

ВІДГУК

офіційного опонента

доктора технічних наук, професора,

Першого заступника Генерального директора-головного конструктора

ТОВ «Науково-виробниче підприємство «ЛТУ»,

Борщова Вячеслава Миколайовича

на дисертаційну роботу

Непокупної Тетяни Анатоліївни

«Технологія виробництва комбінованих детекторів іонізуючого
випромінювання»

подану на здобуття наукового ступеня кандидата технічних наук за спеціальністю
05.27.06 – Технологія, обладнання та виробництво електронної техніки

Детальний аналіз дисертації Непокупної Т.А. «Технологія виробництва комбінованих детекторів іонізуючого випромінювання» дозволяє визначити наступні узагальнені висновки щодо актуальності, ступеня обґрунтованості основних наукових положень, висновків, рекомендацій, достовірності, наукової новизни, практичного значення, а також загальної оцінки роботи.

Актуальність теми дисертаційної роботи

Високочутливі детектори, що реєструють малі потоки іонізуючого випромінювання, є дуже затребуваними у даний час. Одним з важливих заходів ядерної безпеки є радіаційний контроль об'єктів, що переміщуються, який здійснюється за допомогою радіаційних порталних моніторів. Для дистанційного визначення радіонуклідів за їх нейтронним та гамма-випроміненням найчастіше використовують пластмасові сцинтилятори великих розмірів та монокристали NaI:Тl, які мають високу поглинаючу здатність проникаючого гамма-випромінювання. Діапазон енергій фотонів гамма-квантів, які реєструють NaI:Тl складає 0,030-3,0 МеВ, але такі детектори мають високу вартість виробництва.



Порівняно з детекторами NaI:Tl, вартість виробництва пластмасових сцинтиляторів є значно дешевшою, але їх основним недоліком є низька ефективність реєстрації фотонів гамма-квантів з енергією до 0,150 MeV. До іншого типу випромінювання, що є особливо небезпечними для людей, відносяться альфа- та бета-частинки. Зараз для реєстрації даного типу випромінювання використовують газорозрядні, напівпровідникові та сцинтиляційні детектори. Серед сцинтиляційних детекторів можна виділити низку блоків детектування на основі дрібнодисперсного ZnS:Ag, який нанесений на підкладку з органічного полімеру або сцинтиляційної пластмаси. Недоліком таких детекторів є енергетичне розділення більше 40% через значну реабсорбцію власного сцинтиляційного сигналу ZnS:Ag та його висока фосфоресценція. Також в даний час необхідні недорогі плоскопанельні детектори великої площі для медичної цифрової рентгенографії з просторовим розділенням від 3,5 пар ліній/мм. Для виготовлення сцинтиляційних екранів візуалізаційних рентгенівських детекторів також затребувані дрібнодисперсні сцинтиляційні порошки з високим світловим виходом та низьким післясвітінням, що можуть стати високоефективною альтернативою кераміці Gd₂O₂S:Tb або колончатим структурам CsI:Tl, вартість виробництва яких є дуже високою.

Таким чином, на даний час розробка нових технологічних процесів, що дозволять виробляти достатньо недорогі високочутливі детектори з великою площею активної поверхні для приладів радіаційного контролю, є актуальним завданням.

Дослідження, результати яких викладені в дисертаційній роботі, виконувались відповідно до тематичних планів науково-дослідних робіт Інституту сцинтиляційних матеріалів НАН України в рамках держбюджетних тем: «Розробка методів отримання композитних сцинтиляторів» (2017–2021 рр., номер держреєстрації № 0117U000988), науково-дослідного проекту «Нові сцинтиляційні композиційні детектори для медичної рентгенівської діагностики»

(договір № Ф79/125-2017, договір № Ф-79/57-2018, 2017-2018 рр., номер держреєстрації № 0118U001505), інноваційного проекту НАН України «Розроблення детекторів для реєстрації альфа- та альфа-бета випромінювань» (2020 р., номер держреєстрації № 012U100629).

Ступінь обґрунтованості наукових положень і висновків

У першому розділі автором виконано змістовний огляд літературних джерел за темою роботи. Проаналізовано існуючі сучасні розробки детекторів, що реєструють малі потоки іонізуючого випромінювання та сформульовані основні вимоги, яким вони мають відповідати. Визначені вимоги до сцинтиляційних матеріалів для виготовлення високочутливих детекторів іонізуючого випромінювання. Розглянуто обмеження, через які завдання виготовлення високочутливих детекторів альфа-, бета-частинок, а також фотонів гамма- та низькоенергетичних рентгенівських квантів ще не вирішено до кінця. У результаті проведеного аналізу сформульовано наукове завдання підвищення чутливості реєстрації сцинтиляційних детекторів альфа-, бета-частинок і фотонів гамма-випромінювання, а також просторового розділення детекторів для реєстрації фотонів низькоенергетичних рентгенівських квантів шляхом розроблення технології виробництва комбінованих детекторів на основі органічних та неорганічних матеріалів, а також визначено основні напрямки дослідження.

У другому розділі розроблено технологічні процеси виробництва складових елементів комбінованих детекторів з площею вхідної поверхні від 1000 см^2 на основі сцинтиляційного сендвічу, який складається зі сцинтиляційного та світлопровідного шару з матеріалів, що відрізняються за лінійними коефіцієнтами теплового розширення у 4,5 – 7 разів. Запропоновано конструкторсько-технологічне забезпечення виготовлення сцинтиляційного сендвіча, яке дозволяє виготовляти комбіновані детектори великої площі зі стабільними сцинтиляційними характеристиками при температурах від -50°C до $+70^\circ\text{C}$, що було підтверджено експериментальними результатами.

Вирішено завдання виробництва комбінованих детекторів з площею детектуючої поверхні від 1000 см² за рахунок розроблення технологічних процесів виготовлення сцинтиляційних шарів сендвіча у вигляді мозаїки з кристалічних неорганічних сцинтиляторів або у вигляді композиційних сцинтиляторів з гранул, отриманих твердофазним синтезом, або з гранул, що є відходами виробництва кристалічних сцинтиляторів.

За результатами розрахунків та експериментів визначено загальні умови, що мінімізують напруження в шарі оптичного полісилоксанового клею у сендвічі комбінованого детектору для реєстрації фотонів гамма-випромінювання на основі кристалічних пластин NaI:Tl і сцинтиляційного полістиролу.

Проведено математичне моделювання умов збирання світла методом Монте-Карло у композиційних шарах в залежності від їх товщини, розміру гранул та показників заломлення гранул та оптичної основи. Отримані результати дозволили визначити умови підвищення прозорості композиційних шарів та стали основою для розроблення технологічних процесів виготовлення комбінованих детекторів іонізуючого випромінювання великої площі.

Вдосконалено технологічні процеси отримання сцинтиляційних гранул CsI:Tl та GAGG:Ce для виготовлення сцинтиляційних композиційних шарів, що забезпечило підвищення чутливості реєстрації комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання та збільшення просторового розділення детекторів фотонів низькоенергетичних рентгенівських квантів.

Третій розділ присвячено розробленню технологічних процесів виготовлення комбінованих детекторів з площею вхідної поверхні від 1000 см² для реєстрації фотонів гамма-випромінювання в інтервалі температур від -50°C до +70°C. Розроблені два типи детекторів – для роботи в лічильному та спектрометричному режимах реєстрації імпульсів. Основою детекторів є сцинтиляційний сендвіч, який складається з шарів NaI:Tl або CsI:Tl та сцинтиляційного полістиролу.

Проведено математичне моделювання сцинтиляційних процесів у комбінованому детекторі на основі NaI:Тl та полістиролу методом Монте Карло, яке дозволило оцінити переваги об'єднання даних сцинтиляторів в одному комбінованому детекторі для радіаційних порталних моніторів. Встановлено, що розроблений комбінований детектор поєднує такі переваги NaI:Тl та сцинтиляційного полістиролу, як спектрометрію та високу чутливість реєстрації фотонів гамма-квантів у діапазоні енергій 20 – 3000 кеВ. Встановлено, що відносна ефективність реєстрації комбінованого детектора на основі NaI:Тl та полістиролу для енергій 20 – 150 кеВ удвічі вище, ніж у детектора NaI:Тl та в 4 рази вище, ніж у полістиролу еквівалентного об'єму, відповідно. Даний ефект пояснюється виникненням в шарі полістиролу гамма-квантів зворотного розсіювання, які потім реєструються в шарі NaI:Тl. Відповідно до розрахункових даних, кількість таких подій дорівнює ~20%.

Розроблені технологічні операції дозволили виготовити комбіновані детектори з чутливістю реєстрації фотонів гамма-квантів на 30 – 80% більше, ніж у детекторів на основі монокристалу NaI:Тl або сцинтиляційного полістиролу еквівалентного об'єму. Енергетичне розділення комбінованого детектору на основі NaI:Тl та сцинтиляційного полістиролу з площею вхідної поверхні 1000 см² не перевищує 8,5% під час опромінення ¹³⁷Cs.

Четвертий розділ присвячено розробленню технології виготовлення спектрометричних комбінованих детекторів для реєстрації альфа- та бета-частинок з площею вхідної поверхні до 180 см² на основі гетерогенного сцинтиляційного шару з ZnSe:Al та світлопровідного шару з поліметилметакрилату. Для забезпечення високої чутливості реєстрації альфа- та бета-частинок, в роботі розроблений технологічний процес виготовлення гетерогенного шару з гранул ZnSe:Al, який складається з альфа-чутливого та бета-чутливого підшарів та одночасно реєструє обидва типи випромінювання. Розроблення гетерогенного шару ZnSe:Al проведено з урахуванням довжин пробігу

альфа- та бета-частинок у сцинтиляторі та умов збирання світла в композиційних шарах з низькою прозорістю.

Підтверджено стабільність функціональних параметрів розроблених детекторів альфа- та бета-частинок при температурах від -50°C до $+70^{\circ}\text{C}$.

Розроблені технологічні процеси дозволили виготовити спектрометричні комбіновані детектори на основі гетерогенних шарів ZnSe:Al з чутливістю реєстрації альфа-частинок на 26% більше та бета-частинок на 14% більше, ніж у детекторів на основі люмінофору ZnS:Ag , нанесеного на сцинтиляційну пластмасу

П'ятий розділ присвячено розробленню технологічних процесів виготовлення комбінованих детекторів великої площі для реєстрації фотонів низькоенергетичних рентгенівських квантів (для візуалізації об'єктів). Основою детекторів є сцинтиляційний сендвіч, на основі композиційного шару з гранул GAGG:Ce або CsI:Tl та волоконно-оптичної пластини.

Просторове розділення комбінованих детекторів підвищено за рахунок оптимізації активатору в складі гранул GAGG:Ce , а також шляхом зменшення різниці показників заломлення сцинтиляційних гранул та оптичної основи при виготовленні сцинтиляційного шару детектору.

Встановлено довгочасна стабільність функціональних параметрів складових елементів розроблених детекторів для реєстрації фотонів низькоенергетичних рентгенівських квантів при температурах від -50°C до $+70^{\circ}\text{C}$.

В результаті проведених досліджень були розроблені операції технологічного процесу виготовлення комбінованих детекторів для рентгенівської візуалізації з просторовим розділенням на 25% краще, ніж у комерційних плоскопанельних детекторів з матрицею на тонкошарових транзисторах.

Наукова новизна результатів дисертаційної роботи та їх достовірність

При виконанні дисертаційної роботи отримані такі нові результати:

1. Вперше запропоновано технологію виробництва складових елементів комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання з площею

вхідної поверхні від 1000 cm^2 на основі оптично з'єднаних неорганічних та органічних матеріалів, що відрізняються за лінійними коефіцієнтами теплового розширення у 4,5–7 разів, яка забезпечує стабільність функціональних параметрів детекторів у температурному інтервалі від -50°C до $+70^\circ\text{C}$.

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

3. Вперше розроблено технологічний процес виробництва спектрометричних комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання з площею вхідної поверхні від 1000 cm^2 на основі кристалічних пластин NaI:Tl та пластини сцинтиляційного полістиролу, який забезпечує ідентифікацію радіонуклідів за рахунок наявності в спектрі амплітуд імпульсів детектора піку повного поглинання від NaI:Tl та додаткового піку зворотного розсіювання в NaI:Tl та в сцинтиляційному полістиролі. Енергетичне розділення комбінованого детектора від колімованого джерела ^{137}Cs не перевищує 8,5% ($E_\gamma=662 \text{ кеВ}$).

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

5. Набув подальшого розвитку технологічний процес виготовлення комбінованих детекторів для реєстрації фотонів низькоенергетичного рентгенівського випромінювання (для візуалізації об'єктів) з площею вхідної

поверхні до 400 см^2 на основі композиційного сцинтилятора GAGG:Ce, оптично з'єднаного з волоконно-оптичною пластиною, який забезпечує просторове розділення на 25% вище, ніж у плоскопанельних детекторів з матрицею на тонкоплівкових транзисторах, виготовлених на основі екранів CsI:Tl або $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S:Tb}$.

Практичне значення мають такі результати:

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

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

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

– розроблено спектрометричні комбіновані детектори з роздільною реєстрацією альфа- та бета-частинок з площею входної поверхні до 180 см^2 , що мають чутливість реєстрації вище, ніж у детекторів на основі ZnS:Ag та пластмасового сцинтилятора. Розроблений в роботі технологічний процес впроваджено в Інституті сцинтиляційних матеріалів НАН України, м. Харків (акт

від 17.12.2020 р., лабораторний регламент № 15:2020, лабораторний регламент № 24:2020);

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

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

– розроблено комбіновані детектори для реєстрації низькоенергетичних фотонів рентгенівського випромінювання (для візуалізації об'єктів) з площею вхідної поверхні до 400 см² на основі композиційних сцинтиляторів GAGG:Ce з гранул, отриманих твердофазним синтезом, які мають просторове розділення вище, ніж у плоскпанельних детекторів з матрицею на тонкоплівкових транзисторах, виготовлених на основі екранів CsI:Tl або Gd₂O₂S:Tb.

Зауваження по дисертаційній роботі

Позитивно оцінюючи в цілому виконану роботу, вважаю необхідним зробити деякі зауваження:

1. На сторінці 11 автореферату нумерацію рисунків 9 та 10 треба поміняти містами.

2. Чому в підрозділі 2.2, стор. 59 дисертаційної роботи для експериментальної перевірки твердження про підвищення коефіцієнта збирання світла в сцинтиляційному шарі на основі гранул розміром 100-500 мкм, якщо показник заломлення оптичної основи менше, ніж у гранул обраний ортосилікат ітрію, а не йодид цезію? Йодид цезію також має показник заломлення близький до 1,8 та, до того ж даний сцинтилятор використовується в роботі для виготовлення комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма- та рентгенівських квантів.

3. Чому в підрозділі 4.1 дисертаційної роботи не наведені дані про реєстрацію фотонів гамма-випромінювання комбінованими детекторами альфа- та бета-частинок на основі гетерогенного шару ZnSe:Al?

4. Чому в підрозділі 5.2, стор. 127 дисертаційної роботи для виготовлення комбінованих детекторів для реєстрації фотонів низькоенергетичних рентгенівських квантів обраний епоксидний клей як оптична основа для гранул? Адаже в роботі зазначається перевага використання полісилоксанів як хімічно інертних основ для гранул. А зараз є достатня кількість комерційних полісилоксанів з показником заломлення більше ніж 1,40.

5. Слід зазначити деякі дискусійні моменти роботи, а саме: за матеріалами, які наведені у дисертаційній роботі, відсутні пояснення про конкурентоспроможність інноваційних комбінованих детекторів іонізуючого випромінювання, що розроблені дисертантом у порівнянні з імпортними аналогами, з точки зору їх вартості.

Проте зазначені недоліки та зауваження принципово не впливають на ступінь наукової новизни та практичного значення отриманих в дисертаційній роботі результатів. Висновки і положення, що зроблені автором та виносяться на захист, добре обґрунтовані, логічно випливають із отриманих результатів і відповідають поставленим меті і завданням дослідження.

Повнота викладених наукових положень та висновків

Матеріали дисертації опубліковано у 14 наукових працях, у тому числі 5 статей у наукових виданнях України (серед них 3 реферовано в наукометричній базі Scopus), 1 патент України, 8 тез доповідей у збірниках праць міжнародних науково-технічних конференцій.

Аналіз публікацій дозволяє зробити висновок, що основні результати дисертації знайшли повне відображення в наукових виданнях.

Автореферат у повній мірі відбиває основні положення та отриманні автором результати досліджень.

Загальний висновок

Дисертаційна робота Непокупної Тетяни Анатоліївни «Технологія виробництва комбінованих детекторів іонізуючого випромінювання» є науковим дослідженням, в якому вирішується важлива науково-технічна проблема. Дисертація відповідає вимогам пп. 9, 11, 12 «Порядку присудження наукових ступенів», затвердженого постановою Кабінету Міністрів України від 24 липня 2013 року № 567, щодо кандидатських дисертацій. На основі розглянутих матеріалів вважаю, що автор дисертаційної роботи, Непокупна Тетяна Анатоліївна, заслуговує присудження їй наукового ступеня кандидата технічних наук за спеціальністю 05.27.06 – технологія, обладнання та виробництво електронної техніки.

Офіційний опонент,

Доктор технічних наук, професор,

Перший заступник Генерального директора –

головний конструктор

ТОВ «Науково-виробниче підприємство «ЛТУ»



В.М. Борщов

Підпис Борщова В.М. засвідчую:

Генеральний директор

ТОВ «Науково-виробниче підприємство «ЛТУ»



Г.І. Нікітський