Ce$  (YAGG: Ce) – це ще один змішаний гранатовий кристал, отриманий із потрібної катіонної системи  $Y_2O_3-Al_2O_3-Ga_2O_3$ . Незважаючи на те, що YAGG: Ce перевищує YAG: Ce за рівнем виходу світла, цей сцинтилятор був поза увагою завдяки меншому виходу світла та меншій щільності порівняно з багатокомпонентними гранатами на основі Lu та Gd. У YAGG утворюється безперервний діапазон твердих розчинів із гранатовою структурою від  $Y_3Al_5O_{12}$  до  $Y_3Ga_5O_{12}$ , тоді як у GAGG гранатова фаза існує від 20 ат % Ga. Структура електронних рівнів іонів  $Ce^{3+}$  в YAGG:Ce та GAGG:Ce є подібними.

У роботі [22] кристали  $Y_3(Al_{1-x}Ga_x)_5O_{12}:Ce$  (YAGG) із вмістом Ga 75 % і 85 %, діаметром 22–25 мм і довжиною 50–100 мм вирощували методом Чохральського за допомогою іридієвих тиглів діаметром 40 мм і висотою 30 мм.

Автори зазначають, що група кристалів YAGG:Ce з вмістом Ga 60 % і 75 % має швидкий час загасання сцинтиляцій, що становить 37 нс. Найкоротший основний компонент часу загасання імпульсу сцинтиляцій у 21 нс досягається у кристалах з вмістом Ga 75 %, содопованих  $Ca^{2+}$ .

У [23] методом Чохральського вирощували кристали  $Gd_3Ga_3Al_2O_{12}$ , модифікованих відповідним легуванням Ce. Подібно до [21], кристали вирощували із застосуванням іридієвого тигля з приблизно однаковими розмірами, також нагрітого індукційно. Атмосфера вирощування становила  $Ar_2$  та 1,5 %  $O_2$ . Цю атмосферу було обрано для запобігання окисленню тигля ( $Ar_2$ ) та зменшення випаровування  $Ga_2O_3$  з поверхні розплаву ( $O_2$ ) одночасно. Авторами було отримано кристали діаметром 25 мм і довжиною 80–120 мм з концентрацією легуючої речовини Ce 1,0 %, 2,0 % і 3,0 %.

Кристали вольфрамату, включаючи вольфрамат кадмію,  $CdWO_4$ , вольфрамат свинцю,  $PbWO_4$  та інші, є матеріалами високої щільності, які демонструють чудову зупиняючу здатність для рентгенівських та гамма-променів. Кристали вирощували в платинових тиглях.

Масове виробництво кристалів  $PbWO_4$  було добре встановлене ще кілька років тому. Про виготовлення та доставку понад тисячі сертифікованих сцинтиляційних елементів щомісяця повідомлялося ще в 2005 році [24]. Авторами зазначається, що отримані злитки мали розміри з перерізом близько до еліпса з довгою віссю від 36 до 86 мм та довжиною 250 мм.

Вольфрамат кадмію,  $CdWO_4$  – ще один сцинтиляційний кристал, що має велике значення, особливо для використання в комп'ютерній томографії та системах радіаційного контролю. Вироблені кристали у [25] мали розміри  $\varnothing 50 \times 150$  мм<sup>2</sup>. Кристали, як правило, були безбарвними і без видимих включень, коли фракція затвердіння не перевищувала третини частини вихідного розплаву і коли діаметр кристалів не перевищував 50 % діаметра тигля. Однак більші

кристали діаметром понад 60 мм містили макродефекти в серцевинній частині та в нижній частині кристалів.

Оксиортосилікати рідкісноземельних металів, леговані церієм, є ще одним класом оксидних кристалів, що сцинтилюють.  $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ ,  $\text{Y}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$  та  $\text{Gd}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$  широко використовуються для детектування гамма-променів та в інших застосуваннях.

Вирощування  $\text{Lu}_2\text{SiO}_5$  із стандартних іридієвих тиглів є порівняно важким, оскільки температура плавлення  $\text{Lu}_2\text{SiO}_5$  ( $2150^\circ\text{C}$ ) є відносно близькою до температури плавлення іридію. Про вирощування методом Чохральського кристалів  $\text{Lu}_2\text{SiO}_5$  діаметром 40-80 мм, залежно від умов росту, швидкості витягування та обертання, повідомляється в [26].

Про вирощування кристалів  $\text{Y}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$  із розплавів номінальних композицій  $\text{Ce}_{0,02}\text{Y}_{1,98}\text{SiO}_5$  в умовах, аналогічних описаним у вищезазначених абзацах, повідомляється в [27]. У [5] продемонстровано можливість вирощування відносно великих кристалів  $\text{Y}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$  діаметром до 50 мм і довжиною до 250 мм.

Оскільки попит на оксидні кристали та їхнє використання зростає, потреба у вирощуванні більших кристалів [28] (діаметром більше 75 мм) із поліпшеною якістю також зростає, тобто галузь росту кристалів оксиду йтиме тим самим шляхом, що і напівпровідникова промисловість, вартість якої стане головним фактором. Це вже сталося для кількох матеріалів, таких як  $\text{YAG}:\text{Nd}$  [29], сапфір ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) [30] та ін. Однак, на відміну від галузей напівпровідникової промисловості, адекватних моделей для проектування цих великих печей для росту кристалів оксидів не існувало, і їхня остаточна конфігурація базувалася на методології спроб і помилок, яка для цих великих систем може стати дуже коштовною. Наприклад, інвестиція в один великий іридієвий тигель може становити 100000 \$ [19]. Таким чином, стає необхідним розробляти моделі, які можна використовувати для масштабування та проектування великих систем росту оксидних кристалів.

Однак на цей час відсутність технологій вирощування великогабаритних оксидних монокристалів та велика собівартість накладає обмеження для їхнього

використання в масштабних проектах експериментів фізики високих енергій. Саме це ставить завдання на пошук альтернативних рішень використання радіаційно-стійких неорганічних сцинтиляційних матеріалів.

### 1.3 Кінетичні властивості оксидних сцинтиляційних матеріалів

Експерименти з фізики високих енергій є однією з потенційних сфер застосування кристалів неорганічних сцинтиляторів. Оскільки вольфрамат свинцю  $PbWO_4$  та інші сцинтилятори, що містять важкі елементи, сильно пошкоджуються високоенергетичними адронами в експериментах на колайдерах, модернізовані детектори для роботи при високій світимості мають базуватися на сцинтиляторах, що складаються з середніх важких атомів. Хоча GAGG:Ce досить щільний і містить нейтрончутливий  $Gd^{3+}$ , гранат ітрію здається більш актуальним для цього застосування. Оскільки на майбутніх колайдерах планується інтервал між зіткненням частинок у 25 нс [31], цільовий час затухання сцинтилятора має бути  $< 40$  нс. Однак, час загасання випромінювання  $Ce^{3+}$  у гранатів, що люмінесцують на довжинах хвиль 550–600 нм, ніколи не швидше 50 – 60 нс, через основне обмеження часу люмінесценції  $\tau \sim \lambda^3$  ( $\lambda$  – довжина хвилі випромінювання) [32]. Час загасання сцинтиляції навіть довший, враховуючи час, необхідний для транспортування носія до центру люмінесценції. Наприклад, швидка складова часу загасання сцинтиляції в YAG:Ce коливається від 55 до 120 нс [33–35], крім довгих компонентів із часом розпаду протягом сотень наносекунд. Отже, час затухання у 40 нс неможливо досягти у легованих  $Ce^{3+}$  гранатах, якщо не введено певний процес гасіння люмінесценції. Нещодавно було показано, що кінетика загасання люмінесценції у гранатів може бути скорочена за допомогою содопування двовалентними катіонами, такими як  $Ca^{2+}$  і  $Mg^{2+}$  [36]. Оскільки двовалентні іони, якими содопують, сприяють одночасному створенню діркових дефектів і глибоких електронних пасток, а також перетворенню деякої фракції  $Ce^{3+}$  в  $Ce^{4+}$ , виникає сильна конкуренція з неглибокими пастками для захоплення електронів із зони провідності, що сприяє швидкому спаду

сцинтиляцій. Однак поява дефектів нових дірок та глибоких електронних пасток через содопування з двовалентними катіонами також вводить деяке загасання люмінесценції, що зменшує сцинтиляційне світло.

Нижче наведено таблицю з основними параметрами деяких оксидних сцинтиляторів [37].

Таблиця 1.1 – Властивості сцинтиляторів загальних неорганічних оксидів

Назва	Формула	Щільність (г/мм <sup>3</sup> )	$Z_{\text{сфф}}$	Світловий вихід (фотонів/МеВ)	Первинний час загасання (нс)	Довжина хвилі люмінесценції (нм)
LSO:Ce	$\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$	7.40	66	35,000	32	420
GSO:Ce	$\text{Gd}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$	6,71	59	20,000	60	440
GPS:Ce	$\text{Gd}_2\text{Si}_2\text{O}_7:\text{Ce}$	5,50	58	30,000	46	380
YSO:Ce	$\text{Y}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$	4,50	60	10,000	42-70	420
YAG:Ce	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	4,56	74	20,000	70-120	550
YAP:Ce	$\text{YAlO}_3:\text{Ce}$	5,35	34	20,000	24	365
LuYAG:Ce	$\text{Lu}_{2.25}\text{Y}_{0.75}\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$	6.20	60	33,000	20	310
GGAG:Ce	$\text{Gd}_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}:\text{Ce}$	6,50	54	47,000	51	540

Таким чином, з вищесказаного найбільше вимогам сучасних фізичних експериментів відповідають такі сцинтиляційні матеріали: силікат YSO:Ce та гранат YAGG:Ce.

#### 1.4 Технології виготовлення детекторів на основі композиційних сцинтиляторів

Створення детекторів на основі композиційних сцинтиляторів є досить перспективним розв'язанням задачі перекриття великої площі, що потрібно, наприклад, у ході модернізації детекторів у експериментах фізики високих

енергій. Композиційний сцинтилятор – це механічно подрібнені монокристалічні гранули, що вводять у діелектричний двокомпонентний гель [38]. Щоб вибрати гранули необхідної фракції використовують відповідний набір сит. На рис.1.3 наведено схему структури композиційного сцинтилятора.

Оптична основа для створення композиційних сцинтиляторів має бути прозорою в області люмінесценції сцинтиляційних гранул та володіти достатнім рівнем радіаційної стійкості. У [39,40] автори досліджували світловий коефіцієнт пропускання як функцію інтегрованої дози випромінювання для комерційно доступних силіконових діелектричних гелів SKTN-med (20Пз та 100Пз), Sylgard-184 [41], Sylgard-186, Silgard-527 та SUREL-SL-1.

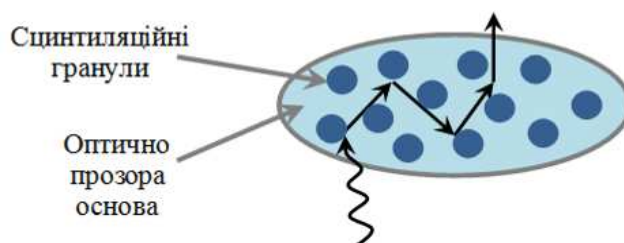


Рисунок 1.3 – Схема структури композиційного сцинтилятора

Зразки опромінювали електронами з енергією 9,2 МэВ з потужністю 1500 Мрад / год і фотонами гальмівного випромінювання зі швидкістю 230 Крад / год. Дослідження проводили до інтегрованих доз опромінювання близько 90 Мрад. Пропускання зразків практично не змінювалися зі збільшенням дози випромінювання. Для довжин хвиль світла довжиною більше 400 нм зменшення значень коефіцієнта пропускання не перевищувало похибки вимірювання у 5 %. Показано, що діелектричні гелі Sylgard-184 та Sylgard-186 є найбільш придатними для мети створення композиційних сцинтиляторів завдяки своїм механічним та оптичним характеристикам.

У роботі [42] були виготовлені зразки композиційних сцинтиляторів на основі гранул з подрібнених монокристалів  $Gd_2SiO_5:Ce$  (GSO) та  $Gd_2Si_2O_7:Ce$  (GPS). Основою та сполучною речовиною для гранул використовували діелектричний гель Sylgard-184 [41]. Авторами визначено механізми радіаційних



пошкоджень, а результати підтверджують, що композиційні сцинтилятори на основі гранул GSO або GPS є радіаційно-стійкими сцинтиляторами до накопичених доз у 200 Мрад та 250 Мрад, коли потужність дози становить 0,2 Мрад / год та 1500 Мрад / год, відповідно.

У [43] автори вивчали композиційні сцинтилятори на основі гранул легованих церієм силікатів гадолінію або піросилікатів гадолінію, як детектори теплових нейтронів. Як зазначається у [44,45] важко отримати кристали GPS:Ce та GSO:Ce дуже великого діаметру. Для отримання сцинтиляторів з великою площею явно потрібні вдосконалення техніки вирощування. Технологія отримання композиційних сцинтиляторів, показана в цій роботі [43], є набагато простішим способом виготовлення детекторів з великою поверхнею. Авторами виготовлено композиційний сцинтилятор діаметром 200 мм як з гранул, отриманих з неорганічних сцинтиляторів [43], так і отриманих дробленням органічних сцинтиляторів [46]. Згідно з [43] це був одношаровий композиційний сцинтилятор на основі гранул GSO:Ce з розміром від 0,1 до 0,5 мм.

Робота [47] присвячена дослідженню іншого перспективного матеріалу, а саме композиційних сцинтиляторів, що містять монокристалічні зерна  $Al_2O_3:Ti$ . Авторами для визначення властивостей композиційних сцинтиляторів, які містять кристалічні зерна  $Al_2O_3:Ti$  обрано саме цей матеріал із міркувань, що хімічний склад кристалічної решітки  $Al_2O_3$  визначатиме радіаційну стійкість матеріалу, оскільки концентрації приєднувальних речовин (Ce, Pb, Ca, Tl та ін.) занадто малі, а інформація про кристали  $Al_2O_3:Ti$  є найбільш розширеною та послідовною порівняно з іншими кристалами такого типу. Виготовлення композиційного сцинтилятора аналогічно, як в роботі [43] з використанням діелектричного гелю Sylgard-184 [41].

Авторами зазначається, що для композиційних сцинтиляторів на основі гранул  $Al_2O_3:Ti$  у полідиметилсилоксані у смузі випромінювання гранул при збільшенні інтегральної дози коефіцієнт пропускання зменшується менше, ніж у два рази, тоді як у смузі поглинання коефіцієнт пропускання може зменшуватися істотно. Композиційні сцинтилятори на основі гранул  $Al_2O_3:Ti$  стійкі до

випромінювання щонайменше до накопичених доз у 125 Мрад при потужності дози 0,2 Мрад / год та 550 Мрад при потужності дози 1500 Мрад / год. Зменшення відносного світлового потоку до того ж значення відбувається при менших дозах, коли потужність дози менша.

Ще одними з перспективних матеріалів, на основі яких створено композиційні сцинтилятори, є монокристалічні гранули ортосилікату ітрію  $Y_2SiO_5:Ce$  (YSO:Ce) та ітрієвого алюмінієвого граната  $Y_3Al_5O_{12}:Ce$  (YAG:Ce) [48]. Автори зазначають, що композиційні сцинтилятори на основі монокристалів YSO:Ce та YAG:Ce стійкі до випромінювання з дозами не менше 150 Мрад для потужності дози близько 1500 Мрад / год та 25 Мрад для потужності дози 0,1 Мрад / год. Сцинтиляційне випромінювання світла і світловий коефіцієнт пропускання композиційних сцинтиляторів на основі гранул монокристалів YSO:Ce та YAG:Ce не змінюються суттєво зі збільшенням дози, а на спектрах люмінесценції не з'являються нові люмінесцентні центри.

Однак, за усіма перевагами є суттєвий недолік – оптична непрозорість такого типу сцинтиляторів за рахунок розсіювання світла великою кількістю меж розподілу фаз [49].

Таким чином, можна зазначити, що створені детектори на основі композиційних сцинтиляторів з гранул радіаційно-стійких неорганічних монокристалів спроможні витримувати значні інтегральні дози. Суттєвою перевагою порівняно з відповідними монокристалами – це спроможність виготовляти сцинтилятори великої площі, що є одним з основних завдань експериментів фізики високих енергій. Використання сцинтиляційних гранул знижує вартість сцинтилятора за рахунок можливості використання монокристалів з дефектами або їх відходи, але залишається досить високою, тому що вимагає повного циклу вирощування монокристала. Монокристали або композиційні сцинтилятори з кристалічних гранул дуже коштовні, що накладає обмеження на їхнє використання. Необхідно пошук рішень для створення детекторів з низькою собівартістю без технологічних обмежень на перекриття великої площі.

## 1.5 Спектросміщуючі волокна

Умови роботи великих спектрометрів на сучасних прискорювачах пов'язано з певними труднощами. Сцинтиляційні лічильники і фотоприймачі можуть перебувати в розсіяних магнітних полях, а отже, може знадобитися захист фотоприймача від магнітного поля. Застосування спектросміщуючого волокна дозволяє винести фотоприймач за межі спектрометра, де вплив магнітного поля незначний. У цьому випадку передача світла на фотоприймач здійснюється за допомогою оптичних волокон без сцинтилюючих і спектросміщуючих домішок, що стикуються з торцями спектросміщуючих волокон. Цей метод знайшов найширше застосування в експериментах з фізики частинок і ядра, де використовуються тайли або протяжні сцинтиляційні стрипи. Ультрафіолетове сцинтиляційне світло, утворене зарядженою частинкою в сцинтиляторі, частково поглинається і перевипромінюється в спектросміщуючому волокні, після чого передається на фотоприймач, завдяки повному внутрішньому віддзеркаленню від поверхонь оболонок.

Основними світовими виробниками спектросміщуючих волокон є корпорації Kuraray (Японія) та Vicon (США). Корпорацією Kuraray виробляються як однооболонкові, так і багатооболонкові волокна, за формою перетину круглі і квадратні [50]. Серцевина виготовляється найчастіше з полістиролу, а поліметилметакрилат (ПММА) використовується як оболонка для однооболонкового, так і внутрішньої оболонки двооболонкового волокон. Зовнішня оболонка двооболонкового волокна складається з фторованого полімеру.

Поряд зі світловим виходом важливою характеристикою спектросміщуючих волокон є їхні механічні властивості, стійкість до радіації і часові відгуки.

У роботі [51] визначено радіаційну стійкість спектросміщуючого волокна Clear-PSM та Y-11 Kuraray [50], що світить в зеленій області довжин хвиль.

Автори зазначають, що максимальний рівень радіаційної стійкості для пластикових волокон Clear-PSM становить близько 160 Крад/м. Радіаційна стійкість спектрозміщуючих волокон Y-11 була розглянута в [52]. Оцінюючи ці результати [51, 52] можна зробити висновок, що їхня максимальна радіаційна стійкість становить близько 300 Крад/м. Такий рівень радіаційної стійкості ймовірно пов'язано з причинами таких відхилень як механічні пошкодження пластикових волокон, відшарування їхніх оболонок, поява мікротріщин в серцевинах волокон під час опромінення тощо.

Пошук радіаційностійких оптичних компонентів дуже ускладнений тим фактом, що радіаційне пошкодження, яке спостерігається в полімерах у кінці опромінення, залежить не лише від поглиненої дози, але і від потужності дози. Ефект потужності дози не є особливістю деяких екзотичних хімічних сполук, але, ймовірно, є загальною властивістю полімерів. Це підтверджується експериментом в [52]. Це пов'язано з додатковими центрами поглинання, що створюються під час опромінення в полімерах, і є переважно нестійкими радикалами, які можуть розпадатися або реагувати один з одним під час тривалого опромінення, якщо час впливу становить порядок часу життя радикалів.

## **1.6 Висновки до розділу 1**

З огляду на наведені в цьому розділі дані, зазначимо таке. Розробка методів отримання сцинтиляційних детекторів великої площі з радіаційною стійкістю, більшою за пластмасовий сцинтилятор, є актуальною проблемою. Як видно, прогрес значною мірою залежить від новацій в отриманні радіаційно-стійких детекторів великої площі.

Тому основним завданням цієї роботи є розробка комплексних досліджень, спрямованих на створення спільної методології отримання сцинтиляційних детекторів великої площі. Такого роду методологія має охоплювати такий ланцюжок етапів технології виробництва:

- отримання сцинтиляторів, що мають сцинтиляційні характеристики не гірші ніж пластмасові сцинтилятори, за рахунок економічно обґрунтованої технології;

- створення сцинтиляційних елементів на основі цих сцинтиляторів з оптимальним світлозбиранням;

- контроль сцинтиляційних, оптичних і кінетичних параметрів сцинтиляційних елементів в умовах радіаційних навантажень.

На підставі вищенаведеного була визначена мета цієї роботи – розробка технологічних процесів створення сцинтиляційних елементів і отримання на їхній основі радіаційно-стійких детекторів великої площі.

Для досягнення поставленої мети потрібно було вирішити такі завдання:

- обґрунтувати вибір методу отримання радіаційно-стійких гранул YSO:Ce та YAGG:Ce;

- визначити параметри світлозбирання в сцинтиляційному композиційному шарі з використанням сцинтиляційних гранул, отриманих методом твердофазного синтезу залежно від розміру сцинтиляційних гранул, концентрації гранул у композиційному шарі, товщини композиційного шару та від наявності світлозбираючого шару;

- розробити технологічні процеси створення сцинтиляційних елементів з використанням спектрозміщуючого волокна для роботи з віддаленим фотоприймачем;

- розробити технологічні процеси створення сцинтиляційних елементів для безпосереднього з'єднання з фотоприймачем;

- розробити технологічні процеси створення радіаційно-стійких сцинтиляційних детекторів великої площі на основі створених сцинтиляційних елементів.

## РОЗДІЛ 2.

### РАДІАЦІЙНА СТІЙКІСТЬ СЦИНТИЛЯЦІЙНИХ ГРАНУЛ, ОТРИМАНИХ БЕЗ СТАДІЇ ВИРОЩУВАННЯ МОНОКРИСТАЛІВ

#### 2.1 Вибір методу синтезу сцинтиляційних гранул оксидних сполук

Методи рідкофазного і твердофазного синтезу оксидних сполук часто використовують як відносно недорогі методи отримання речовин, як для вивчення їхніх фізичних властивостей, так і для подальшого практичного застосування. Ці методи не потребують складного та коштовного обладнання, як у випадку вирощування монокристалів чи отримання оптичної кераміки.

Основними перевагами рідкофазного методу синтезу перед іншими є відносна простота його реалізації без використання дорогого енергомісткого технологічного обладнання, та можливість отримання гомогенного монофазного складу за рахунок інтенсивного перемішування компонентів у розчиненому стані і, отже, підвищеної реакційної здатності вихідних компонентів. Важливо те, що під час проведення рідкофазного синтезу існує можливість контролювати розмір частинок отриманого матеріалу [53]. Така особливість дозволяє використовувати рідкофазний метод синтезу для приготування порошків з частками заданого розміру, зокрема нанопорошків [54–56].

Особливо важливим для даного методу отримання матеріалів є використання під час проведення синтезу особливо чистих реагентів і розчинників, оскільки будь-яке забруднення може вести до небажаної соактивації цільового з'єднання або навіть до випадання інших фаз. Матеріали та розчинники такої чистоти мають високу коштовність, а тривалість усього процесу синтезу може займати досить тривалий період часу.

Твердофазний синтез, мабуть, найбільш простий, доступний і відносно дешевий процес отримання неорганічних полікристалічних сполук, які використовуються як люмінофори, тверді електроліти, ферити, сегнетоелектрики,

лазерні матеріали та інші функціональні матеріали. Твердофазні реакції протікають, як правило, при високих температурах (від 500°C до 2000°C). Це пов'язано з тим, що для їхнього здійснення необхідна дифузія вихідних речовин у реакційну зону, а дифузія в твердих речовинах відбувається повільно. Для здійснення твердофазної взаємодії необхідно повідомити речовині деяку енергію Еакт (енергія активації), що визначається як мінімальна енергія реагентів, достатня для того, щоб вони вступили у взаємодію. І ця енергія може бути повідомлена шляхом нагрівання і / або стиснення суміші. Швидкість твердофазної взаємодії збільшується зі зростанням температури і / або тиску. Дифузія, що є стадією твердофазних реакцій пов'язана з переходом атома або іона з одного вузла кристалічної ґратки в інший і вимагає значної енергії. Таким чином, і швидкість дифузії, і швидкість безпосередньо твердофазної реакції збільшується зі зростанням температури і / або тиску.

Таким чином, для отримання сцинтиляційних гранул без стадії вирощування відповідних монокристалів обираємо для отримання оксиортосилікату ітрію, активованого церієм та ітрій алюміній-галієвого гранату, активованого церієм, метод твердофазного синтезу, бо він є більш продуктивним, швидким та дешевим.

Схематично процес твердофазного синтезу можна подати у вигляді блок-схеми, наведеної на рис. 2.1.

У таблиці 2.1 наведено вплив технології отримання оксидних сцинтиляційних матеріалів (монокристалів, сцинтиляційних гранул, отриманих дробленням монокристалу чи методом твердофазного синтезу) на коефіцієнт використання сировини (початкових оксидів). Коефіцієнт розраховується як співвідношення маси початкового матеріалу до маси отриманого виробу відповідною технологією.

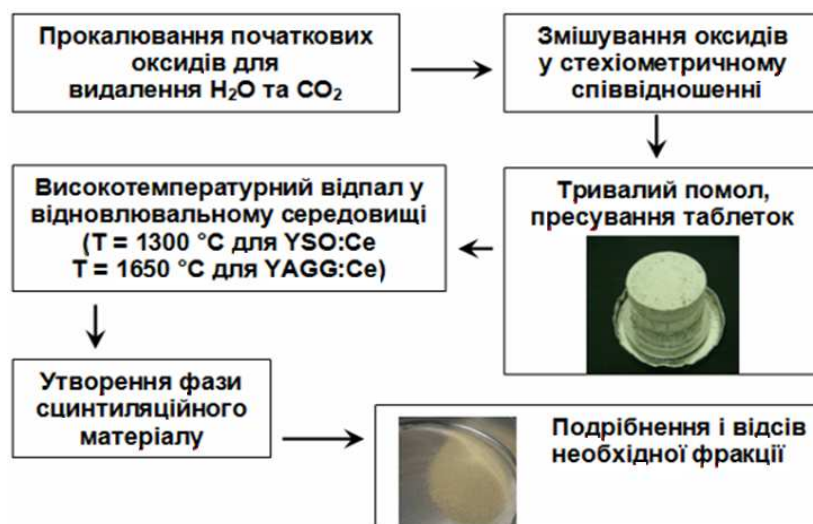


Рисунок 2.1 – Етапи отримання скінтіляційних гранул YSO:Ce та YAGG:Ce методом твердофазного синтезу

Таблиця 2.1 – Залежність коефіцієнта використання сировини від технології отримання скінтіляційного матеріалу

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

Як видно з таблиці 2.1 використання скінтіляційних матеріалів без стадії вирощування відповідних монокристалів дозволяє суттєво знизити собівартість виготовлення кінцевого виробу.

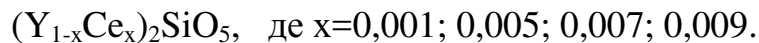
## 2.2 Отримання скінтіляційних гранул методом твердофазного синтезу

Як було зазначено в [5] оксиортосилікат ітрію, активований церієм (Y<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>:Ce), на відміну від кристалів важких складних оксидів не демонструє значного погіршення пропускання в діапазоні люмінесценції (від 400 до 600 нм) під час опромінення і такі кристали можна розглядати як матеріал для побудови детектуючих елементів калориметричних детекторів на великому адронному

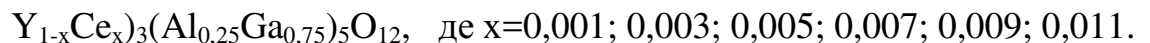


колайдері з високою світимістю. Ітрій алюміній-галієвий гранат, активований церієм, наступного складу –  $Y_3(Al_{0,25}Ga_{0,75})_5O_{12}:Ce$  [22] демонструє найкращі сцинтиляційні властивості. Монокристали, отримані з розплаву цього складу володіють найбільшим світловим виходом, кращим енергетичним розділенням та найшвидшою люмінесценцією серед усіх змішаних кристалів на основі  $YAGG:Ce$ . Однак, у літературі немає ніяких даних щодо залежності сцинтиляційних характеристик гранул  $Y_2SiO_5:Ce$  та  $YAGG:Ce$ , отриманих синтезом, від концентрації активатора. Тому синтез проводили для сполук з різною концентрацією церію. Також відомо з [22], що содопування  $YAGG:Ce$  іонами кальцію призводить до значного скорочення часу загасання люмінесценції. Таким чином, у роботі проводили синтез таких складів:

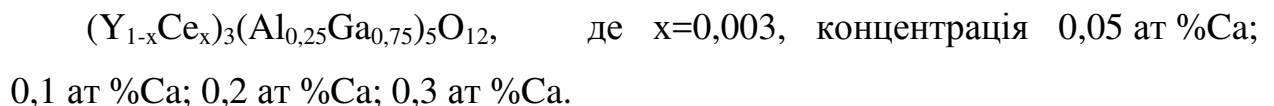
Для  $YSO:Ce$ :



Для  $YAGG:Ce$ :



Для  $YAGG:Ce, Ca$ :



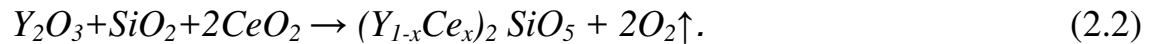
### 2.2.1 Отримання сцинтиляційних гранул $YSO:Ce$

Для отримання сцинтиляційних гранул  $Y_2SiO_5:Ce$  методом твердофазного синтезу початкові оксиди  $SiO_2$ ,  $CeO_2$ ,  $Y_2O_3$  піддавали прокалюванню в омичній печі за температурами  $300^\circ C$  (оксид кремнію) та  $1100^\circ C$  (рідкоземельні оксиди) з метою видалення абсорбованих вологи та  $CO_2$ . Перед змішуванням компоненти зважувались на фізичних вагах з точністю виміру  $\pm 0,01$  г. Потім оксидні сполуки змішувались в стехіометричному співвідношенні. Отримана суміш завантажувалась в платиновий тигель та відпалювалася протягом 8 годин за температури  $1400^\circ C$  до утворення фази оксиортосилікату ітрію  $Y_2SiO_5:Ce$ . Аргон

обраний для уникнення окиснення платини та для утворення іонів  $Ce^{3+}$  з  $Ce^{4+}$  (основний стан  $CeO_2$  у звичайних умовах) за рівнянням (2.1).



У загальному вигляді твердофазна реакція проходила за рівнянням (2.2).



Наприклад, для отримання 100 г сцинтиляційних гранул  $Y_2SiO_5:Ce$  з концентрацією активатора  $Ce^{3+}$  0,1 ат % рівняння (2.2) набуває такого вигляду (2.3):



У даному випадку молярні маси компонентів склали 225,5824 г / моль для  $Y_2O_3$ , 60,0848 г / моль для  $SiO_2$ , та 0,344238 г / моль для  $CeO_2$ . При цьому для змішування в стехіометричному співвідношенні необхідні маси початкових оксидів склали 78,87 г, 21,01 г та 0,12 г відповідно.

У таблиці 2.2 наведено необхідні маси початкових оксидів для змішування в стехіометричному співвідношенні залежно від концентрації активатора  $Ce^{3+}$ .

Таблиця 2.2 – Маси початкових оксидів для змішування в стехіометричному співвідношенні залежно від концентрації активатора  $Ce^{3+}$

Концентрація $Ce^{3+}$ , ат %	Молярна маса, г / моль			Маса, г		
	$Y_2O_3$	$SiO_2$	$CeO_2$	$Y_2O_3$	$SiO_2$	$CeO_2$
0,1	225,582	60,084	0,344	78,87	21,01	0,12
0,5	224,679	60,084	1,721	78,43	20,97	0,60
0,7	224,227	60,084	2,409	78,20	20,96	0,84
0,9	223,775	60,084	3,098	77,98	20,94	1,08

Для визначення фази основної речовини проведено рентгенофазовий аналіз, який виконано на порошковому дифрактометрі «Siemens D500» [57], що працює в режимі фокусування за Бреґг - Brentаном і призначений для дослідження полікристалічних, аморфних і монокристалічних матеріалів. Дифрактометр забезпечений первинними асиметричним фокусуєчим монохроматором за Іоганнсоном для виділення  $K\alpha_1$  лінії випромінювання Cu - анода, що істотно покращує спектральне розділення приладу на далеких дифракційних кутах (Cu $K\alpha$  випромінювання, графітовий монохроматор, геометрія Бреґга-Брентано) з використанням порошкової бази PDF-1, що входить в програмне забезпечення дифрактометра. Результати якісного аналізу були використані для кількісного розрахунку вмісту фаз за методом Ритвельда [58]. Використовуваний кристал-монохроматор  $SiO_2$  (101) дозволяє виділити спектральну лінію Cu $K\alpha_1$  з чистотою 98 %, подальша монохроматизація здійснюється просторовим виділенням частини диспергованого пучка. Для реєстрації дифракційного спектра використовується позиційно-чутливий детектор (ПЧД) BRAUN з лінійним розділенням 0,07 мм (відповідає кутовому дозволу  $0,02^\circ$ ). Стандартна схема зйомок –  $\theta$ -2 $\theta$  сканування, за якого неоднорідності детектора нівелюються. Використання ПЧД збільшує ефективність реєстрації спектра, дозволяючи проводити зйомки малих кількостей зразка.

Дифрактограма фази оксиортосилікату ітрію  $Y_2SiO_5:Ce$  з концентрацією 0,1 ат % Се наведено на рис. 2.2.

Результати уточнення рентгенограм зразків сцинтиляційних гранул  $YSO:Ce$  виконано за методом Ритвельда. Червоним кольором показано експериментальну криву, чорним – розрахункову. Відмінність між експериментальними і розрахунковими значеннями інтенсивності в кожній точці показана на нижній кривій.

За результатами рентгенофазового аналізу склад основної фази ортосилікату ітрію, активованого іонами Се, склав 97,6 %.

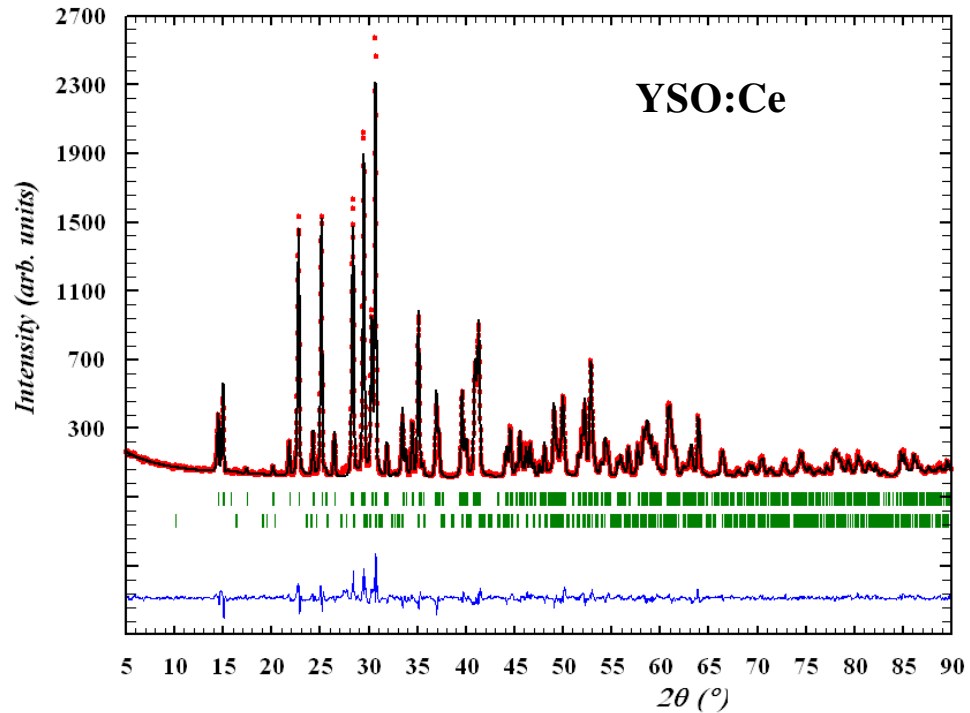


Рисунок 2.2 – Рентгенівська дифрактограма синтезованого  $Y_2SiO_5:Ce$  з концентрацією 0,1 ат % Ce

### 2.2.2 Сцинтиляційні характеристики гранул $YSO:Ce$

Сцинтилятори здатні випускати світло видимого діапазону під час дії на них іонізуючого випромінювання, що характеризують параметром – світловий вихід. Тобто кількість випромінюваних сцинтилятором фотонів під час поглинання їм 1 MeV енергії. Як метод дослідження світлового виходу використовують метод амплітуд імпульсів сцинтиляцій [59]. Найчастіше як приймач фотонів використовують фотоелектронний помножувач, що реєструє сцинтиляційні спалахи. Значення величини відносного світлового виходу розраховується як:

$$L = \frac{LO}{LO_{em}} \times 100\%, \quad (2.4)$$

де  $LO$  – амплітуда імпульсу на спектрі для сцинтилятора, що досліджують;  
 $LO_{em}$  – амплітуда імпульсу на спектрі еталонного сцинтилятора.

Похибка значення світлового виходу для методики за [59], що наведено вище, не перевищує 5 %.

Для вимірювання сцинтиляційних параметрів зразків сцинтиляційних гранул використовували програмно-апаратний комплекс «СУГАН-ГАММА». Досліджування накопиченого статистичного аналізу спектрометричної інформації проводилося за обраними зонами спектра, яку отримують для зразка. На рис. 2.3 наведено схему тестування сцинтиляційних характеристик.

У контейнер діаметром 25 мм та висотою 4 мм із вклеєним склом товщиною 2 мм насипали порошок масою 1 г, який зважували на фізичних вагах із точністю виміру  $\pm 0,01$  г для забезпечення однакової кількості гранул з різною концентрацією  $\text{Ce}^{3+}$ . Контейнер з порошком з'єднувався з фотоприймачем R1307 (Hamamatsu) за допомогою оптичної кремнійорганічної змазки. Вхідна поверхня контейнеру накривалася дифузним відбивачем на тefлоновій основі. Для досліджуваного зразка проводився набір імпульсів, отриманих від фотоприймача, в діапазоні 50 – 1024 каналів для фонові швидкості лічення, а потім, у тому ж діапазоні, визначалася швидкість лічення під час опромінення зразків джерелом  $\text{Sr}^{90} - \text{Y}^{90}$ . Для визначення корисного сигналу апаратно відокремлювали фонову швидкість лічення.

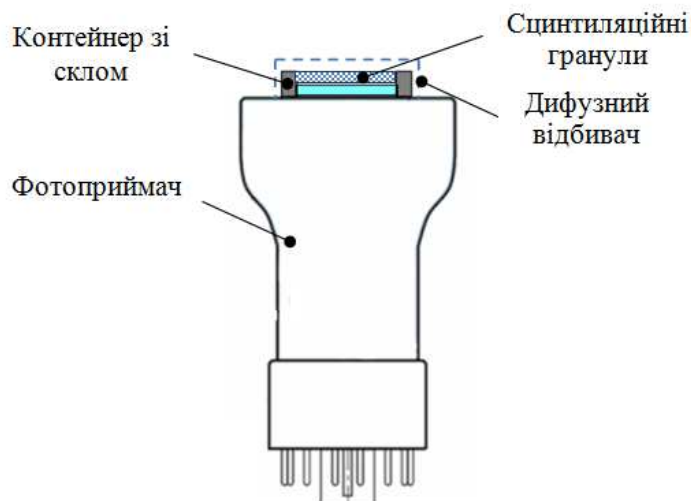


Рисунок 2.3 – Схема тестування сцинтиляційних характеристик

Для отримання значень відносного світлового виходу гранул, отриманих методом твердофазного синтезу, проводилося вимірювання світлового виходу для еталонного зразка монокристалу YSO:Ce розміром 20 x 20 x 1,0 мм<sup>3</sup>. Потім проводилися вимірювання дослідних зразків сцинтиляційних гранул. Відносний світловий вихід сцинтиляторів розраховувався за формулою (2.4).

Результати дослідження залежності сцинтиляційних характеристик зразків порошку YSO:Ce, що було отримано методом твердофазного синтезу, від концентрації іонів церію наведено на рис. 2.4.

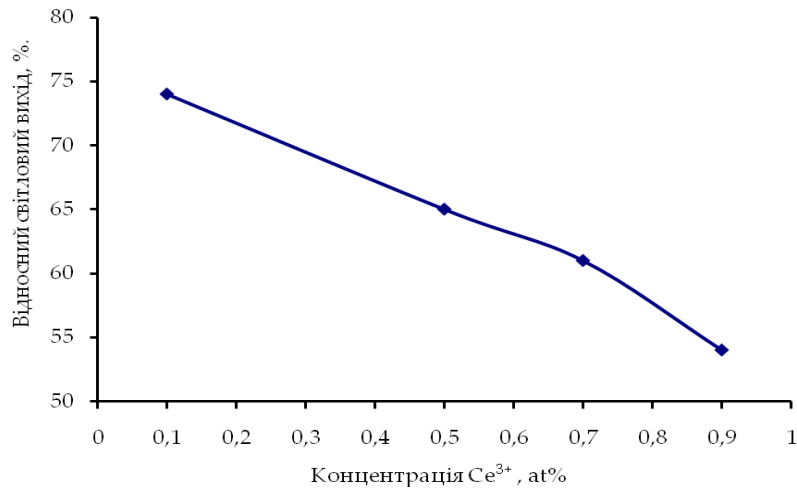


Рисунок 2.4 – Залежність відносного світлового виходу від концентрації Ce<sup>3+</sup>

Спектри отримано за збудженням джерелом конверсійних електронів <sup>207</sup>Ві.

Відносні значення світлового виходу зразків порошоків YSO:Ce, що було обчислено за даними, які наведено на рис. 2.4, зведено до таблиці 2.3.

Таблиця 2.3 – Залежність відносного світлового виходу зразків порошоків YSO:Ce від концентрації іонів церію (за даними рисунку 2.4.)

Номер	Зразок	Вміст Ce <sup>3+</sup> , ат %	Світловий вихід, %
1	Кристал	0,1	100
2	Порошок	0,1	74
3	Порошок	0,5	65
4	Порошок	0,7	61
5	Порошок	0,9	54

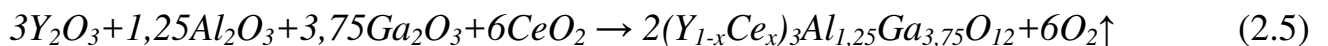
Відповідно до даних таблиці 2.3, найбільший світовий вихід порівняно з кристалом YSO:Ce демонструє зразок порошку YSO:Ce, що містить 0,1 ат % іонів церію. При цьому, слід зазначити, що світловий вихід у найкращого серед зразків порошоків складає 74 % від кристалу аналогічного складу, що обумовлено формою матеріалу.

Таким чином, для подальших досліджень використовувалися сцинтиляційні гранули YSO:Ce з концентрацією іонів церію 0,1 ат %.

### 2.2.3 Отримання сцинтиляційних гранул YAGG:Ce

Для отримання сцинтиляційних гранул ітрію алюміній-галієвого гранату методом твердофазного синтезу початкові оксиди  $Y_2O_3$ ,  $CeO_2$ ,  $Al_2O_3$ ,  $Ga_2O_3$  зі складом основної речовини 99,99 % піддавали прокалюванню в омичній печі за температури близько  $1100^\circ C$  з метою видалення абсорбованих води та  $CO_2$ . Перед змішуванням компоненти зважувалися на фізичних вагах з точністю виміру  $\pm 0,01$  г. Потім оксидні сполуки змішувалися в стехіометричному співвідношенні. Отримана суміш завантажувалась в іридієвий тигель та відпалювалася в установці індукційного нагріву «ОКСИД-II» протягом 10 годин за температури  $1650^\circ C$  до утворення необхідної фази YAGG:Ce. Як відновлювальне середовище використовували аргон з чистотою 99,995 % для утворення іонів  $Ce^{3+}$  з  $Ce^{4+}$  (2.1).

У загальному вигляді твердофазна реакція проходила за рівнянням (2.5).



Наприклад, для отримання 100 г сцинтиляційних гранул YAGG:Ce з концентрацією активатора  $Ce^{3+}$  0,1 ат % рівняння (2.5) набуває такого вигляду (2.6):



У даному випадку молярні маси компонентів склали 676,747 г / моль для  $Y_2O_3$ , 127,451 г / моль для  $Al_2O_3$ , 702,893 г / моль для  $Ga_2O_3$  та 1,032 г / моль для  $CeO_2$ . При цьому для змішування в стехіометричному співвідношенні необхідні маси початкових оксидів склали 44,87 г, 8,45 г, 46,61 г та 0,07 г відповідно.

У таблиці 2.4 наведено необхідні маси початкових оксидів для змішування в стехіометричному співвідношенні залежно від концентрації активатора  $Ce^{3+}$ .

Таблиця 2.4 – Маси початкових оксидів для змішування в стехіометричному співвідношенні залежно від концентрації активатора  $Ce^{3+}$

Концент- рація $Ce^{3+}$ , ат %	Молярна маса, г / моль				Маса, г			
	$Y_2O_3$	$Al_2O_3$	$Ga_2O_3$	$CeO_2$	$Y_2O_3$	$Al_2O_3$	$Ga_2O_3$	$CeO_2$
0,1	676,747	127,451	702,893	1,032	44,87	8,45	46,61	0,07
0,3	675,392	127,451	702,893	3,098	44,76	8,45	46,59	0,21
0,5	674,037	127,451	702,893	5,163	44,65	8,44	46,56	0,34
0,7	672,682	127,451	702,893	7,228	44,54	8,44	46,54	0,48
0,9	671,327	127,451	702,893	9,294	44,43	8,44	46,52	0,62
1,1	669,972	127,451	702,893	11,359	44,32	8,43	46,50	0,75

Дифрактограма фази ітрію алюміній-галієвого гранату  $YAGG:Ce$  наведена на рисунку 2.5.

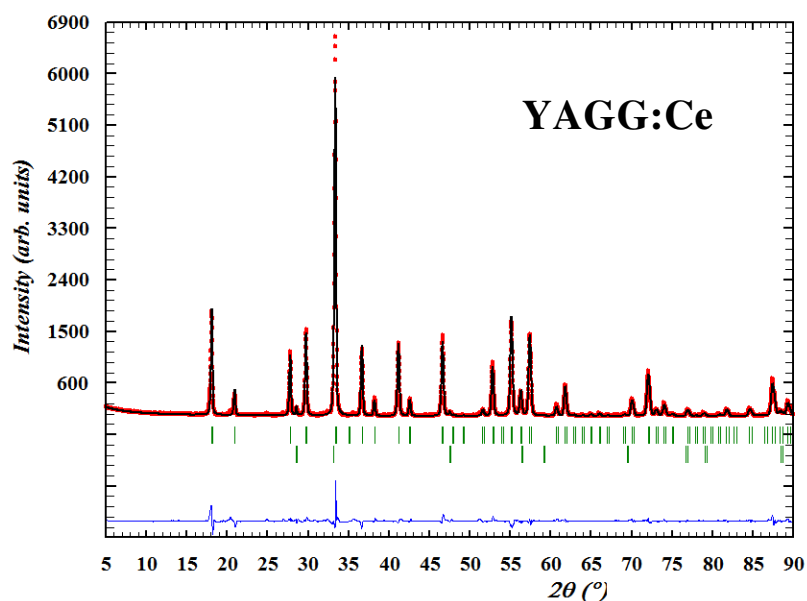


Рисунок 2.5 – Рентгенівська дифрактограма синтезованого  $YAGG:Ce$



Результати уточнення рентгенограм зразків сцинтиляційних гранул YAGG виконано як у пункті 2.2.1.

За результатами рентгенфазового аналізу склад основної фази ітрій алюміній-галієвого гранату, активованого іонами Се, склав 99,5 %.

Зовнішній вигляд синтезованої шихти YAGG:Ce наведено на рис. 2.6 – це порошок світло-зеленого кольору.



Рисунок 2.6 – Зовнішній вигляд синтезованого YAGG:Ce

Відомо, що високотемпературний синтез оксидних сполук має значну кількість кисневих вакансій. Наявність цих вакансій негативно впливає на функціональні властивості сцинтиляційних матеріалів у зв'язку з формуванням так званих «пасток» електронів. Значною мірою це пов'язано з технологією виготовлення синтезованого матеріалу з використанням безкисневої чи частково безкисневої атмосфери. Подальший відпал синтезованої речовини з оксидних сполук в атмосфері з вмістом кисню призводить до заповнення кисневих вакансій завдяки дифузії кисню.

Синтезовані в цій роботі оксидні сполуки підлягали повторній термообробці в атмосфері повітря у діапазоні температур 1100–1300°C.

#### **2.2.4 Сцинтиляційні характеристики гранул YAGG:Ce**

Вимірювання відносного світлового виходу гранул YAGG:Ce, отриманих дробленням монокристалу та методом твердофазного синтезу, проводили згідно з методикою, наведеною у пункті 2.2.2 та за схемою на рис. 2.3.

Результати дослідження залежності сцинтиляційних характеристик зразків порошку YAGG:Ce, що було отримано твердофазним синтезом, від концентрації іонів церію наведено на рис. 2.7.

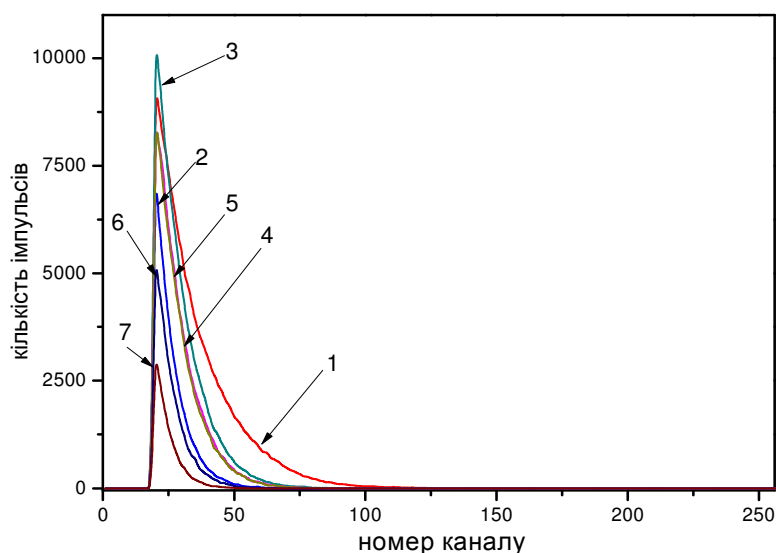


Рисунок 2.7 – Спектри амплітуд імпульсів сцинтиляцій зразків ітрію алюміній-галієвого гранату, що активовано церієм: кристал YAGG товщиною 1 мм (1), з концентрацією  $\text{Ce}^{3+}$  0,3 ат %; гранули YAGG, концентрація  $\text{Ce}^{3+}$  0,1 ат % (2); гранули YAGG, концентрація  $\text{Ce}^{3+}$  0,3 ат % (3); гранули YAGG, концентрація  $\text{Ce}^{3+}$  0,5 ат % (4); гранули YAGG, концентрація  $\text{Ce}^{3+}$  0,7 ат % (5); гранули YAGG, концентрація  $\text{Ce}^{3+}$  0,9 ат % (6); гранули YAGG, концентрація  $\text{Ce}^{3+}$  1,1 ат % (7).

Спектри отримано за збудженням джерелом конверсійних електронів  $^{207}\text{Bi}$

Відносні значення світлового виходу зразків порошоків YAGG, що було обчислено за даними, які наведено на рис. 2.7, зведено до таблиці 2.5.

Відповідно до даних таблиці 2.5, найбільший світовий вихід порівняно з кристалом YAGG:Ce демонструє зразок порошку YAGG:Ce, що містить 0,3 ат % іонів церію. При цьому, слід зазначити, що світловий вихід у найкращого серед зразків порошоків складає лише 76 % від кристалу аналогічного складу, що обумовлено формою матеріалу.

Таблиця 2.5 – Залежність відносного світлового виходу зразків порошків YAGG:Ce від концентрації іонів церію (за даними рисунка 2.7)

Номер кривої на рис. 2.7	Зразок	Вміст $\text{Ce}^{3+}$ , ат %	Світловий вихід, %
1	кристал	0,3	100
2	порошок	0,1	36
3	порошок	0,3	76
4	порошок	0,5	61
5	порошок	0,7	59
6	порошок	0,9	26
7	порошок	1,1	12

Як було зазначено раніше, відпал матеріалів, що було отримано методом твердофазного синтезу, призводить до зміни дефектної структури матеріалу, що обумовлює зміни функціональних параметрів останнього. Результати дослідження впливу режимів відпалу на сцинтиляційні характеристики зразків порошків YAGG:Ce, що було отримано твердофазним синтезом, наведено в таблиці 2.6.

Таблиця 2.6 – Вплив режимів відпалу на сцинтиляційні характеристики зразків порошків YAGG:Ce (концентрація  $\text{Ce}^{3+}$  – 0,3 ат %), що було отримано твердофазним синтезом

Номер	Режим відпалу			Швидкість лічення, імпл./Бк*с
	Температура, °C	Час, годин	Середовище	
1	1100	10	Атмосферне повітря	9340
2	1100	48	Атмосферне повітря	10540
3	1250	5	Атмосферне повітря	12113
4	1620	10	Аргон	12974
	1100	5	Атмосферне повітря	

Як можна побачити з даних, що наведено в таблиці 2.6, найкращу швидкість лічення серед синтезованих порошків YAGG:Ce, що містять 0,3 ат % іонів  $\text{Ce}^{3+}$ , мають зразки, що було піддано термічній обробці за режимом №4. Аналогічний результат, щодо впливу режимів відпалу на сцинтиляційні характеристики

порошків YAGG:Ce, було отримано під час дослідження зразків, що містили 0,5 ат % та 0,7 ат % іонів  $Ce^{3+}$ .

Таким чином, можна дійти висновку, що найкращими сцинтиляційними характеристиками серед отриманих у цій роботі володіють зразки порошків YAGG:Ce, що містять 0,3 ат % іонів  $Ce^{3+}$ , та пройшли послідовний відпал у атмосфері аргону та повітря за температур 1620°C та 1100°C, відповідно.

### 2.3 Радіаційна стійкість сцинтиляційних гранул YSO:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу

Опромінення зразків сцинтиляційних гранул початкового матеріалу – порошків YSO:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу, проводилось на лінійному прискорювачі електронів ЛП-10 науково-дослідного комплексу "Прискорювач" ННЦ ХФТІ.

Для проведення опромінення електронами в експериментальному залі лінійного прискорювача електронів ЛП-10, схема якого зображена на рис. 2.8, зразки сцинтиляційних матеріалів розміщували безпосередньо на конвеєрі.

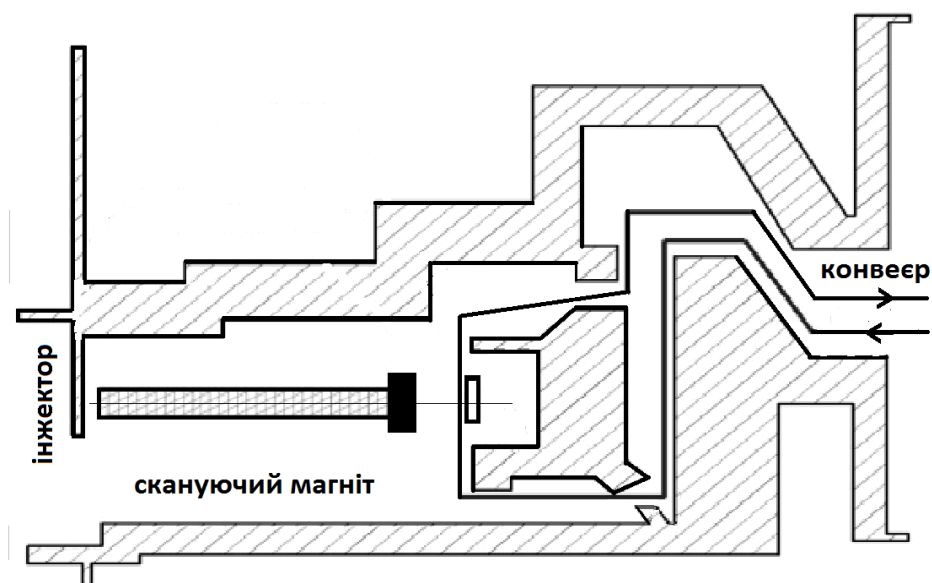


Рисунок 2.8 – Схематичне зображення експериментальної зали лінійного прискорювача електронів ЛП-10

Встановлено потужність дози опромінювання за один перетин зразками пучка, що складає  $1500 \pm 50$  Мрад/год з обраною швидкістю руху конвеєра. Потужність дози опромінювання в даному випадку визначається швидкістю руху конвеєра при незмінному (стабільному) значенні енергії опромінюваних електронів і середньому струмі пучка. При цьому слід враховувати значення нагрівання опромінюваних зразків. Так, при отриманні зразком дози 0,1 Мрад (1 kGy) температура зразка підвищувалась на  $1^\circ\text{C}$ . Визначено стабільність потужності дози опромінення та ступінь нерівномірності опромінення за площею в місці розміщення зразків сцинтиляційних матеріалів. Значення отриманої зразком дози електронного опромінювання за один перетин пучка дорівнює 1 Мрад (10 кГр). Нагрівання зразка при цьому дорівнює  $10^\circ\text{C}$ .

Для проведення вимірювання накопиченої дози під час складання радіаційної карти дозових навантажень в експериментальному залі прискорювача застосовувалися пластичні дозиметри марки HarwellPerpex 4034 (ISO/ASTM 51276) [60], точність вимірювання дози яких складає  $\pm 5\%$ , і плівкові дозиметри марки FWT-60-00 [61] з точністю вимірювання дози  $\pm 2\%$ . Для визначення накопиченої дози пластичними дозиметрами марки HarwellPerpex 4034 (ISO/ASTM 51276) застосовувався зчитувач дозиметрів моделі "UV mini-1240" (UV-Spectrophotometers "Shimadzu"), а для плівкових дозиметрів – зчитувач дозиметрів моделі "92D" (FWT-92D RadiachromicReader). У подальшому дозиметри марки HarwellPerpex 4034 та FWT-60-00 використовувалися під час визначення отриманої інтегральної дози опроміненими зразками.

Заплановане значення інтегральної дози, яку повинні отримати опромінені зразки сцинтиляційних гранул YSO:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу, в результаті опромінення електронами, складає 25 Мрад, 50 Мрад і 100 Мрад.

Набір зразків сцинтиляційних матеріалів, які підлягали опроміненню, розподілялись на окремі групи. Кожна група зразків розміщувалась в чарунках на окремій пластині розмірами  $40 \times 200$  мм<sup>2</sup>. Для захисту опромінюваного зразка від навколишнього середовища (пилу, вологи та ін.) кожна чарунка була закрита

лавсановою плівкою товщиною 0,1 мм. Пластини із закріпленими зразками, які підлягали опроміненню, розміщувалися на конвеєрі. Згідно з планом, опромінення виконувалося відразу для декількох груп зразків. Після набору необхідної інтегральної дози група зразків, яка отримала заплановану дозу, вилучалася, а інші продовжували опромінюватися.

Опромінювання зразків скінтіляційних матеріалів проводилось електронами з енергією 8,3 МеВ, при середньому струмі пучка  $800 \div 820$  мкА і потужності дози  $1500 \pm 50$  Мрад / годину. Опромінювання зразків проводилося згідно з розкладом роботи прискорювача, при якому було неможливо отримати необхідну дозу за один сеанс опромінення. Тому необхідна інтегральна доза накопичувалась частинами. Перерва між сеансами опромінювання складала від  $\approx 10$  до 72 годин.

### 2.3.1 Сцинтиляційні характеристики гранул YSO:Ce під дією радіаційних навантажень

Вимірювання відносного світлового виходу гранул YSO:Ce, отриманих дробленням монокристалу та методом твердофазного синтезу проводили згідно з методикою, наведеною у пункті 2.2.2 та за схемою на рис. 2.3.

Для порівняння впливу радіаційних навантажень в роботі проведено дослідження зміни відносного світлового виходу гранул YSO:Ce, отриманих дробленням монокристалу та методом твердофазного синтезу (рис. 2.9).

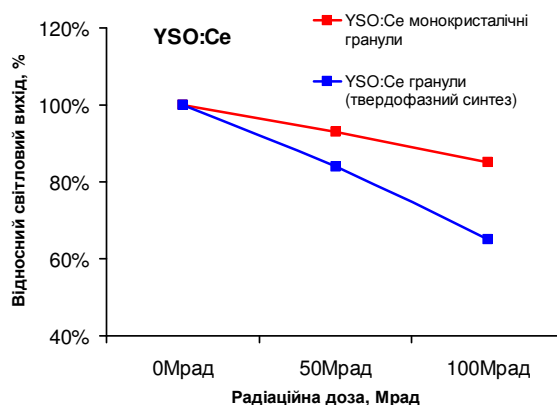


Рисунок 2.9 – Відносний світловий вихід гранул YSO:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу, залежності від накопиченої дози

Так, при накопиченій дозі в 50 Мрад гранули YSO:Ce, отримані дробленням монокристалу, мають зниження величини відносного світлового виходу не більше 5 %, під час накопичення дози у 100 Мрад – не більше 15 %. Для гранул YSO:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу, після опромінення до накопиченої дози в 50 Мрад втрата у відносному світловому виході становить близько 20 %, а під час накопичення дози у 100 Мрад – зменшується на 40 %.

Результати дослідження впливу радіаційних навантажень на відносний світловий вихід сцинтиляційних гранул YSO:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу, доводять можливість їхнього використання для створення радіаційно-стійких композиційних сцинтиляторів.

### **2.3.2 Спектрально-кінетичні характеристики гранул YSO:Ce під дією радіаційних навантажень**

Для отримання спектрів рентгенлюмінесценції сцинтиляційні гранули YSO:Ce збуджувались випромінням від рентгенівського апарату РЕЙС (тип трубки БС-1, Си-анод, струм – 20  $\mu$ А, потужність – 40 кВ). Для реєстрації спектрів використовувалась люмінесцентна установка СДЛ-2 з монохроматором МДР-23, дифракційні ґратки 1200 штрихів / мм, фотоелектронний помножувач – ФЕП-100.

Спектри фотолюмінесценції сцинтиляційних гранул YSO:Ce отримано збудженням фотонів з енергіями в діапазоні 6.0 – 3.0 еВ спектрофлюориметру FLS 920 Edinburgh Instruments. Джерело збудження – ксенонова лампа з дуговим розрядом Хе 900 450W. Як приймач випромінювання в діапазоні від 190 до 700 нм використовувався фотоелектронний помножувач R1527 (Hamamatsu).

З даних, які наведено на рис. 2.10 (а), випливає, що спектральний склад рентгенлюмінесценції гранул YSO:Ce, що було отримано методом твердофазного синтезу, мають слабкий перерозподіл інтенсивностей в межах смуги люмінесценції. Але інтенсивність не зазнає значних змін до доз опромінення  $D = 50$  Мрад.

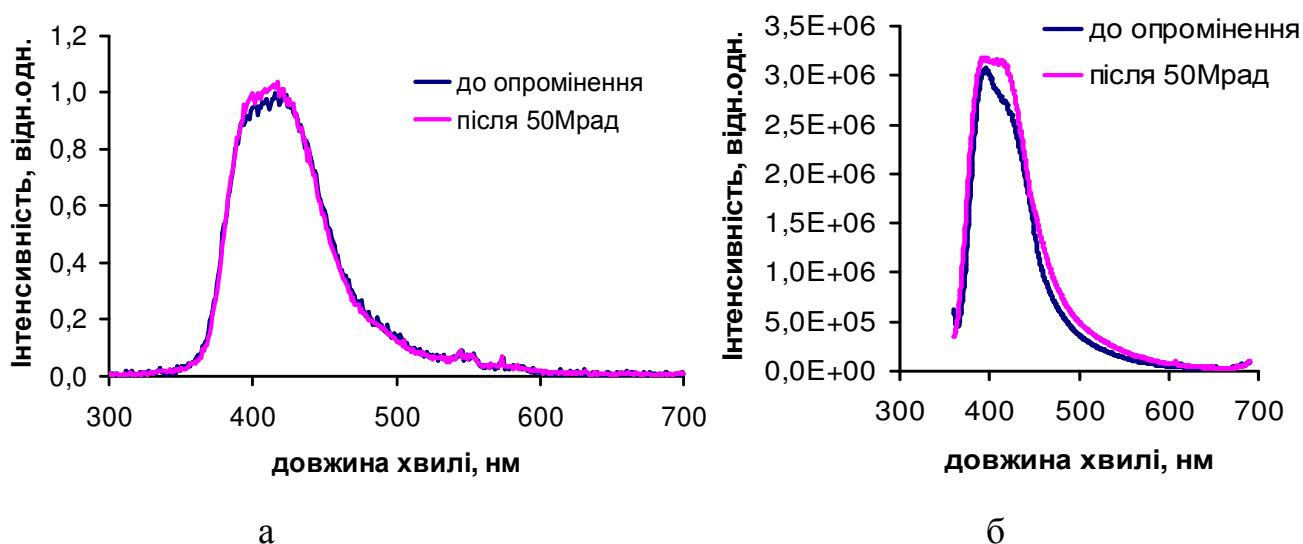


Рисунок 2.10 – Спектри рентгенлюмінесценції та фотолюмінесценції гранул YSO:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу до ( $D = 0$  Мрад) та після ( $D = 50$  Мрад) опромінення

На рис. 2.10, б наведено спектри люмінесценції, виміряні до ( $D = 0$  Мрад) і після ( $D = 50$  Мрад) опромінення гранул YSO:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу. Гранули YSO:Ce збуджували світлом з довжиною хвилі 355 нм. Отримані спектри люмінесценції аналогічні спектрам монокристалу YSO:Ce [62] та демонструють відсутність значних змін у люмінесценції до і після опромінення досліджуваних гранул. У результаті опромінення спостерігається слабкий перерозподіл інтенсивності в межах смуги люмінесценції. Однак цей ефект незначний. Таким чином, ширина на половині висоти для спектрів (рис. 2.10, б), отриманих до і після опромінення, відрізняється приблизно на 8 %, а площі під кривими спектрів – приблизно на 14 %.

Кінетичні параметри люмінесценції порошків YSO:Ce наведено на рис. 2.11. За даними обчислення час згасання люмінесценції для YSO:Ce становить 50 нс.



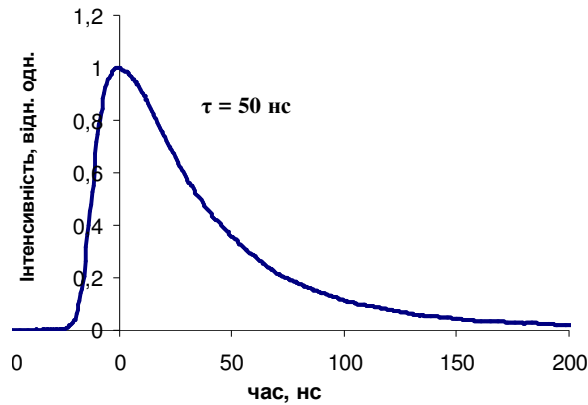


Рисунок 2.11 – Кінетичні спектри люмінесценції порошоків YSO:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу, до опромінення

Відповідно до експериментальних даних інтегральна доза опромінення у 50 Мрад істотно не впливає на кінетичні параметри люмінесценції отриманих зразків порошку YSO:Ce.

Результати дослідження оптичних характеристик гранул YSO:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу, свідчать, що за спектрами люмінесценції, а саме, що смуга люмінесценції гранул YSO:Ce з максимумом на довжині хвилі у 415 нм, подібні відповідним монокристалам. Після опромінення на спектрах люмінесценції гранул YSO:Ce не виявлено значних змін їхньої форми, а також додаткових центрів світіння, що свідчить про високий рівень радіаційної стійкості.

#### **2.4 Радіаційна стійкість сцинтиляційних гранул YAGG:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу**

Опромінення зразків початкового матеріалу – порошоків YAGG:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу проводилось на лінійному прискорювачі електронів ЛП-10 науково-дослідного комплексу "Прискорювач" ННЦ ХФТІ, як наведено у підрозділі 2.3.

### 2.4.1 Сцинтиляційні характеристики гранул YAGG:Ce під дією радіаційних навантажень

Вимірювання відносного світлового виходу гранул YAGG:Ce, отриманих дробленням монокристалу та методом твердофазного синтезу, проводили згідно з методикою, наведеною в пункті 2.2.2 та за схемою на рис. 2.3.

Вплив дози опромінення на сцинтиляційні характеристики зразків порошків YAGG:Ce, що містять 0,3 ат % іонів  $\text{Ce}^{3+}$  та пройшли термічну обробку за обраним режимом, зображено на рис. 2.12.

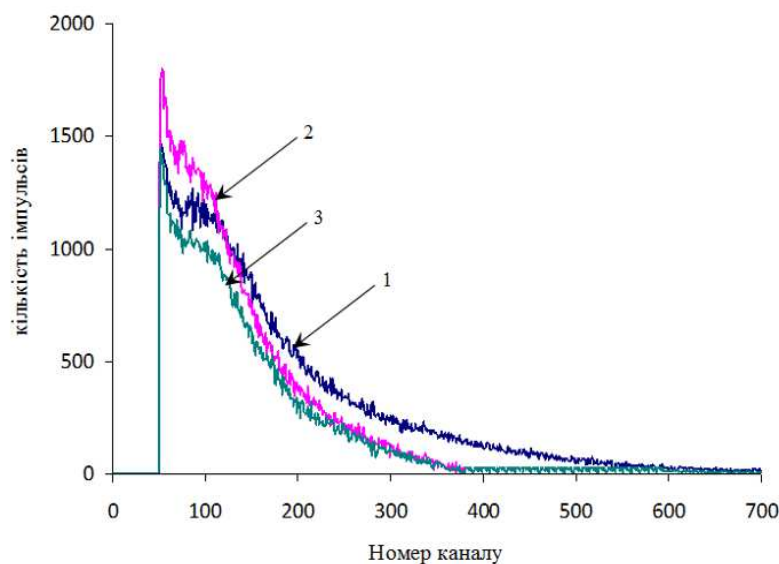


Рисунок 2.12 – Спектри амплітуд імпульсів сцинтиляцій зразків порошків YAGG:Ce, що активовано іонами церію у кількості 0,3 ат %: 1 – доза опромінення  $D = 0$  Мрад; 2 – доза опромінення  $D = 25$  Мрад; 3 – доза опромінення  $D = 50$  Мрад.

Спектри отримано за збудженням джерелом конверсійних електронів  $^{207}\text{Bi}$

Із результатів дослідження радіаційної стійкості зразків YAGG:Ce, що містять 0,3 ат % іонів церію, випливає, що опромінення із  $D = 25$  Мрад не спричиняє погіршення світлового виходу, у той час як для  $D = 50$  Мрад спостерігається зниження світлового виходу на 30 % (рис. 2.12).

З метою дослідити вплив концентрації іонів церію на радіаційну стійкість порошків YAGG:Ce, що було отримано твердофазним синтезом, зразки із вмістом іонів  $\text{Ce}^{3+}$  0,3 ат %, 0,5 ат % та 0,7 ат %, було опромінено дозами  $D = 25$  Мрад та

$D = 50$  Мрад. За результатами експерименту було побудовано залежність, що наведено на рис. 2.13.

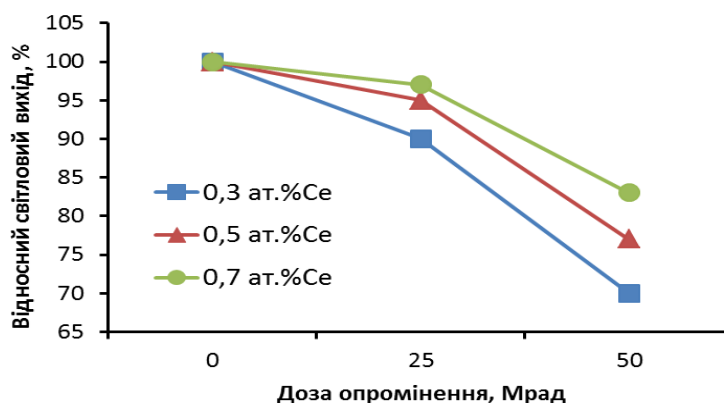


Рисунок 2.13 – Залежність відносного світлового виходу зразків порошків YAGG:Ce з різною концентрацією іонів церію від дози опромінення

З рис. 2.13 видно, що збільшення концентрації іонів церію у порошках YAGG:Ce призводить до менших втрат у світловому виході. Так, наприклад, за дози опромінення  $D = 50$  Мрад зменшення світлового виходу зразків порошків YAGG:Ce, що було опромінено, відносно неопромінених становить 30 % за концентрації іонів церію 0,3 ат %, в той час коли за концентрації іонів церію 0,7 ат % цей показник є 15 %.

Для порівняння впливу радіаційних навантажень в роботі проведено дослідження зміни відносного світлового виходу (рис. 2.14) гранул YAGG:Ce, отриманих дробленням монокристалу та методом твердофазного синтезу.

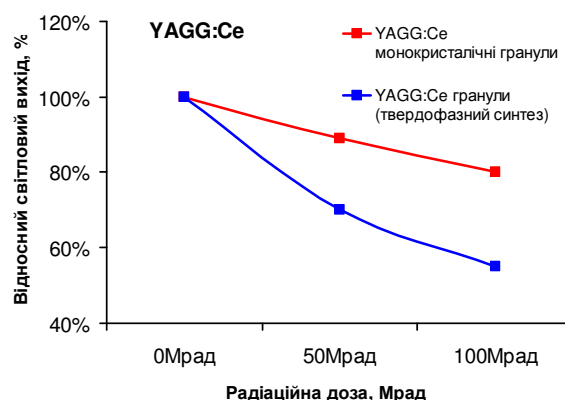


Рисунок 2.14 – Відносний світловий вихід гранул YAGG:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу, залежно від накопиченої дози

Так, при накопиченій дозі в 50 Мрад гранули YAGG:Ce, отримані дробленням монокристалу, мають зниження величини відносного світлового виходу не більше 10 %, під час накопичення дози у 100 Мрад – не більше 20 %. Для гранул YAGG:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу, після опромінення до накопиченої дози в 50 Мрад втрата у відносному світловому виході становить 30 % для YAGG:Ce, а під час накопичення дози у 100 Мрад – зменшується на 45 %.

Результати дослідження впливу радіаційних навантажень на відносний світловий вихід сцинтиляційних гранул YAGG:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу, доводять можливість їхнього використання для створення радіаційно-стійких композиційних сцинтиляторів.

#### 2.4.2 Спектрально-кінетичні характеристики гранул YAGG:Ce під дією радіаційних навантажень

Спектри рентгенлюмінесценції кристалу та порошку YAGG:Ce, що було отримано у даній роботі за методом твердофазного синтезу, наведено на рис. 2.15.

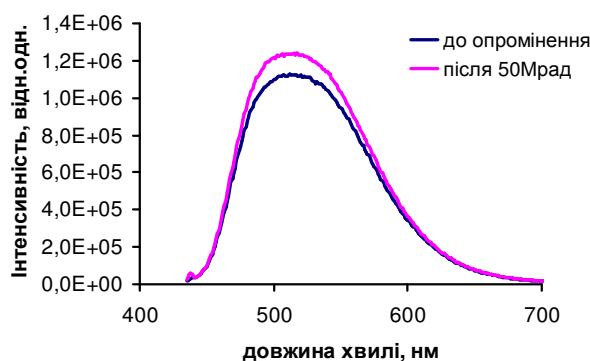


Рисунок 2.15 – Спектри рентгенлюмінесценції гранул YAGG:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу

З даних, які наведено на рис. 2.15, випливає, що спектральний склад люмінесценції гранул YAGG:Ce, що було отримано методом твердофазного синтезу, також мають слабкий перерозподіл інтенсивностей в межах смуги

люмінесценції. Але інтенсивність не зазнає значних змін до доз опромінення  $D = 50$  Мрад.

Кінетичні параметри люмінесценції порошоків YAGG:Ce (концентрація 0,3 ат %), наведено на рис. 2.16. За даними обчислення час згасання люмінесценції для YAGG:Ce становить 19 нс.

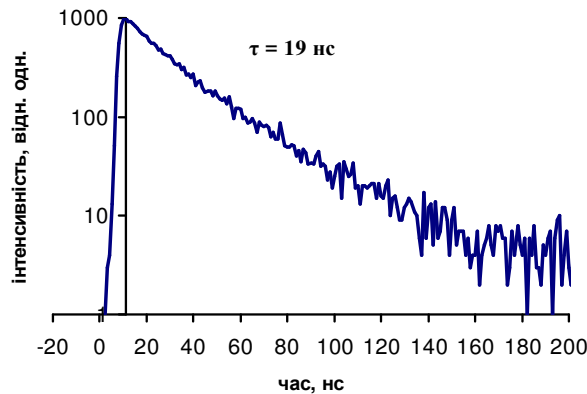


Рисунок 2.16 – Кінетичні спектри люмінесценції порошоків YAGG:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу, до опромінення

Згідно з експериментальними даними доза опромінення  $D = 50$  Мрад істотно не впливає на кінетичні параметри люмінесценції отриманих зразків порошку YAGG:Ce.

Результати дослідження оптичних характеристик гранул YAGG:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу свідчать, що за спектрами люмінесценції, а саме, що смуга люмінесценції гранул YAGG:Ce максимумом на довжині хвилі у 510 нм, ці матеріали подібні відповідним монокристалом. Після опромінення на спектрах люмінесценції гранул YAGG:Ce не виявлено значних змін їхньої форми, а також додаткових центрів світіння, що свідчить про високий рівень радіаційної стійкості.

## 2.5 Висновки до розділу 2

За аналізом методів синтезу оксидних сполук визначено, що за простотою та низькою вартістю метод твердофазного синтезу є оптимальним для отримання сцинтиляційних гранул. За зміною часів загасання та спектрами фото- та рентгенлюмінесценції залежно від дози опромінення визначено, що отримані сцинтиляційні матеріали витримують радіаційні навантаження до 100 Мрад. Рівень відносного світлового виходу отриманих зразків гранул YSO:Ce та YAGG:Ce після опромінення становить 70 % для YSO:Ce та 55 % для YAGG:Ce від світлового виходу відповідних гранул до опромінення при накопичених дозах у 100 Мрад. За результатами досліджень визначено, що сцинтиляційні гранули YSO:Ce та YAGG:Ce, отримані методом твердофазного синтезу, є придатними сцинтиляційними матеріалами для створення радіаційно-стійких композиційних сцинтиляторів та для виготовлення радіаційно-стійких детекторів для використання в сучасних фізичних експериментах.

Список джерел, які використано у даному розділі, наведено у повному переліку використаних джерел [97, 105].

### РОЗДІЛ 3. СВІЛОЗБИРАННЯ У КОМПОЗИЦІЙНОМУ СЦИНТИЛЯТОРІ

Як зазначалось в розділі 1 композиційним сцинтилятором є сцинтиляційні гранули, які вводять в оптично прозоре середовище. Основне завдання під час створення композиційних сцинтиляторів – це отримання оптично прозорого зразка. Вирішенням цього завдання, по-перше, це створення та розрахунок математичної моделі з урахуванням показників заломлення оптичного середовища та введених гранул, розміру гранул та їхньої концентрації, а також варіювання товщини сцинтиляційного шару. По-друге, це експериментально отримані параметри світлозбирання для остаточного розрахунку створеної математичної моделі. Завдяки такому підходу можна визначити ефективність реєстрації іонізуючого випромінювання створених сцинтиляційних шарів.

#### 3.1 Моделювання світлозбирання в композиційному сцинтиляторі

Найбільш потужний метод моделювання переносу випромінювань – метод Монте Карло – дозволяє моделювати траєкторії частинок і променів. Важливим моментом такого моделювання є правильний опис поведінки частинок (променів) на межах об'єктів. Під час моделювання переносу випромінювання в гетерогенних системах це стає головною особливістю.

Об'єм зразка розбивається на осередки кубічної форми. В кожному з них є частинка дисперсної фази заданої форми, тобто випадкових розмірів та розташування. У дисертаційній роботі під час моделювання траєкторій променів світла в композиційному сцинтиляторі використано підхід як в [63]<sup>1</sup>.

У математичній моделі композиційного сцинтилятора світло випускається та

---

<sup>1</sup> Автор висловлює свою подяку доктору фізико-математичних наук В.А.Тарасову за допомогу у математичному моделюванні та обговоренні отриманих результатів.

розповсюджується рівномірно у всіх напрямках, за законами геометричної оптики, з урахуванням вірогідності віддзеркалення або заломлення на межах розділу фаз. Для її визначення використано закон Френеля у вигляді опису частини віддзеркаленої енергії  $F(\lambda, \zeta)$  (3.1), для якої достатньо лише значень показників заломлення середовищ:

$$F(\lambda, \zeta) = \frac{1}{2} \left( \sqrt{\frac{\cos \zeta_j - \eta \cos \zeta_\tau}{\cos \zeta_j + \eta \cos \zeta_\tau}} + \sqrt{\frac{\eta \cos \zeta_j - \cos \zeta_\tau}{\eta \cos \zeta_j + \cos \zeta_\tau}} \right) \quad (3.1)$$

де  $\lambda$  – довжина хвилі розповсюджуваного світла;

$\zeta_j$  и  $\zeta_\tau$  – кути падіння і заломлення променя, відповідно;

$\eta$  – відносний показник заломлення світла.

Перетин променем світла меж частинок заданої форми та середовища, в якому вони знаходяться, враховується під час моделювання світлозбирання. На рис.3.1. наведено можливі варіанти проходження променем світла осередку з частинкою.

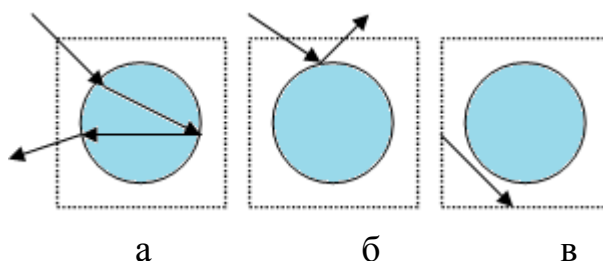


Рисунок 3.1 –можливі варіанти проходження променем світла осередку з частинкою: а – з поглинанням променя світла частинкою, б – з віддзеркаленням променя світла від межі частинки, в – без попадання променя світла у частинку

На рис. 3.1,а промінь світла в осередку перетинає межу частинки та після віддзеркалень в її об'ємі або поглинається або виходить у сусідній осередок. На рис.3.1,б промінь світла віддзеркалюється від поверхні частинки та попадає в сусідній осередок. На рис. 3.1,в промінь світла проходить через середовище осередку без попадання у частинку. Таким чином враховується кожний фотон, що



виникає, до його поглинання в об'ємі композиційного сцинтилятора або виходу за його межі.

Для проведення моделювання цей підхід було реалізовано в програмі TopSphReflector, інтерфейс і результат роботи якої для одного з варіантів композиційного сцинтилятора подано на скріншоті (рис. 3.2).

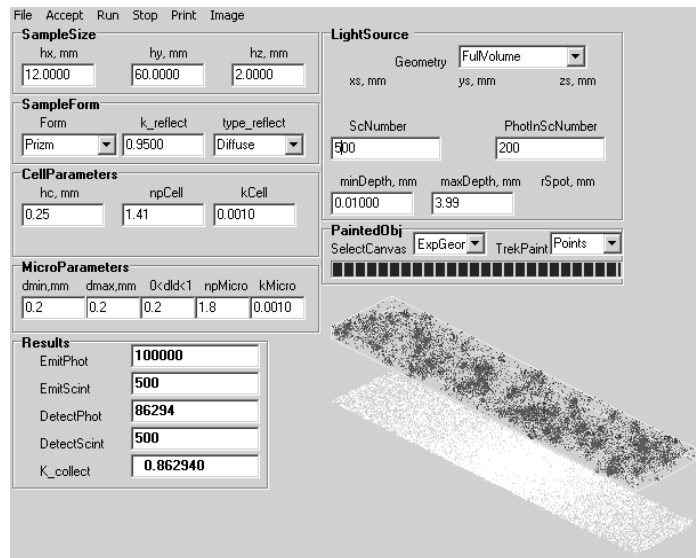


Рисунок 3.2 – Інтерфейс програми моделювання проходження світла в композиційному сцинтиляторі розмірами  $60 \times 10 \times 0,25 \text{ мм}^3$  на основі гранул YSO:Ce, введених у полісилоксан Sylgard-184

Для розрахунку математичних моделей необхідно лише знати показники заломлення та коефіцієнти поглинання світла сцинтиляційних матеріалів і оптичних матеріалів основи.

У дисертаційній роботі досліджувалися такі матеріали для виготовлення композиційних сцинтиляторів: ортосилікат ітрію, активований церієм (YSO:Ce), ітрій алюміній-галієвий гранат, активований церієм (YAGG:Ce) та сцинтиляційний полістирол, як оптичне середовище – полісилоксановий компаунд Sylgard-184. Необхідні для моделювання дані показників заломлення світла сцинтиляційних матеріалів зазначено у [64] і оптичних матеріалів у [65, 66]. Коефіцієнти поглинання світла для відповідної довжини хвилі цих

матеріалів отримано під час аналізу відповідних спектрів пропускання. Отримані параметри матеріалів наведено в таблиці 3.1.

Для обчислення ефективності світлозбирання використовуватимемо коефіцієнт  $k$ :

$$k_j = \left( \frac{G}{G_0} \right)_j, \quad (3.2)$$

де  $G_0$  – кількість фотонів світла, що виникли в об'ємі сцинтилятора;

$G$  – кількість фотонів світла, що зареєстровано фотоприймачем;

$j$  – інтегральна щільність потоку світла.

Таблиця 3.1 – Значення коефіцієнтів поглинання і показників заломлення світла сцинтиляційних та оптичних матеріалів композиційних сцинтиляторів

Матеріал	Коефіцієнт поглинання, $\text{мм}^{-1}$	Показник заломлення світла $\eta$
$\text{Y}_3\text{Al}_{1.25}\text{Ga}_{3.25}\text{O}_{12}:\text{Ce}$ (YAGG:Ce)	0,074	1,83
$\text{Y}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ (YSO:Ce)	0,075	1,8
Полістирол	0,001	1,51
Полісилоксан Sylgard-184	0,0008	1,41

Геометрична модель композиційного сцинтилятора є пласкою пластиною з розмірами  $60 \times 10 \times 2 \text{ мм}^3$ . Значення  $k$  отримано, коли світло виходило крізь поверхню сцинтилятора  $60 \times 10 \text{ мм}^2$ .

Розрахунки проводились для композиційних сцинтиляторів, які містять гранули полістиролу і для композиційних сцинтиляторів, які містять гранули YSO:Ce або YAGG:Ce, отримані методом твердофазного синтезу за умови, що світло розповсюджується ізотропно по всьому об'єму зразка. Як еталонна модель, для якої найбільш близькі показники заломлення та коефіцієнти поглинання матеріалів, використовували композиційний сцинтилятор, у якому в оптичну

основу Sylgard-184 введено гранули полістиролу. Для композиційних сцинтиляторів, які містять гранули полістиролу знайдено, що  $k$  дорівнює 0,86.

Досліджено залежності коефіцієнта світлозбирання в гетерогенних сцинтиляторах від:

- геометричних розмірів детектора і місць виникнення сцинтиляцій;
- геометричних розмірів частинок, форми і властивостей їхньої поверхні;
- концентрації частинок у сцинтиляційному шарі;
- оптичних властивостей частинок і оптичної середо (прозорість, показники заломлення).

Місце виникнення сцинтиляції задавали у вигляді окремої точки або випадковим чином в обраній області об'єму сцинтилятора.

Дослідження залежності коефіцієнта світлозбирання від розмірів зразка гетерогенної системи і місць виникнення сцинтиляцій проводилося для еталонної моделі, що складалась з:

- кульок полістиролу з показником заломлення 1,5 (дисперсна фаза);
- повітря (дисперсійне середовище з показником заломлення 1,0).

За законом Бугера [67] коефіцієнт світлозбирання можна подати як функцію залежності від товщини сцинтилятора  $k = k(l)$ . Цей вираз показує залежність ослаблення світла від товщини  $l$  композиційного шару і може бути апроксимовано такою експонентою:

$$k = \left( \frac{G}{G_0} \right) \times e^{-ml}, \quad (3.3)$$

де  $m$  – коефіцієнт поглинання світла,  $l$  – товщина композиційного сцинтилятора,  $G_0$  і  $G$  – кількість фотонів світла, що виникли в об'ємі сцинтилятора та зареєстровані фотоприймачем, відповідно.

На рис. 3.3 наведено залежність коефіцієнта світлозбирання від товщини зразка. Діаметр кульок приймався однаковим і становили 20 мкм, 40 мкм і 80 мкм. Товщина зразка змінювалася від 0,2 до 1 мм. Сцинтиляції виникали в

поверхневому шарі зразка. Незалежно від розміру часток характер залежностей коефіцієнта світлозбирання від товщини зразка зберігається.

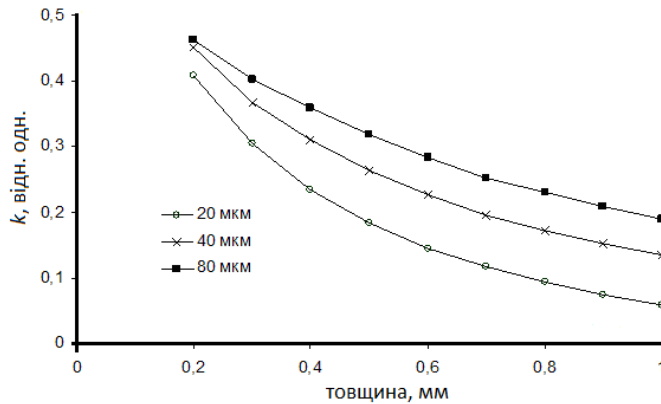


Рисунок 3.3 – Залежність коефіцієнта світлозбирання від товщини зразка гетерогенного сцинтилятора з різним розміром частинок дисперсної фази (20 мкм, 40 мкм і 80 мкм) з показником заломлення 1,5 з повітряним дисперсійним середовищем

Дослідження залежностей коефіцієнта світлозбирання в композиційних сцинтиляторах від інших факторів проводилися для різних значень відстані місця спалаху до вихідного вікна сцинтилятора. Для зручності сприйняття і перевірки проходження закону Бугера ці залежності подавалися, у подальшому, в напівлогарифмічних координатах (рис. 3.4).

Рисунок 3.4 демонструє розрахункову залежність  $k = k(x)$ , де  $x$  – це відстань між місцем виникнення сцинтиляції і вихідним вікном для частинок еталонної моделі на основі полістиролу. На рис.3.4 (а) гранули моделювалися як кулі діаметром  $d_0$  з розмірами 20 мкм, 40 мкм та 80 мкм.

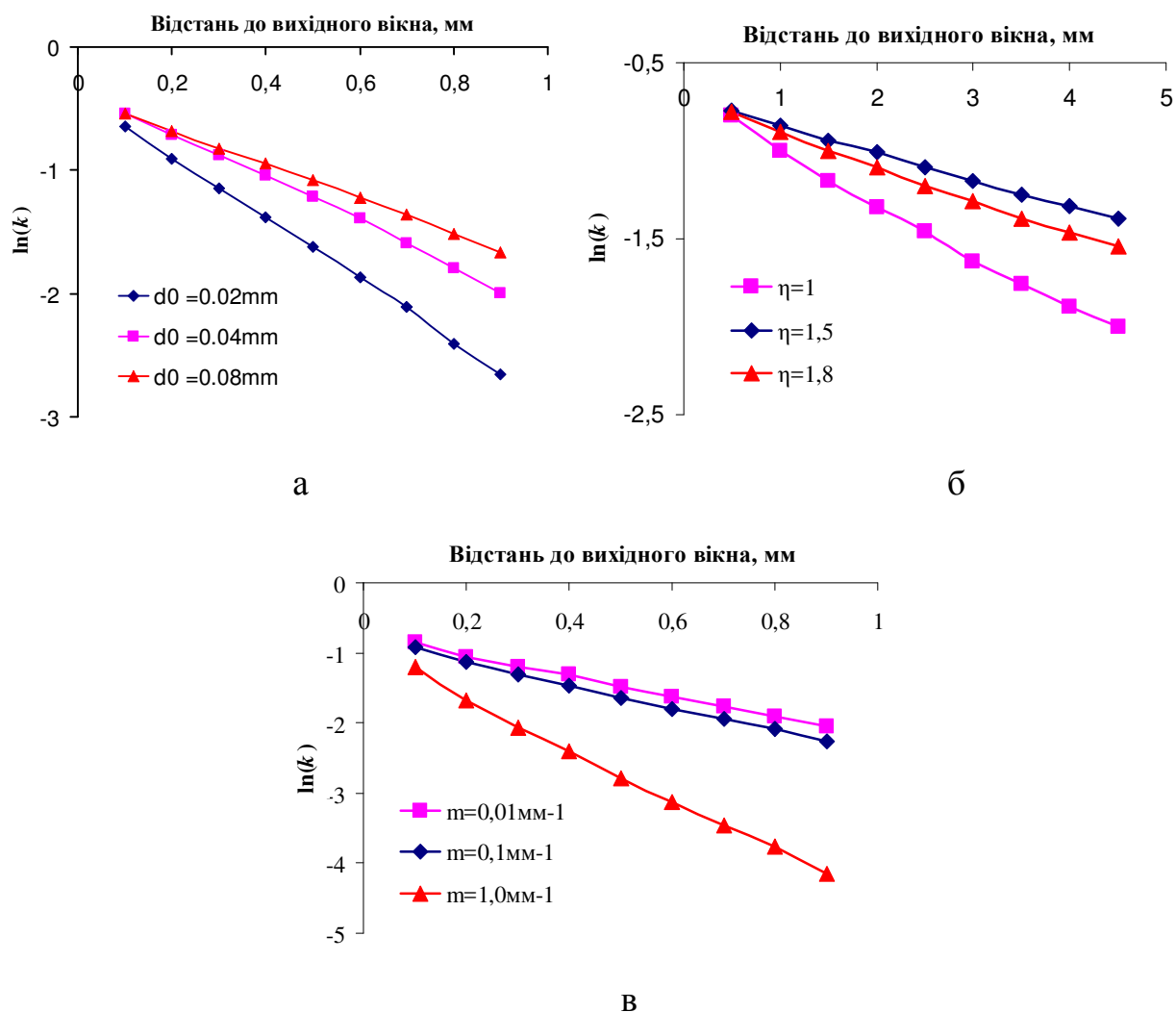


Рисунок 3.4 – Розрахункова залежність  $k$  від відстані місця спалаху до вихідного вікна сцинтилятора для частинок пластмасового сцинтилятора на основі полістиролу: різного розміру (а), для гранул на основі полістиролу розміром 40 мкм у оптичній основі з показниками заломлення 1,0, 1,5 та 1,8 (б), для середовищ із різною прозорістю (в)

Як видно, зменшення розміру гранул призводить до падіння величини  $k$ . В ході варіювання показника заломлення світла  $\eta = 1,0, 1,5$  і  $1,8$  (рис. 3.4, б) для оптичної основи (показник заломлення гранул не змінюється) також відбуваються значні зміни величини  $k$ . Розрахунки наведені для сферичних гранул сцинтиляційного полістиролу із діаметром  $d_0 = 40$  мкм. Значне збільшення  $k$  спостерігається при близькості показників заломлення світла гранул та матеріалу

оптичної основи, тобто коли  $\eta$  дорівнює 1,5. Рисунок 3.4, в вказує на вплив прозорості композиційного сцинтилятора.

На рис. 3.5 наведено залежність  $k = k(x)$  для гранул різного розміру від числа умовних шарів частинок у оптичній основі. За умовний шар частинок приймається сукупність гранул, які розташовані у товщині композиційного сцинтилятора на відстані  $x$  від вихідного вікна сцинтилятора.

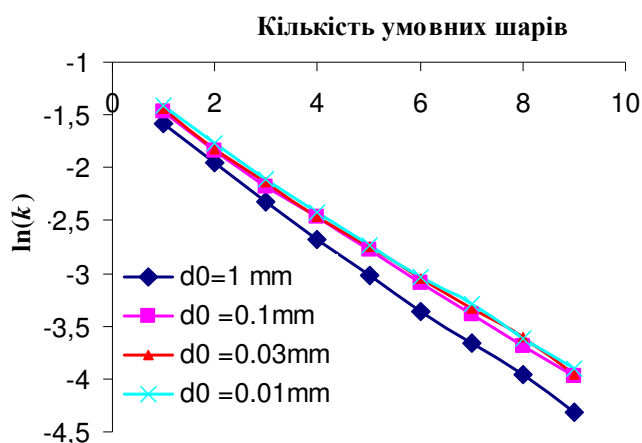


Рисунок 3.5 – Розрахункова залежність  $k$  від кількості умовних шарів гранул

Помітні відмінності, більш різке зменшення коефіцієнта світлозбирання  $k$ , спостерігаються для частинок великого розміру, що в розрахунках мають діаметр 1 мм.

Таким чином, на прозорість тонких шарів композиційного сцинтилятора впливають розмір гранул та концентрація гранул в оптичній основі (або, кількість умовних шарів), що впливає на розсіювання світла, та відносний показник заломлення світла гранул та оптичної основи.

Далі проведено моделювання проходження світла у системах із параметрами близькими до параметрів реальних матеріалів. У зв'язку з близькістю показників заломлення та коефіцієнтів поглинання YSO:Ce та YAGG:Ce розрахунки проведено для сцинтиляційних гранул YSO:Ce та оптичної полісилоксанової основи Sylgard-184.

Для моделювання сцинтиляційний шар розділений на умовні кубічні осередки, з розміром грані  $Z$ . В одному осередку розміщується тільки одна гранула визначеного розміру  $d_{гран}$ . Осередок заповнено оптичним полісилоксаном Sylgard-184. Із таких осередків складається умовний сцинтиляційний шар. Розрахункові значення  $k$  для композиційних сцинтиляторів із різними розмірами гранул YSO:Ce, введених в оптичну основу Sylgard-184, наведено в таблиці 3.2.

Таблиця 3.2 – Розрахункові значення  $k$  для композиційних сцинтиляторів, які містять гранули сцинтилятора YSO:Ce із різними розмірами  $d_{гран}$  за наявності умовних елементів Sylgard-184, розміром  $Z$

$d_{гран}$ , мкм	Розмір умовного осередку $Z$			
	31 мкм	63 мкм	125 мкм	250 мкм
10	0,409	0,583	0,821	1,161
20	0,289	0,412	0,581	0,822
45	–	0,275	0,387	0,547
63	–	0,232	0,327	0,463
Кількість шарів	8	4	2	1

Як видно з результатів (таблиця 3.2) залежність  $k$  від розміру гранул така ж як і для еталонної моделі. Під час зменшення розміру умовного осередку, збільшується число умовних сцинтиляційних шарів. Розмір осередку обмежується лише максимально можливим розміром гранул, а значення  $k$  зменшуються. І навпаки, мінімальні розміри гранул та максимальний розмір умовного осередку призводить до максимального значення  $k$ .

Від сцинтиляційної ефективності матеріалу сцинтиляційних гранул та їхньої концентрації в композиційному сцинтиляторі залежатиме кількість світла, що виникла в його об'ємі. Це впливатиме на кількість світла, що вийде з поверхні сцинтилятора на фотоприймач і буде пропорційне коефіцієнту світлозбирання  $k$  і ефективній товщині сцинтилятора. Ефективною товщиною вважатимемо відношення маси сцинтиляційних гранул до одиниці площі композиційного

сцинтилятора. Кількість енергії, яку втратить іонізуюче випромінення в тонкому шарі композиційного сцинтилятора буде пропорційне товщині сцинтиляційного матеріалу, тобто кількість світла буде пропорційне його ефективній товщині. Максимальне значення їхнього добутку є параметром для оптимізації розміру сцинтиляційних гранул і їхня концентрація в сцинтиляторі заданої товщини.

В таблиці 3.3 наведено ефективну товщину сцинтиляційних гранул YSO:Ce в оптичній основі Sylgard-184, для тих самих розмірів гранул і умовних осередків, що і в таблиці 3.2.

Таблиця 3.3 – Ефективна товщина сцинтилятора YSO:Ce в системі YSO:Ce – Sylgard-184 з різними розмірами гранул  $d_{гран}$  і умовних осередків  $Z$

Ефективна товщина гранул YSO:Ce в композиційному шарі				
$d_{гран}$ , мкм	Розмір умовного осередку $Z$			
	31 мкм	63 мкм	125 мкм	250 мкм
10	0,005446	0,001318	0,000335	0,000084
20	0,043566	0,010548	0,002679	0,00067
45	–	0,120153	0,030521	0,00763
63	–	0,3297	0,083749	0,020937
Кількість шарів	8	4	2	1

В таблиці 3.4 наведено значення добутків  $k$  і ефективної товщини YSO:Ce в композиційному сцинтиляторі на основі Sylgard-184, який містить гранули YSO:Ce для різних розмірів цих гранул ( $d_{гран}$ ) і умовних осередків ( $Z$ ).

Порівняння таблиць 3.2 і 3.4 показує, що характер ефективної товщини є близьким за порядком величин. Вплив  $k$  при цьому мінімальний. Тобто кількість світла, що зареєстровано фотоприймачем, в основному визначається ефективною товщиною сцинтиляційного матеріалу. За результатами математичного моделювання максимальне значення  $k$  відповідає об'ємній долі сцинтиляційного матеріалу у 48 % (повне заповнення об'єму умовного осередку розміром  $Z = 63$  мкм сферою) при розмірі гранул 63 мкм.



Таблиця 3.4 – Значення добутоків  $k$  і ефективної товщини YSO:Ce в композиційних сцинтиляторах на основі Sylgard-184, що містить гранули YSO:Ce для різних розмірів цих гранул ( $d_{гран}$ ) і умовних елементів ( $Z$ )

Добутки $k$ і ефективної товщини сцинтиляційного шару з гранулами YSO:Ce				
$d_{гран}$ , мкм	Розмір умовного осередку $Z$			
	31 мкм	63 мкм	125 мкм	250 мкм
10	0,002227	0,000768	0,000275	0,000098
20	0,012591	0,004346	0,001556	0,000551
45	–	0,033042	0,011812	0,004174
63	–	0,076490	0,027386	0,009694
Кількість шарів	8	4	2	1

### 3.2 Експериментальні дослідження сцинтиляційних характеристик композиційного сцинтилятора

#### 3.2.1 Технологічний процес виготовлення зразків композиційних сцинтиляторів на основі гранул YSO:Ce та YAGG:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу

Процес отримання композиційних сцинтиляторів YSO:Ce або YAGG:Ce складався з таких послідовних операцій:

- а) підготовка початкової сировини;
- б) подрібнення сировини для отримання гранул;
- в) виготовлення композиційних сцинтиляторів.

*а) підготовка початкової сировини.*

Покласти синтезовану шихту YSO:Ce або YAGG:Ce на чисту поверхню.

Провести візуальний вхідний контроль шихти на наявність механічних забруднень. За допомогою пінцету та скальпеля видалити з поверхні шихти великі механічні включення. Відібрану сировину помістити у скляний стакан.

У скляний стакан з сировиною налити ізопропиловий спирт. Рівень спирту має перевищувати рівень сировини на 5–10 мм. Провести інтенсивне перемішування суміші в стакані за допомогою скальпелю протягом двох хвилин.

Залишити суміш у склянці на 30 хвилин до повного розшарування шихти та розчинника.

Злити залишок ізопропилового спирту. За допомогою скальпелю перенести промиту шихту на фільтрувальний папір.

Висушити шихту на повітрі протягом 30 хвилин;

*б) подрібнення сировини для отримання гранул.*

Протерти агатову ступку та товкач тканинною серветкою, змоченою ізопропиловим спиртом.

Висипати шихту в ступку. За допомогою товкача провести її подрібнення до розміру гранул 45–63 мкм. Подрібнення проводити у декілька коротких етапів по одній хвилині кожний. Контроль розміру гранул проводити за допомогою оптичного мікроскопу Axiovert 40 MAT Carl Zeiss у відбитому світлі.

Після закінчення операції подрібнення шихти промити ступку та товкач в ізопропиловому спирті та висушити на повітрі протягом 10 хвилин;

*в) виготовлення композиційних сцинтиляторів.*

Протерти скляний стакан тканинною серветкою, змоченою ізопропиловим спиртом. Просушити стакан на повітрі 1 хвилину.

Поставити порожній стакан на електронні ваги, що мають точність зважування не менш за 0,01 г. Налити в стакан 1,36г основи еластомеру Sylgard-184. За допомогою скальпеля додати 0,14 г затверджувача еластомеру Sylgard-184. Ретельно перемішати суміш протягом однієї хвилини.

Вакуумувати еластомер 10 хвилин до повного видалення повітряних бульбашок з об'єму.

Поставити стакан з еластомером на електронні ваги. Насипати до стакану 3,46г порошку YSO:Ce або YAGG:Ce (70ваг. %). Ретельно перемішати суміш порошку та еластомеру.

Вакуумувати суміш 20 хвилин до видалення повітряних бульбашок з об'єму.

Нанести суміш на нижню поверхню технологічної оснастки. Встановити дистанційні прокладки товщиною 0,5мм. Накрити суміш верхньою поверхнею технологічної оснастки.

Помістити технологічну оснастку в муфельну піч.

Провести полімеризацію заготовки композиційного сцинтилятора при 120<sup>0</sup>С протягом 4 годин. Дати оснастці охолонути до кімнатної температури.

Дістати заготовку з технологічної оснастки. За допомогою шаблону вирізати чотири зразки композиційного сцинтилятора з розмірами 20x20x0,5 мм. Провести вхідний контроль розмірів зразків YSO:Ce або YAGG:Ce за допомогою штангенциркуля.

### **3.2.2 Сцинтиляційні характеристики композиційних сцинтиляторів на основі гранул YSO:Ce, отриманих твердофазним синтезом**

Вимірювання дослідних зразків для отримання значень відносного світлового виходу  $L$  (2.4) проводилось за схемою, наведеною на рис. 2.3. Опромінення зразків здійснювалось джерелом  $Sr^{90} - Y^{90}$ . На рис. 3.6 наведено експериментальну залежність світлового виходу композиційного сцинтилятора на основі гранул YSO:Ce від розміру гранул, від товщини композиційного сцинтилятора та від концентрації гранул.

Зі зменшенням розміру частинок (із зростанням кількості меж, які розсіюють світло) світловий вихід падає. Максимальний розмір гранул YSO:Ce, отриманих методом твердофазного синтезу, склав 63 мкм, що обмежує подальшу можливість дослідження величини світлового виходу залежно від розміру гранул. Можна вважати, що в разі задовільної прозорості матеріалів гетерогенної системи, зміна світлового виходу визначатиметься кількістю меж розсіювання на шляху до вихідного вікна сцинтилятора.

Таким чином, можна зазначити, що результати, отримані моделюванням і проведеними експериментами показують, що зменшення розміру гранул, тобто зі збільшенням кількості меж, відносний світловий вихід зменшується.

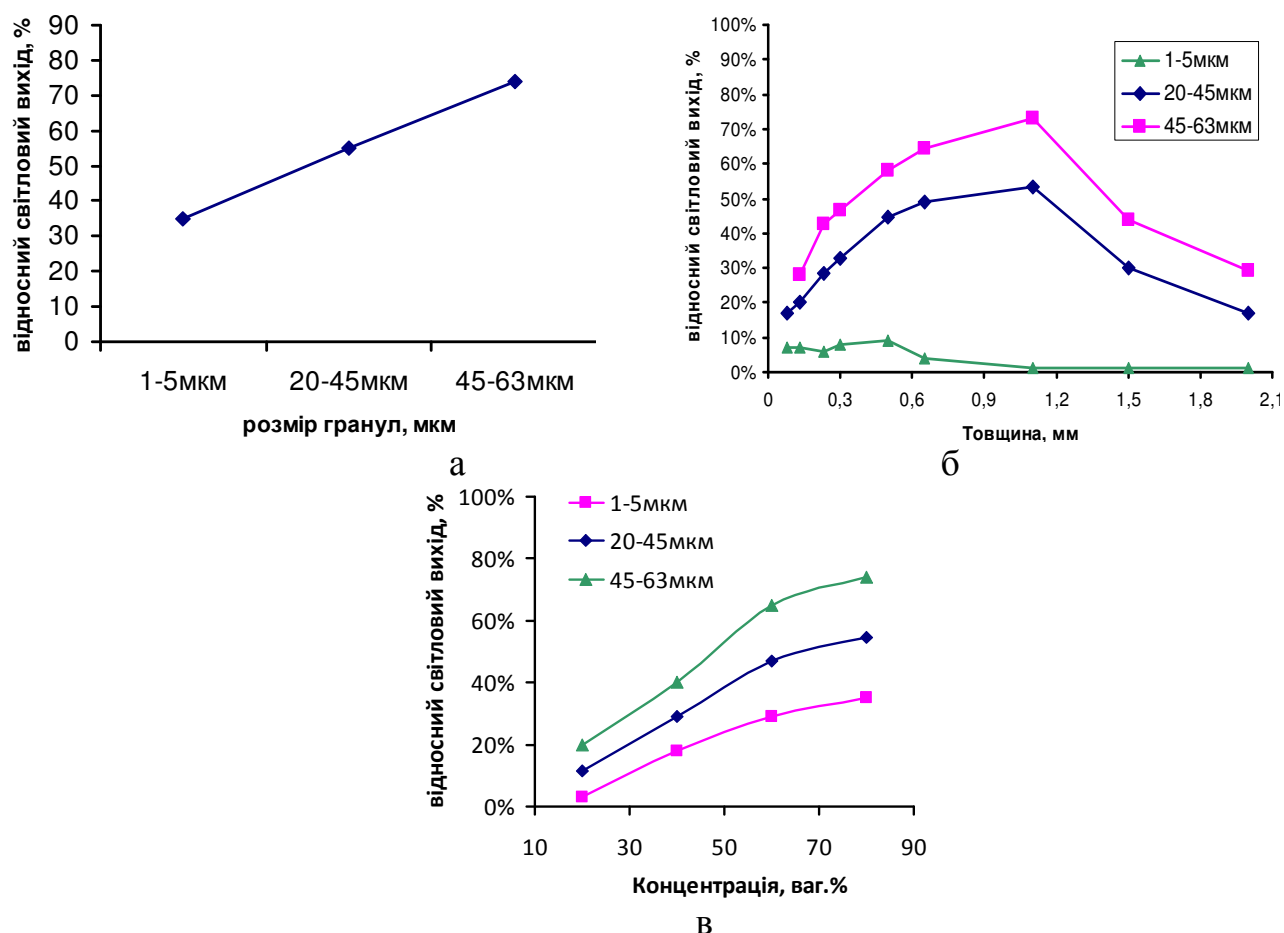


Рисунок 3.6 – Залежність відносного світлового виходу композиційного скінтилятора на основі гранул YSO:Ce: а – розміру гранул, б – від товщини композиційного скінтилятора, в – від концентрації гранул

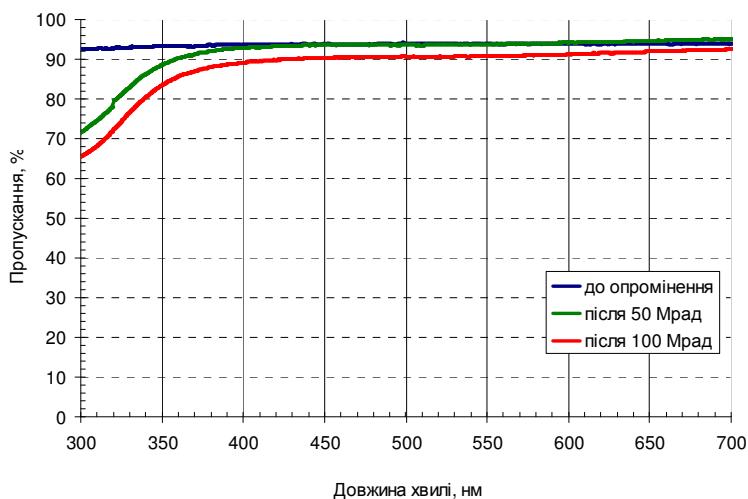
Експериментально встановлено, що оптимальний розмір гранул має складати 45–63 мкм. Концентрація гранул в імерсії має бути близько 75 %. Товщина композиційного скінтилятора має складати 0,6–1,2 мм.

### 3.3 Вибір матеріалів світлопровідного шару для роботи в умовах радіаційних навантажень

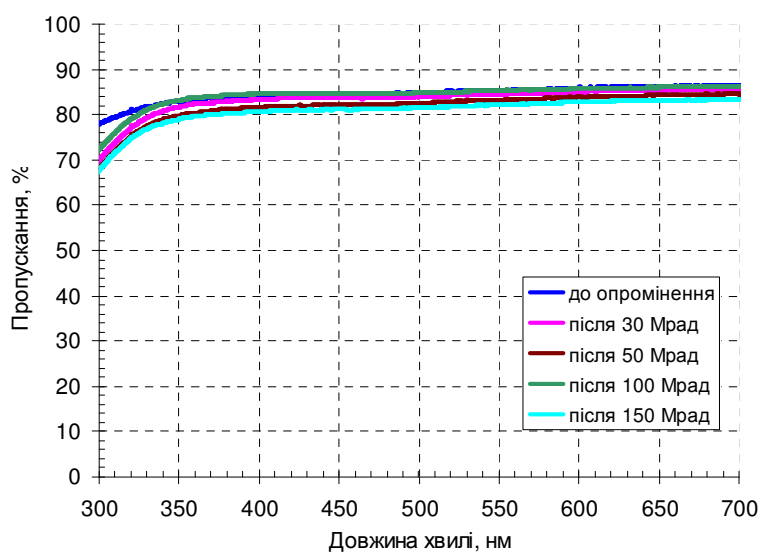
Композиційний скінтилятор є структурою з суттєвим розсіюванням світла на поверхні. Для покращення світлозбирання з композиційного шару на його вихідну поверхню запропоновано додати світлопровідний шар з оптично прозорого матеріалу. Матеріал для світлопровідного шару має бути прозорим в області

люмінесценції сцинтилятора, радіаційно-стійким і не повинен мати власної люмінесценції.

Із оптичних матеріалів для виготовлення світлопровідного шару, що відповідають вищенаведеним вимогам (рис. 3.7) та комерційно доступні обрано полісилоксанові компаунди, кварцове скло, лейкосапфір



а – кварцове скло КУ-1



б – лейкосапфір

Рисунок 3.7 – Спектри пропускання кварцового скла КУ-1 (а) та лейкосапфіру (б) до (0 Мрад) та після опромінення (50 Мрад, 100 Мрад та 150 Мрад)

За отриманими спектрами пропускання залежно від радіаційних навантажень кварцове скло марки КУ-1 в області люмінесценції сцинтиляційних гранул YSO:Ce та YAGG:Ce залишається прозорим, що підтверджується у

[67–73]. Але експериментально встановлено, що після накопиченої дози у 50 Мрад пропускання на довжинах хвиль до 400 нм різко знижується (рис. 3.7, а). Це накладає обмеження на використання кварцового скла в цьому діапазоні довжин хвиль.

Дані про радіаційну стійкість лейкосапфіру вказано у [72, 74]. Як видно з отриманих спектрів пропускання (рис. 3.7, б), навіть накопичені дози у 150 Мрад не дають значної зміни в діапазоні довжин хвиль від 300 до 700 нм. Тобто лейкосапфір можна використовувати для роботи із сцинтиляторами, що мають люмінесценцію від 350 нм.

Таким чином для виготовлення світлозбираючого шару радіаційно-стійких сцинтиляційних елементів було обрано зразки кварцового скла та лейкосапфіру. Встановлено, що дані матеріали є радіаційно-стійкими під час опромінення дозами 100 Мрад та 150 Мрад, відповідно (рис. 3.7).

Проведено вибір оптичних матеріалів, для створення композиційних сцинтиляторів зі збільшеним світловим виходом. Радіаційна стійкість цих матеріалів дозволяє працювати при накопичених дозах більш 150 Мрад.

### **3.4 Сцинтиляційний елемент на основі композиційного сцинтилятора**

З попередніх розділів зрозуміло, що використання композиційних сцинтиляторів для виготовлення детекторів для сучасних фізичних експериментів є дуже перспективним. Метод отримання сцинтиляційних гранул (механічне подрібнення монокристалів чи синтез) має бути обраний залежно від радіаційних навантажень. Технологія виробництва композиційних сцинтиляторів на основі комерційно доступних матеріалів дозволяє виготовляти детектори для великих площ перекриття без обмежень у формі та розмірах.

Однак, розсіювання світла на межах оптично непрозорих гранул з оптичною основою суттєво погіршує світлозбирання з об'єму композиційного сцинтилятора.

На рис. 3.8 наведено конструкцію, у якої на вихідну поверхню композиційного сцинтилятора додано світлопровідний шар з оптично прозорого середовища.

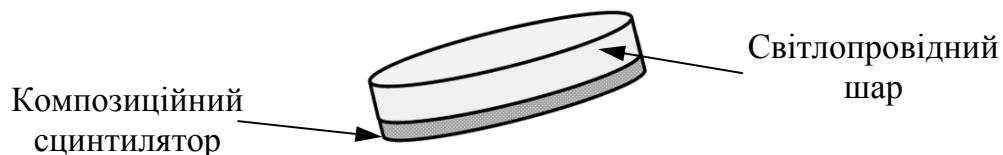


Рисунок 3.8 – Схема композиційного сцинтилятора зі світлопровідним шаром на вихідній поверхні

Для такої конструкції використовується безпосередній контакт елемента з фотоприймачем, якщо характеристики останнього дозволяють роботу в умовах високих радіаційних навантажень. Якщо характеристики фотоприймача не дозволяють його роботу в зоні радіаційних навантажень, необхідно використання спектрзміщуючих волокон. Для цього випадку конструкцію сцинтиляційного елемента можна модифікувати у дизайні типу «Шашлик» (рис.3.9), або у сцинтиляційні елементи типу «Тайл» (рис.3.10) [75–79].

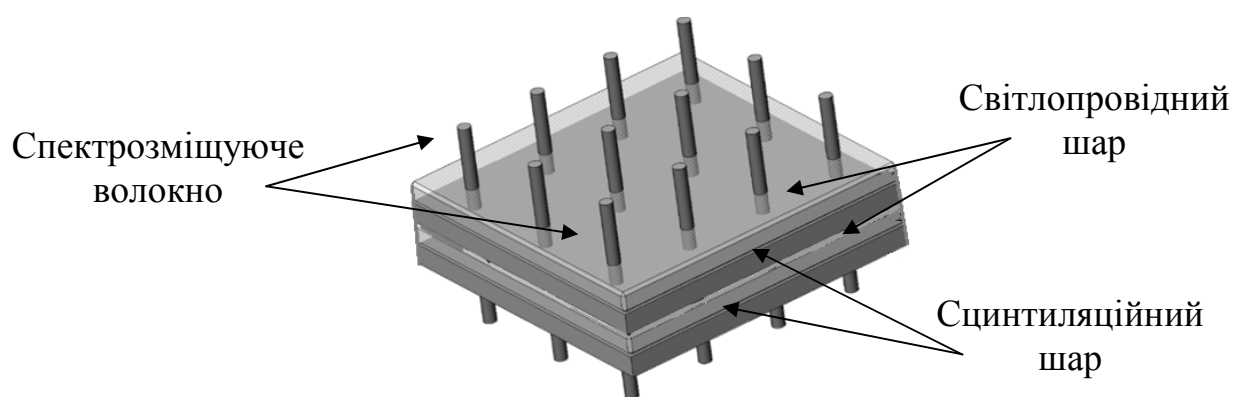


Рисунок 3.9 – Схема з двох сцинтиляційних елементів зі спектрзміщуючими волокнами для конструкції типу «Шашлик»

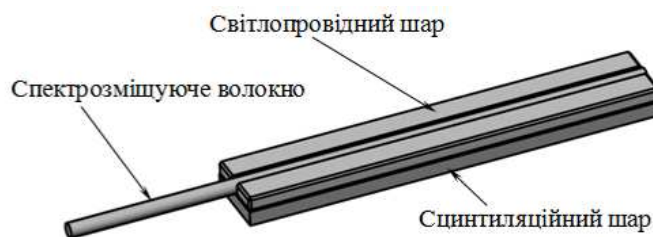


Рисунок 3.10 – Схема сцинтиляційного елемента зі спектрозміщуючим волокном типу «Тайл»

Для наведених сцинтиляційних елементів основою може виступати будь-який радіаційно-стійкий оптично прозорий полімер, що не має поглинання в області люмінесценції сцинтиляційних гранул. Для дизайнів рис. 3.9 та рис. 3.10 для збільшення сцинтиляційної ефективності спектрозміщуюче волокно повинно максимально поглинати світло в області люмінесценції сцинтиляційного матеріалу.

### 3.5 Висновки до розділу 3

Проведено математичне моделювання для визначення параметрів світлозбирання в композиційному сцинтиляторі. Визначено, що зміна світлового виходу визначатиметься кількістю меж розсіювання на шляху до вихідного вікна сцинтилятора.

Проведено дослідження умов виходу світла з композиційного сцинтилятора в залежності від розміру та концентрації гранул в композиційному сцинтиляторі, а також від його товщини. Експериментально встановлено, що оптимальний розмір гранул має складати 45–63 мкм. Концентрація гранул в імерсії має бути близько 75–80 мас %. Товщина композиційного сцинтилятора повинна складати 0,6–1,2 мм.

Обрано оптичні матеріали, для створення світлопровідного шару композиційного сцинтилятора для поліпшення світлозбирання. Радіаційна стійкість цих матеріалів дозволяє залишатися прозорими в області люмінесценції досліджуваних сцинтиляторів при накопичених дозах більш 150 Мрад.



Визначено дизайн сцинтиляційних елементів залежно від умов радіаційних навантажень.

Список джерел, які використано у даному розділі, наведено у повному переліку використаних джерел [95, 96, 102, 106, 108].

## РОЗДІЛ 4.

### ТЕХНОЛОГІЯ ВИРОБНИЦТВА СЦИНТИЛЯЦІЙНИХ ДЕТЕКТОРІВ З ВІДДАЛЕНИМ ФОТОПРИЙМАЧЕМ

Для найбільш радіаційно навантажених ділянок калориметрів фотоприймачі, характеристики яких не відповідають умовам радіаційних навантажень, мають бути винесені за межі місць опромінення. У цьому випадку використовують конструкції сцинтиляційних детекторів зі світлозбиранням спектрзміщуючим волокном з подальшою передачею сигналу на фотоприймач. На рис.4.1 наведено схему сцинтиляційного елемента, в якому є канавка, вироблена під час виробництва елемента, в яку розміщено спектрзміщуюче волокно. Така конструкція є базовою, та передбачає використання пластмасового сцинтилятора та органічного спектрзміщуючого волокна Y-11. Однак їхнє використання у сучасних фізичних експериментах обмежено їхнього низькою радіаційною стійкістю.

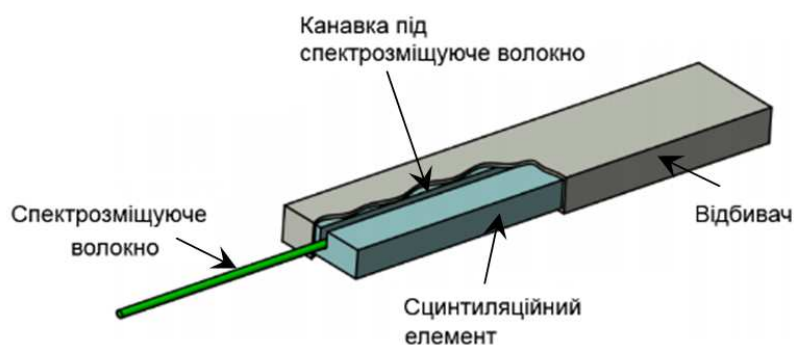


Рисунок 4.1 – Схема сцинтиляційного елемента з  
спектрзміщуючим волокном

Таким чином, склад сцинтиляційного елемента для сучасних фізичних експериментів має включати такі конструкційні компоненти:

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

Такий підхід вимагає виготовлення канавки під спектрзміщуюче волокно в світлопровідному шарі. Як було показано в нашій роботі [109], для сцинтиляційного елемента з світлопровідним 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, розглянутих у розділі 3, таких як кварцове скло або лейкосапфір вимагають іншого підходу. Запропоноване в роботі конструкторсько-технологічне рішення полягало у виготовленні двох плоских пластин з кварцового скла або лейкосапфіру, які полірували з усіх боків, та приклеювали на композиційний сцинтилятор з проміжком між ними для розміщення спектрзміщуючого волокна. Розробка технологічних процесів виготовлення сцинтиляційних елементів з використанням спектрзміщуючого волокна з оптимальним світлозбиранням у сцинтиляційному елементі є актуальним завданням.

#### **4.1 Моделювання світлозбирання в сцинтиляційному елементі**

Як математична модель розглянуто конструкцію сцинтиляційного елемента, що складається з композиційного сцинтилятора на основі Sylgard-184, що містить гранули YSO:Ce, з розташованим над ним додатковим світлопровідним шаром. Розглянуто такі матеріали світлопровідного шару: полісилоксанові компаунди, кварцове скло, лейкосапфір. Світлозбирання здійснювалось за допомогою спектрзміщуючого волокна.

Для дослідження обрано такі геометричні моделі: композиційний сцинтилятор довжиною 60 мм та шириною 12 мм, 20 мм, 40 мм. Світлопровідний шар з оптично прозорого матеріалу товщиною 2 мм. Для наведених моделей вивчалися залежності коефіцієнта світлозбирання (рис. 4.3) від розташування місця збудження сцинтиляцій (координата  $X_s$  вздовж ширини зразка; координата  $Z_s$  вздовж довжини зразка).

Як видно з рис. 4.2, для усіх геометричних моделей коефіцієнт світлозбирання  $k$  зростає на торцях елементів. Близькість відбивача на торцях волокна надає вигідні умови для входження до нього світла. Під час переміщення місця збудження сцинтиляцій від волокна коефіцієнт світлозбирання  $k$  значно зменшується.

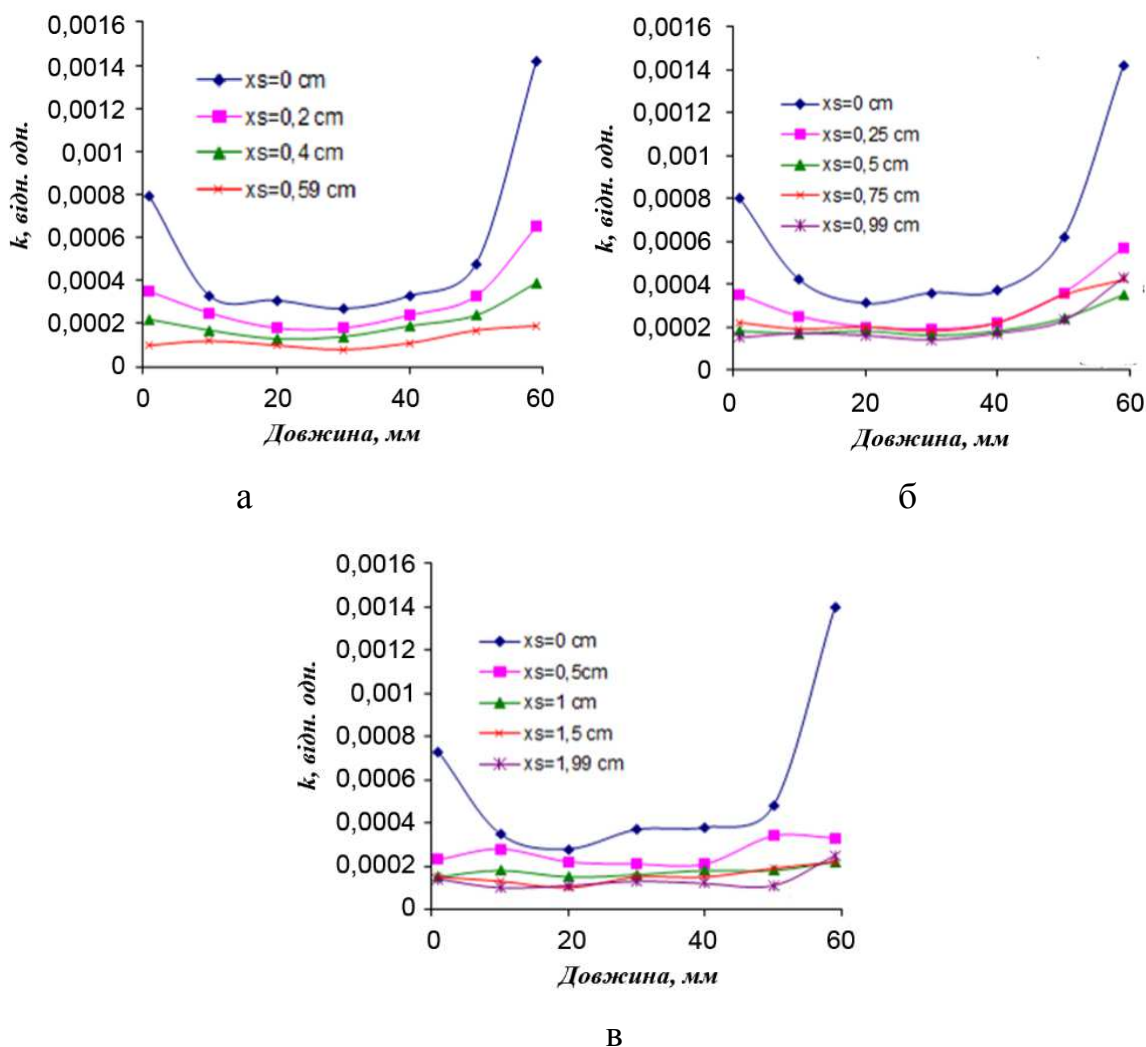


Рисунок 4.2 – Залежності  $k$  для геометричних моделей сцинтиляційного елемента різної ширини (а – 12 мм, б – 20 мм, в – 40 мм) від розташування місця збудження сцинтиляцій

Для геометричної моделі з шириною сцинтиляційного елемента 12 мм (рис. 4.3) досліджено вплив ширини канавки, в яку розміщується спектрозміщуюче волокно, на коефіцієнт світлозбирання  $k$ .

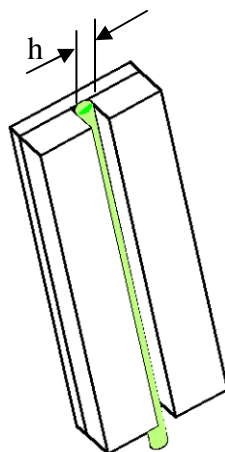


Рисунок 4.3 – Геометрична модель з додатковим світлопровідним шаром, з різною шириною канавки ( $h=2\text{мм}$ ,  $4\text{мм}$ ,  $8\text{мм}$ ,  $11.8\text{мм}$ ) під спектрзміщуюче волокно

Розглядалися такі конструкції сцинтиляційного елемента на базі композиційного сцинтилятора з сцинтиляційних гранул YSO:Ce, введених у оптичну основу Sylgard-184, з додатковим світлопровідним шаром з: 1 – Sylgard-184, 2 – пластин кварцового скла, 3 – пластин лейкосапфир. Результати моделювання наведено на рис. 4.4.

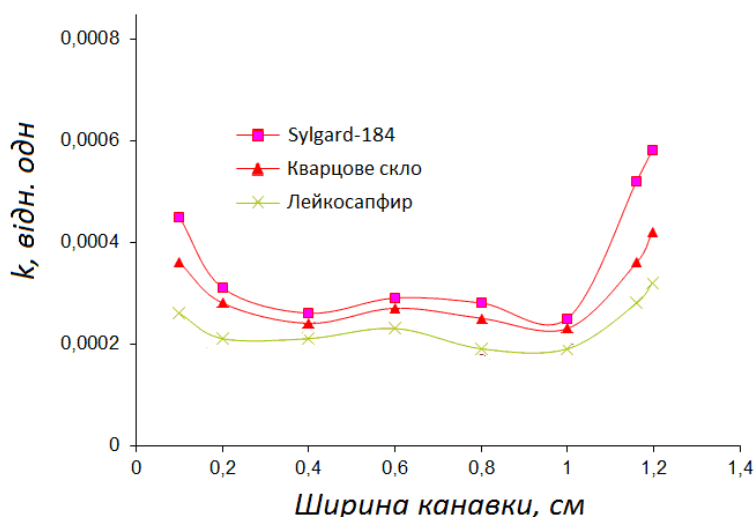


Рисунок 4.4 – Вплив ширини канавки для спектрзміщуючого волокна на коефіцієнт світлозбирання для різних матеріалів додаткових світлопровідних шарів

Сцинтиляційний елемент з світлопровідним шаром з Sylgard-184 має найбільші значення коефіцієнта світлозбирання. Це обумовлено тим, що матеріал основи та додаткового світлопровідного шару мають меншу кількість оптичних меж, ніж у випадку світлопровідних шарів з інших матеріалів.

Всі інші варіанти коефіцієнта збирання світла, з більшою кількістю оптичних меж, дають менші значення коефіцієнта світлозбирання у такому порядку: кварцове скло, лейкосапфір.

Найбільші значення коефіцієнта світлозбирання  $k$  спостерігаються за близьких розмірів канавки та діаметра спектрзміщуючого волокна і за відсутності додаткового світлопровідного шару. Це обумовлено кращими умовами проходження світла до волокна від відбивача.

#### 4.2 Технологія виготовлення сцинтиляційних елементів з віддаленим фотоприймачем

Для виготовлення сцинтиляційних елементів для роботи з віддаленим фотоприймачем технологічний процес у загальному вигляді виглядає таким чином (рис. 4.5):

- виготовлення композиційного сцинтилятора;
- виготовлення плоских пластин для створення світлопровідного шару;
- формування світлопровідного шару на композиційний сцинтилятор.

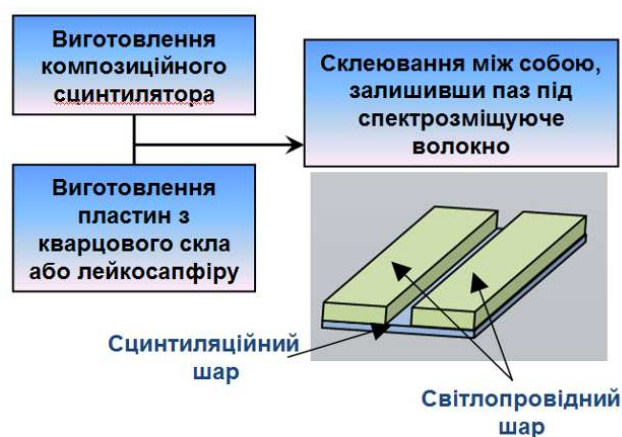


Рисунок 4.5 – Схема технологічного процесу виготовлення сцинтиляційного елемента для роботи з віддаленим фотоприймачем

Виготовлення композиційного сцинтилятора з гранул, отриманих методом твердофазного синтезу, наведено в розділі 3. Виготовлення композиційного сцинтилятора з монокристалічних гранул здійснювалось згідно з [80].

Як матеріал світлопровідного шару було використано пластини у формі паралелепіпеду з кварцового скла марки КУ-1 або лейкосапфіру (рис. 4.6) (процес обробки оптичних матеріалів у роботі не розглядався).

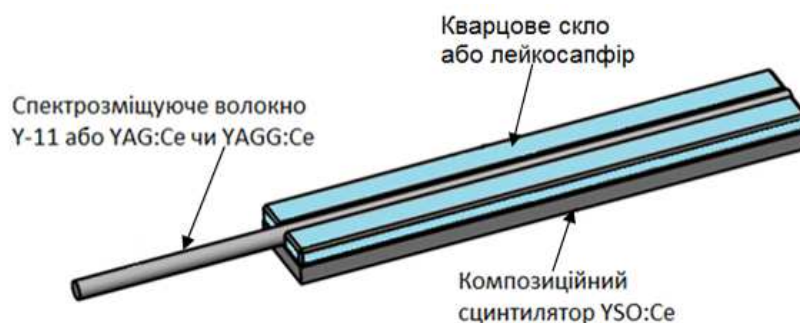


Рисунок 4.6 – Схема композиційного сцинтиляційного елемента на основі гранул YSO:Ce в оптичному еластомері Sylgard-184 зі світлопровідним шаром із кварцового скла або лейкосапфіру

Беруть дві поліровані з усіх боків плоскі пластини кварцового скла (лейкосапфіру) товщиною 2мм та поміщають їх у технологічний контейнер для забезпечення каналу розміром 2мм (для спектрозміщуючого волокна). Готують оптичний полісілоксановий гель Sylgard-184 згідно з інструкцією виробника та за його допомогою оптично з'єднують плоскі пластини з композиційним сцинтилятором, контролюючи відсутність повітряних бульбашок. Після полімеризації сцинтиляційний елемент вилучають з технологічного контейнеру.

Виготовлено прототипи сцинтиляційних елементів для роботи з віддаленим фотоприймачем, які містили гранули YSO:Ce з світлопровідним шаром на основі кварцового скла (рис. 4.7).

Монокристал YAG:Ce як спектрозміщуюче волокно використовували для прототипу площею  $12 \times 60 \text{ мм}^2$  (рис.4.7, а), монокристал YAGG:Ce для прототипу з площею  $20 \times 40 \text{ мм}^2$  (рис.4.7, б) та  $100 \times 150 \text{ мм}^2$  (рис.4.7, в).

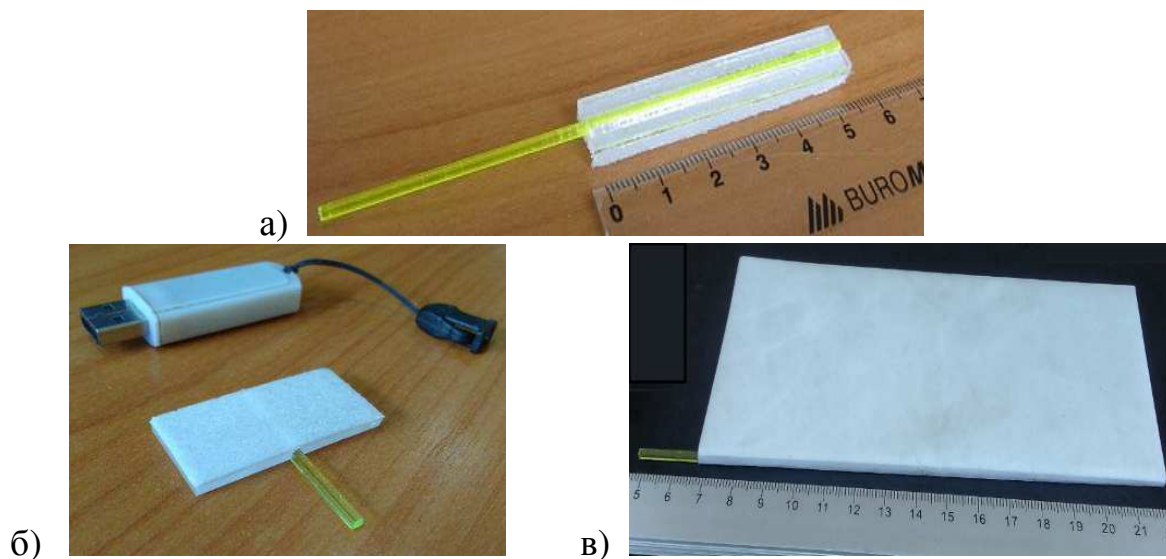


Рисунок 4.7 – Сцинтиляційний елемент з спектрозміщуючим волокном з монокристалу YAG:Ce (а) та з спектрозміщуючим волокном з монокристалу YAGG:Ce (б) до нанесення відбивача, та сцинтиляційний детектор великої площі з спектрозміщуючим волокном з монокристалу YAGG:Ce

### 4.3 Кінетичні характеристики сцинтиляційного елемента

У сучасних фізичних експериментах для світлозбирання з сцинтиляційного детектора використовують спектрозміщуючі волокна на полістирольній основі. Наприклад, найчастіше це спектрозміщуючі волокна виробництва KURARAY [53], що дозволяють зміщувати спектри люмінесценції різних довжин хвиль. Недоліками спектрозміщуючих волокон на полістирольній основі є низька радіаційна стійкість [51] та низька ефективність світлозбирання.

Властивість сцинтиляторів поглинати світло визначеної довжини хвилі та випромінювати світло з більшою довжиною хвилі дозволяє використовувати їх як матеріали для виготовлення спектрозміщуючих волокон. Аналіз спектрів збудження і люмінесценції радіаційно-стійких оксидних сцинтиляторів визначив суттєве перекриття спектрів збудження монокристалів YAG:Ce або YAGG:Ce (Рис.4.8) та люмінесценції монокристалу YSO:Ce.



Недоліком під час використання монокристалів як волокна – це власний фон, що утворюватиметься під час опромінення іонізуючим випромінюванням і який треба враховувати в ході отримання сигналів з сцинтиляційного елементу.

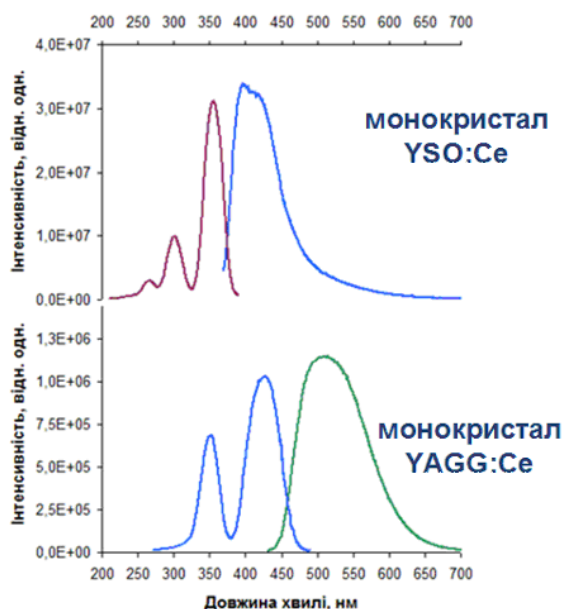


Рисунок 4.8 – Спектри збудження та люмінесценції кристалів YSO:Ce та YAGG:Ce

Для прототипу сцинтиляційного елементу за рис. 4.7, б досліджено кінетичні параметри люмінесценції. Форму загасання імпульсу наведено на рис. 4.9. За даними обчислення час згасання люмінесценції для сцинтиляційного елементу становить 22 нс.

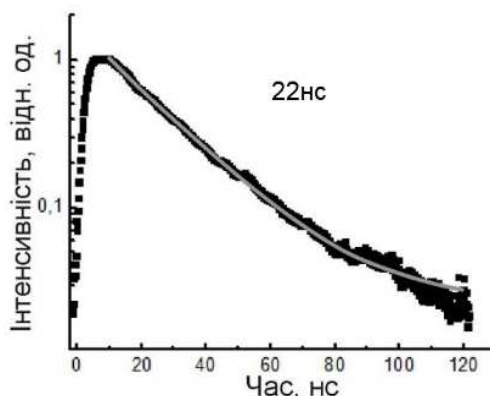


Рисунок 4.9 – Форма імпульсу композиційного сцинтиляційного елементу з монокристалічним спектрзміщуючим волокном YAGG:Ce,Ca

У даному випадку опромінення фотонами гамма-випромінювання радіонуклідом  $^{137}\text{Cs}$  з енергією 661,7кВ здійснювалось тільки для композиційного сцинтиляційного елементу. Імпульси отримано з монокристалічного спектрозміщуючого волокна YAGG:Ce,Ca. На наведеному спектрі експериментально отримані значення позначено чорними крапками. Вимірювання проводились методом рахунку окремих фотонів із кореляцією в часі.

На рис. 4.10 зображено форму загасання імпульсів люмінесценції композиційного сцинтиляційного елементу на основі YSO:Ce та волокном YAGG:Ce.

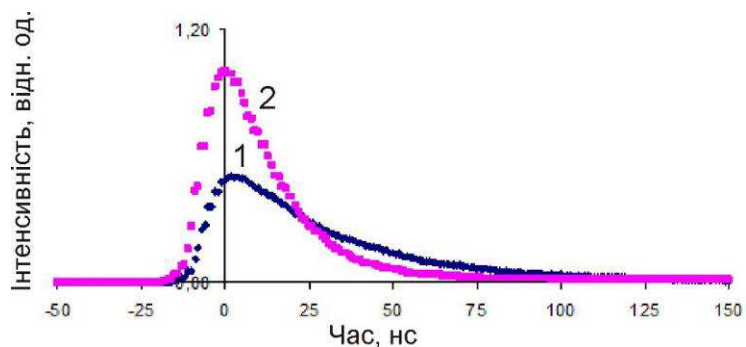


Рисунок 4.10 – Форми імпульсів радіолюмінесценції композиційного сцинтиляційного елемента

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.

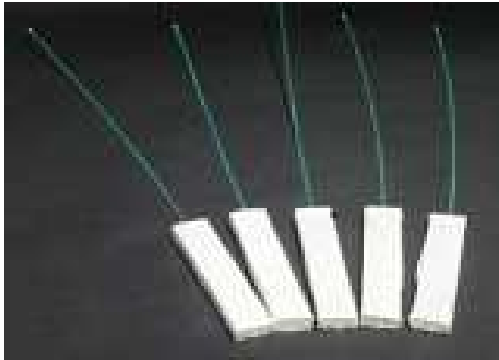
#### 4.4 Експериментальні дослідження характеристик сцинтиляційних елементів.

##### *Відносний світловий вихід*

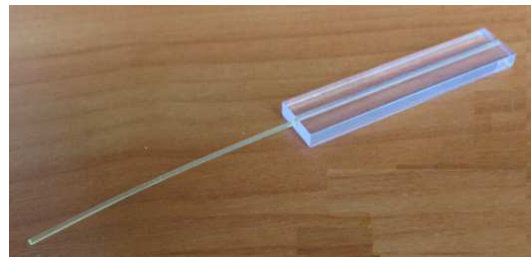
Проведено дослідження впливу матеріалу світлопровідного шару та типу спектрозміщуючих волокон на сцинтиляційні характеристики сцинтиляційних

елементів. Виготовлено три типи сцинтиляційних елементів, які відрізнялись між собою матеріалом світлозбираючого шару:

- полісилоксан Sylgard-184 (рис. 4.11);
- пластини кварцового скла;
- пластини лейкосапфіру.



а



б

Рисунок 4.11 – Сцинтиляційні елементи: а – на основі композиційних сцинтиляторів з гранул YSO:Ce, введених у оптичну основу Sylgard-184 з світлопровідним шаром з полісилоксану Sylgard-184; б – на основі пластмасового сцинтилятора з спектрзміщуючим волокном типу Y-11

Як спектрзміщуючі волокна використовували волокно Y-11 на полістирольній основі та на основі неорганічних монокристалів YAG:Ce та YAGG:Ce.

Дані про виготовлені зразки та отримані на них значення відносного світлового виходу наведено в таблиці 4.1. Як еталонний зразок обрано сцинтиляційний елемент з пластмасового сцинтилятора UPS-923A (рис. 4.11, б) аналогічної конфігурації.

На рис. 4.12 наведено схему отримання відносного світлового виходу зі створених сцинтиляційних елементів.

Таблиця 4.1 – Склад, розміри та значення відносного світлового виходу сцинтиляційних елементів

Номер детектора	Світлопровідний шар	Розмір детектора, мм <sup>3</sup>	Товщина сцинтилятора, мм	Товщина світло-провідного шару, мм	Відносний світловий вихід		
					Спектрозміщуюче волокно		
					Y-11	YAG:Ce	YAGG:Ce
1	UPS-923A	12x60x4	4	0	100 %	–	–
2	Sylgard-184	12x60x4	2	2	250 %	–	–
3	кварцове скло	12x60x4	2	2	120 %	250 %	210 %
4	лейкосапфир	12x60x4	2	2	50 %	80 %	70 %

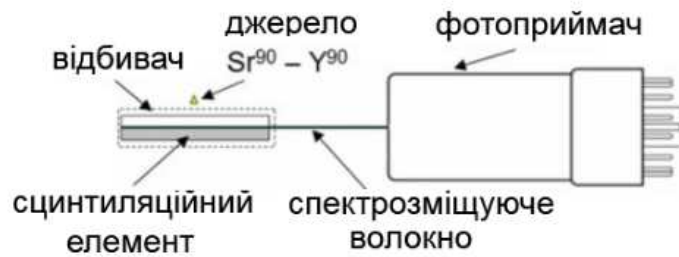


Рисунок 4.12 – Схема вимірювання відносного світлового виходу сцинтиляційних елементів

За отриманими результатами визначено, що, як і для моделі, найбільший відносний світловий вихід має сцинтиляційний елемент з світлопровідним шаром з полісилоксану Sylgard-184. Залежність відносного світлового виходу від характеристик пропускання та показників заломлення наведених оптичних матеріалів світлопровідного шару відбувається у такому порядку зменшення (табл. 4.1): Sylgard-184, кварцове скло, лейкосапфир. Відносний світловий вихід  $L$  елементів було розраховано за формулою (2.3). Використання неорганічних монокристалів як спектрозміщуюче волокно дозволило збільшити відносний світловий вихід.

Для визначення неоднорідності світлового виходу сцинтиляційний елемент (рис.4.7, б) був загорнутий у дифузний світловідбивач. Схема вимірювань відносного світлового виходу сцинтиляційного елементу згідно з рис. 4.12. Схема пересування джерела випромінювання  $\text{Sr}^{90}\text{-Y}^{90}$  для визначення значень кількості імпульсів у кожній позиції наведено на рис. 4.13. Неоднорідність відносного світлового виходу визначалась порівнянням цих значень між собою.

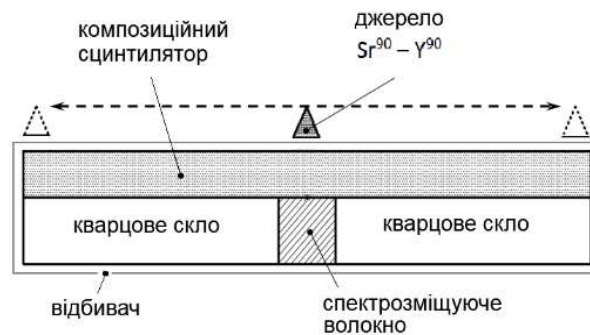


Рисунок 4.13 – Схема переміщення джерела для визначення неоднорідності відносного світлового виходу по площі сцинтиляційного елементу

У дисертаційній роботі визначено вплив типу спектрозміщуючого волокна на неоднорідність світлового виходу. Почергово в сцинтиляційний елемент встановлювали спектрозміщуюче волокно Y-11 та монокристалічне волокно YAGG:Ce. На рис. 4.14 наведено залежність неоднорідності світлового виходу від типу волокна. В табл. 4.2 вказано відповідні числові значення.

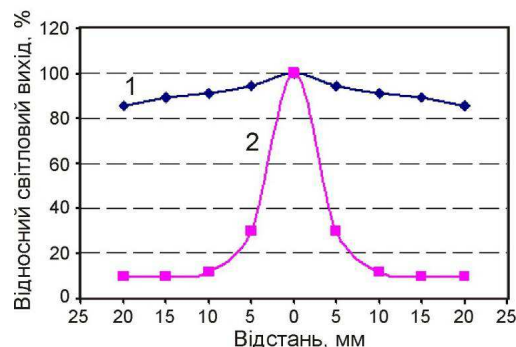


Рисунок 4.14 – Залежність відносного світлового виходу від положення джерела збудження  $\text{Sr}^{90}\text{-Y}^{90}$  на сцинтиляційному елементі:

1 – з волокном YAGG:Ce; 2 – з волокном Y-11

Таблиця 4.2 – Відносний світловий вихід (%) сцинтиляційного елемента (рис.4.7, б) залежно від положення джерела  $\text{Sr}^{90}$ - $\text{Y}^{90}$ .

Спектро- зміщуюче волокно	Положення джерела збудження від центру (0) сцинтиляційного елементу, мм								
	20	15	10	5	0	5	10	15	20
YAGG:Ce	85 %	89 %	91 %	94 %	100 %	94 %	91 %	89 %	85 %
Y-11	10 %	10 %	12 %	30 %	100 %	30 %	12 %	10 %	10 %

З рис. 4.14 видно, що неоднорідність відносного світлового виходу, близько 15 %, має сцинтиляційний елемент, в якому використано спектрозміщуюче волокно на основі монокристалічного сцинтилятора YAGG:Ce. У той час, як той самий сцинтиляційний елемент зі стандартним спектрозміщуючим волокном на полістирольній основі Y-11 має неоднорідність світлового виходу на рівні 90 %. Такий результат обумовлено тим, що спектрозміщуюче волокно на основі монокристалу YAGG:Ce має значно вищий світловий вихід ніж волокно Y-11.

Як показано вище конструкційні особливості прототипу сцинтиляційного елемента за рис. 4.7, б, дозволяють отримувати світловий вихід на рівні 85 % на відстані 20 мм від спектрозміщуючого волокна (рис. 4.14).

#### **4.5 Радіаційна стійкість сцинтиляційних елементів із віддаленим фотоприймачем**

Для серії сцинтиляційних елементів такого складу: композиційний сцинтилятор, що містить гранули YSO:Ce, з світлопровідним шаром на основі полісилоксану Sylgard-184 та спектрозміщуючого волокна на полістирольній основі Y-11 [50], було досліджено вплив швидкості опромінення та накопиченої дози на сцинтиляційні характеристики. Зовнішній вигляд сцинтиляційних елементів наведено на рис. 4.11.

Результати тестування за методикою опромінення, описаною в розділі 2, наведено у таблиці 4.3. Опромінення електронами енергією 8,3 МеВ проводилося з темпом набору дози 0,002, 0,035 і 0,018 Мрад/год.

Таблиця 4.3 – Відносний світловий вихід сцинтиляційних елементів після опромінення

Накопичена доза, Мрад	5,5	26	25
Швидкість набору дози, Мрад/год	0,002	0,035	0,018
Відносний світловий вихід, %	100	98,6	80

Залежно від накопиченої дози та швидкості опромінення падіння світлового виходу для сцинтиляційних елементів складає 2–20 %. Для дози 25–26 Мрад падіння світлового виходу на рівні 20 % обумовлено радіаційними ушкодженнями полістирольного спектрзміщуючого волокна Y-11, оскільки висока радіаційна стійкість композиційних шарів доведена у розділі 3.

Сцинтиляційний елемент такого складу (рис. 4.7,б): композиційний сцинтилятор, що містить гранули YSO:Ce з світлопровідним шаром на основі пластин кварцового скла та спектрзміщуючого волокна з монокристалу YAGG:Ce, було опромінено електронами з початковою енергією 8,3МеВ за схемою, визначеною у розділі 2.

Результати тестування композиційних елементів наведено в таблиці 4.4. Відносний світловий вихід після досягнення інтегральної дози у 20 Мрад знизився у середньому на 3 %.

Подальше опромінення для дослідження радіаційної стійкості сцинтиляційного елементу на основі композиційного сцинтилятора з гранул YSO:Ce з світлопровідним шаром з кварцового скла та спектрзміщуючим волокном YAGG:Ce (рис. 4.7, б) визначило можливість його використання до накопичених доз у 50 Мрад і більше.

Таблиця 4.4 – Відносний світловий вихід сцинтиляційних елементів до та після опромінення (інтегральна доза  $20 \pm 0,5$  Мрад).

Детектор	Відносний світловий вихід, %	
	До опромінення	Після опромінення
Сцинтиляційний елемент, який містить гранули YSO:Ce. Спектросміщуюче волокно – YAGG:Ce	100 %	95-98 %

Розроблені та виготовлені сцинтиляційні елементи для реєстрації випромінювання віддаленим фотоприймачем показали стабільність роботи під час високих радіаційних навантажень. Відносний світловий вихід та ефективність реєстрації випромінювання розроблених сцинтиляційних елементів вищі, ніж стандартні сцинтиляційні елементи на основі полістиролу. Таким чином, вирішено завдання створення радіаційно-стійких сцинтиляційних детекторів великої площі за рахунок конструкторсько-технологічного забезпечення виробництва сцинтиляційних елементів з спектросміщуючим волокном для роботи з віддаленим фотоприймачем, що відповідають умовам сучасних фізичних експериментів.

#### 4.6 Висновки до розділу 4

Проведено математичне моделювання для визначення параметрів світлозбирання в сцинтиляційному елементі. Визначено параметри світлозбираючого шару залежно від матеріалу та ширини канавки під спектросміщуюче волокно.

Досліджено оптичні та кінетичні властивості сцинтиляційного елементу з використанням монокристалічних кристалів YAG:Ce та YAGG:Ce як спектросміщуюче волокно.



Визначено, що сцинтиляційний елемент на основі композиційного сцинтилятора з використанням неорганічного спектрозміщуючого волокна має відносний світловий вихід майже вдвічі вище, ніж існуючий сцинтиляційний елемент з пластмасового сцинтилятора з Y-11.

Визначено, що використання спектрозміщуючого волокна на основі монокристалічного сцинтилятора YAGG:Ce дозволило отримати однорідність відносного світлового виходу на рівні 85 %, у той час, як той самий сцинтиляційний елемент зі стандартним спектрозміщуючим волокном на полістирольній основі Y-11 має однорідність світлового виходу на рівні 10 %.

Визначено, що радіаційна стійкість сцинтиляційного елемента на основі композиційного сцинтилятора з використанням неорганічного спектрозміщуючого волокна не менш ніж 20 Мрад.

Список джерел, які використано у даному розділі, наведено у повному переліку використаних джерел [92, 94, 98, 99, 101, 103, 104].

## РОЗДІЛ 5.

### ТЕХНОЛОГІЯ ВИГОТОВЛЕННЯ СЦИНТИЛЯЦІЙНИХ ДЕТЕКТОРІВ З БЕЗПОСЕРЕДНІМ З'ЄДНАННЯМ З ФОТОПРИЙМАЧЕМ

#### 5.1 Конструкційні особливості сцинтиляційних детекторів

На рис. 5.1 наведено дизайн сцинтиляційного елемента на основі сцинтиляційної пластмаси з безпосереднім з'єднанням з фотоприймачем (кремнієвим фотопомножувачем SiPM) для збору світла. Світло збирається через канавку на поверхні елемента, в яку розміщують фотоприймач. Такий підхід, так звана технологія SiPM-on-tile, забезпечує покращення однорідності світлозбирання з елемента завдяки зменшенню сигналу від частинок, що проходять близько до SiPM [81, 82]. Основним недоліком для використання SiPM є умови роботи при температурі  $-30^{\circ}\text{C}$  для забезпечення низького рівня шуму електроніки.

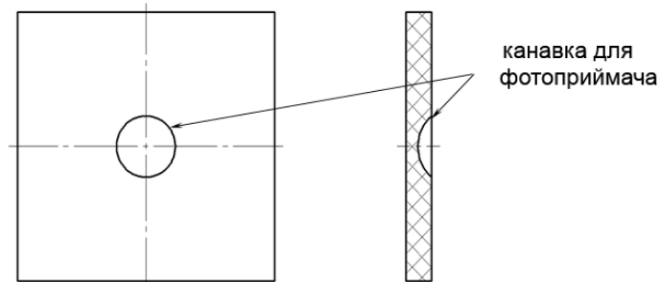


Рисунок 5.1 – Схема сцинтиляційного елемента

Як зазначено в розділі 1 в рамках підвищення світності великого адронного колайдери використання пластмасових сцинтиляторів обмежено їхньою низькою радіаційною стійкістю. Тому створення сцинтиляційних елементів з радіаційною стійкістю [6], більшою ніж у сцинтиляційної пластмаси, є актуальним завданням.

Вимоги, які висувають до матеріалів сцинтиляційного елемента:

- здатність витримувати радіаційні навантаження більш ніж 20 Мрад, тобто більші ніж сцинтиляційна пластмаса;
- час згасання люмінесценції до 25 нс;
- технологічність та низька вартість виробництва.

Усі перераховані фактори прийнято до уваги в ході пошуку та відбору матеріалів сцинтилятора та відбивача світла для створення конструкції сцинтиляційного елемента (детектору).

Як було показано в розділах 2-4, монокристали або гранули на основі ітрій алюміній-галієвого гранату, активованого церієм (YAGG:Ce) або такий самий сцинтиляційний матеріал, але спів-активованій кальцієм (YAGG:Ce,Ca) з часом згасання 7-21 нс [22], є придатними для виготовлення сцинтиляційного елемента.

Для зниження вартості виробництва композиційних сцинтиляторів доцільно використовувати сцинтиляційні порошки, отримані методом твердофазного синтезу (див. розділ 2).

У дисертаційній роботі запропонована конструкція детектору з сцинтиляційних елементів на основі пластмасових або композиційних сцинтиляторів (рис. 5.2). Конструкція становить з'єднані між собою сцинтиляційні елементи та сформованого на них дифузного або дзеркального відбивачів.

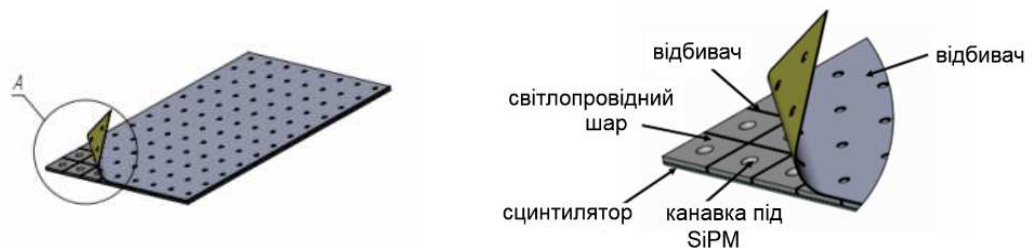


Рисунок 5.2 – Детектор з сцинтиляційних елементів на основі пластмасових або композиційних сцинтиляторів

У загальному вигляді сцинтиляційний елемент (рис. 5.3) має такий склад: сцинтилятор, канавку на його поверхні під розміщення кремнієвого фотопомножувача, світловідбиваюче покриття. Вигляд пластмасового сцинтиляційного елемента наведено на рис. 5.1. Сцинтиляційний елемент на

основі композиційного сцинтилятора, що складається з оптичного полісилоксану, в який введено сцинтиляційні гранули та додаткового світлопровідного шару з того ж оптичного полісилоксану та обгорнутий світловідбиваючим покриттям, крім канавки під SiPM.

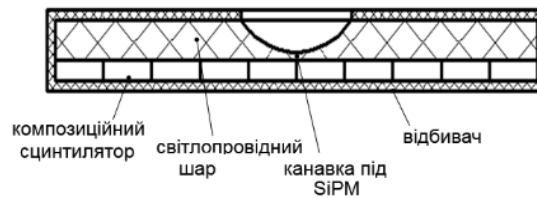


Рисунок 5.3 – Конструкція сцинтиляційного елементу

## 5.2 Технологія виготовлення відбивача світла

Відомо багато промислових матеріалів, які використовують як світловідбивачі покриття в сцинтиляційній техніці [83–86]. Для деяких матеріалів за [87] наведено значення коефіцієнтів відбивання (табл. 5.1).

Таблиця 5.1 – Коефіцієнти відбиття світла промислових матеріалів (на довжині хвилі 420 нм)

Дзеркальний відбивач	Коефіцієнт відбиття світла	Дифузний відбивач	Коефіцієнт відбиття світла
Lumirror	99 %	Політетрафторетилен, мембрана (3 шари)	99,2 %
Melinex (Melinex® 516)	96,9 %	Tyvek (DuPont, USA)	97,9 %
VM 2002	96,2 %	Фарба з TiO <sub>2</sub>	95,1 %
VM 2000	94,4 %		
VM 3000	89,0 %		
Алюмінієва фольга	78,7 %		

Для формування дзеркального відбивача на поверхню сцинтиляційного елемента необхідно провести попередню підготовку заготовки відбивача. Запропонований процес підготовки полягає в лазерному розкрії заготовки відбивача та наданні форми (рис. 5.4).

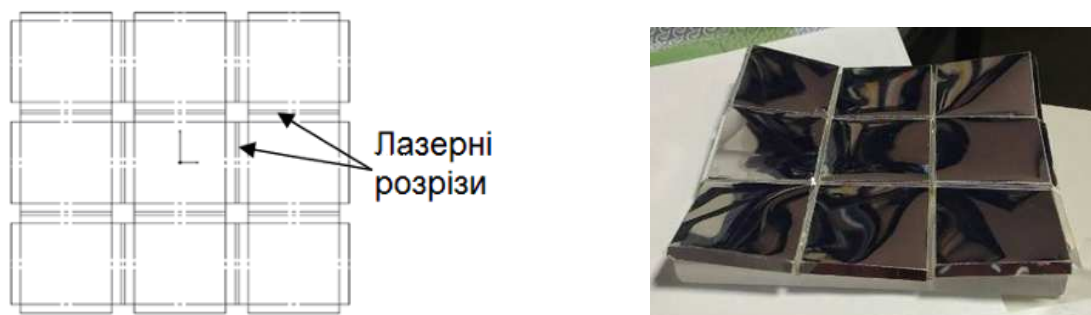


Рисунок 5.4 – Дзеркальний відбивач світла

Під час лазерного розкрою прорізки формуються у лінії згину. Після згинання по лініях утворюється матриця, в комірки якої розміщують сцинтиляційні елементи. Такий підхід дозволяє з'єднати окремі сцинтиляційні елементи у єдину конструкцію з забезпеченням дзеркального відбивача на всіх поверхнях сцинтиляційних елементів.

Однак використання дзеркального відбивача обмежено у зв'язку з втратою відбиваючих властивостей при значних радіаційних навантаженнях у 30 Мрад та більше.

Основним недоліком промислових дифузних відбивачів світла, так як і дзеркальних, є низька радіаційна стійкість. Тому розробка малокоштовних дифузних відбивачів світла, що відповідають умовам сучасних фізичних експериментів, на основі комерційно доступних матеріалів є актуальною задачею.

Як зазначено в табл. 5.1 найбільші коефіцієнти відбивання у матеріалів на основі політетрафторетилену. Однак для виготовлення радіаційно-стійкого світловідбиваючого покриття придатні промислові радіаційно-стійкі полісилоксани. Як пігменти відомі такі сполуки:  $MgO$ ,  $TiO_2$ ,  $BaSO_4$ ,  $ZnO_2$ ,

BaSO<sub>4</sub>+ZnS. Але через високі відбиваючі властивості [88-90] та комерційну доступність пігмент TiO<sub>2</sub>, має пріоритет у використанні.

В роботі розроблено дифузні відбивачі на основі радіаційно-стійкого полісилоксану СКТН-мед (марка Е) з додаванням пігменту TiO<sub>2</sub>. Розроблений відбивач схематично зображений на рис. 5.5.

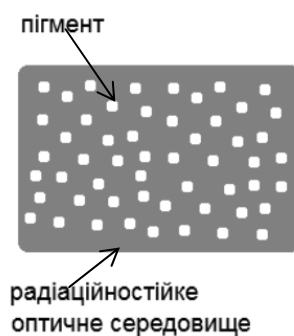


Рисунок 5.5 – Схема композиційного відбивача світла

Технологічний процес виготовлення відбивача світла включав такі операції:

а) механічне перетирання пігменту TiO<sub>2</sub> з полісилоксановим каучуком СКТН-мед.

Протерти порцелянову ступку тканинною серветкою, змоченою ізопропиловим спиртом. Просушити ступку на повітрі одну хвилину. Поставити порожню ступку на електронні ваги, що мають точність зважування не менш за 0,01 г. Налити в ступку 50 г СКТН-мед, за допомогою скальпеля додати 5 г TiO<sub>2</sub>. Ретельно перемішати суміш протягом двох хвилин за допомогою порцелянового товкача;

б) додавання до суміші каталізатора К-68.

У скляний стакан з сумішшю СКТН-мед та TiO<sub>2</sub> за допомогою скальпеля додати 2,5 г затверджувача. Ретельно перемішати суміш протягом двох хвилин за допомогою скальпеля.

в) вакуумування суміші для вилучення повітряних бульбашок.

Установити стакан з сумішшю СКТН-мед, К-68 та TiO<sub>2</sub> під вакуум не менш ніж 10<sup>-2</sup> Па. Витримати до повного зникнення повітряних бульбашок.

г) полімеризація суміші в технологічній формі.

Застелити технологічну форму поліетиленовою плівкою. Вилити на поверхню форму підготовлену суміш відбивача для її подальшої полімеризації протягом 24 годин при кімнатній температурі (рис.5.6)



Рисунок 5.6 – Полімеризація суміші відбивача

д) нарізання відбивача згідно з заданими розмірами.

Для визначення складу та товщини зразків, які забезпечуватимуть максимальне відбивання світла, були виготовлені зразки різної товщини та з різним вмістом  $\text{TiO}_2$  (рис. 5.7). Опис зразків композиційного відбивача світла наведено у таблиці 5.3.

Таблиця 5.3 – Опис зразків композиційного відбивача світла

Зразок №	Розміри, мм	Вміст $\text{TiO}_2$ , мас %
1	20x20x0,5	10
2	20x20x1,0	10
3	20x20x0,5	20
4	20x20x1,0	20

Зовнішній вигляд готових зразків наведений на рис. 5.7. Відбивачі даного складу мають високу механічну міцність та просту технологію виготовлення.



Рисунок 5.7 – Зразки відбивача світла на основі полісилоксануСКТН-мед з пігментом  $\text{TiO}_2$

За аналізом спектрів (рис. 5.8) встановлено, що відбивач світла товщиною 1 мм, виготовлений на основі оптично прозорого полісилоксанового каучуку СКТН-мед з додаванням 20 ваг. % діоксиду титану  $\text{TiO}_2$  має найкращі відбиваючі характеристики.

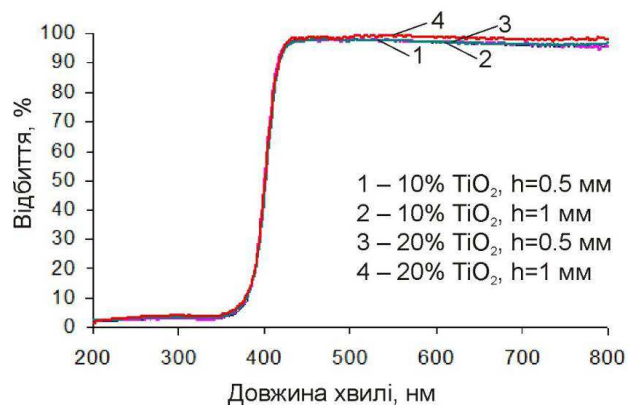


Рисунок 5.8 – Спектри відбивання композиційних відбивачів

Відбивачі світла, які розроблені в дисертаційній роботі, мають такі переваги:

- коефіцієнт відбивання 92–95 %;
- товщина від 50 мкм;
- велика площа та різна форма;
- радіаційна стійкість до 100 Мрад;
- низька вартість виробництва.



### 5.3 Технологія виготовлення сцинтиляційних елементів на основі композиційних сцинтиляторів YAGG:Ce

#### 5.3.1 Технологічний процес виготовлення сцинтиляційного елементу

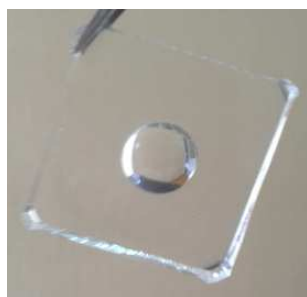
Технологічний процес виготовлення сцинтиляційного елементу розміром  $31 \times 31 \times 4 \text{ мм}^3$  складався з таких операцій:

а) для виготовлення сцинтиляційного елементу гранули, отримані методом твердофазного синтезу, механічно подрібнюють. 0,73 г гранул YAGG:Ce та 0,24 г Sylgard-184 змішують та вакуумують до зникнення повітряних бульбашок;

б) отриману суміш поміщують в технологічну оснастку та полімеризують при температурі  $80 \text{ }^\circ\text{C}$  протягом шести годин. Кінцевий розмір змішаних з оптичним полісилоксаном сцинтиляційних гранул складає  $30 \times 30 \times 0,5 \text{ мм}^3$ ;

в) для виготовлення світлопровідного шару 3 г основи Sylgard-184 змішують з 0,3 г затвержувача Sylgard-184, вакуумують до зникнення повітряних бульбашок, заливають в технологічну оснастку з виїмкою під лунку та полімеризують при температурі  $80 \text{ }^\circ\text{C}$  протягом шести годин;

г) після закінчення полімеризації світлопровідний шар отримують з технологічної оснастки та підрізають до необхідних розмірів (рис. 5.9, а);



а



б

Рисунок 5.9 – Світлопровідний шар з Sylgard-184 (розміри  $30 \times 30 \times 3,5 \text{ мм}$ ) (а), композиційний сцинтилятор YAGG:Ce оптично з'єднаний зі світлопровідним шаром (б)

д) виготовлення дифузійного відбивача світла проводять аналогічно методиці, описаній в підрозділі 5.2;

е) композиційний сцинтилятор YAGG:Ce поміщують у технологічну оснастку, оптично з'єднують з світлопровідним шаром за допомогою рідкого Sylgard-184 (рис. 5.9 (б)), та полімеризують при температурі 80°C протягом шести годин;

є) після закінчення полімеризації сцинтиляційний елемент отрмують з технологічної оснастки та покривають з усіх сторін, за винятком лунки, світловідбиваючим покриттям за методикою, описаною в підрозділі 5.2.

Зовнішній вигляд готового сцинтиляційного елемента з розмірами 31x31x4мм<sup>3</sup> наведено на рис. 5.10.

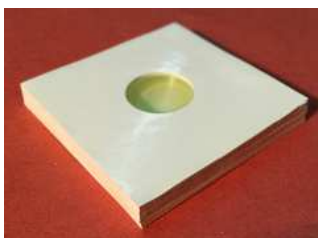


Рисунок 5.10 – Сцинтиляційний елемент на основі композиційного сцинтилятора YAGG:Ce (розміри 32x32x5мм<sup>3</sup>)

### 5.3.2 Сцинтиляційні характеристики сцинтиляційного елемента

Всередині лунки сцинтиляційного елемента (рис. 5.10) розміщують кремнієвий фотопомножувач Hamamatsu S12572-100P та обчислюють світловий вихід відносно еталонного сцинтиляційного зразку.

Як еталонний зразок використовували сцинтиляційний елемент з сцинтиляційного полістиролу розміром 30x30x3мм<sup>3</sup> з лункою на вихідній поверхні під фотоприймач та обгорнутий у дзеркальний відбивач. Для опромінення зразків використовували джерело випромінювання <sup>90</sup>Sr-<sup>90</sup>Y.

Значення відносного світлового виходу зразків сцинтиляційних елементів наведено у таблиці 5.4. Для визначення однорідності світлового виходу по площі

сцинтиляційного елементу переміщували колімоване джерело випромінювання  $^{241}\text{Am}$  (діаметр коліматора 3мм).

Таблиця 5.4 – Відносний світловий вихід зразків сцинтиляційних елементів

Номер	Сцинтилятор	Розмір сцинтилятора, мм	Тип відбивача	Відносний світловий вихід, %
1	Сцинтиляційний полістирол UPS-923-A	30x30x3	Дзеркальний (ESR)	100
2	Композиційний сцинтилятор YAGG:Ce (гранули отримано твердофазним синтезом)	30x30x0,5	Дифузний (полісилоксан з додаванням $\text{TiO}_2$ )	59

Схема місць опромінення джерелом  $^{241}\text{Am}$  наведено на рис. 5.11. Для отримання сигналу в лунку розміщено кремнієвий фотопомножувач Hamamatsu S12572-100P. У таблиці 5.5 зведено значення відносного світлового виходу залежно від місця опромінення сцинтиляційного елементу.

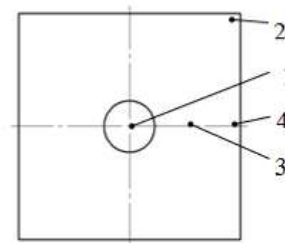


Рисунок 5.11 – Схема місць опромінення сцинтиляційного елементу джерелом  $^{241}\text{Am}$

Таблиця 5.5 – Відносний світловий вихід по площі сцинтиляційного елементу

Позиція (рис. 5.15)	1	2	3	4
Відносний світловий вихід	100 %	98 %	90 %	91 %

За результатами, наведеними у табл. 5.5, для сцинтиляційного елементу з поперечним перерізом  $30 \times 30 \text{ мм}^2$ , з розміщеним у лунці кремнієвим

фотопомножувачем Hamamatsu S12572-100P, неоднорідність світлового виходу по площі не перевищує 10 %.

### 5.3.3 Радіаційна стійкість сцинтиляційного елементу

Зразки сцинтиляційних елементів на основі композиційних сцинтиляторів YAGG:Ce (гранули отримані методом твердофазного синтезу) були опромінені електронами згідно з методикою, наведеною в розділі 2. Інтегральна поглинута доза склала  $50 \pm 5$  Мрад.

Спектри амплітуд імпульсів сцинтиляцій сцинтиляційного елементу на основі композиційних сцинтиляторів YAGG:Ce до та після опромінення наведено на рис.5.12 (а). Спектри відносного світлового виходу (рис. 5.12 (а)) та його залежність від дози опромінення (рис. 5.12 (б)) сцинтиляційного елементу на основі композиційних сцинтиляторів YAGG:Ce отримано за збудженням джерелом бета-випромінювання  $^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$ .

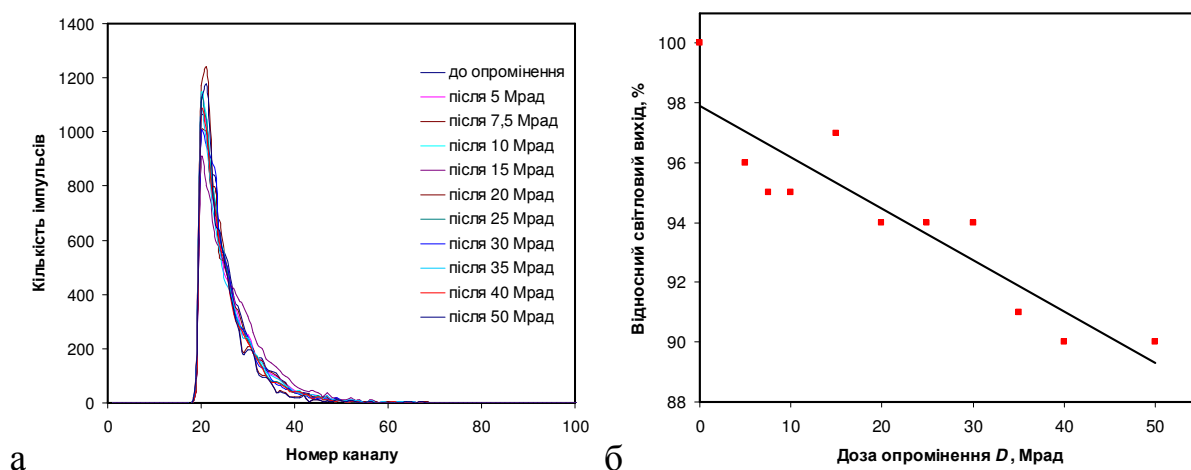


Рисунок 5.12 – Спектри амплітуд імпульсів сцинтиляцій (а) та залежність відносного світлового виходу від дози опромінення сцинтиляційних елементів на основі композиційних сцинтиляторів YAGG:Ce

З рисунка 5.12 можна бачити, що відносний світловий вихід сцинтиляційних елементів на основі композиційних сцинтиляторів YAGG:Ce знижується більше

ніж на 5 % в ході накопичення дози опромінення  $D = 10$  Мрад. Після 25 Мрад відносний світловий вихід знижується на 6 %. Та за дози опромінення  $D = 50$  Мрад зниження світлового виходу складає 10 %. Таким чином, можна зробити висновок, що тайли сцинтиляційних модулів, виготовлені з композиційних сцинтиляторів YAGG:Ce, є радіаційно-стійкими до інтегральних доз 50 Мрад, що на порядок вище, ніж у сцинтиляційного елемента на основі сцинтиляційного полістиролу.

#### **5.4 Технологія виготовлення багатоелементного сцинтиляційного детектора**

В ході виробництва сцинтиляційного модуля необхідно вирішити ряд завдань:

- як масово виробляти обробку поверхонь кожного сцинтиляційного елемента;
- як формувати відбивач на кожен окремий сцинтиляційний елемент;
- як збирати багатоелементний сцинтиляційний детектор великої площі з одиночних сцинтиляційних елементів.

Оскільки сцинтиляційні елементи мають кілька десятків типорозмірів, автоматизування процесу виготовлення одиночних елементів є складним та вартісним завданням.

Для вирішення завдання виготовлення багатоелементного сцинтиляційного детектора оптимально підходить технологія виготовлення багатоелементних сцинтиляторів. Принцип виробництва зводиться до порізки монолітної заготовки на спеціальній підкладці на необхідну кількість елементів, з наступним заповненням місць розрізів відбиваючим матеріалом і видаленням підкладки. Недоліком для виробництва детекторів великої площі, наведеною технологією – це обмежена площа різки. Розмір заготовки зазвичай обмежений  $\varnothing 200$  мм.

Тому для виготовлення багатоелементного сцинтиляційного детектора пропонується використання даної технології з істотною модифікацією. Замість

верстата дискового різання пропонується використання фрезерного верстата з ЧПУ. Замість диска – пальчикова фреза.

#### 5.4.1 Світлозбирання у сцинтиляційному елементі

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.

У цей час можна виділити дві найбільш поширені технології виробництва пластмасових сцинтиляторів. Це блокова полімеризація і екструзія (лиття під тиском) [91] на термопласт автоматах. У другому випадку вироби не вимагають додаткової обробки поверхні і виглядають полірованими. Після блокової полімеризації виробам необхідно надавати форму і додатково обробляти поверхні. У відомих роботах показано, що екструзійний метод дає гірші сцинтиляційні характеристики. Тому, було проведено роботу з порівняння сцинтиляційного виходу з різних пластмасових сцинтиляторів, отриманих методом блокової полімеризації з полістиролу (ПС) (рис. 5.13, а) і полівінілтолуола (ПВТ) (рис. 5.13, б) та методом лиття під тиском на термопласт автоматах (ТПА) (рис. 5.13, в). Зразки з блокової полімеризації виготовлено механічною обробкою поверхні алмазним інструментом. Усі зразки для тестування упаковано у дифузний відбивач Тувек.



Рисунок 5.13 – Зразки пластмасових сцинтиляторів, отриманих методом блокової полімеризації з полістиролу (а), полівінілтолуола (б) та лиття під тиском (в) без відбивача

Результати порівняння ефективності реєстрації зразків тайлів наведено в таблиці 5.6. Розрахунки проведено відносно тайла з полівінілтолуолу з поверхнями, обробленими алмазним інструментом. Усі значення відносного світлового виходу зразків отримано за збудженням джерелом бета-випромінювання  $^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$ .

Таблиця 5.6 – Відносний світловий вихід зразків сцинтиляційних елементів залежно від технології отримання пластмасових сцинтиляторів

Сцинтилятор	Метод отримання	Обробка поверхонь	Відносний світловий вихід
Полівінілтолуол	Блокова полімеризація	Алмазний інструмент	100 %
Полістирол	Блокова полімеризація	Алмазний інструмент	93 %
Полістирол	Лиття під тиском (термопласт автомат)	Поліровка (забезпечується обладнанням)	100 %

Результати, наведені у таблиці 5.7, свідчать про те, що розглянуті способи обробки поверхонь сцинтиляційних елементів або мало впливають на відносний світловий вихід, або не впливають зовсім. Тобто вироби, отримані на термопластавтоматі, мають пріоритет у зв'язку з простотою їхнього виготовлення. Але в разі необхідності отримання елементів, які відрізняються один від одного за геометричними параметрами необхідно мати кілька десятків прес-форм, що робить значно їх коштовніше виготовлення.

Оскільки обробка алмазним інструментом не дає переваги перед поліруванням під час виготовлення виробів на термопласт автоматі, пласкі поверхні зразків після обробки алмазним інструментом були додатково відполіровані. Обробка на торцях залишилася після алмазного інструменту. Результати порівняння відносного світлового виходу наведено у таблиці 5.7. Розрахунки проведено відносно зразка полівінілтолуолу з поверхнею після обробки алмазним інструментом.

Як видно з результатів таблиці 5.7, для полірованих зразків ефективність реєстрації зростає. Для даного типу обробки поверхні зразків, отримані на термопласт автоматі, поступають до 30 % у відносному світловому виході.

Таблиця 5.7 – Відносний світловий вихід зразків сцинтиляційних елементів залежно від способу обробки поверхонь пластмасових сцинтиляторів

Сцинтилятор	Обробка поверхонь	Відносний світловий вихід
Полівінілтолуол (блокова полімеризація)	Поверхні – поліровка, Торці та лунка – алмазний інструмент	129 %
Полістирол (блокова полімеризація)	Поверхні – поліровка, Торці та лунка – алмазний інструмент	116 %
Полістирол (лиття під тиском)	Усі поверхні – поліровка (забезпечується обладнанням)	100 %

Також було проведено оцінку впливу полірування торців зразків тайлів з блокової полімеризації. Для цього були отримані зразки з поліруванням всіх поверхонь, крім лунки. Результати тестів наведено в таблиці 5.8. Розрахунки проведено відносно зразка полівінілтолуолу з поверхнею після обробки алмазним інструментом.

Як можна побачити з таблиці 5.8, поліровані з усіх сторін, окрім лунки, зразки тайлів, отриманих методом блокової полімеризації, мають відносний світловий вихід на 25–36 % вище, ніж у аналогічного зразка, отриманого на термопластавтоматі.

У таблиці 5.9 наведено результати, що показують вплив полірування лунки на ефективність реєстрації. Для порівняння взяли повністю поліровані зразки з попереднього експерименту. Лунку зразка, отриманого на термопластавтоматі обробили алмазним інструментом. Після проведення сцинтиляційного тестування, лунки у всіх зразках були знову відполіровані. Розрахунки проведено відносно відповідних зразків з лункою після обробки алмазним інструментом



Таблиця 5.8 – Відносний світловий вихід зразків сцинтиляційних елементів залежно від способу обробки торців пластмасових сцинтиляторів

Сцинтилятор	Обробка поверхонь	Відносний світловий вихід
Полівінілтолуол (блокова полімеризація)	Поверхні та торці – поліровка, Лунка – алмазний інструмент	136 %
Полістирол (блокова полімеризація)	Поверхні та торці – поліровка, Лунка – алмазний інструмент	125 %
Полістирол (лиття під тиском)	Усі поверхні – поліровка (забезпечується обладнанням)	100 %

Таблиця 5.9 – Відносний світловий вихід зразків сцинтиляційних елементів залежно від способу обробки лунки пластмасових сцинтиляторів

Сцинтилятор	Обробка поверхонь	Обробка лунки	
		алмазний інструмент	поліровка
		Відносний світловий вихід	
Полівінілтолуол (блокова полімеризація)	Поверхні та торці – поліровка Лунка – алмазний інструмент	100 %	102,6 %
Полістирол (блокова полімеризація)	Поверхні та торці – поліровка Лунка – алмазний інструмент	100 %	101,7 %
Полістирол (лиття під тиском)	Усі поверхні – поліровка (забезпечується обладнанням))	100 %	101,9 %

Отримані результати (таблиця 5.9) свідчать про те, що обробка лунки мало впливає на зміну відносного світлового виходу.

Як резюме, можна сказати, що обробка поверхні тайлів значно впливає на ефективність реєстрації. Так, зразки, отримані різними методами полімеризації з обробкою, що забезпечує обладнання (термопластавтомат або обробка алмазним інструментом), мають приблизно однаковий відносний світловий вихід. Полірування поверхонь зразків (блокова полімеризація) після алмазної обробки значно збільшує ефективність реєстрації. Полірування плоских поверхонь дає найбільший внесок у збільшення сцинтиляційного сигналу: 16 % для полістиролу і 29 % для полівінілтолуолу. Полірування торців збільшує сигнал ще на 9 % для

полістиролу та на 7 % для полівінілтолуолу. Полірування лунки покращує ефективність реєстрації близько 2 %.

Як видно з результатів, обробка лунки незначно впливає на зміну ефективності реєстрації.

В результаті даного дослідження було отримано, що вплив обробки поверхні значно впливає на ефективність реєстрації. Так, зразки, отримані різними методами полімеризації і обробкою, забезпеченої обладнанням (лиття під тиском або алмазна обробка), мають приблизно однакову ефективність реєстрації. Полірування поверхонь зразків (блокова полімеризація) після алмазної обробки значно збільшує ефективність реєстрації. Полірування плоских поверхонь дає найбільший внесок у збільшення сцинтиляційного сигналу: 16 % для полістиролу і 29 % для ПВТ. Полірування торців збільшує сигнал ще на 9 % для ПС і на 7 % для ПВТ. Полірування лунки покращує ефективність реєстрації близько 2 %.

Було проведено порівняння впливу різних типів відбивачів на ефективність реєстрації для тайлів. Порівняно дифузний відбивач Тувек і дзеркальний відбивач ESR. Зразки тайлів з різною обробкою поверхонь спочатку пакували в дифузний відбивач, а потім у дзеркальний.

Результати тестування зведено у таблицю 5.10.

Отримані результати показують, що ефективність реєстрації з використанням дзеркального відбивача ESR, залежно від обробки поверхні, збільшують сцинтиляційний сигнал на 12–20 %.

Оскільки основний внесок у сцинтиляційний сигнал вносить полірування площин, а не торців, то як експеримент дзеркальний відбивач на торцях тайла був замінений на дифузний.

У результаті досліджень виявлено, що поверхні тайлів мають бути полірованими. Відбивач на плоских поверхнях має бути дзеркальним. Торець тайла має бути в дифузному відбивачі без повітряного зазору. Обробка поверхні лунки не відіграє значну роль у збільшенні сцинтиляційного сигналу.

Таблиця 5.10 – Відносний світловий вихід залежно від типу відбивача

Сцинтилятор	Обробка поверхонь					
	Алмазний інструмент		Поверхні – поліровка Торці та лунка – алмазний інструмент		Поверхні та торці – поліровка Лунка – алмазний інструмент	
	Відбивач					
	ESR	Tyvek	ESR	Tyvek	ESR	Tyvek
Полівінілтолуол (блокова полімеризація)	120 %	100 %	142 %	129 %	151 %	136 %
Полістирол (блокова полімеризація)	114 %	93 %	132 %	116 %	137 %	125 %
Полістирол (лиття під тиском)	120 %	100 %	120 %	100 %	120 %	100 %

#### 5.4.2 Оптимізація з'єднання сцинтиляційних елементів для виготовлення детекторів великої площі

Використання SiPM як фотоприймача для знімання сигналу вимагає жорстких умов експлуатації самих сцинтиляційних детекторів. Для збільшення відношення сигнал / шум сцинтилятор і SiPM повинні працювати при температурі – 30 °С. У свою чергу дана умова експлуатації вимагає забезпечити механічну міцність всього модуля. У зв'язку з цим проведено ряд досліджень, пов'язаних з «перетіканням» світла між тайлами.

Було виготовлено прототипи двох з'єднаних між собою одиночних сцинтиляційних елементів:

- з міжелементною перегородкою з сцинтиляційного матеріалу, розташованій в центрі між тайлами. Товщина перегородки – 0,5 мм (рис.5.14, а);
- міжелементною перегородкою з сцинтиляційного матеріалу, розташованій в нижній частині між елементами. Товщина перегородки – 0,5 мм (рис.5.14, б);
- з'єднання сцинтиляційних елементів без міжелементної перегородки з сцинтиляційного матеріалу. Як з'єднання міжелементний простір залитий світловідбиваючим компаундом (рис.5.14, в).

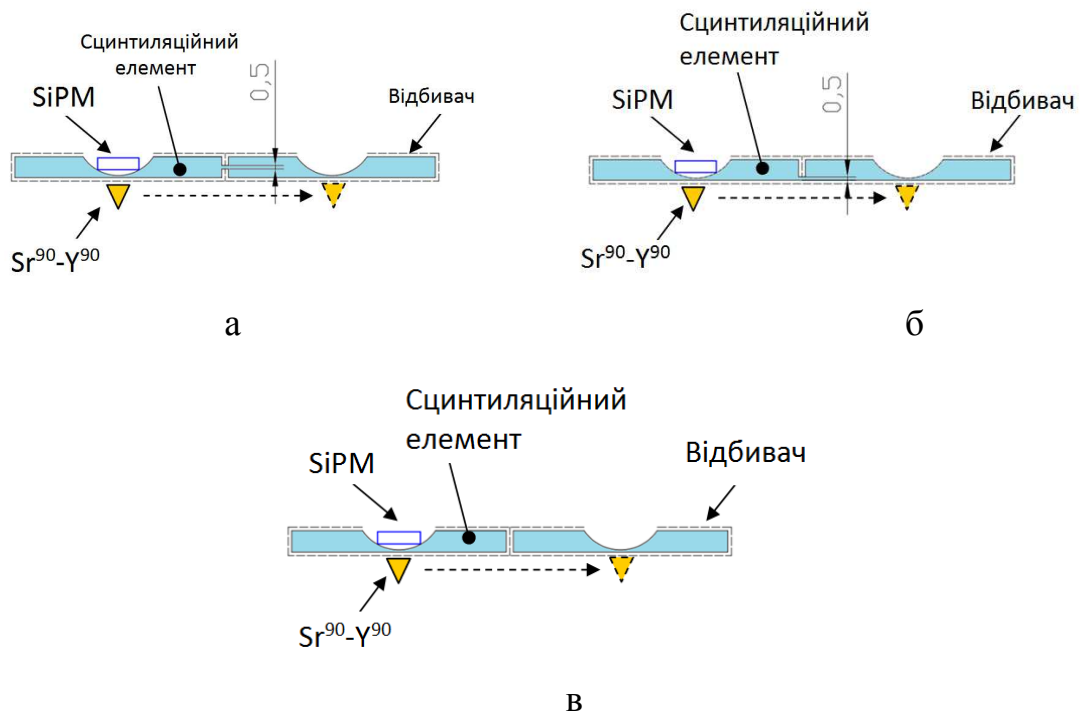


Рисунок 5.14 – Схема з'єднання сцинтиляційних елементів: через залишок матеріалу (перегородки) у 0,5мм у центрі (а); через залишок матеріалу (перегородки) у 0,5мм у нижній частині (б); за рахунок відбивача світла (в)

Для тестування в лунку одного з сцинтиляційних елементів містився фотоприймач SiPM. З протилежного боку розташовувалося точкове джерело бета-випромінювання  $Sr^{90}-Y^{90}$ . Проводилося зчитування сигналу. Після цього точкове джерело переміщалося на суміжний сцинтиляційний елемент, а SiPM залишався без переміщення і знову проводилось зчитування сигналу. Після цього порівнювалось співвідношення сигналів. Результати тестування зведено в таблицю 5.11.

Таблиця 5.11 – Результати вимірювання «перетікання» світла між елементами

Прототип	Кількість перетікання світла
За рис. 5.14, а	16 %
За рис. 5.14, б	1 %
За рис. 5.14, в	менше 0.1 %

За результатами дослідження встановлено, що відсутність «перетікання» світла між суміжними елементами забезпечується, якщо повністю вилучити сцинтиляційний матеріал між двома елементами та заповнити утворений простір світловідбиваючим компаундом.

#### 5.4.3 Формування відбивача світла на поверхні сцинтиляційного детектора великої площі

У конструкції сцинтиляційного детектора можна використовувати два типи відбивачів світла: дифузійний або дзеркальний.

У разі використання дифузійного відбивача світла, необхідно його наносити на вхідну, вихідну та бокові поверхні сцинтиляційних елементів, як показано на рис. 5.15.

Тобто в сцинтиляційному детекторі відбивач виконує також і механічну функцію скріплення елементів між собою (рис.5.16).



Рисунок 5.15 – Сцинтиляційний детектор на основі сцинтиляційних елементів з полістиролу з дифузним відбивачем

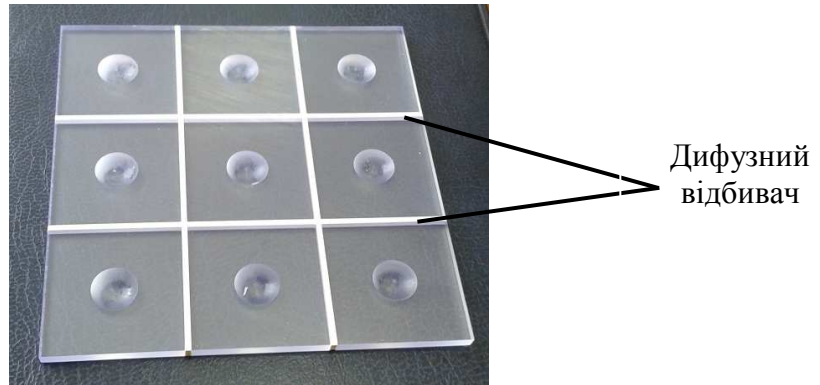


Рисунок 5.16 – Заготовка сцинтиляційного детектора на основі сцинтиляційних елементів з полістиролу з дифузійним відбивачем між елементами

Якщо в конструкції модуля використовується дзеркальний відбивач світла, то до його нанесення поверхню матеріалу сцинтилятора необхідно підготувати, як вказано в пункті 5.2.1.

Фінальний вигляд сцинтиляційного модуля з дзеркальним відбивачем світла на вхідній та вихідній поверхнях наведений на рис. 5.17.



Рисунок 5.17 – Сцинтиляційний детектор на основі сцинтиляційних елементів з полістиролу в дзеркальному відбивачі світла.

#### 5.4.4 Технологія виготовлення сцинтиляційного детектора великої площі на основі сцинтиляційних елементів з полістиролу

Технологічний процес виготовлення сцинтиляційного модуля з розмірами сцинтилятора  $385 \times 290 \times 3 \text{ мм}^3$  включав такі операції:

а) виготовлення та підготовка пластини з сцинтиляційного полістиролу із заданими розмірами (рис. 5.18).



Рисунок 5.18 – Пластина з полістиролу

Пластина має бути прямокутної форми і мати габаритні розміри на 5 – 7 мм більше, ніж максимальні розміри сцинтилятора у складі детектора. Товщина пластини становить 4мм і має дві поліровані поверхні  $385 \times 290 \text{ мм}^2$ ;

б) виготовлення пазів для подальшої заливки відбивача світла між сцинтиляційними елементами та виготовлення лунок під фотоприймачі на одній з поверхонь майбутнього детектора (рис. 5.19).



Рисунок 5.19 – Пластина з полістиролу з пазами для заливки відбивача та лунками під фотоприймачі

На фрезерному верстаті з ЧПУ, згідно з заданою програм, з використанням пальчикової фрези роблять пази глибиною 3,5 мм, що забезпечує технологічний залишок матеріалу перед заливанням відбивача світла. Також виробляють лунки під фотоприймачі SiPM;

в) заливка пазів між елементами відбивачем на основі СКТН з додаванням 20 %  $\text{TiO}_2$  (рис. 5.20). Виготовлення відбивача світла, як в розділі 5.2.2;



Рисунок 5.20 – Пластина з полістиролу з дифузним відбивачем світла між елементами

г) на фрезерному верстаті видаляється технологічний залишок матеріалу сцинтилятора до необхідної товщини виробу;

д) полірування обробленої поверхні сцинтилятора.

е) виготовлення двох заготовок відбивача світла на основі СКТН з додаванням 20 %  $\text{TiO}_2$  (рис. 5.21). Виготовлення відбивача світла, як в розділі 5.2.2;

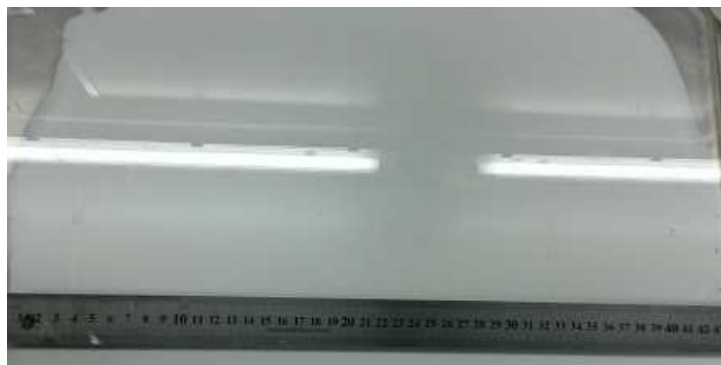


Рисунок 5.21 – Заготовка відбивача світла



є) прорізання отворів під лунки на відбивачі світла, що буде розташований на вихідній поверхні сцинтиляційного модуля (рис. 5.22);

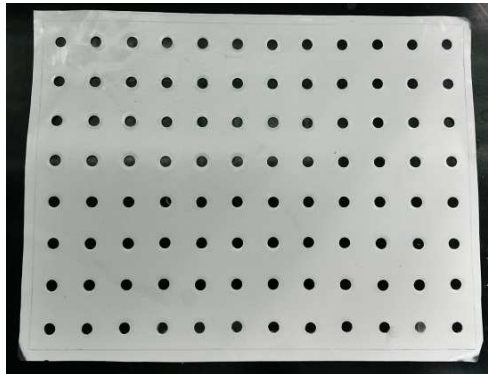


Рисунок 5.22 – Заготовка відбивача світла з отворами під лунки

ж) формування відбивача світла на вхідній та вихідній поверхнях сцинтиляційного детектора (рис. 5.23);

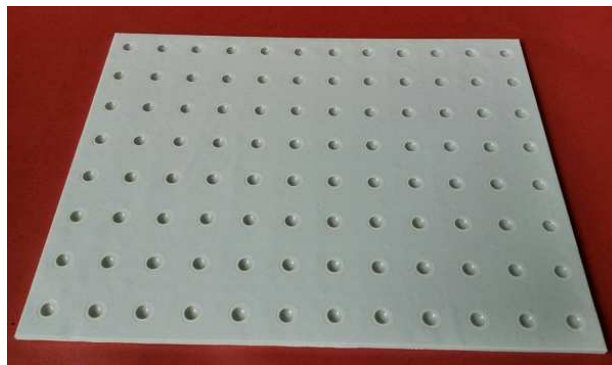


Рисунок 5.23 – Дифузний відбивач світла на вхідній та вихідній поверхні сцинтиляційного детектора

#### **5.4.5 Механічні властивості сцинтиляційних детекторів великої площі**

Як було сказано раніше, сцинтиляційні детектори мають працювати в умовах низької температури в  $-30^{\circ}\text{C}$ . Дослідження механічних властивостей проводилося в кліматичній камері виробництва фірми Terchu (рис. 5.24).



Рисунок 5.24 – Кліматична камера тепла і холоду

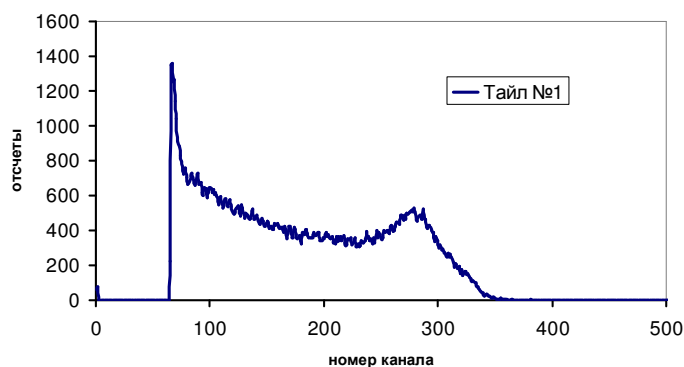
Діапазон температур випробування склав від  $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$  до  $+60\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Проведено 15 циклів кліматичних випробувань. Поршень цілості конструкції сцинтиляційного детектора великої площі не спостерігалось.

#### 5.4.6 Сцинтиляційні характеристики детектора великої площі

З огляду на великі енергії і велику відстань від місця зіткнення пучків до мегатайла вважатимемо, що в кожній точці тайла енергія буде однаковою. Тому в модельному експерименті кожен тайл опромінюватимемо окремо. Для тестування в лунку одного з тайлів містився фотоприймач SiPM. З протилежного боку розташовувалось точкове джерело  $\text{Sr}^{90}\text{-Y}^{90}$ . Отримувалась спектр імпульсів сцинтиляцій (рис. 5.25).

Після цього точкове джерело та SiPM переміщували на наступний сцинтиляційний елемент і знову отримували спектр імпульсів сцинтиляцій. Потім порівнювалося відношення сигналів.

Результати значень відносного світлового виходу за 64-сцинтиляційними елементами отримано за збудженням джерелом бета-випромінювання  $^{90}\text{Sr}\text{-}^{90}\text{Y}$  та наведено в таблицях 5.12 та 5.13.

Рисунок 5.25 – Спектр із сцинтиляційного елементу від джерела  $Sr^{90}-Y^{90}$ 

Таблиця 5.12 – Відносний світловий вихід сцинтиляційних елементів №№ 1–32 сцинтиляційного детектора

Номер тайла	Ефективність реєстрації	Номер тайла	Ефективність реєстрації	Номер тайла	Ефективність реєстрації	Номер тайла	Ефективність реєстрації
1	100 %	9	102 %	17	100 %	25	98 %
2	98 %	10	99 %	18	97 %	26	100 %
3	101 %	11	103 %	19	101 %	27	97 %
4	96 %	12	101 %	20	97 %	28	102 %
5	96 %	13	97 %	21	102 %	29	100 %
6	100 %	14	99 %	22	100 %	30	97 %
7	97 %	15	100 %	23	96 %	31	103 %
8	99 %	16	95 %	24	99 %	32	96 %

Таблиця 5.13 – Відносний світловий вихід сцинтиляційних елементів №№ 33-64 сцинтиляційного детектора

Номер тайла	Ефективність реєстрації	Номер тайла	Ефективність реєстрації	Номер тайла	Ефективність реєстрації	Номер тайла	Ефективність реєстрації
33	103 %	41	100 %	49	99 %	57	102 %
34	98 %	42	98 %	50	99 %	58	97 %
35	102 %	43	102 %	51	96 %	59	103 %
36	100 %	44	99 %	52	100 %	60	100 %
37	96 %	45	97 %	53	97 %	61	99 %
38	99 %	46	103 %	54	101 %	62	96 %
39	101 %	47	97 %	55	99 %	63	103 %
40	98 %	48	102 %	56	97 %	64	98 %

Як видно з результатів неоднорідність виходу світла між сцинтиляційним детекторами становить 7 %.

## 5.5 Висновки до розділу 5

Розроблено технологію виготовлення мегатайла. За основу обрано технологію виготовлення багатоелементних сцинтиляторів на верстатах з дисковою різкою, але з істотною модифікацією. Замість верстата дискового різання пропонується використання фрезерного верстата з ЧПУ. Замість диска – пальчикова фреза.

Досліджено, що плоскі поверхні тайлів мають бути полірованими. Відбивач на плоских поверхнях має бути дзеркальним. Торець тайла має бути в дифузному відбивачі без повітряного зазору, тобто у вигляді фарби або заливного компаунда з гарною адгезією до пластмасової основи сцинтилятора. Для кращої адгезії обробка поверхні має бути матованою або після обробки алмазним інструментом. Обробка лунки значної ролі в збільшенні сцинтиляційного відгуку не відіграє.

Досліджено умови перетікання світла з тайла в тайл.

Розроблено дифузійний радіаційно-стійкий відбивач на основі полісілоксана з додаванням пігменту  $TiO_2$ . Досліджено залежність властивостей, що відображають від накопичених доз радіації. Відбивач залишається радіаційно-стійким до накопичених доз не менш ніж 100 Мрад.

Досліджено властивості міцності конструкції мегатайла. Показано, що 15 циклів змін температури від  $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$  до  $+60\text{ }^{\circ}\text{C}$  не порушують цілісності детектора.

Список джерел, які використано у даному розділі, наведено у повному списку використаних джерел [93, 100, 107].

## ВИСНОВКИ

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.

Запропоновано технологічне забезпечення для створення радіаційно-стійких сцинтиляційних елементів з композиційних сцинтиляторів на основі сцинтиляційних гранул, яке полягає 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 100 Мрад;

- 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.

Розроблено та впроваджено у виробництво технологічний процес виготовлення радіаційно-стійкого дифузного відбивача на основі порошку  $\text{TiO}_2$ , введеного у полісилоксанове оптично прозоре середовище, з коефіцієнтом відбиття у 92-95 %, що витримує радіаційні навантаження у 100 Мрад.

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 спектросміщуючим волокном з монокристалу YAGG:Ce;

– радіаційно-стійкого сцинтиляційного елемента 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.

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.

Прототип багатоелементного сцинтиляційного детектора на основі пластмасового сцинтилятора проходить тестування в експериментах фізики високих енергій в рамках виготовлення сцинтиляційної частини калориметру.

## ПЕРЕЛІК ДЖЕРЕЛ ПОСИЛАННЯ

1. The ATLAS Collaboration. The ATLAS Experiment at the CERN Large Hadron Collider. *Journal of Instrumentation*. 2008. Vol.3. P. S08003.
2. The CMS Collaboration. The CMS Experiment at the CERN Large Hadron Collider. *Journal of Instrumentation*. 2008. Vol.3. P. S08004.
3. The ALICE Collaboration. The ALICE experiment at the CERN LHC. *Journal of Instrumentation*. 2008. Vol.3. P. S08002.
4. The LHCb Collaboration. The LHCb Detector at the LHC. *Journal of Instrumentation*. 2008. Vol.3. P. S08005.
5. Auffray E., Borisevitch A., Gektin A., Gerasymov Ia., Korjik M., Kozlov D., Kurtsev D., Mechinsky V., Sidletskiy O., Zoueyski R. Radiation damage effects in  $Y_2SiO_5:Ce$  scintillation crystals under  $\gamma$ -quanta and 24 GeV protons. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*. 2015. A 783. P.117 – 120.
6. Contardo D., Ball A. The Phase-2 Upgrade of the CMS endcap calorimeter. Technical Design Report CERN-LHCC-2017-023; CMS-TDR-019. 07 Nov. 2017.
7. Brass A. D., Pla-Dalmau A. Radiation Damage of Plastic Scintillators. *Submitted to Transactions on Nuclear Science*. 1991.
8. Heuer, R.-D. The future of the Large Hadron Collider and CERN. *Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*. 2012. Vol.370(1961). P. 986–994.
9. Wick, K., Paul, D., Schröder, P., Stieber, V., & Bicken, B. Recovery and dose rate dependence of radiation damage in scintillators, wavelength shifters and lightguides. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. 1991. Vol. 61(4). P. 472–486.
10. Глобус М.Е., Гринев Б.В., Любинский В.Р., Ратнер М.А., Гринева Т.Б. Пути повышения радиационной стойкости неорганических сцинтилляционных кристаллов для физики высоких энергий. *Вопросы атомной науки и техники*. 2003. № 6. С. 89–97.

11. Lucchini M., Auffray E., Fedorov A., Korjik M., Mechinski V., Naumenko N., Voitovich A. Inorganic Scintillators and Their Applications: матеріали 12th International conference on inorganic scintillators and their applications SCINT 2013. (Shanghai, 2013). Shanghai, 2013.
12. Chewpraditkul W., Swiderski L., Moszynski M., Szczesniak T., Syntfeld-Kazuch A., Wanarak C., Limsuwan P. Scintillation Properties of LuAG:Ce, YAG:Ce and LYSO:Ce Crystals for Gamma-Ray Detection. *IEEE Transactions on Nuclear Science*. 2009. Vol. 56, No. 6. P. 3800 – 3805.
13. Birks J.B. The Theory and Practice of Scintillation Counting. London, 1967. 467p.
14. Kobayashi M., Ishii M., Kondo K., Miura T., Noumi H., Numajiri M., Oki Y., Suzuki T., Takasaki M., Tanaka K., Yamanoi Y. Radiation hardness of cerium-doped gadolinium silicate  $Gd_2SiO_5:Ce$  against high energy protons, fast and thermal neutrons. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*. 1993. Vol. 330. P. 115–120.
15. Auffray E., Fedorov A., Korjik M., Lucchini M., Mechinski V. The impact of proton induced radioactivity on the LSO:Ce, YSO:Ce scintillation detectors: матеріали 2013 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (NSS/MIC 2013), (Seoul, 2013.). Seoul, 2013.
16. Derdzyan M.V., Ovanesyan K.L., Petrosyan A.G., Pauwels K. Radiation hardness of LuAG:Ce and LuAG:Pr scintillator crystals. *Journal of Crystal Growth*. 2012. Vol.361(1). P. 212–216.
17. Lin L.Y., Benatti C., Perdikakis G., Leitner D., Krause S., Yurkon J. Scintillation degradation of YAG:Ce under low energy ion bombardment. *Journal of Instrumentation*, 2013. Vol. 8. P. 1–14.
18. Коржик М. Эффекты повреждения неорганических кристаллических материалов в условиях экспериментов на коллайдерах. *Физика сцинтилляторов. Материалы, методы, аппаратура*. Харьков, 2015. С. 69–136.
19. Brandle C. D. Czochralski growth of oxides. *Journal of Crystal Growth*. 2004. Vol. 264(4). P. 593–604.
20. Kamada K., Tsutsumi K., Usuki Y., Ogino H., Yanagida T., Yoshikawa A. (). Crystal Growth and Scintillation Properties of 2-Inch-Diameter Pr:Lu<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>



- (Pr:LuAG) Single Crystal. *IEEE Transactions on Nuclear Science*. 2008. Vol. 55(3). P. 1488–1491.
21. Kimura H., Maeda H., Sato M. Czochralski growth of  $Gd_3(Ga_{1-x}Al_x)_5O_{12}$  single crystals. *Journal of Crystal Growth*. 1986. Vol. 74(1). P. 187–190.
  22. Sidletskiy O., Gerasymov Ia., Kurtsev D., Kononets V., Pedash V., Zelenskaya O., Tarasov V., Gektin A., Grinyov B., Lebbou K., Auffray E., Dormenev V., Borisevich A., Korjik M. Engineering of bulk and fiber-shaped YAGG:Ce scintillator crystals. *CrystEngComm*. 2017. Vol. 19. P. 1001-1007.
  23. Kamada K., Yanagida T., Pejchal J., Nikl M., Endo T., Tsutsumi K., Yoshikawa A. Crystal Growth and Scintillation Properties of Ce Doped  $Gd_3(Ga, Al)_5O_{12}$  Single Crystals. *IEEE TransactionsonNuclearScience*. 2012. Vol.59(5). P. 2112–2115.
  24. Annenkov A., Auffray E., Drobychev G., Korzhik M., Kostylev V., Kovalev O., Zouevski R. Large-scale production of PWO scintillation elements for CMS ECAL. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 2005. Vol. 537(1-2). P. 173–176.
  25. Nazarenko B. P., Baumer V. N., Dolzhenkova E. F., Kosmyna M. B. Structural Defects in Czochralski-Grown  $CdWO_4$  Single Crystals. *Inorganic Materials*. 2005. Vol. 41(10). P. 1114–1117.
  26. Zavartsev Y. D., Koutovoi S. A., Zagumennyi A. I. (). Czochralski growth and characterisation of large  $Ce^{3+}:Lu_2SiO_5$  single crystals co-doped with  $Mg^{2+}$  or  $Ca^{2+}$  or  $Tb^{3+}$  for scintillators. *Journal of Crystal Growth*. 2005. Vol.275(1-2).P. e2167–e2171.
  27. Koschan M., Yang K., Zhuravleva M., Melcher C. L. A comparison of the effect of  $Ca^{2+}$  codoping in cerium doped GSO with that of LSO and YSO. *Journal of Crystal Growth*. 2012. Vol.352(1).P. 133–136.
  28. Герасимов Я.В. Розробка технології отримання великогабаритних кристалів складних оксидів для експериментів з реєстрації мюон-електронної конверсії в фізиці високих енергій. *Наука та інновації*. 2014. Т. 10. № 6. С. 26–33.
  29. Zhou, Y., Xia, H., Huang, Z., Lu, M., Deng, P., Qiao, J., Hu, B. Growth of large-size Nd:YAG laser crystals. *Solid State Lasers III*. 1992. Vol. 1627. P. 225–229.

30. Viechnicki, D., Schmid, F. Growth of large monocrystals of  $\text{Al}_2\text{O}_3$  by a gradient furnace technique. *Journal of Crystal Growth*. 1971. Vol. 11(3). P. 345–347.
31. LHC Detectors Upgrade. Technical Design Report. Vol. 1. Protons. CERN–ACC–2014-0337, 15 December 2014. URL: <https://cds.cern.ch/record/1976692/files/CERN-ACC-2014-0337.pdf>.
32. Dorenbos, P. Light output and energy resolution of  $\text{Ce}^{3+}$ -doped scintillators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 2002. Vol. 486(1-2). P. 208–213.
33. Derenzo S., Boswell M., Weber M., Brennan K. Scintillation Properties. URL: <http://scintillator.lbl.gov>.
34. Nikl M., Yoshikawa A., Kamada K., Nejezchleb K., Stanek C. R., Mares J. A., Blazek K. Development of LuAG-based scintillator crystals – A review. *Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials*. 2013. Vol. 59(2). P. 47–72.
35. Lucchini M.T., Gundacker S., Lecoq P., Benaglia A., Nikl M., Kamada K., Yoshikawa A., Auffray E. Timing capabilities of garnet crystals for detection of high energy charged particles. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*. 2017. Vol. 852, P.1–9.
36. Kamada K., Nikl M., Kurosawa S., Beitlerova A., Nagura A., Shoji Y., Pejchal J., Ohashi Y., Yokota Y., Yoshikawa A. Alkali earth co-doping effects on luminescence and scintillation properties of Ce doped  $\text{Gd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}$  scintillator. *Optical Materials*, 2015. Vol. 41. P. 63–66.
37. Lecoq, P., Gektin, A., & Korzhik, M. Inorganic Scintillators for Detector Systems. Particle Acceleration and Detection. Springer Nature Switzerland AG. 2017. 408p.
38. N.L. Karavaeva. Composite scintillators as new type of a scintillation material. *Problems of atomic science and technology*. 2014. №5 (93). P.91–97.
39. Lee G. Radiation Resistance of Elastomer. *IEEE Transactions on Nuclear Science*. 1985. Vol. 32. No. 5. P. 3806–3808.
40. Boyarintsev A.Yu., Galunov N.Z., Karavaeva N.L., Krech A.V., Lazarev I.V., Levchuk L.G., Nepokupnaya T.A., Panikarskaya V.D., Popov V.F., Sorokin P.V.,

- Tarasenko O.A. Study of radiation-resistant gel bases for composite detectors. *Functional Materials*. 2013. Vol. 20. No.4. P. 471 – 476.
41. SYLGARD® 184, 761036 Sigma – Aldrich. URL: <https://www.sigmaaldrich.com>.
42. Boyarintsev A.Yu., Galunov N.Z., Gerasymov I.A., Gorbacheva T.E., Karavaeva N.L., Krech A.V., Levchuk L.G., Litvinov L.A., Popov V.F., Sidletskiy O.Ts., Sorokin P.V., Tarasenko O.A. Radiation-resistant composite scintillators based on GSO and GPS grains. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*. 2017. Vol. 841. P. 124–129.
43. Galunov N. Z., Grinyov B. V., Karavaeva N. L., Gerasymov Y. V., Sidletskiy O. T., Tarasenko O. A. Gd-Bearing Composite Scintillators as the New Thermal Neutron Detectors. *IEEE Transactions on Nuclear Science*. 2011. Vol. 58(1). P. 339–346.
44. Kawamura S., Kaneko J. H., Higuchi M., Haruna J., Saeki S., Fujita F., Homma A., Nishiyama S., Ueda S., Kurashige K., Ishibashi H., Furusaka M. Scintillation characteristics of Ce:GdSiO(Ce 2.5–30mol %) single crystals prepared by the floating zone method. *IEEE Transactions on Nuclear Science*. 2009. Vol. 56, No. 1. P. 328–330.
45. Sidletskiy O., Baumer V., Gerasymov I., Grinyov B., Katrunov K., Starzhinsky N., Tarasenko O., Tarasov V., Tkachenko S., Voloshina O., Zelenskaya O. Gadolinium pyrosilicate single crystals for gamma-ray and thermal neutron monitoring. *Radiation Measurements*. 2010. Vol. 45.No. 3–6. P. 365–368.
46. Lee, S. K., Son, J. B., Jo, K. H., Kang, B. H., Kim, G. D., Seo, H., Kim, Y. K. (). Development of large-area composite stilbene scintillator for fast neutron detection. *Journal of Nuclear Science and Technology*. 2013. Vol. 51(1).P. 37–47.
47. Galunov N.Z., Gorbacheva T.E., Grinyov B.V., Karavaeva N.L., Khabuseva S.U., Krech A.V., Levchuk L.G., Litvinov L.A., Popov V.F., Sorokin P. V. Radiation resistant composite scintillators based on  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Ti}$  grains and their properties after irradiation. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 2017. Vol. 866.P. 104–110.
48. Galunov N.Z., Gerasymov I.A., Gorbacheva T.E., Grinyov B.V., Karavaeva N.L., Krech A.V., Martynenko E.V., Sidletskiy O.Ts., Tarasenko O.A., Khabuseva S.U.,

Levchuk, L.G., Popov V.F., Sorokin P.V. Composite scintillators based on single crystal grains  $Y_2SiO_5:Ce$ (YSO) and  $Y_3Al_5O_{12}:Ce$  (YAG). *Problems of Atomic Science and Technology*. 2017, No.3(109). P. 35–39.

49. Шифрин К.С. Рассеяние света в мутной среде: Москва: Гостехиздат. 1951. 288 С.

50. Plastic scintillating fibers (PSF). URL: [www.kuraray.com](http://www.kuraray.com).

51. Gurzhiev A.N., Turchanovich L.K., Vasil'chenko V.G., Bogatyryev V.A., Mashinsky V.M. Radiation hardness study of optical fibers. Protvino. 1995.

52. Varanda M., David M., Gomes A., Maio A. Recent results on radiation hardness tests of WLS fibers for the ATLAS Tilecal hadronic calorimeter. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 2000. Vol. 453(1-2). P. 255–258.

53. Jing X., Ireland T., Gibbons C. Control of  $Y_2O_3:Eu$  spherical particle phosphor size, assembly properties, and performance for FED and HDTV. *Journal of The Electrochemical Society*. 1999. Vol. 146. No. 12. P. 4654–4658.

54. Xiu Z., Li J.-G., Li X., Huo D., Sun X., Ikegami T., Ishigaki T. Nanocrystalline Scandia Powders Via Oxalate Precipitation: The Effects of Solvent and Solution pH. *Journal of the American Ceramic Society*. 2008. Vol. 91. No. 2. P. 603–606.

55. Sardar D. K., Chandra S., Gruber J. B., Gorski W., Zhang M., Shim J. H. Preparation and spectroscopic characterization of  $Nd^{3+}:Y_2O_3$  nanocrystals suspended in polymethyl methacrylate. *Journal of Applied Physics*. 2009. Vol. 105. No. 9. P. 093105-093105.

56. Dulina N. A., Yermolayeva Y. V., Tolmachev A. V., Sergienko Z. P., Vovk O. M., Vovk E.A., Matveevskaya N.A., Mateychenko P.V. Synthesis and characterization of the crystalline powders on the basis of  $Lu_2O_3:Eu^{3+}$  spherical submicron-sized particles. *Journal of the European Ceramic Society*. 2010. Vol. 30. P. 1717–1724.

57. Сектор элементного и структурного анализа.

URL: <http://www.issp.ac.ru/sesa/methods/151-poroshkovyj-difraktometr-siemens-d500>.

58. Rietveld H. M. The Rietveld Method: A Retrospection. *Zeitschrift Für Kristallographie*. 2010. Vol. 225(12). P. 545–547.

59. Галунов Н.З., Семиноженко В.П. Радиолюминесценция органических конденсированных сред. Теория и применение: изд. второе, исправленное и дополненное. Киев :Наукова думка, 2015. 464 с.
60. HARWELL DOSIMETERS LTD. URL: <http://www.harwell-dosimeters.co.uk/harwell-red-4034>.
61. High Dose Radiachromic Dosimeters. URL: [www.fwt.com/racm/fwt60ds.htm](http://www.fwt.com/racm/fwt60ds.htm).
62. Yukihiro E.G., Jacobsohn L.G., Blair M.W., Bennett B.L., Tornga S.C., Muenchausen R.E. Luminescence properties of Ce-doped oxyorthosilicate nanophosphors and single crystals. *Journal of Luminescence*. 2010. Vol.130. P.2309–2316.
63. Gorbacheva T. E., Tarasov V.A., Galunov. N. Z. Light collection simulation when determining light yield of single crystal and polycrystalline organic scintillators. *Functional Materials*. 2015. Vol. 22. No.3. P. 408–415.
64. Глобус М.Е., Гринев Б.В. Неорганические сцинтилляторы: новые и традиционные материалы: Харьков: Акта, 2001. 409 С.
65. Polyanskiy M. RefractiveIndex.INFO. URL: [www.refractiveindex.info](http://www.refractiveindex.info).
66. Elastomers and Plastomers. URL: [www.dow.com](http://www.dow.com).
67. Бутиков Е.И., Оптика. – М.:Высш.шк., 1986. 512 с.
68. Gavrilov V.B., Golutvin A.I., Gershtein Yu.S., Danilov M.V., Kolosov V.A., Kuleshov S.V., Litvintsev D.O., Ratnikov F.D., Rusinov V.Yu., Stolin V.L., Ul'yanov A.L., Zamyatin A.A., Izraelyan V.G., Isaev V.A., Morshnev S.K., Chamorovskii Yu.K. Absorption spectra of pure quartz fiber lightguides irradiated with  $\gamma$ -quanta from a  $^{60}\text{Co}$  source. *Instruments and Experimental Techniques*. 1997. Т. 40. № 4. С. 457–466.
69. Основные требования, предъявляемые к оптическим кварцевым волокнам для переднего калориметра CMS. Москва: ИТЭФ, 1998.
70. Orlinski D.V., Gritsyna V.T. Radiation Resistance Investigation of Quartz Glass KU-1. *Problems of Atomic Science and Technology*, 2000. Vol. 5, No. 3. P.60–63.
71. Levin B.A., Orlinski D.V., Vukolov K.Yu., Gritsyna V.T. Radiation Resistance of Quartz glasses. *Вопросы атомной науки и техники*, 2003. Т. 51. № 3. С. 51–56.

72. Арбузов В.И. Основы радиационного оптического материаловедения: учебное пособие. СПб: СПбГУИТМО, 2008. 284 С.
73. Colby E., Lum G., Plettner T., Spencer J. Gamma Radiation Studies on Optical Materials. *IEEE Transactions on Nuclear Science*. 2002. Vol. 49. P. 2857–2867.
74. Macalik B., Bausa L.E., Garcia-Sole J., Jaque F., Santiuste J., Vergara I. Blue emission in Ti-sapphire laser crystals. *Applied Physics A*. 1992. Vol. 55. P. 144–147.
75. Afanasiev S.V., de Bardo P., Boyarinstev A.Yu., Emeliantchik I.F., Golutvin I.A., Grinyov B.V., Ershov Yu.V., Levchuk L.G., Liyomin A.V., Malakhov A.I., Moisenz P.V., Popov V.F., Shumeiko N.M., Smirnov V.A., Sorokin P.V., Zmurin P.N. HE upgrade beyond phase 1. Finger scintillator option. CMS Note, 06 Feb. 2014.
76. Afanasiev S.V., Ershov Y.L., Levchuk L.G., Danilov M., Emeliantchik I., Tarkovskiy E., Golutvin I.A., Moisenz P.V., Ibragimova E., Tashmetov F., Vasiliev S. I., Shumeiko N., Grinyov B.V., Litomin A., Popov V.F., Yuldashev B. S., Makankin F.V., Zamyatin N., Boyarintsev A.Yu., Zmurin P.N., Nuritdinov I., Sorokin P.V., Smirnov V.A., Malakhov A.I., Rusinov V. Finger” structure of tiles in CMS Endcap Hadron Calorimeters. CMS Note, CMS CERN, 23 Jan. 2015.
77. Afanasiev S.V., Boyarintsev A. Yu., Danilov M., Emeliantchik I.F., Ershov Yu. V., Golutvin I.A., Grinev B. V., Ibragimova E. M., Levchuk L.G., Litomin A.V., Makankin A.M., Malakhov A., Moisenz P.V., Nuritdinov I., Popov V.F., Rusinov V. Yu., Shumeiko N.M., Smirnov V.A., Sorokin P.V., Tarkovskii E.I., Tashmetov A., Vasiliev S.E., Yuldashev B. S., Zamiatin N.I., Zhmurin P. N. Light yield measurements of “finger ” structured and unstructured scintillators after gamma and neutron irradiation. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 2016. Vol. 818. P. 26–31.
78. Fessler H., Freund P., Gebauer J., Glas K.M., Pretzl K., Seyboth P., Seyerlein J., Thevenin J.C. A tower structured scintillator lead photon calorimeter using a novel fiber optics readout system. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*. 1985. Vol. 228. P. 303–308.
79. Atoyán G.S., Gladyshev V.A., Gninenko S.N., Isakov V.V., Kovzelev A.V., Monich E.A., Poblaguev A.A., Proskuryakov A.L., Semenyuk I.N., Lapshin V.G.,

- Protopopov Yu.V., Rykalin V.I., Semenov V.K. Lead-scintillator electromagnetic calorimeter with wavelength shifting fiber readout. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*. 1992. Vol. 320. P. 144–154.
80. Креч А.В., Галунов М.З. Композиційні сцинтилятори та особливості їх радіаційної стійкості. *Український фізичний журнал*. 2017. Т. 62, № 7. С. 565–578.
81. Sefkow F., Simon F. A highly granular SiPM-on-tile calorimeter prototype”, *Journal of Physics: Conf. Series*, 1162:012012, 2019.
82. Sefkow F., White A., Kawagoe K., Poschl R., Repond J. Experimental tests of particle flow calorimetry. URL: <https://arxiv.org/pdf/1507.05893.pdf>
83. FILTRATION SOLUTIONS FOR INDUSTRIAL PROCESSES. URL: [www.donaldson.com/content/dam/donaldson/membranes/literature](http://www.donaldson.com/content/dam/donaldson/membranes/literature).
84. BHA<sup>®</sup> Preveil<sup>®</sup>. URL: <https://www.parker.com/Literature>.
85. Tyvek<sup>®</sup> for Industrial Bags and Sacks. URL: <https://www.dupont.com/packaging-materials-and-solutions/industrial-bags-and-sacks.html>
86. Enhanced-Specular-Reflector. URL: [https://www.3m.com/3M/en\\_US/company-us/search/?Ntt=Enhanced-Specular-Reflector](https://www.3m.com/3M/en_US/company-us/search/?Ntt=Enhanced-Specular-Reflector).
87. Janecek M., Moses W.W. Optical Reflectance Measurements for Commonly Used Reflectors. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 2008. Vol. 55. No. 4. P.2432–2437.
88. Kumar S., Verma N.K., Singla M.L. Size dependent reflective properties of TiO<sub>2</sub> nanoparticlae and reflectors made thereof. *Digest Journal of Nanomaterials and Biostructures*, 2012. Vol. 7. No. 2. P. 607–619.
89. Vorontsov A.V., Altynnikov A.A., Savinov E.N., Kurkin E.N. Correlation of TiO<sub>2</sub> photocatalytic activity and diffuse reflectance spectra. *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*. 2001. Vol. 144. P. 193–196.
90. DeVore J.R. Refractive Indices of Rutile and Sphalerit. *Journal of the Optical Society of America*. 1951. Vol. 41. No. 6. P. 416–419.
91. Коршак В.В. Технология пластических масс: 3-е изд., перераб. и доп. М.: Химия, 1985. 560 с.
92. Boyarintsev A.Yu., Nepokupnaya T.A., Onyfriyev Yu.D., Tarasov V.A. Composite scintillator. *Springer Proceedings in Physics*, 2017. Vol. 200. P. 167–194.

93. 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.
94. Онуфриев Ю., Бояринцев А., Гектин А., Гринев Б., Ковальчук С., Непокупная Т. Светособирание в композиционном детекторе для физики высоких энергий. *Функциональные материалы: Аспекты сцинтилляционной техники*: Харьков, 2017. С. 141–148.
95. 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.
96. 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.
97. Lysenko O.G., Grushko V.I., Mitskevich E.I., Ilitska G.D., Boyarintsev A.Yu., Onufriev 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.
98. Спосіб виготовлення радіаційно стійкого сцинтиляційного елемента: пат. 120649 Україна. №u201705435; заявл. 02.06.2017; опубл. 10.11.2017; Бюл.№ 21.
99. Радіаційно стійкий сцинтиляційний елемент: пат. 119798 Україна. №a201705477; заявл. 02.06.2017; опубл. 10.10.2017; Бюл.№ 19.
100. Радіаційно стійкий сцинтиляційний елемент: пат. 140451 Україна. №u20190872; заявл. 19.07.2019; опубл. 25.02.2020; Бюл.№ 4.
101. 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.

102. 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.

103. 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.

104. 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.

105. 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.

106. 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.

107. 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.

108. 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.

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

## ДОДАТОК А

## Список публікацій здобувача

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.
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.
3. Онуфриев Ю., Бояринцев А., Гектин А., Гринев Б., Ковальчук С., Непокупная Т. Светособирание 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.
6. Lysenko O.G., Grushko V.I., Mitskevich E.I., Ilitska 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. Радіаційностійкий 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 GPS:Ce, LYSO:Ce and YSO: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.

## ДОДАТОК Б. Акти впровадження

«Затверджую»  
Ректор Харківського національного  
університету радіоелектроніки

проф. С. Євменюк В.В.  
« \_\_\_\_\_ » \_\_\_\_\_ Р.

**АКТ**

з впровадження у навчальний процес  
результатів дисертаційної роботи  
Онуфрієва Юрія Дмитровича

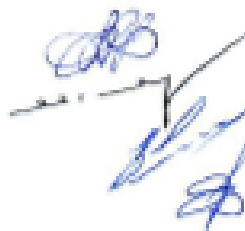
Комісія у складі голови: декана факультету Автоматики і комп'ютеризованих технологій – д.т.н., проф. Филипенка Олександра Івановича, членів комісії: д.т.н., доц., завідувача кафедри комп'ютерно-інтегрованих технологій, автоматизації та мехатроніки (КІТАМ) заступника завідувача кафедри КІТАМ з наукової роботи – к.т.н., доц., професора кафедри КІТАМ Євсєєва Владислава В'ячеславовича, к.т.н., доцента кафедри КІТАМ Разумова-Фризюка Євгенія Анатолійовича, склала акт про впровадження результатів дисертаційної роботи Онуфрієва Ю. Д. на тему «Технологія виробництва радіаційностійких сцинтиляційних детекторів для фізичних експериментів», подану на здобуття наукового ступеня кандидата технічних наук за спеціальністю 05.27.06 – технологія, обладнання і виробництво електронної техніки у навчальний процес Харківського національного університету радіоелектроніки.

Склад впровадження:

- розроблений стенд для дослідження якості конструкції сцинтиляційного детектора;
- технологічна документація на розроблений технологічний процес створення багатоелементного сцинтиляційного модуля на основі пластмасового сцинтилятора.

Комісія встановила, що наукові результати, запропоновані в дисертаційній роботі Онуфрієва Ю. Д. впроваджені у навчальний процес на кафедрі КІТАМ при викладанні дисциплін: «Компоненти та технології мікросистемної радіоелектронної техніки», «Сучасні матеріали виробництва засобів радіоелектроніки», «Фізико-хімічні основи технології засобів радіоелектроніки» для студентів спеціальності 172 Телекомунікації та радіотехніка, освітньо-професійних програм «Інтелектуальні технології засобів радіоелектроніки» та «Інтелектуальні технології мікросистемної радіоелектронної техніки».

Голова комісії



О.І. Филипенко

Члени комісії

І.Ш. Невлодов

В.В. Євсєєв

С.А. Разумов-Фризюк

ЗАТВЕРДЖУЮ



## АКТ

## впровадження результатів дисертаційної роботи

Даним актом підтверджується, що результати дисертаційної роботи  
«Технологія виробництва радіаційностійких сцинтиляційних детекторів для фізичних експериментів»,

яка виконувалась в Інституті сцинтиляційних матеріалів НАН України,  
 автором якої є Онуфрієв Юрій Дмитрович  
 (прізвище, ім'я, по-батькові)

впроваджено в Інституті сцинтиляційних матеріалів НАН України

Термін впровадження: 2018 р

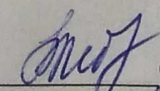
Форма впровадження результатів: Лабораторна методика № 8:2020. Отримання сцинтиляційних багатоелементних детекторів  
 (методики, системи, прилади, технологічні процеси та ін., їх назви)

Характеристика масштабу впровадження унікальне, одиночне  
 (унікальне, одиночне, партія, серійне)

Новизна впроваджених результатів: впровадженням є новим за своїм походженням, оскільки базується на використанні низки нових технологічних підходів до отримання багатоелементних сцинтиляційних детекторів.  
 (нове, модифікація, модернізація)

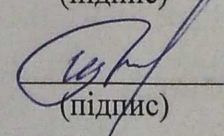
Ефективність впровадження: використання лабораторної методики дозволяє отримувати експериментальні зразки багатоелементних сцинтиляційних детекторів  
 (з соціальним, економічним чи науково-технічним ефектом)

В. о. заст. зав. відділу ВНТР ІСМА НАНУ

  
 (підпис)

О.М. Лебединський

Головний інженер ІСМА НАНУ

  
 (підпис)

І.А. Бреславський