Інститут сцинтиляційних матеріалів Національна академія наук України

Харківський національний університет радіоелектроніки Міністерство освіти і науки України

Кваліфікаційна наукова праця на правах рукопису

Непокупна Тетяна Анатоліївна

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

### **ДИСЕРТАЦІЯ**

### ТЕХНОЛОГІЯ ВИРОБНИЦТВА КОМБІНОВАНИХ ДЕТЕКТОРІВ ІОНІЗУЮЧОГО ВИПРОМІНЮВАННЯ

05.27.06 – технологія, обладнання та виробництво

електронної техніки технічні науки

Подається на здобуття наукового ступеня кандидата технічних наук

Дисертація містить результати власних досліджень. Використання ідей, результатів і текстів інших авторів мають посилання на відповідне джерело \_\_\_\_\_\_\_ Т.А. Непокупна

Науковий керівник: Бояринцев Андрій Юрійович, доктор технічних наук

Харків – 2021

#### АНОТАЦІЯ

*Непокупна Т.А.* Технологія виробництва комбінованих детекторів іонізуючого випромінювання. – 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 підвищення чутливості реєстрації сцинтиляційних детекторів альфа-, бета-частинок і фотонів гаммавипромінювання, а також просторового розділення детекторів для реєстрації фотонів низькоенергетичних рентгенівських квантів (для візуалізації об'єктів) шляхом розроблення технології виробництва комбінованих детекторів великої площі на основі органічних та неорганічних матеріалів.

Складовими частинами розроблених комбінованих детекторів є сцинтиляційний сендвіч, відбивач світла, захисний корпус і фотоприймач. Сцинтиляційний сендвіч складається з неорганічного сцинтиляційного шару й органічного або неорганічного світлопровідного шару, які оптично з'єднані між собою за допомогою оптичного клею. Світлопровідний шар також може містити люмінесцентні домішки та додатково реєструвати радіонукліди.

В дисертаційній роботі запропоновано технологічні процеси виробництва складових елементів комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гаммавипромінювання з площею вхідної поверхні від 1000 см<sup>2</sup> на основі матеріалів, що відрізняються за лінійними коефіцієнтами теплового розширення у 4,5 – 7 разів для роботи при температурах від -50<sup>°</sup>C до +70<sup>°</sup>C. Визначено загальні умови, які мінімізують дотичні напруження в шарі оптичного полісилоксанового клею, що з'єднує шари сцинтиляційного сендвічу на основі сцинтиляційного полістиролу (ПС) та йодиду натрію, активованого талієм (NaI:Tl) при температурах від -50<sup>°</sup>C до +70<sup>°</sup>C: максимальний лінійний розмір пластин NaI:Tl складає до 350 мм, між

пластинами NaI:Tl є технологічний зазор шириною 1 – 2 мм, товщина шару оптичного клею дорівнює 0,3 – 0,5 мм, для з'єднання шарів сендвіча необхідно використовувати полісилоксановий клей із структурою гелю, що полімеризується за реакцією гідросилірування.

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

Встановлено оптимальні умови збирання світла в композиційних сцинтиляційних шарах комбінованих детекторів залежно від їхньої товщини та показників заломлення гранул і прозорої основи, що підтверджено математичним моделюванням та експрементальними даними. В композиційних шарах товщиною до 100 мкм з гранул розміром 5 – 15 мкм коефіцієнти збирання світла вище, якщо показники заломлення гранул та прозорої основи максимально близькі, що забезпечує високу прозорість композиційного шару. Для композиційних шарів товщиною від 1 мм та вище з гранул розміром 100 – 500 мкм коефіцієнт збирання світла підвищується на 17%, якщо показник заломлення прозорої основи на 30% нижче, ніж у гранул. Даний ефект пояснюється дифузним відбиванням світла у віддаленій від фотоприймача частині композиційного шару, в результаті чого у шарі покращуються умови збирання світла.

Удосконалено технологічний процес обробки поверхні сцинтиляційних гранул йодиду цезію, активованого талієм (CsI:Tl), для виготовлення комбінованих детекторів, що реєструють фотони гамма- та низькоенергетичних рентгенівських квантів. Розроблено процес хімічного полірування поверхні кристалічних гранул CsI:Tl етиленгліколем, що забезпечує підвищення у 2,5 – 3 рази прозорості композиційних сцинтиляційних шарів CsI:Tl товщиною 1 мм з гранул розміром 63 – 300 мкм і збільшує світловий вихід композиційних шарів на 20 – 30% під час опромінення гамма-радіонуклідами з енергією 17 – 59,6 кеВ.

Розроблено технологічні операції процессу отримання гранул галій гадолінієвого гранату, активованого церієм (GAGG:Ce) методом твердофазного

синтезу для комбінованих детекторів, що реєструють низькоенергетичні фотони рентгенівських квантів. Встановлено, що концентрація активатора церію 0,12 ат.% забезпечує найбільшу інтенсивність люмінесценції гранул GAGG:Се.

Математичне моделювання умов збирання світла в комбінованому детекторі на основі кристалів NaI:Tl та сцинтиляційного полістиролу (NaI:Tl -ПС) дозволило оцінити перспективу об'єднання сцинтиляторів NaI:Tl та ПС в одному комбінованому детекторі для радіаційних портальних моніторів. У ході симуляцій враховано фізичні параметри матеріалів детектора, довжину пробігу фотонів, види обробки поверхні та форму поверхні сцинтиляторів. У результаті отримано загальні спектри амплітуд імпульсів комбінованого детектора і складові спектра від NaI:Tl, ПС та одночасно від NaI:Tl з ПС під час опромінення гаммаджерелами. Встановлено, що відносна ефективність реєстрації фотонів гаммаквантів з енергією 20 – 150 кеВ комбінованим детектором на основі NaI:Tl і ПС у 2 рази вище, ніж у NaI:Tl та у 4 рази вище, ніж у ПС. Це пояснюється тим, що під дією радіації в шарі ПС виникають гамма-кванти зворотного розсіювання у', які потім реєструються в шарі NaI:Tl, в результаті чого в амплітудному спектрі комбінованого детектора з'являється додатковий пік. Відповідно до розрахункових даних, кількість таких подій дорівнює ~ 20%. Відносна ефективність реєстрації комбінованих детекторів підвищується, якщо шар NaI:Tl розташований зі сторони вхідної поверхні.

В роботі розроблено технологічний процес виробництва спектрометричних та лічильних комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гаммавипромінювання з площею вхідної поверхні від 1000 см<sup>2</sup> на основі кристалів NaI:Tl, з'єднаних зі сцинтиляційним полістролом. Енергетичне розділення комбінованих детекторів не перевищує 8,5% під час опромінення колімованим джерелом <sup>137</sup>Cs ( $E_{\gamma} = 662$  кеВ). Чутливість реєстрації фотонів гамма-квантів на 30% – 67% більше, ніж у детектора NaI:Tl ( $E_{\gamma} = 33$  кеВ – 2600 кеВ).

В роботі удосконалено технологічні операції виготовлення лічильних комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання з площею вхідної поверхні від 1000 см<sup>2</sup> на основі композиційного сцинтилятора CsI:Tl,

оптично з'єднаного з пластиною сцинтиляційного полістиролу (CsI:Tl – ПC). Детектори мають чутливість реєстрації фотонів гамма-квантів на 22% більше під час опромінення джерелом <sup>137</sup>Cs та на 78% більше під час опромінення джерелом <sup>241</sup>Am, порівняно з детектором на основі сцинтиляційного полістиролу.

Удосконалено та впроваджено у виробництво технологічний процес виготовлення спектрометричних комбінованих детекторів альфа- та бетачастинок з площею вхідної поверхні до 180 см<sup>2</sup> на основі гетерогенного шару з селеніду цинку, активованого алюмінієм (ZnSe:Al), оптично з'єднаного зі світлопровідним з поліметилметакрилату (ПММА). Максимальна шаром чутливість реєстрації альфа-частинок детектором забезпечується за рахунок альфачутливого підшару товщиною 0,1 мм з гранул ZnSe:Al розміром 40 – 63 мкм та водорозчинного акрилатного лаку. Для виготовлення бета-чутливого підшару використаний композитний сцинтилятор ZnSe:Al товщиною 0,7 мм з гранул розміром 100 – 140 мкм, що пропускає не менш ніж 11% світла та забезпечує відносну ефективність реєстрації бета-частинок ~ 30%. Чутливість реєстрації альфа- та бета-частинок детекторів складає 0,32 імп/с. Бк та 0,34 імп/с. Бк під час опромінення джерелами <sup>239</sup>Ри та <sup>90</sup>Sr-<sup>90</sup>Y, відповідно. Це на 26% та 14% більше, ніж у детектора на основі сульфіду цинку, активованого сріблом (ZnS:Ag) та ПС.

У роботі удосконалено технологічні операції виготовлення комбінованих детекторів для реєстрації фотонів низькоенергетичних рентгенівських квантів (для візуалізації об'єктів) з площею вхідної поверхні до 400 см<sup>2</sup> на основі сцинтиляційного шару товщиною 0,1 мм з гранул GAGG:Се або CsI:Tl розміром 1 – 15 мкм, який з'єднаний з волоконно-оптичною пластиною. Просторове розділення детекторів GAGG:Се складає 5 пар ліній/мм, що на 25% вище, ніж у плоскопанельних детекторів з матрицею на тонкоплівкових транзисторах, виготовлених на основі кераміки з оксисульфіду гадолінію, активованого тербієм (Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb) або колончатих структур CsI:Tl.

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

#### SUMMARY

*Nepokupnaya T.A.* Technology of production of combined detectors of ionizing radiation. – 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 and applied problem of increasing of sensitivity of detectors of alpha-, beta- particles and gamma photons, as well as increasing of spatial resolution of low energy X-ray detectors (for objects visualizing) was solved in the work by developing of technological processes of manufacturing of large area combined detectors based on organic and inorganic materials.

The developed combined detectors consist of scintillation sandwich, reflector, protective housing and photodetector. Scintillation sandwich was based on inorganic scintillation layer that optically coupled with organic or inorganic light guide layer by optical glue. The material of light guide layer can contain the luminescent dopants for additional registration of radiation.

The technological process of production of elements of gamma combined detectors with size of input window from 1000 cm<sup>2</sup> for operation in the temperature range from  $-50^{\circ}$ C to  $+ 70^{\circ}$ C was developed. Combined detectors were based on materials which differ of coefficients of linear thermal expansion by 4.5 - 7 times. The conditions that minimized the tangential stresses in polysiloxane glue layer, coupled the layers of scintillation sandwich based on scintillation polystyrene (PS) and sodium iodide doped with thallium (NaI:TI), were determined: maximal linear dimension of NaI:TI crystal plates must be up to 350 mm, there was the technological gap with width of 1 -2 mm between NaI:TI crystal plates, the thickness of optical glue was 0.3 - 0.5 mm, polysiloxane gel which polymerizes by the hydrosilylation reaction must be used as an optical glue.

For manifacturing of combined detector with large area of input window, the scintillation layer must be produced in mosaic design from several crystal plates or as composite layer from granules and optically transparent base.

The optimal light collection conditions in composite layers of combined detectors depending of composite thickness and refractive indices of granuless and optically transparent base were determined and confirmed by simulation results and by experimental data. The light collection coefficients in composite layers with thickness up to 100 mkm based on 5 - 15 mkm granuless were increased when refractive indices of granuless and transparent base were maximal similar. In this case transparency of composite layer was high. The light collection coefficients in composite layers with thickness from 1 mm based on 100-500 mkm granuless increased on 17%, when refractive index of transparent base 30% was lower than that of granules. The improving of light collection was due to the diffuse reflection of light in part of composite layer that removed from photodetector.

The technological process of surface treatment of scintillation granules of cesium iodide, doped with thallium (CsI:Tl), for production of combined gamma detectors and combined low energy X-ray detectors was improved. The technique of chemical polishing of CsI:Tl granules surface by ethylene glycol was developed. It provided the increasing the light output up to 20 - 30% for 1 mm thick composite layers based on 63 - 300 mkm granules under gamma sources with energy of 17 - 59.6 keV irradiation.

The technological operations of process of solid-phase synthesis of granules of gallium gadolinium garnet, doped with cerium, (GAGG:Ce) for production of combined low energy X-ray detectors were developed. The optimum cerium concentration was 0.12 at.% and it provided the maximum luminescence intensity of GAGG:Ce granules.

The results of mathematical simulation of scintillation processes in combined gamma detectors, based on NaI:Tl crystal plates and scintillation polystyrene, allowed to estimate the perspective of using NaI:Tl and scintillation polystyrene simultaneous in one combined detector for radiation portal monitors. The physical properties of materials, photon path length, types of surface treatment and shape of scintillators were taken into account during simulation. The sum amplitude spectra for combined detector and the separated amplitude spectra for NaI:Tl, for PS and simultaneous for NaI:Tl and PS were obtained under gamma irradiation. It was shown that relative registration efficiency of combined detector based on NaI:Tl and PS was 2 times higher than that of NaI:Tl and it was 4 times higher that of PS when registrate the photons of gamma quanta with energy 20 – 150 keV. Such improved registration efficiency of combined detector was due to appearance of backscattering gamma quanta  $\gamma'$  in the PS layer, which then registered in the NaI:Tl layer. As the result, additional peak appeared in the amplitude spectra. According to calculated data, the number of such events in the combined detector was about 20% of total. It was shown that relative registration efficiency increased when NaI:Tl layer was situated on side of input window

The technological process of production of spectrometric gamma radiation combined detectors with size of input window from 1000 cm<sup>2</sup> based on NaI:Tl crystal plates and scintillation polysteryne was developed. The energy resolution of detectors was 8.5% when irradiated by collimated <sup>137</sup>Cs source (E $\gamma$  = 662 keV). The sensitivity of gamma combined detectors was 30% – 67% higher than that of NaI:Tl detector (E $\gamma$  = 33 keV – 2600 keV).

The technological operations of production of counting gamma combined detectors with size of input window from 1000 cm<sup>2</sup> based on CsI:Tl composite scintillator and scintillation polysteryne were improved. The sensitivity of gamma combined detectors was 22% higher under <sup>137</sup>Cs irradiation and 78% higher under <sup>240</sup>Am irradiation than that of scintillation polysteryne detector.

The technological process of production of alpha-beta spectrometric combined detectors with size of input window up to 180 cm<sup>2</sup> based on ZnSe:Al heterogeneous layers and PMMA light guide layer was imrpoved and implemented. The maximal sensitivity of alpha particles was when combined detector consisted of 0.1 mm thick alpha-sensitive sublayer based on 40 – 63 mkm grains and water-soluble aqrylic laque as a binder. ZnSe:Al composite scintillator made of 100 – 140  $\mu$ m granules and with thickness of 0.7 mm was used for manufacturing of beta-sensitive sublayer with transparency up to 11% and efficiency up to 30%. It was found that the sensitivity of

developed alpha-beta combined detector was 26% and 14% higher than that of detector based on ZnS:Ag and plastic scintillator.

Technological operations of production of low energy X-ray combined detectors (for objects visualizing) with size of input window up to 400 cm<sup>2</sup> were improved. Combined detectors based on 0.1 mm thick composite scintillator made of 1 - 15 mkm GAGG:Ce granules obtained by solid-phase synthesis or made of 1 - 15 mkm CsI:Tl crystal granules which was coupled with fiber-optic plate were developed. The spatial resolution of GAGG:Ce combined detectors were 5 lp/mm. It was 25% higher than that of X-ray flat panel detectors with a Thin – Film Transistor array based on CsI:Tl columnar structures or Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb scintillation ceramics.

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

### СПИСОК ПУБЛІКАЦІЙ ЗДОБУВАЧА

1. Nepokupnaya T.A., Ananenko A.A., Boyarintsev A.Yu., Bobovnikov A.A., Gektin A.V., Kovalchuk S.N., Onufriyev Yu.D., Pedash V.Yu. Large area detector of low-energy gamma radiation. *Functional Materials*, 2017. Vol. 24. No. 4. P. 678 – 681.

2. Boyarintsev A.Yu., Nepokupnaya T.A., Onyfriyev Yu.D., Tarasov V.A. Composite scintillator. *Springer Proceedings in Physics*, 2017. Vol. 200. P. 167 – 194.

3. Gerasymov I., Nepokupnaya T., Boyarintsev A., Opolonin O., Tretyak S. GAGG:Ce composite scintillators for X-ray imaging. *Optical Materials*. 2020. Vol. 109. P. 110305 – 110312.

4. Непокупна Т.А., Бояринцев А.Ю., Галкін С.М., Сібілєва Т.Г., Онуфрієв Ю.Д., Колесніков О.В. Сучасна інженерія детекторів альфа- та бетавипромінювання. *Радиоэлектроника и информатика*. 2020. Т.91. № 4. С.4 – 10.

5. Непокупна Т.А., Колесніков О.В., Бояринцев А.Ю., Тарасов В.О., Тавровський І.І. Особливості реєстрації гамма-випромінювання комбінованими сцинтиляційними детекторами. *Радиоэлектроника и информатика*. 2020. Т. 90. № 3. С. 4 – 9.

6. Комбінований детектор гамма-випромінення: пат. 126169 Україна. №u20171289; заявл. 26.12.2017; опубл. 11.06.2018; Бюл. № 11.

7. Ananenko A., Boyarintsev A., Bobovnikov A., Gektin A., Kovalchuk S., Nepokupnaya T., Onufriyev Yu., Pedash V. Combined detectors for registration of lowenergy γ-radiation: матеріали *The Fifth International Conference on Engineering of scintillation materials and radiation technologies ISMART 2016* (Minsk, 2016). Minsk, 2016. P. 16.

8. Boyarintsev A., Bobovnikov A., Gektin A., Gerasimov Ya., Kovalchuk S., Nepokupnaya T., Onufriyev Yu., Tarasov V., Composite scintillators for neutron and X-ray detection: матеріали 2016 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (Strasbourg, 2016). Strasbourg, 2016. P. 29.

9. Gerasymov Ia., Nepokupnaya T., Boyarintsev A., Sidletskiy O., Kurtsev D., Voloshyna O., Onufriyev Yu., Grynko T., Trubaeva O., Pedash V. Materials based on

oxide compounds for composite scintillators: матеріали International Conference on Oxide Materials for Electronic Engineering – fabrication, properties and application OMEE-2017 (Lviv, 2017.). Lviv, 2017. P. 132.

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

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

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

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

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

## **3MICT**

| Вступ  | 15   |
|--|------|
| Розділ 1. Літературний огляд. Сцинтиляційні детектори іонізуючого        |      |
| випромінювання великої площі та їхнє застосування                        | 23   |
| 1.1 Вимоги до сучасних детекторів, що реєструють малі потоки іонізуючого |      |
| випромінювання   | 23   |
| 1.2 Детектори фотонів гамма-випромінювання для радіаційних портальних    |      |
| моніторів  | 25   |
| 1.3 Детектори альфа- та бета частинок                                    | 29   |
| 1.4 Детектори для реєстрації фотонів низькоенергетичних рентгенівських   |      |
| квантів (для візуалізації об'єктів)                                      | 34   |
| 1.5. Висновки до розділу 1   | 38   |
| Розділ 2. Технологія виробництва складових елементів комбінованих        |      |
| детекторів іонізуючого випромінювання великої площі для роботи при       |      |
| температурах -50°С – +70°С   | 40   |
| 2.1 Розроблення технологічного забезпечення з'єднання елементів          |      |
| комбінованих детекторів великої площі для реєстрації фотонів гама-       |      |
| випромінювання при температурах від -50°C до +70°C                       | . 42 |
| 2.2 Розроблення технологічного забезпечення виготовлення композиційних   | X    |
| сцинтиляційних шарів комбінованих детекторів                             | 51   |
| 2.3 Розроблення технологічних процесів отримання сцинтиляційних          |      |
| гранул для виготовлення композиційних сцинтиляційних шарів               | 60   |
| 2.3.1 Технологічні операції процесу хімічного полірування поверхні       |      |
| кристалічних гранул CsI:Tl   | 61   |
| 2.3.2 Дослідження характеристик композиційних шарів CsI:Tl               | 63   |
| 2.3.3 Технологічні операції процесу отримання гранул GAGG:Се             |      |
| методом твердофазного синтезу  | 65   |
| 2.3.4 Дослідження характеристик композиційних шарів GAGG:Ce              | 69   |
| 2.4 Висновки до розділу 2  | 72   |
|  |      |

| 3.1 Оптимізація розташування шарів NaI:Tl і сцинтиляційного полістирола     |
|---|
| в сендвічі комбінованого детектора 74                                       |
| 3.2 Математичне моделювання умов збирання світла в комбінованому            |
| детекторі на основі NaI:Tl і сцинтиляційного полістирола 79                 |
| 3.3 Розроблення технологічних процесів виготовлення лічильних та            |
| спектрометричних комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-      |
| квантів на основі CsI:Tl і сцинтиляційного полістирола та NaI:Tl і          |
| сцинтиляційного полістирола 83  |
| 3.4 Дослідження сцинтиляційних характеристик лічильних та                   |
| спектрометричних комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-      |
| випромінювання на основі CsI:Tl і сцинтиляційного полістиролу та NaI:Tl     |
| і сцинтиляційного полістирола 87  |
| 3.5 Температурні випробування лічильних та спектрометричних                 |
| комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-квантів на основі      |
| CsI:Tl і сцинтиляційного полістирола та NaI:Tl і сцинтиляційного            |
| полістирола 100   |
| 3.6 Висновки до розділу 3 101   |
| Розділ 4. Технологія виготовлення спектрометричних комбінованих детекторів  |
| альфа- та бета- частинок великої площі 102                                  |
| 4.1 Розроблення технологічного процесу виготовлення гетерогенного           |
| шару ZnSe:Al 102  |
| 4.1.1 Розроблення складу альфа-чутливого підшару ZnSe:Al 104                |
| 4.1.2 Розроблення складу бета-чутливого підшару ZnSe:Al 110                 |
| 4.2 Розроблення технологічних процесів виготовлення спектрометричних        |
| комбінованих детекторів альфа- та бета-частинок на основі гетерогенного     |
| шару ZnSe:Al 114  |
| <ul> <li>4.1.2 Розроблення складу бега-чутливого підшару 2пSe: АГ</li></ul> |

| 4.3 Дослідження сцинтиляційних характеристик спектрометричних           |
|---|
| комбінованих детекторів альфа- та бета-частинок на основі гетерогенного |
| шару ZnSe:Al 115  |
| 4.4 Температурні випробування спектрометричних комбінованих детекторів  |
| альфа- та бета-частинок на основі гетерогенного шару ZnSe:Al 120        |
| 4.5 Висновки до розділу 4 121   |

Розділ 5. Технологія виготовлення комбінованих детекторів для реєстрації фотонів рентгенівського випромінювання (для візуалізації об'єктів) ...... 122

5.1 Особливості виготовлення комбінованих детекторів для рентгенівської візуалізації на основі гранул GAGG:Се або CsI:Tl ...... 122

 5.3 Розроблення технологічних етапів виготовлення комбінованих

 детекторів для рентгенівської візуалізації на основі гранул GAGG:Ce або

 CsI:Tl
 131

 5.4 Дослідження сцинтиляційних характеристик комбінованих детекторів

 для для рентгенівської візуалізації на основі гранул GAGG:Ce або CsI:Tl.. 136

 5.5 Температурні випробування сцинтиляційних сендвічей комбінованих

 детекторів для рентгенівської візуалізації основі гранул GAGG:Ce або

 CsI:Tl
 138

 5.6 Висновки до розділу 5
 140

 Висновки.
 141

| Перелік джерел посилання  | 144 |
|---|-----|
| Додаток А. Список опублікованих праць за темою дисертаційної роботи | 156 |
| Додаток Б. Акти впровадження  | 158 |
| Додаток В. Акти використання  | 159 |

#### ВСТУП

На сьогоднішній день для реєстрації надмалих потоків іонізуючого випромінювання використовують сцинтиляційні та напівпровідникові детектори, що мають велику площу активної поверхні. Для збільшення чутливості реєстрації радіонуклідів особу увагу приділяють конструкції детекторів та технології їхнього виготовлення. Наприклад, одним з технологічних рішень є використання великогабаритних мультидетекторних систем, які складаються з декількох окремих детектуючих елементів. Але, виготовлення подібних пристроїв пов'язане з певними технологічними складнощами, оскільки габаритні розміри таких детекторів обмежені типом конструкції та умовами збирання світла в детекторі. Іншим вирішенням є використання багатошарових детекторів, які складаються з різних сцинтиляційних матеріалів для селективної реєстрації певного типу іонізуючого випромінювання (альфа, бета, гамма тощо).

До основних вимог, яким мають відповідати детектори, що реєструють дуже малі потоки іонізуючого випромінювання, належать висока чутливість реєстрації іонізуючого випромінювання, велика площина вхідної детектуючої поверхні та стабільність функціональних параметрів (чутливість, просторове розділення) в ході експлуатації детекторів в інтервалі температур від  $-50^{\circ}$ C до  $+70^{\circ}$ C.

Поряд з мультидетекторними системами та багатошаровими детекторами задовольнити зазначені вимоги можуть комбіновані детектори великої площі, які складаються з оптично з'єднаних неорганічного сцинтиляційного та органічного або неорганічного світлопровідного шарів. Світлопровідний шар також може містити люмінесцентні домішки та додатково реєструвати радіонукліди: тобто, залежно від хімічного складу шарів, комбінований детектор може реєструвати один або декілька типів іонізуючого випромінювання.

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

Аналіз сучасних приладів радіаційного контролю показав, що зараз необхідні детектори для радіаційних портальних моніторів, які реєструють надмалі дози фотонів гамма-випромінювання та мають чутливість реєстрації випромінювання вище, ніж у розповсюджених детекторів з кристалічного NaI:Tl детекторів основі пластмасових сцинтлияторів. або на Залишаються затребуваними ефективні детектори реєстрації альфабетадля та випромінювання, що є особливо небезпечними для людей через високу проникаючу та іонізуючу здатність. Для виготовлення детекторів альфа- та бетачастинок найчастіше використовують дрібнодисперсний фосфор ZnS:Ag, недоліками якого є енергетичне розділення більше 40% через значну реабсорбцію власного сцинтиляційного сигналу та висока фосфоресценція. Також у цей час необхідні плоскопанельні детектори великої площі для медичної цифрової рентгенографії з просторовим розділенням від 3,5 пар ліній/мм, які складаються з тонкошарового сцинтиляційного екрана, волоконно-оптичної пластини та фоточутливої матриці. Для виготовлення сцинтиляційних екранів детекторів затребувані малокоштовні сцинтиляційні порошки з високим світловим виходом та низьким післясвітінням замість колончатих структур CsI:Tl або кераміки на основі Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb.

Таким чином, розроблення технології виробництва комбінованих сцинтиляційних детекторів з високою чутливістю реєстрації іонізуючого випромінювання різних типів є актуальним завданням.

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами. Робота виконувалась відповідно до тематичних планів науково-дослідних робіт Інституту сцинтиляційних матеріалів НАН України в рамках держбюджетних тем «Розробка методів отримання композитних сцинтиляторів» (2017 – 2021 рр., номер держреєстрації № 0117U000988), науково-дослідного проекту «Нові сцинтиляційні композиційні детектори для медичної рентгенівської діагностики» (договір № Ф79/125-2017, договір № Ф-79/57-2018, 2017 – 2018 рр., номер

держреєстрації № 0118U001505), інноваційного проекту НАН України «Розроблення детекторів для реєстрації альфа- та альфа-, бета-випромінювань» (2020 р., номер держреєстрації № 012U100629).

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

Для досягнення поставленої мети було необхідно вирішити такі задачі:

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

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

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

- удосконалити технологічні операції виготовлення спектрометричних комбінованих детекторів альфа- та бета- частинок великої площі на основі неорганічного гетерогенного сцинтиляційного шару, оптично з'єднаного зі світлопровідним органічним шаром, що забезпечить роздільну реєстрацію альфа-

та бета- частинок та підвищення чутливості реєстрації порівняно з детекторами на основі ZnS:Ag та пластмасового сцинтилятора;

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

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

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

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

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

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

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

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

3. Вперше розроблено технологічний процес виробництва спектрометричних комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гаммавипромінювання з площею вхідної поверхні від 1000 мм<sup>2</sup> 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 <sup>137</sup>Cs не перевищує 8,5% ( $E_{\gamma}$ =662 кеВ).

4. Удосконалено технологічний процес виготовлення комбінованих детекторів альфа- та бета-частинок з площею вхідної поверхні до 180 см<sup>2</sup> на основі гетерогенних шарів ZnSe:Al, який забезпечує спектрометрію та чутливість реєстрації альфа-частинок від джерела <sup>239</sup>Pu на 26% більше та чутливість реєстрації бета-частинок від джерела <sup>90</sup>Sr-<sup>90</sup>Y на 14% більше, ніж у детектора 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<sup>2</sup> 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 тонко-плівкових транзисторах, виготовлених основі екранів CsI:Tl або  $Gd_2O_2S$ :Tb.

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

– розроблено лічильні комбіновані детектори для реєстрації фотонів гаммавипромінювання з площею вхідної поверхні від 1000 см<sup>2</sup>, що складаються зі 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 вхідної поверхні та еквівалентним об'ємом сцинтилятора (підтверджено патентом на корисну модель України 126169);

– розроблено лічильні комбіновані детектори для реєстрації фотонів гаммавипромінювання з площею вхідної поверхні від 1000 см<sup>2</sup> 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 вхідної поверхні від 1000 см<sup>2</sup>, які складаються з оптично з'єднаних шарів з монокристалічних пластин NaI:Tl та сцинтиляційного полістиролу, що мають енергетичне розділення від колімованого джерела <sup>137</sup>Cs менше, ніж 8,5% (Е $\gamma$ = 662 кеВ);

– розроблено спектрометричні комбіновані детектори з роздільною реєстрацією альфа- та бета-частинок з площею вхідної поверхні до 180 см<sup>2</sup>, що мають чутливість реєстрації вище, ніж у детекторів на основі ZnS:Ag та

пластмасового сцинтлиятора. 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 «НВПП 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 фотонів низькоенергетичного рентгенівського випромінювання (для візуалізації об'єктів) з площею вхідної поверхні до 400 см<sup>2</sup> на основі композиційних сцинтиляторів GAGG:Се з гранул, отриманих твердофазним синтезом, що мають просторове розділення вище, ніж у плоскопанельних детекторів з матрицею на тонкоплівкових транзисторах, виготовлених на основі сцинтиляційних екранів CsI:Tl або  $Gd_2O_2S$ :Tb.

Особистий внесок здобувача. Основні наукові результати, наведені у дисертаційній роботі, отримані здобувачем самостійно. У публікаціях, написаних у співавторстві, особистий внесок здобувача такий: [1, 2, 5 – 7] – вдосконалення технологічних операцій процесу виробництва лічильних великогабаритних комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання на основі композиційних сцинтиляторів CsI:Tl та сцинтиляційного полістиролу, методики хімічного полірування поверхні гранул CsI:Tl, вдосконалення досліджено сцинтиляційні характеристики розроблених детекторів; [5, 14] розроблення технологічного виробництва процесу спектрометричних фотонів гаммакомбінованих детекторів великої площі для реєстрації випромінювання на основі монокристалічних пластин NaI:Tl та сцинтиляційного

полістиролу, дослідження сцинтиляційних характеристик розроблених детекторів; 12. [4, 131 удосконалення технологічного процесу виробництва спектрометричних комбінованих детекторів великої площі для роздільної реєстрації альфа- та бета- частинок на основі гетерогенних шарів ZnSe:Al, дослідження сцинтиляційних характеристик розроблених детекторів; [3, 9 – 11] – здобувачем удосконалено технологічні операції виробництва комбінованих фотонів детекторів реєстрації низькоенергетичного рентгенівського для випромінювання (для візуалізації об'єктів) на основі тонкошарових композиційних сцинтиляторів з монокристалічних гранул CsI:Tl або гранул GAGG:Се, отриманих твердофазним синтезом, визначено оптимальний склад та режими твердофазного синтезу сцинтиляційних гранул GAGG:Се, досліджено параметри розроблених детекторів. У всіх роботах автор брала участь в обробці та обговоренні отриманих результатів, підготовці та написанні статей.

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

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

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

#### РОЗДІЛ 1

# ЛІТЕРАТУРНИЙ ОГЛЯД СЦИНТИЛЯЦІЙНІ ДЕТЕКТОРИ ІОНІЗУЮЧОГО ВИПРОМІНЮВАННЯ ВЕЛИКОЇ ПЛОЩІ ТА ЇХНЄ ЗАСТОСУВАННЯ

## 1.1 Вимоги до сучасних детекторів, що реєструють малі потоки іонізуючого випромінювання

На цей час для реєстрації надмалих потоків радіаційного випромінювання використовують сцинтиляційні та напівпровідникові детектори, що мають велику площу активної поверхні. Для збільшення чутливості реєстрації іонізуючого випромінювання особливу увагу приділяють конструкції детекторів і технології їхнього виробництва. Наприклад, одним з технічних рішень є використання великогабаритних мультидетекторних систем, що складаються з великої кількості окремих детектуючих елементів [1 – 5]. Але виготовлення приладів даного типу пов'язане з певними технологічними обмеженнями, пов'язаними з габаритними розмірами детекторів та умовами збирання світла. Іншим вирішенням є використання багатошарових детекторів [6 – 13], які складаються з різних сцинтиляційних матеріалів селективної реєстрації певного для типу випромінювання (альфа, бета, гамма тощо). Для ідентифікації радіоактивних ізотопів найчастіше використовують метод розділення сцинтиляційного сигналу від джерел різних типів за формою імпульсу.

До детекторів, що реєструють дуже малі потоки іонізуючого випромінювання, висувають такі вимоги:

висока чутливість реєстрації іонізуючого випромінювання;

- велика площа вхідної детектуючої поверхні;

- стабільність сцинтиляційних параметрів під час експлуатації в інтервалі температур -50°С – +70°С.

Поряд з мультидетекторними системами та багатошаровими детекторами задовольнити дані вимоги можуть комбіновані детектори великої площі, які з'єднаних неорганічного сцинтиляційного складаються 3 оптично та світлопровідного органічного або неорганічного шарів. Також світлопровідний містити люмінесцентні домішки та додатково шар може реєструвати радіонукліди. Тобто, залежно від хімічного складу шарів, комбінований детектор може реєструвати один або декілька типів випромінювання.

Огляд літературних джерел за останні роки показав, що для реєстрації надмалих доз фотонів гамма-випромінювання зараз необхідні високоефективні детектори для радіаційних портальних моніторів з чутливістю реєстрації випромінювання вище, ніж у класичних детекторів з кристалічного NaI:Tl, або детекторів на основі пластмасових сцинтиляторів.

Залишаються затребуваними ефективні детектори для реєстрації альфа- та бета-випромінювання. Дані частинки є особливо небезпечними для людей через їхню високу проникаючу та іонізуючу здатність. Найбільш розповсюдженим дрібнодисперсним люмінофором, що використовується для виготовлення детекторів альфа- та бета-частинок є ZnS:Ag, недоліками якого є енергетичне розділення більше 40% через значну реабсорбцію власного сцинтиляційного сигналу та висока фосфоресценція. Для визначення бета-радіонуклідів широко застосовується сцинтиляційна пластмаса, зокрема полістирол або полівінлтолуол з люмінесцентними домішками

Також у цей час необхідні плоскопанельні детектори великої площі для медичної цифрової рентгенографії з високим просторовим розділенням, що складаються з тонкошарового сцинтиляційного екрана, волоконно-оптичної пластини та фоточутливої матриці. Для виготовлення екранів затребувані мало-коштовні сцинтиляційні порошки з високим світловим виходом та низьким післясвітінням замість колончатих структур CsI:Tl та кераміки Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb.

1.2 Детектори фотонів гамма-випромінювання для радіаційних портальних моніторів

Для запобігання незаконного переміщення радіоактивних матеріалів людиною або транспортним засобом на контрольно-пропускних пунктах зараз використовують радіаційні портальні монітори, призначенні для вимірювання гамма- та нейтронного випромінювання [14]. Радіаційні портальні монітори – це детектуючі пристрої, які забезпечують пасивні або ненав'язливі засоби перевірки людей, транспортних засобів та інших об'єктів на наявність ядерних або радіоактивних матеріалів. Використання моніторів виключає необхідність в індивідуальному пошуку джерел забруднення за допомогою портативних моніторів.

Як гамма-канал у РПМ часто використовують великогабаритні пластини сцинтиляційного полівінілтолуолу або полістиролу [15 – 18]. Пластмасові сцинтилятори складаються з легких елементів водню та вуглецю, у яких гаммавипромінювання реєструється в основному за рахунок ефекту Компотна. В спектрах амплітуд імпульсів це проявляється у вигляді широких спектральних розподілів. Положення краю комптонівського розподілу в спектрі дозволяє оцінити енергію поглиненого гамма-випромінювання та ідентифікувати радіонуклід.

Для визначення гамма-радіонуклідів, що випромінюють транспортні засоби, пішоходи, а також відходи різного типу, використовують портальні монітори типу PORTIA [15]. Основною детектуючого приладу є пластмасовий сцинтилятор розміром 400х600х50 мм<sup>3</sup> з інтегрованим фотоелектронним помножувачем. Детектор ідентифікує гамма-джерела в діапазоні енергій від 60 кеВ до 3 МеВ. Чутливість реєстрації радіонуклідів складає: <sup>241</sup>Am – 35 кБк, <sup>137</sup>Cs – 36 кБк, <sup>60</sup>Co – 22 кБк. Зазначений портальний монітор для визначення джерел радіації працює в інтервалі температур від -20<sup>0</sup>C до +40<sup>0</sup>C.

Принципові особливості конструкції РПМ, а також системи збору та обробки даних, розглянуті в роботі [18]. Портальні монітори на основі ПС

забезпечують первинну діагностику об'єктів, що переміщуються, тобто визначають рівень присутності радіоактивного матеріалу. Подальша інспекція напівпровідникових сцинтиляційних виконується або за допомогою спектрометрів. Більшість проблем на первинному етапі обумовлено помилковими спрацьовуваннями порталів на підвищений рівень природних радіонуклідів у навколишньому середовищі. В роботі [19] запропонований алгоритмічний метод сигналізації, що може бути застосований до РМП на основі ПС. Метод дозволяє підвищити експлуатаційну чутливість до певних радіаційних джерел під час перевірки вантажу при цьому одночасно знижується рівень помилкового сигналу від матеріалів, що містять природні ізотопи.

Широке застосовування має серія радіаційних портальних моніторів РМ5000В виробництва компанії Полімастер [20]. Ці високочутливі стаціонарні системи призначені для забезпечення контролю за переміщенням радіоактивних матеріалів. Основою гамма-чутливих детекторів у складі моніторів є великогабаритна сцинтиляційна пластмаса. За рахунок цього детектори мають високу чутливість реєстрації фотонів гамма-випромінювання. Мінімальна детектуюча активність радіонуклідів для даних РПМ складає: <sup>241</sup>Am – 41 мкКи, <sup>57</sup>Co – 5,4 мкКи, <sup>133</sup>Ba – 2,7 мкКи, <sup>137</sup>Cs – 4,3 мкКи, <sup>60</sup>Co – 2,7 мкКи.

Відомим виробником РПМ також є компанія Bertin Instruments [21]. Для реєстрації гамма-випромінювання в енергетичному діапазоні від 30 кеВ до 5 МеВ у моніторах використовують детектори на основі сцинтиляційного полівінілтолуола з ефективним об'ємом 2,5 літри, 5 літрів та 25 літри. Детектори з'єднані з фотоприймачем великого діаметру та мають низький рівень шуму електроніки. Робочий інтервал температур, у якому працюють детектори, складає  $-20^{0}$ C –  $+50^{0}$ C.

Також РПМ виробляє компанія ThermoFisher Scientific [22]. Зокрема радіаційні монітори типу FHT 1388S використовують для контролю переміщення забруднених матеріалів, а також широко використовують в галузі виробництва та переробки сталі. Реєстрація гамма-випромінювання з енергією від 40 кеВ здійснюється за допомогою великогабаритних пластин пластмасових

сцинтиляторів. Температурний діапазон, у якому працюють радіаційні монітори, дорівнює  $-40^{\circ}C - +60^{\circ}C$ .

Відомі портальні монітори для транспортних засобів, що мають високу пропускну здатність, виробництва Arctis Radiation Detectors [23]. Основою детекторів є сцинтиляційний полівінілтолуол розміром  $300x1200x50 \text{ мм}^3$  (об'єм 18 літрів). Детектори забезпечують класифікацію та стан тривоги під час виявлення джерел забруднення, швидкість лічення від гамма-джерел, нейтронів та фону. Детектори мають високу чутливість до гамма-випромінювання в діапазоні енергій від 30 кеВ до приблизно 3 МеВ та забезпечують статичну ефективність і динамічну чутливість у всьому діапазоні детектування при температурах від - $30^{\circ}$ С до + $55^{\circ}$ С. Також дана компанія виробляє багатоцільові портативні РПМ типу Р2000 для сканування багажу, пішоходів та автомобілів [24].

Іншим сцинтиляційним матеріалом, затребуваним для РПМ є монокристали NaI:Tl, що мають високі спектрометричні властивості. Завдяки великій поглинальній здатності та можливості давати піки повного поглинання в амплітудних спектрах, детектори на основі NaI:Tl мають більше можливостей для визначення енергій та ідентифікації радіонуклідів, порівняно з ПС. Портальні монітори зі спектрометричними детекторами NaI:Tl широко розповсюджені в програмах радіаційної безпеки багатьох країн [17]. Необхідно зазначити, що РПМ з детекторами на основі NaI:Tl є менш розповсюджені, ніж РПМ на основі ПС через більш високу вартість та меншу площину детектуючої поверхні, адже виробництво великогабаритних монокристалічних детекторів є технологічно складним і вартісним процесом.

Серед РПМ на основі NaI:Tl можна виділити модель Arktis P-RPM-ID, яка призначена для виявлення радіологічних загроз, що транспортуються пішоходами [25]. Система має велику пропускну здатність при віддаленому керуванні та розташовується на входах у будівлі, перед лініями охорони та митними службами. Основою монітору є детектор NaI:Tl розміром 50x100x400 мм<sup>2</sup> (об'єм 2 літри) з інтегрованим швидким багатоканальним аналізатором та детектор нейтронів на основі гелію та <sup>6</sup>LiF з кремнієвим фотоприймачем. Система працює в інтервалі температур від 0<sup>°</sup>C до +40<sup>°</sup>C та має високу чутливість реєстрації радіонуклідів. Для промислових джерел вона складає: <sup>241</sup>Am – 1.74 МБк, <sup>60</sup>Co – 259 кБк, <sup>137</sup>Cs – 592 кБк. Чутливість медичних джерел дорівнює: <sup>131</sup>I – 851 кБк, <sup>99m</sup>Tc – 4.7 МБк, <sup>201</sup>Tl – 3.26 МБк. Чутливість природних радіоактивних матеріалів складає <sup>226</sup>Ra – 296 кБк, <sup>232</sup>Th – 518 кБк, <sup>40</sup>K – 4.74 МБк. Система ідентифікує ядерні матеріали, до яких має чутливість: DU – 2.5 кг, HEU – 237 г, WGPu – 15 г, <sup>252</sup>Cf 20000 н/с.

Копанія Rapiscan System має широкий модельний ряд приладів для одночасного детектування гамма- та нейтронного випромінювання від джерел, що приховані у великогабаритних вантажних та пасажирських транспортних засобах на пунктах в'їзду [26]. Залежно від моделі, основою РПМ є великогабаритні сцинтилятори на основі полівінілтолуолу та NaI:Tl. Детектування нейтронів відбувається за рахунок використання детектора на основі <sup>6</sup>Li та ZnS:Ag. Температура, за якої працюють системи, складає від від -20<sup>0</sup>C до +60<sup>0</sup>C.

Новий пристрій на основі позиційно-чутливих комбінованих детекторів, що складаються з двох оптично з'єднаних сцинтляторів NaI:Tl та ПС марки BC 400 з однаковими розмірами 50,8 х 50,8 мм, запропонований колективом дослідників у роботі [13]. Під час обробки результатів автори враховували висоту фотопіку від NaI:Tl та комптонівський максимум від пластикового сцинтилятора в амплітудних спектрах детектора від джерела <sup>137</sup>Cs. Розроблений детектор пропонується використовувати в радіаційних портальних моніторах та астрономічних дослідженнях, але його основним недоліком для використання в системах догляду великогабаритних об'єктів, що переміщуються, є мала площа детектуючої поверхні.

Аналіз сучасних сцинтиляційних детекторів для РПМ показав, що для дистанційного визначення радіонуклідів за їхнім нейтронним та гаммавипроміненням найчастіше використовують пластмасові сцинтилятори великих розмірів і великогабаритні монокристали NaI:Tl. Обидва матеріали мають високу здатність поглинати проникаюче гамма-випромінювання в діапазоні енергій 0,030 –3,0 МеВ. Але, якщо порівняти ефективність або чутливість реєстрації детекторів на основі ПС та NaI:Tl, які мають однаковий ефективний об'єм сцинтилятора, то можна побачити, що детектори на основі ПС мають кращу ефективність реєстрації фотонів гамма-випромнюївння з енергією більше 300 кеВ, але нижчу ефективність реєстрації низькоенергетичного гамма-випромінювання (до 100 кеВ). Перевагою детекторів NaI:Tl є спектрометричне визначення радіонуклідів. Але дані детектори мають більш низьку чутливість реєстрації високоенергетичних фотонів гамма-випромінювання. Дана проблема може бути вирішена шляхом розроблення універсального детектора, який поєднає переваги сцинтиляційної пластмаси та NaI:Tl в одному присторї. Таким чином, технологічних процесів виготовлення комбінованих розроблення нових детекторів на основі ПС та NaI:ТІ є перспективним завданням.

#### 1.3 Детектори альфа- та бета- частинок

Детектори альфа- та бета- частинок широко використовуються в заходах з радіоактивного моніторингу навколишнього середовища, а також на етапах виробництво ядерного палива. Даний тип випромінювання є особливо небезпечним, адже в процесі попадання в організм людини речовин, забруднених альфа- та бета- радіонуклідами, вони можуть викликати сильні пошкодження живих клітин. Огляд та перспективи використання детекторів альфа-наведеної радіолюмінесценції повітря в умовах денного світла, проведено в роботі [27].

Зараз для реєстрації альфа- та м'якого бета-випромінювання використовують газорозрядні, напівпровідникові та сцинтиляційні детектори. Серед сцинтиляційних детекторів альфа- та бета-частинок можна виділити низку блоків детектування на основі ZnS:Ag, який нанесений на підкладку з несцинтиляційного органічного полімеру або сцинтиляційного полівінілтолу. Слід зазначити, що дрібнодисперсний люмінофор ZnS:Ag найбільш широко використовується у приладах для прямої реєстрації альфа-частинок [28]. Більшість особистих альфа-моніторів, які використовуються в лабораторіях для контролю рівня забруднення альфа-ізотопами, виготовлені на основі ZnS:Ag через їхню велику площу та низьку вартість виробництва. Промислово ZnS:Ag виробляється у формі полікристалічного порошка, що є головним обмеженням під час виготовлення екранів на його основі.

В роботі [28] також проведено порівняння характеристик сцинтиляційного детектора ZnS:Ag з кремнієвим напівпровідниковим детектором для визначення альфа-радіоактивності водних розчинів. Визначені переваги та недоліки даних матеріалів. Поверхнева щільність ZnS:Ag, що складає від 3,5 мг/см<sup>2</sup> до 25 мг/см<sup>2</sup>, є рекомендованим параметром для застосування у комерційних альфа-чутливих приладах. Встановлено, що ефективність реєстрації детекторів ZnS:Ag з поверхневою щільністю люмінофору 3,5 мг/см<sup>2</sup> та діаметром активної поверхні детектора 41,5 мм<sup>2</sup> складає: <sup>244</sup>Cm – 7,19 ± 0,13%, <sup>239</sup>Pu – 5,37 ± 0,02%, <sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U – 4,21 ± 0,03%. Абсолютна ефективність реєстрації детекторів на основі кремнію складає: <sup>244</sup>Cm – 4,61 ± 0,01%, <sup>239</sup>Pu – 2,84 ± 0,01%, <sup>241</sup>Am – 3,87 ± 0,01% та <sup>230</sup>Th – 1,32 ± 0,01%.

Серед підприємств, які промислово виробляють радіометри для визначення альфа- та бета-радіонуклідів, можна виділити компанії Атомтех, ЮЕ Интерненейшенел, ТОВ "НПП Тетра" [29 – 31]. Основою альфа-чутливих приладів є детектори на основі ZnS:Ag, сцинтиляційної пластмаси, або детектори, виготовлені з двох даних сцинтиляторів. Значення чутливості реєстрації детекторів з площею активної поверхні 30 см<sup>2</sup> наведені в таблиці 1.1.

| Виробник        | Площа активної<br>поверхні, см <sup>2</sup> | Чутли                               | Література                        |      |
|-----------------|---|-------------------------------------|-----------------------------------|------|
|                 |   | (імп/с)(част/хвил•см <sup>2</sup> ) |                                   |      |
|                 |   | <sup>239</sup> Pu                   | <sup>90</sup> Sr- <sup>90</sup> Y |      |
| Атомтех         | 30  | 0,25                                | 0,3                               | [29] |
| ТОВ "НПП Тетра" | 30  | 0,20                                | -                                 | [31] |

Таблиця 1.1 – Чутливість реєстрації промислових альфа-бета детекторів

Значення ефективності реєстрації альфа-детекторів з площею активної поверхні від 15 до 75 см<sup>2</sup> також наведені в таблиці 1.2. Як можна бачити, численні значення даного параметру прямо пропорційні площі активної поверхні детекторів.

| Виробник                    | Площа активної<br>поверхні, см <sup>2</sup> | Ефективність реєстрації, 4, |                                   |                 | Пітература |
|-----------------------------|---|-----------------------------|-----------------------------------|-----------------|------------|
| Бирооник                    |   | <sup>239</sup> Pu           | <sup>90</sup> Sr- <sup>90</sup> Y | <sup>14</sup> C | Jiiopatypa |
| Luflum<br>Measurements Inc  | 75  | 33                          | -                                 | 4               | [32]       |
| Luflum                      |   |                             |                                   |                 |            |
| Measurements, Inc.          | 15  | 15                          | 22                                | 5               | [33]       |
| NuviaTech<br>Instruments    | 100   | 18                          | 42                                | 14              | [34]       |
| Thermo Fisher<br>Scitntific | 100   | -                           | 51                                | 14              | [35]       |

Таблиця 1.2 – Ефективність реєстрації промислових альфа-, бета- детекторів

Як можна бачити, чутливість реєстрації альфа- та бета-частинок не перевищує 0,3 (імп/с)(част/хвил·см<sup>2</sup>), а ефективність реєстрації дорівнює 4 – 50%.

Технологічний процес виготовлення сцинтиляційного покриття ZnS:Ag та його нанесення на оптичний світловод є дуже важливим під час виготовлення детекторів альфа-частинок. Згідно з даними, наведеними у роботі [36], одним зі способів виготовлення покриття є метод вакуумного випаровування (плавлення під час нагрівання) порошків ZnS та Ag в атмосфері з суміші газів H<sub>2</sub> та NH<sub>3</sub> при температурі 920<sup>o</sup>C. У ході використання даного методу протягом 2 – 4 годин утворюється шар ZnS:Ag товщиною 1 – 4 мкм. Інший метод виготовлення покриття ZnS:Ag полягає в змішуванні люмінофору з епоксидною основою, після чого суміш наноситься на підкладку з прозорого матеріалу та полімеризується протягом 24 годин. Власний спосіб нанесення ZnS:Ag на світловод з ПММА

шляхом розпилення або за допомогою пензлика запропонував колектив дослідників [36]. Як оптична основа для ZnS:Ag була використана оптично прозора емаль. Запропонована технологія забезпечує зниження вартості виробництва детекторів альфа-частинок та збереження ефективності реєстрації.

Також для реєстрації альфа-випромінювання використовують оксидні сцинтилятори. В роботі [37] запропоновані детектори зображень альфа-частинок для дослідження палива, отриманого з реактору атомної електростанції Фукусима-1. Під час розробки детектора була використана пластина з галійгадолінієвого гранату, активованого церієм товщиною 0,05 мм зі світловодом, та SiPM матриця. Використання детектору дозволило визначити рівень забруднення поверхні альфа частинками більше, ніж 4 Бк/см<sup>2</sup>.

Новий метод візуалізації альфа-частинок за допомогою швидкої оптичної камери, сфокусованої на тонкому шарі силікату лютецію LYSO, розроблений колективом дослідників [38]. Запропонований алгоритм обробки сцинтиляційного сигналу з детектора дозволяє використовувати повну наявну просторову та часову інформацію для кожного зареєстрованого фотона в камері.

В роботі [39] продемонстрований двошаровий детектор, до складу якого входять кристалічний сцинтилятор YAP:Се та пластмасовий сцинтилятор, який вимірює рівень забрудненості поверхонь альфа- та бета-радіонуклідами. Імпульсна чутливість детектора до потоку альфа-випромінювання від поверхні склала не менш 0,2 (імп/с)(част/хвил·см<sup>2</sup>). Імпульсна чутливість детектора до потоку бета-випромінювання від поверхні були більше 0,25 (імп/с)(част/хвил·см<sup>2</sup>).

В роботі [40] розроблений новий детектор альфа- та бета-частинок на основі стільбену або сцинтиляційної пластмаси EJ-299-33 з кремнієвим фотоприймачем. Показано розділення сигналу від альфа- та бета-ізотопів за формою імпульсу. Виготовлений детектор рекомендується використовувати для ідентифікації альфата бета-радіонуклідів на атомній електростанції Фукусіма-1 (FDNPP).

Перевірка здатності пластмасового сцинтилятору з мікросфер полістиролу розміром 180 – 250 мкм кількісно визначати та розрізняти за формою імпульсу

альфа- та бета-випромінювачі показана в роботі [41]. Встановлено, що ПС краще ідентифікує бета-випромінювання та гірше визначає альфа-частинки.

Розроблений в роботі [42] детектор дозволяє одночасно визначати альфа-, бета-частинки гамма-випромінювання розділення та фотони шляхом сцинтиляційного сигналу від кожного типу частинок за формою імпульсу. Детектор складається з трьох оптично з'єднаних між собою сцинтиляційних шарів та фотоприймача. Альфа-чутливий шар виготовлений зі сцинтиляційного пластику (час висвічування 2,4 нс). Бета-частинки ідентифікуються детектором за рахунок використання силікату гадолінію, активованого церієм (GSO:Ce), при цьому концентрація церія 1,5 мольних % забезпечує час висвічування сцинтилятора 35 нс. Шар, який реєструє фотони гамма-випромінювання також виготовлений із GSO:Ce, але зменшення концентрації церію до 0,4 мольних % призводить до збільшення часу висвічування сцинтилятора до 70 нс. Розроблений детектор може бути використаний на атомних електростанціях.

В роботі [43] розроблені сцинтиляційні панелі на основі дрібнодисперсного селеніду цинку для детектування альфа-випромінювання. Автори визначили оптимальний розмір гранул сцинтилятора та ефективну товщину композиційного шару, які дозволяють використовувати панель для реєстрації альфа-частинок у лічильному та спектрометричному режимах. Енергетичне розділення розроблених панелей від джерела <sup>241</sup> Ат складає ~ 30%.

Проведений огляд літературних джерел показав, що для виготовлення сучасних сцинтиляційних детекторів, які одночасно визначають альфа- та бетачастинки, найчастіше використовують два різні сцинтилятори, кожен з яких селективно реєструє певний тип частинок. Основний недолік такого конструкторсько-технологічного рішення полягає у використанні двох матеріалів з різним часом висвічування та значеннями післясвітіння, що певною мірою ускладнює обробку вихідного сцинтиляційного сигналу. Найчастіше подібні детектори працюють виключно в режимі підрахунку імпульсів. Але існують сцинтилятори, які спектрометрично визначають альфата бета-джерела. Наприклад, в роботі [44, 45] була досліджена здатність низки оксидних,

галогенідних та халькогенідних сцинтиляторів одночасно розділяти альфа- та бета- випромінювання. Показано, що халькогенідні сцинтилятори найкраще розділяють альфа-частинки та конверсійні електрони. Зокрема селенід цинку, залежно від складу активатора, має альфа/бета відношення від 0,69 до 1,05.

Таким чином, можна зазначити, що зараз є необхідність в розробленні технології виготовлення спектрометричних детекторів з підвищеною чутливістю реєстрації альфа- та бета-частинок на основі одного сцинтиляційного матеріалу з високим альфа/бета розділенням та відсутністю фосфоресценції. Халькогенідні сцинтилятори є перспективним матеріалом для вирішення даного завдання.

## 1.4 Детектори для реєстрації фотонів низькоенергетичних рентгенівських квантів (для візуалізації об'єктів)

медичній інтроскопії широко У використовують сцинтиляційні та напівпровідникові детектори для реєстрації фотонів рентгенівського та гаммавипромінювання цифрових рентгеноскопічних досліджень [46]. Для застосовуються плоскопанельні детектори з матрицею на тонкоплівкових транзисторах (TFT) або на основі комплементарної структури метал-оксиднапівпровідник (CMOS). Існують два основні типи цифрових плоскопанельних рентгенівських детекторив [47]. В детекторах першого типу на основі напівпровідникових матеріалів після взаємодії з фотонами рентгенівських квантів утворюються електронно-діркові пари. Під дією прикладеної напруги виникає електричний струм, який посилюють та за допомогою електроніки перетворюють в зображення. Другий тип детекторів містить екран з фосфору, який поглинає фотони рентгенівських квантів, перетворює їх у фотони світла, після чого світло конвертується в електричні заряди за допомогою фотодіодної матриці [48, 49]. Для прямого перетворення рентгенівського випромінювання використовують аморфний селен (a-Se) товщиною 0,5 – 1,0 мм. У разі непрямого перетворення використовують екрани з люмінофору, розміщені у безпосередньому контакті з активною фоточутливою кремнієвою матрицею. Перевагами a-Se є проста та

недорога технологія виготовлення детекторів великої площі, причому процес виробництва відбувається при низьких температурах. Також а-Se має високу однорідність зображення, обумовлену низькою гранулярністю та відсутність носіїв вільних зарядів при кімнатній температурі. Але для активації шару a-Se необхідно подавати дуже високу напругу (~10 В/мкм), що може стати причиною пошкодження активної матриці. Іншим недоліком a-Se є низький атомний номер (Z = 34), тому для забезпечення високої квантової ефективності детектора необхідно використовувати дуже товсті шари матеріалу. Перспективною альтернативою a-Se є PbI<sub>2</sub>, PbO, TlBr, CdZnTe, CdTe, CdSe та HgI<sub>2</sub> [50 – 54].

Основні вимоги, які висувають до сцинтиляційних матеріалів для детекторів фотонів рентгенівських квантів – це висока радіаційна стійкість, обумовлена тривалим часом експлуатації приладів, низький рівень післясвітіння, що дозволяє виділяти сигнал на фоні шуму, однорідність світлового виходу та температурна стабільність. Для виготовлення детекторів на основі екранів з фосфорів використовують сцинтилятори Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S, CsI:Tl [49, 55, 56].

У разі використання екранів з люмінофорів також необхідно дотримуватися балансу між просторовим розділенням та поглинанням фотонів рентгенівського випромінювання. Основним недоліком кристалічних сцинтиляційних екранів є низька прозорість та розсіювання світла всередині сцинтиляційного шару через його гранулярність та наявність дефектів структури [57]. Це призводить до розмиття світлової плями від сцинтиляційного спалаху в зображенні та погіршення просторового розділення детектора. Також необхідно враховувати, що чим більше товщина люмінофору, тим вище поглинання рентгену, але нижче ефективність реєстрації. Дане протиріччя може бути вирішено використанням колончатих структур CsI:Tl, які за морфологією дуже схожі з оптичними волокнами [56, 58 – 61]. Перевагою колончатих структур CsI:Tl є дуже високе просторове розділення за рахунок внутрішнього відбивання сцинтиляційного світла. Але колончаті структури CsI:Tl мають такі недоліки, як слабку гігроскопічність та токсичність матеріалу, а також низьку механічну міцність.

Фотостимульовані люмінофори можна використовувати багато разів без появи артефактів у зображенні. Але у разі використання ТFT матриці просторове розділення детекторів з розмірами активної поверхні до 400х400 мм не перевищує 4 пар ліній/ мм. Якщо фоточутливим елементом детектора є CMOS матриці, то просторове розділення збільшується до 20 пар ліній/мм. Але такі детектори мають недолік – високу вартість великорозмірних матриць. Для запобігання радіаційних пошкоджень фотоприймача в конструкції детекторів можуть використовувати волоконно-оптичні пластини (FOP) товщиною до 2 мм, які складаються з великої кількості скляних волокон діаметром у декілька мікрометрів, з'єднаних паралельно один одному [62 – 64]. За допомогою FOP зображення переноситься з одного кінця волокна на інший кінець без спотворень.

Відомими виробниками плоскопанельних детекторів для рентгенівської візуалізації є компанії iCRco Inc., Varex Imaging, Imaging Dynamics Company Ltd, Detection Technology, Trixell [65 – 69]. Залежно від типу фоточутливої матриці, просторове розділення таких детекторів складає від 2,5 до 4 пар ліній/мм. Значення просторового розділення деяких моделей плоскопанельних детекторів з різними типами фоточутливих матриць наведено в таблиці 1.3.

Таблиця 1.3 – Просторове розділення промислових плоскопанельних детекторів для рентгенівської візуалізації

|                     | Площа        | Тип          | Просторове   |            |
|---------------------|--------------|--------------|--------------|------------|
| Модель / виробник   | активної     | фоточутливої | розділення,  | Література |
|                     | поверхні, мм | матриці      | пар ліній/мм |            |
| AirDR LE/           | 432x432      | TFT          | 3,5          | [65]       |
| iCRco Inc.          |              |              |              |            |
| PaxScan 2520DX/     | 250x280      | a-Si         | 3,94         | [66]       |
| Varex Imaging       |              |              |              |            |
| Aquarius 8600 / IDC | 430x430      | CCD          | 3,9          | [67]       |
В цей час проведено багато досліджень з розроблення нових матеріалів для виготовлення сцинтиляційних екранів детекторів рентгенівської візуалізації. Також багато уваги присвячено розробленню та вдосконаленню технологічних операцій виробництва екранів. В роботі [70] показана можливість отримання плівок ZnWO<sub>4</sub> товщиною 10 – 20 мкм методом гідротермального синтезу для виготовлення екранів рентгенівських детекторів. Отримані дані вказують, що плівки мають структуру вольфрамату та люмінесцентні властивості аналогічні об'ємному кристалічному ZnWO<sub>4</sub>.

Спосіб виготовлення гнучких композиційних детекторів для радіографічної візуалізації показаний в роботі [71]. Для цього використані порошкоподібні швидкі рідкоземельні ортосилікати, активовані церієм (LSO:Ce, LSO:Sm, GSO:Ce) та основа з полідіметилсилоксану, яка прозора в області люмінісценції сцинтиляторів. Запропонований спосіб виготовлення дозволяє отримувати композиційні сцинтилятори різної форми, адаптовані до випромінювання світла в спектральній області, яке відповідає оптимальному відгуку фотодектора, що призводить до підвищення ефективності реєстрації детектора.

В роботі [72] був запропонований процес виготовлення гнучких піксельованих сцинтиляторів  $Gd_2O_2S$ : Tb, вбудованих у поліетиленову підкладку методом гарячого тиснення. Запропонована технологія забезпечує виготовлення сцинтиляційних екранів з розміром пікселя 60 мкм, 100 мкм та 200 мкм.

Автори [73] розробили технологію виготовлення структурованого сцинтилятора CsI:Tl, яка полягає в заповнені глибоких пор силіконової матриці розплавленим порошком CsI:Tl товщиною 200 мкм. Пориста матриця була виготовлена шляхом використання методу літографії та методу глибокого реактивного травління. В результаті були виготовлені екрани з розміром пікселя 20 мкм для використання в рентгенівських детекторах з ССD матрицею.

Аналіз літературних джерел показав, що розроблення плоскопанельних детекторів великої площі для медичної цифрової рентгенографії з просторовим розділенням більше 3,5 пар ліній/мм є актуальним завданням. Також є необхідність в розробленні нових недорогих сцинтиляторів з високим світловим виходом, коротким часом висвічування та низьким рівнем післясвітіння для виготовлення екранів детекторів рентгенівської візуалізації.

#### 1.5 Висновки до розділу 1

З огляду на наведні в розділі дані, можна зробити висновок, що зараз необхідно розроблення нових технологій виготовлення комбінованих сцинтиляційних детекторів з високою чутливістю реєстрації випромінювання. Незважаючи на достатню кількість досліджень в області виробництва приладів радаційного контролю, залишається не до кінця вирішеним завдання створення високочутливих детекторів, які визначають склад радіаційних джерел в широкому діапазоні щільностей потоків іонізуючого випромінювання.

Тому основним завданням даної роботи є розроблення комплексних досліджень, спрямованих на створення загальної методології підвищення чутливості реєстрації сцинтиляційних детекторів великої площі, яка має охоплювати такі технологічні етапи виробництва:

- розроблення технологічних процесів виготовлення сцинтиляційних сендвічей комбінованих детекторів для роботи при температурах -50°C - +70°C;

- роблення технологічних процесів виготовлення композиційних сцинтиляційних шарів комбінованих детекторів;

- отримання сцинтиляційних гранул для виготовлення композиційних сцинтиляційних шарів комбінованих детекторів;

- розроблення технології виготовлення комбінованих детекторів для реєстрації альфа- та бета-частинок, а також фотонів гамма-квантів та низькоенергетичного рентгенівського випромінювання;

- контроль оптичних та сцинтиляційних характеристик складових елементів детекторів під час розроблення технологічних процесів їхнього виготовлення;

- контроль сцинтиляційних характеристик комбінованих детекторів альфата бета-частинок, а також фотонів гамма- та рентгенівського випромінювання; - температурні випробування складових елементів детекторів, а також виготовлених комбінованих детекторів в інтервалі від -50°C до +70°C.

На підставі вищенаведеного була визначена мета роботи – підвищення чутливості реєстрації сцинтиляційних детекторів альфа-, бета-частинок і фотонів гамма-випромінювання, а також просторового розділення детекторів для реєстрації фотонів низькоенергетичних рентгенівських квантів шляхом розробки технології виробництва комбінованих сцинтиляційних детекторів великої площі, що складаються зі сцинтиляційного неорганічного шару, оптично з'єднаного зі світлопровідним органічним або неорганічним шаром.

Для досягнення поставленої мети необхідно було вирішити такі задачі:

 сформулювати основні вимоги до комбінованих детекторів іонізуючого випромінювання великої площі згідно з проведеним аналізом сучасного ринку.
Визначити складові елементи комбінованих детекторів і встановити основні операції технологічного процесу їхнього виготовлення;

- розробити та удосконалити технологічні процеси виготовлення лічильних та спектрометричних комбінованих детекторів великої площі для реєстрації фотонів гамма-випромінювання на основі оптично з'єднаних шарів з органічних та неорганічних сцинтиляторів, що мають чутливість реєстрації вищу, ніж у детекторів на основі сцинтиляційного полістиролу або NaI:Tl;

- удосконалити технологічні операції виготовлення комбінованих детекторів великої площі з роздільною реєстрацією альфа- та бета-частинок, що складаються з неорганічного гетерогенного сцинтиляційного шару з низькою фосфоресценцією, оптично з'єднаного зі світлопровідним органічним шаром та забезпечує чутливість реєстрації комбінованого детектора вище, ніж у детекторів на основі ZnS:Ag та сцинтиляційної пластмаси;

- удосконалити технологічний процес виробництва комбінованих детекторів для реєстрації фотонів низькоенергетичних рентгенівських квантів на основі неорганічного сцинтилятора та світлопровідного шару з кращим просторовим розділенням, ніж у рентгенівських плоскопанельних детекторів з ТFT-матрицею на основі сцинтиляційних екранів CsI:Tl та Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb.

### РОЗДІЛ 2

### ТЕХНОЛОГІЯ ВИРОБНИЦТВА СКЛАДОВИХ ЕЛЕМЕНТІВ КОМБІНОВАНИХ ДЕТЕКТОРІВ ІОНІЗУЮЧОГО ВИПРОМІНЮВАННЯ ВЕЛИКОЇ ПЛОЩІ ДЛЯ РОБОТИ ПРИ ТЕМПЕРАТУРАХ -50°С..+70°С

У загальному вигляді до складу комбінованого детектора іонізуючого випромінювання входять такі елементи:

- сцинтиляційний сендвіч;

- відбивач світла;
- захисний корпус;
- фотоприймач.

Сцинтиляційний сендвіч будь-якого комбінованого детектора складається з неорганічного сцинтиляційного шару та органічного або неорганічного світлопровідного шару, що з'єднані між собою за допомогою оптично прозорого клею. Світлопровідний шар може містити люмінесцентні домішки (рис. 2.1).

| Світлопровідний шар |
|---------------------|
|                     |
| -                   |
|                     |
| Сцинтиляційний шар  |

Рисунок 2.1 – Схема сцинтиляційного сендвічу комбінованого детектора

До основних вимог, які висувають до сцинтиляційного сендвічу та комбінованого детектора великої площі, належать:

- висока чутливість реєстрації малих потоків іонізуючого випромінювання;

- площа вхідної детектуючої поверхні від 1000 см<sup>2</sup>;

- стабільність сцинтиляційних характеристик при температурах від - 50°С до +70°С.

Виробництво комбінованих детекторів з даними параметрами є складним для реалізації завданням через високу вартість технологічного процесу вирощування кристалів, у яких один з лінійних розмірів більше 500 мм. Також експериментально встановлено, якщо сцинтиляційний сендвіч складається з неорганічного сцинтилятора та органічного світлопровідного шару, у якого один з лінійних розмірів більше 350 мм, то після тривалого охолодження та нагрівання сендвічу в інтервалі температур  $-50^{\circ}$ C -  $+70^{\circ}$ C відбувається порушення цілосності шару оптичного клею (рис. 2.2). Основна причина цього – велика різниця коефіцієнтів теплового розширення (КТР) клею та матеріалів шарів сендвічу.



Рисунок 2.2 – Відшарування в оптичному контакті сцинтиляційного сендвіча NaI:Tl – сцинтиляційний полістрол

Також під час виготовлення сцинтиляційного сендвічу необхідно враховувати хімічний склад матеріалів, з яких виготовлені шари. Наприклад, для склеювання гігроскопічних сцинтиляторів необхідно використовувати виключно хімічно інертні полісилоксанові еластомери, що полімеризуються за реакцією гідросилірування без утворення низькомолекулярних продуктів реакції.

Таким чином, забезпечити основні вимоги до комбінованих детекторів великої площі можливо виключно за рахунок конструкційних рішень та розроблення спеціальних технологічних процесів. 2.1 Розроблення технологічного забезпечення з'єднання елементів комбінованих детекторів великої площі для реєстрації фотонів гаммавипромінювання при температурах від -50<sup>°</sup>C до +70<sup>°</sup>C

Комбіновані детектори для реєстрації фотонів гамма-випромінювання, що можуть бути застосовані в РПМ, повинні мати площу вхідної детектуючої поверхні більше, ніж 1000 см<sup>2</sup> для того, що забезпечити високу чутливості та ефективності реєстрації радіонуклідів. Для спектрометричного визначення гаммаджерел з енергією 20 – 3000 кеВ у дисертаційній роботі запропоновані комбіновані детектори на основі сендвічу, що складається зі сцинтиляційного шару NaI:Tl, світлопровідного шару зі сцинтиляційного полістиролу та полісилоксанового оптичного клею між ними. Необхідно зазначити, що значення КТР полісилоксанів більше в 7 разів, ніж даний параметр для NaI:Tl та у 4,5 рази перевищує КТР полістиролу [74 - 76]. Вказані параметри наведені в таблиці 2.1.

| Матеріал      | Призначення         | KTP, $10^{-6} \cdot K^{-1}$ |
|---------------|---------------------|-----------------------------|
| NaI:Tl        | Сцинтиляційний шар  | 47,7                        |
| Полістирол    | Світлопровідний шар | 70                          |
|               | (сцинтиляційний)    |                             |
| Полісилоксани | Оптичний клей       | 310 - 330                   |

Таблиця 2.1 – Параметри матеріалів сцинтиляційного сендвічу NaI:Tl – ПС

Через високу гігроскопічність та реакційну здатність кристалів NaI:Tl для оптичного склеювання шарів сцинтиляційного сендвічу NaI:Tl – ПС був використаний двохкомпонентний оптичний клей на полісилоксановій основі СУРЕЛ-СЛ-1 [77]. Даний клей обраний через хімічну інертність та відсутність полос поглинання в області люмінесценції NaI:Tl та полістиролу. Коефіцієнт пропускання СУРЕЛ-СЛ-1 складає більше 90% для зразків товщиною 5 мм в діапазоні 400 – 800 нм [78].

Стабільність функціональних параметрів комбінованих детекторів залежить від цілісності шару оптичного клею під час нагрівання та охолодження. Результати розрахунків зміни довжини шарів сандвічу та обчислення дотичних напружень в шарі полісилоксанового клею дозволили визначити гранично допустимі розміри складових елементів сцинтиляційного сендвіча, що забезпечують цілісність шару оптичного клею та стабільність функціональних параметрів комбінованих детекторів в інтервалі температур від  $-50^{\circ}$ C до  $+70^{\circ}$ C.

Розрахунок зміни довжини ( $\Delta l$ ) шарів сцинтиляційного сендвічу NaI:Tl – ПС при температурах -50<sup>o</sup>C та +70<sup>o</sup>C

При температурах  $-50^{\circ}$ C та  $+70^{\circ}$ C відбувається стиснення та розширення матеріалів сендвічу на різну величину  $\Delta l$ . Наприклад, максимальна зміна довжини 1000 мм для NaI:Tl, полістиролу та полісилоксану складає 18,36 мм (табл. 2.2).

Таблиця 2.2 – Зміна довжини ( $\Delta l$ ) шарів сцинтиляційного сендвічу при температурах -50°С та +70°С (l = 1000 мм)

| Матеріал     | $\Delta l$ , мм    |                    |
|--------------|--------------------|--------------------|
|              | -50 <sup>o</sup> C | +70 <sup>o</sup> C |
| Полістрол    | - 4,90             | + 3,50             |
| NaI:Tl       | - 3,34             | + 2,39             |
| Полісилоксан | - 21,70            | + 15,50            |

Розрахунки зроблені згідно з рівнянням 2.1:

$$\Delta l_i = \alpha \cdot l_0 \cdot (T_i - T_0), \tag{2.1}$$

де  $\Delta l_i$  – зміна довжини шару при заданій температурі,  $\alpha$  – коефіцієнт лінійного розширення,  $\Delta l_0$  – довжина шару при початковій температурі (20<sup>o</sup>C),  $T_i$  та  $T_0$  – задана та початкова (20<sup>o</sup>C) температури.

Якщо довжину складових елементів сендвічу зменшити до 100 мм, то максимальна різниця довжин шарів NaI:Tl, полістиролу та полісилоксану при температурах  $-50^{\circ}$ C та  $+70^{\circ}$ C вже дорівнює 1,84 мм (табл. 2.3).

Таблиця 2.3 – Зміна довжини ( $\Delta l$ ) матеріалів сцинтиляційного сендвічу при температурах -50°С та +70°С (l = 100 мм)

| Матеріал     | Зміна розміру, мм  |                    |  |
|--------------|--------------------|--------------------|--|
|              | -50 <sup>o</sup> C | +70 <sup>o</sup> C |  |
| Полістрол    | - 0,49             | + 0,35             |  |
| NaI:Tl       | - 0,33             | + 0,24             |  |
| Полісилоксан | - 2,17             | + 1,55             |  |

Таким чином, якщо розділити сцинтиляційний шар сендвічу з цільного монокристалу (рис. 2.3) на сегменти з технологічним зазором 1 – 2,0 мм між ними (рис. 2.4), то навантаження на шар оптичного клею через стиснення та розширення матеріалів з різним КТР під дією температури суттєво зменшиться.



Рисунок 2.3 – Сендвіч з моношару NaI:Tl та ПС



Рисунок 2.4 – Сендвіч зі сегментів NaI:Tl та ПС

При цьому в зазорі між сегментами монокристалів утворюється запірний шар з оптичного клею, який додатково виконує функцію демпферної прокладки.

Розрахунок дотичних напружень в шарі полісилоксанового клею сцинтиляційного сендвічу NaI:Tl – ПС

Дотичні напруження в шарі полісилоксанового клею, що виникають під дією температури, також є причиною появи відшарувань між сцинтиляційним та світлопровідним шарами. В роботі були зроблені розрахунки дотичних напружень для сендвічу NaI:Tl – ПС з полісилоксановим клеєм. Розміри складових елементів сцинтиляційного сендвічу, наведені в таблиці 2.4.

Таблиця 2.4 – Роміри складових елементів сцинтиляційного сендвічу NaI:Tl – ПС

| Матеріал    | Довжина, мм | Ширина, мм | Висота, мм |
|-------------|-------------|------------|------------|
| NaI:Tl      | 350 - 1000  | 100 - 500  | 10         |
| Полістирол  | 1000        | 100 - 500  | 50         |
| Sylgard 184 | 1000        | 100 - 500  | 0,1-2,0    |

Оскільки в літературі відсутні значення фізичних параметрів для СУРЕЛ-СЛ-1, то для розрахунків дотичних напружень були взяті характеристики полісилоксанового еластомеру Sylgard 184, який за властивостями є максимально подібним до СУРЕЛ-СЛ-1. Також для Sylgard 184 є найбільша кількість літературних значень таких фізичних характеристик, як КТР (αL), модуль пружності (E), модуль зсуву (G). Дані, взяті з літератури [74 – 76, 79 – 81] наведені в таблиці 2.5.

Таблиця 2.5 – Фізичні характеристики матеріалів сендвічу NaI:Tl – ПС при 20<sup>о</sup>С

| Матеріал    | $\alpha L, 10^{-6} \cdot K^{-1}$ | Е, 10 <sup>3</sup> ·МПа | G, 10 <sup>3</sup> ·МПа |
|-------------|----------------------------------|-------------------------|-------------------------|
| NaI:Tl      | 47,7                             | 20                      | 7,86                    |
| Полістирол  | 70                               | 3,25                    | 0,75                    |
| Sylgard 184 | 310                              | 1,32                    | 0,44                    |

Розрахунки дотичних напружень  $\tau$  в Sylgard 184 [82,8 3] для інтервалу температур від -50<sup>o</sup>C до +70<sup>o</sup>C зроблені відповідно до рівняння 2.2:

$$\tau_{Sylgard184} - T^{(T,a)} = \tau_{Sylgard184}(\alpha L_{NaI}, \alpha L_{\Pi C}, T - T_0, G_{Sylgard184}(T), a, E_{NaI}, E_{\Pi C}(T), b_{NaI}, b_{\Pi C}, x) \quad (2.2)$$

де  $\tau$  – дотичні напруження,  $\alpha L$  – коефіцієнт лінійного розширення, G – модуль зсуву, E – модуль пружності, T<sub>0</sub> та T – початкова (20<sup>o</sup>C) та задана температура, а – товщина шару Sylgard 184, b – товщина шарів NaI та ПС.

Інтерполяційні рівняння для визначення температурної залежності модуля пружності ПС та модулу зсуву Sylgard 184 мали вигляд (2.3 – 2.4):

$$E_{\Pi C}(T) \coloneqq \operatorname{int} erp(pspline(E_{\Pi C} \_ Data^{(0)}, E_{\Pi C} \_ Data^{(1)}), E_{\Pi C} \_ Data^{(0)}, E_{\Pi C} \_ Data^{(1)}, T/{}^{0}C) \cdot M\Pi a ; (2.3)$$

$$G_{\text{Sylg ard 184}}(T) \coloneqq \text{int } erp(pspline(G_{\text{Sylg ard 184}}, temp, G_{\text{Sylg ard 184}}), G_{\text{Sylg ard 184}}, temp, G_{\text{Sylg ard 184}}, T/^{0}C) \cdot M\Pi a \quad (2.4)$$

де *pspline(vx,vy)* – повертає вектор коефіцієнтів кубічного сплайна з параболічними кінцевими точками, що відповідає незалежним даним у векторі або матриці *vx* та незалежним даним у *vy*. Даний вектор є першим аргументом функції *interp*;

*interp(vs,vx,vy,x)* – повертає значення аргументу *x*, інтерпольоване за коефіцієнтами у векторі *vs* та вихідними даними у *vx* та *vy*. Вектор коефіцієнтів *vx* є результатом використання однією з функцій: *cspline, lspline, pspline, bspline, loess* або *regress*.

Вигляд інтерполяційних кривих для модулів пружності ПС та модулів зсуву Sylgard 184 показаний на рисунках 2.5 та 2.6, відповідно



Рисунок 2.5 – Температурна залежність модулів пружності ПС



Рисунок 2.6 – Температурна залежність модулів зсуву Sylgard 184

Залежність дотичних напружень Sylgard 184 від температури наведена на рисунку 2.7.

За результатами проведених розрахунків зроблений висновок, що допустима напруга в шарі Sylgard 184 не має перевищувати 300 кПа. Оптимальні параметри сцинтиляційного шару такі:

- максимальний лінійний розмір пластин NaI:Tl не перевищує 350 м;
- товщина шару полісилоксану має бути 1,5 2,0 мм.



Рисунок 2.7 – Температурна залежність дотичних напружень в Sylgard 184

Особливості технологічного процесу склеювання сцинтиляційного та світлопровідного шарів сцинтиляційного сендвічу

Для виготовлення сцинтиляційного сендвічу необхідно склеїти матеріали з різною полярністю: NaI є полярним матеріалом, ПС та полісилоксани – слабко полярними. Відомо, що підвищення полярності клею призводить до зростання його адгезії до полярного матеріалу. Однак під час склеювання неполярного або слабкополярного матеріалів підвищення полярності призводить клею ДО міцності з'єднання [84]. У процесі з'єднання зниження матеріалів, шо відрізняються за полярністю, висока міцність склеювання досягається під час використання клею на основі полімеру, макромолекули якого містять різні за полярністю та реакційною здатністю функціональні групи. Дану умову неможливо реалізувати для гігроскопічних галоїдних кристалів. Як було сказано вище, NaI:Tl є високогігроскопічним матеріалом. Тому для його склеювання з полістиролом можна використовувати тільки полісилоксанові еластомери, що полімеризуються за реакцією гідросилірування [85].

Перед склеюванням NaI:Tl та ПС поверхні шарів необхідно підготувати спеціальним чином. Для цього необхідно використовувати спеціальні

полірувальні суміші для NaI:Tl, що не містять речовин, знижуючих адгезію (поліметилсилоксан, поверхнево-активні речовини), а також використовувати інструмент з алмазним напиленням, який забезпечує необхідну шорсткість поверхні сцинтиляційного ПС.

Важливим який необхідно забезпечити роботи параметром, для комбінованого детектора в інтервалі температур -50°C - +70°C є довгострокова стабільність, на яку впливають процеси хімічної взаємодії матеріалів шарів і клею, а також усадка клею. Під час склеювання полярних кристалів з будь-яким матеріалом, що має низьку реакційну здатність, на поверхні кристала відбувається хімічна реакція з полярними функціональними групами клею у всіх випадках, крім використання полісилоксанів. Дані матеріали через слабку полярність молекул мають дуже низьку реакційну здатність. Таким чином, довгострокова стабільність може бути забезпечена за рахунок використання оптичного клею з урахуванням хімічного складу шарів, що склеюються, наприклад:

- для склеювання NaI:Tl з ПС необхідно використовувати полісилоксановий клей;

- для склеювання оксидних та халькогенідних кристалів можна використовувати як полісілоксани, так і акрилатні та епоксидні клеї;

- для склеювання шарів сендвічв краще використовувати клеї з гелевою або еластичною структурою після затвердіння, для компенсації усадки клею.

Також необхідно врахувати, що на світловий вихід комбінованих детекторів впливає різниця коефіцієнтів заломлення матеріалів сцинтиляційного сендвічу, а також якість обробки поверхні сцинтиляційного та світлопровідного шарів. Вирішенням даного завдання є використання оптичного клею з урахуванням коефіцієнтів заломлення матеріалів, що склеюються, а також застосування спеціальної обробки поверхні сцинтиляторів для поліпшення умов збирання сцинтиляційного світла в комбінованому детекторі. Температурні випробування сцинтиляційних сендвічей NaI:Tl - ПС

Перевірка стабільності функціональних параметрів сцинтиляційних сендвічей NaI:Tl – ПС була проведена для сендвічей з такими розмірами елементів (табл.2.6):

Таблиця 2.6 – Роміри складових елементів сцинтиляційних сендвічей NaI:Tl – ПС для температурних випробувань

| Матеріал   | Довжина, мм | Ширина, мм | Висота, мм         |
|------------|-------------|------------|--------------------|
| NaI:Tl     | 330-500     | 100        | 10                 |
| Полістирол | 1000        | 100        | 50                 |
| СУРЕЛ-СЛ-1 | 1000        | 100        | 0,3-0,5<br>1,5-2,0 |

Температурні випробування були проведені в камері тепла та холоду Programmable Temperature/Humidity Chamber (K type) виробництва Terchy Environmental Technology LTD (рис. 2.5) в інтервалі температур  $-50^{\circ}$ C -  $+70^{\circ}$ C при відносній вологості повітря 0 – 3 %.



Рисунок 2.8 – Камери тепла та холоду Programmable Temperature/Humidity Chamber (K type)

Всього проведено 30 циклів нагрівання та охолодження в інтервалі температур -50°C - +70°C протягом шести місяців за програмою:

- 1. Охолодження до  $-50^{\circ}$ С зі швидкістю  $15^{\circ}$ С/год.
- 2. Витримування при -50°С протягом чотирьох годин.
- 3. Нагрівання до  $+70^{\circ}$ С зі швидкістю  $15^{\circ}$ С/год.
- 4. Витримування при  $+70^{\circ}$ С протягом 4 годин.
- 5. Охолодження до кімнатної температури зі швидкістю 15<sup>0</sup>С/год.

Усі зразки сендвічей на основі пластин NaI:Tl з розмірами  $350 \times 100 \times 10 \text{ мm}^3$  успішно пройшли температурні випробування: відшарування в оптичному контакті були відсутні. Але у разі збільшення товщини оптичного клею до 1,5 - 2,0 мм, швидкість лічення сцинтляційного сендвічу зменшується щонайменьш на 10% в порівнянні з результатами, якщо клей має товщину 0,3 - 0,5 мм. В оптичному контакті сендвічей на основі пластин NaI:Tl з розмірами  $500 \times 100 \times 10$  мм<sup>3</sup> та клею товщиною 0,3 - 0,5 мм відшарування з'явилися після двох циклів. Таким чином, за результатами розрахунків та температурних випробувань були визначені загальні принципи мінімізації напруги в оптичному контакті при температурних змінах від  $-50^{\circ}$ C до  $+70^{\circ}$ C, що забезпечують максимальний світловий вихід комбінованих детекторів та високу механічну міцність його складових елементів:

- максимальний лінійний розмір пластин NaI: Tl складає до 350 мм;
- між пластинами повинен бути технологічний зазор 1-2 мм;
- товщина оптичного контакту дорівнює 0,3-0,5 мм;
- необхідно використовувати полісилоксановий клей з гелевою структурою.

### 2.2 Розроблення технологічного забезпечення виготовлення композиційних сцинтиляційних шарів комбінованих детекторів

Для того, щоб виготовити сцинтиляційні шари комбінованих детекторів великої площі необхідно використовувати два типи дизайну шарів. Це може бути шар у вигляді мозаїки з декількох кристалічних сегментів (рис. 2.6, а). Іншим рішенням є використання композиційних сцинтиляторів на основі гранул, змішаних з оптично прозорим клеєм (рис. 2.6, б).



Рисунок 2.9 – Сцинтиляційний шар комбінованого детектора на основі ZnSe:Al (а – мозаїка, б – композиційний сцинтилятор)

Спосіб виготовлення неорганічного сцинтиляційного шару визначається залежно від області застосування комбінованого детектора. Мозаїчний дизайн підійде для виготовлення комбінованих детекторів з великою ефективною товщиною сцинтиляційного шару, що забезпечує повне поглинання випромінювання, а саме для реєстрації фотонів гамма-випромінювання та рентгенівських квантів з енергією більше 100 кеВ, а також для спектрометричних детекторів альфа- та бета-частинок.

Композиційні сцинтиляційні шари необхідно використовувати для виготовлення комбінованих детекторів з високою поверхневою щільністю сцинтиляційних гранул, наприклад для детекторів альфа- та бета-частинок, а детекторів для візуалізаційних приладів, що реєструють також фотони рентгенівських квантів з енергією до 100 кеВ. Слід зазначити, що під час використання композиційних шарів у комбінованих детекторах, існують складнощі виготовлення сцинтиляторів, які одночасно є достаньо прозорими та ефективну високу товщину, ЩО забезпечує мають повне поглинання випромінювання.

Через сильне розсіювання світла, саме підвищення прозорості є важливим завданням, яке необхідно вирішити для збільшення ефективності реєстрації композиційних систем. Збирання світла в композиційних шарах залежить від багатьох факторів, основними з яких є стан поверхні сцинтиляційних гранул (ступінь шорсткості, форма), різниця в показниках заломлення гранул та оптичного середовища, прозорість матеріалу, з якого складаються гранули та кількість шарів гранул у композиційному сцинтиляторі [109].

Для виготовлення сцинтиляційних шарів лічильних комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання, а також детекторів для рентгенівської візуалізації в роботі були обрані кристалічні гранули CsI:Tl. Даний матеріал має такі переваги, як світловий вихід близько 55 000 фотон / MeB, час загасання 1 мкм та низьку гігроскопічність [87, 88]. Також для отримання гранул CsI:Tl можна використовувати кристалічну стружку, яка утворюється під час механічної обробки кристалів, що здешевлює вартість виробництва композиційних шарів.

Для виробництва сцинтиляційних шарів комбінованих детекторів для реєстрації фотонів рентгенівських квантів (для візуалізації об'єктів) також підходять гранули GAGG:Ce, отримані твердофазним синтезом. Цей негігроскопічний сцинтилятор має світловий вихід 50 000 – 60 000 фотон/МеВ, густину 6,63 г/см<sup>3</sup> та  $Z_{eff} = 54$  [89 – 92]. Спосіб отримання гранул має значно нижчу вартість виробництва, порівняно з вирощуванням об'ємних кристалів.

Для виготовлення спектрометричних комбінованих детекторів альфа- та бета-частинок добре підходять халькогенідні сцинтилятори, зокрема ZnSe:Al, у якого світловий вихід складає 65 000 фотон/МеВ, відсутня фосфорисценція, а альфа/бета відношення більше 0,8 [93, 94].

У даній роботі були розглянуті такі способи покращення умов збирання світла в композиційному сцинтиляційному шарі:

- зменшення різниці показників заломлення гранул та оптичного середовища;

- підвищення прозорості поверхні сцинтиляційних гранул та надання їй сферичної форми;

- оптимізація концентрації активатора у складі сцинтиляційних гранул.

Отримані результати стали основою розроблення технологічних процесів виготовлення композиційних шарів комбінованих детекторів великої площі.

Математичне моделювання умов збирання світла в композиційному сцинтиляційному шарі

Для прогнозування процесів проходження сцинтиляційного світла в слабко прозорих композиційних шарах було проведено математичне моделювання за допомогою методу Монте Карло. Через те, що композиційний сцинтиляційний шар є гетерогенним середовищем, у якому розміри гранул значно перевищують довжину хвилі сцинтиляційного світла, в ході моделювання були використані наближення геометричної оптики [95].

Залежність ослаблення світла після його проходження через композиційний шар була описана законом Бугера-Ламберта-Бера та виражена через коефіцієнти збирання світла *k*:

$$k = \frac{I}{I_0} \cdot \exp(-\alpha \cdot h), \qquad (2.6)$$

де *I* – кількість фотонів, що вийшло зі сцинтилятору, *I*<sub>0</sub> – кількість фотонів, що виникло в сцинтиляторі, α – коефіцієнт поглинання світла, *h* – товщина композиційного сцинтиляційного шару.

Композиційні сцинтилятори є двохкомпонентними системами, яки складаються з гранул та оптичної основи [86]. Тому для оцінки умов збирання світла необхідно користуватися величиною ефективної товщини композиційного сицинтлиятору  $h_{eff}$ , яка дорівнює:

$$h_{eff} = h \cdot \frac{\omega_{grain}}{\omega_{grain}} + \frac{\omega_{glue}}{d_{glue}}, \qquad (2.5)$$

де h – товщина композиційного сцинтилятора,  $\omega_{grain}$  – масова доля гранул,  $d_{grain}$  – густина гранул,  $\omega_{glue}$  – масова доля оптичної основи,  $d_{glue}$  – густина оптичної основи.

Для виготовлення комбінованих детекторів великої площі на основі композиційних сцинтиляторів необхідно використовувати шари двох типів. Для реєстрації альфа-частинок, а також фотонів рентгенівського випромінювання з енергією до 100 кеВ необхідні однорідні сцинтиляційні шари товщиною до 100 мкм, що складаються з гранул розміром до 15 мкм. Для реєстрації бетачастинок та фотонів гамма-квантів можливо використовувати сцинтиляційні шари на основі гранул розміром 100 – 500 мкм з максимально можливою товщиною для забезпечення поглинання значної частини радіаційного випромінювання.

Математичне моделювання<sup>1</sup>, проведене для вказаних типів композиційних шарів, дозволило розрахувати коефіцієнти збирання світла залежно від показників заломлення гранул та оптичної основи. Під час проведення симуляцій показник заломлення гранул дорівнював 1,80, що відповідає даним CsI:Tl та GAGG:Ce. Показник заломлення оптичної основи дорівнював 1,80 та 1,40. При співпадінні показників заломлення гранул та оптичної основи дорівнював 1,80 та 1,40. При співпадінні показників заломлення складу композиційного шару. Коли показник заломлення оптичного середовища дорівнював 1,4, то симуляція проводилася для реальних випадків, оскільки під час виготовлення композиційних сцинтиляторів найчастіше використовують полісилоксанові клеї саме з такими значенням показника заломлення [43, 96, 97]. Кількість шарів гранул у композиційному сцинтиляторі в ході моделювання змінювалася від 1 до 10.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Автор висловлює свою подяку завідувачу відділу сцинтиляційної радіометрії Інституту сцинтиляційних матеріалів НАН України доктору фізико-математичних наук В.О. Тарасову за допомогу в проведенні комп'ютерного моделювання та обговоренні результатів, які були отримані в дисертаційній роботі

Якщо показники заломлення співпадають, то композиційні шари товщиною до 100 мкм з гранул розміром 5 – 15 мкм мають максимальну прозорість. Тому коефіцієнти збирання світла біля вхідної поверхні шару (поруч з джерелом радіації) та біля вихідної поверхні шару (поруч з фотоприймачем) мало відрізняються (рис. 2.10).



Рисунок 2.10 – Коефіцієнти збирання світла сцинтиляційних шарів: розмір гранул 5 мкм; *n*<sub>гранули</sub> = 1,8; *n*<sub>оптична основа</sub> = 1,8

У разі, коли показник заломлення оптичного зв'язуючого дорівнює 1,40 (рис. 2.11), то коефіцієнти збирання світла у вхідній та вихідній поверхні відрізняються суттєво через зниження прозорості шарів, причому різниця зростає по мірі збільшення товщини шару за рахунок втрат світла через розсіювання.



Рисунок 2.11 – Коефіцієнти збирання світла сцинтиляційних шарів: розмір гранул 5 мкм; *n*<sub>гранули</sub> = 1,8; *n*<sub>оптична основа</sub> = 1,4

Таким чином, зроблено висновок, що під час виготовлення композиційних шарів товщиною до 100 мкм, з гранул 5 – 15 мкм, необхідно, щоб показники заломлення матеріалів гранул та оптичної основи були максимально близькими.

На рисунку 2.12 наведено спектри дифузного пропускання композиційних шарів на основі гранул CsI:Tl (n=1,79) розміром 5 – 15 мкм та полісилоксанового клею СКТН-мед (n=1,40) або епоксидного клею Magic Crystal (n=1,55) [98, 99]. Спектри виміряні на спектрофотометрі Shimatzu [100] із використанням інтегруючої сфери. Зразок встановлювали у вимірювальному каналі і закріплювали його на зовнішній поверхні сфери. Похибка вимірювань склала ± 0,5%. Значення оптичного пропускання *T* обчислювали за формулою:

$$T = \frac{L}{L_0} \times 100\%, \qquad (2.6)$$

де  $L_0$  – потік світла, що падає на зразок, L – потік світла, що пройшло крізь зразок.

В ході порівняння спектрів пропускання композиційних шарів CsI:Tl товщиною 100 мкм з гранул розміром 5 – 15 мкм (рис. 2.12), встановлено, що під час використання оптичного клею з n = 1,55 прозорість шарів CsI:Tl більша у 2,5 – 3 рази, ніж якщо оптичний клей має n = 1,40 в інтервалі 400 – 800 нм.



Рисунок 2.12 – Спектри пропускання композиційних шарів CsI:Tl (розмір гранул 5 – 15 мкм)

На рисунках 2.13 та 2.14 наведена змодельована залежність коефіцієнтів збирання світла від ефективної товщини сцинтиляційного шару на основі гранул розміром 200 мкм та оптичної основи з показником заломлення 1,80 та 1,40. Якщо показники заломлення гранул та оптичної основи рівні між собою, то різниця в коефіцієнтах збирання світла біля вхідної та вихідної поверхні композиційного шару є досить великою та збільшується із зростанням товщини шару (рис. 2.13).



Рисунок 2.13 – Коефіцієнти збирання світлу сцинтиляційних шарів: розмір гранул 200 мкм; *n*<sub>гранули</sub> = 1,8; *n*<sub>оптична основа</sub> = 1,8

Якщо показник заломлення оптичної основи дорівнює 1,40, то різниця коефіцієнтів збирання світла біля вхідної та вихідної поверхні стає меншою (рис. 2.14). Такий ефект пояснюється тим, що в товстих композиційних шарах (у даному випадку 2 мм, що складається з 10 шарів гранул розміром 200 мкм) при співвідношенні показників заломлення 1,80 – 1,40 прозорість композиційного шару є низькою, але коефіцієнти збирання світла збільшується внаслідок дифузного відбивання світла у віддаленій від фотоприймача частині шару. У разі співвідношення показників заломлення 1,80 – 1,80, прозорість композиційного шару зростає, але збирання світла погіршується за рахунок збільшення загальної товщини шару та розсіювання світла в об'ємі композиційного сцинтилятора.



Рисунок 2.14 – Коефіцієнти збирання світлу сцинтиляційних шарів: розмір гранул 200 мкм; *n*<sub>гранули</sub> = 1,8; *n*<sub>оптична основа</sub> = 1,4

Таким чином, під час виготовлення композиційних сцинтиляційних шарів товщиною від 1 мм та вище, що складаються з гранул розміром 100 – 500 мкм, коефіцієнт збирання світла підвищується на 17%, якщо показник заломлення оптичної основи 30%, ніж гранул. Цe нижче на У підтверджено для композиційних шарів, експериментальними даними виготовлених 3 ортосилікату ітрію, активованого церієм (YSO:Ce) з n = 1.80 та оптичних основ з *n* = 1,40 – 1,7 [98, 99, 101] (рис. 2.15).



Рисунок 2.15 – Амплітудні спектри композиційних шарів YSO:Се, опромінення джерелом <sup>241</sup>Am: 1 -  $n_{\text{оптична основа}} = 1,4$ ; 2 -  $n_{\text{оптична основа}} = 1,55$ ; 3 -  $n_{\text{оптична основа}} = 1,7$ 

Ha рисунку 2.15 амплітуд сцинтиляцій наведено спектри експериментальних зразків композиційних сцинтиляторів на основі гранул YSO:Ce (*n*=1,80) розміром 300-500 мкм та полісилоксанового клею СКТН-мед (n=1,40), епоксидного клею Magic Crystal (n=1,55) або акрилатного клею NOA 170 (n=1,70) в ході опромінення джерелом <sup>241</sup>Am (59,6 кеВ). Вимірювання проводилися на аналізаторі CANBERRA з використанням фотоприймача Hammamatsu R1307. Джерело випромінювання розташовували на відстані 50 мм від композиційного шару. Як можна бачити, найвищий світловий вихід має композиційний шар на основі гранул з показником заломлення 1,8 та оптичної основи з показником заломлення 1,4. Отримані експериментальні результати добре корелюють з результатами моделювання та підтверджують їх.

## 2.3 Розроблення технологічних процесів отримання сцинтиляційних гранул для виготовлення композиційних сцинтиляційних шарів

Для виготовлення композиційних сцинтиляційних шарів комбінованих детекторів необхідні гранули, що мають такі характеристики:

- світловий вихід більше 50 000 фотон/меВ для забезпечення високої ефективності реєстрації іонізуючого випромінювання;

- максимально прозора поверхня, за формою близькою до сферичної для оптимального збирання світла в об'ємі сцинтиляційного шару.

Як було зазначено в підрозділі 2.2 дані вимоги задовольняють сцинтилятори Cs:Tl та GAGG:Ce. Для отримання гранул CsI:Tl економічно доцільно використовувати кристалічну стружку після механічної обробки монокристалів. Але в цьому випадку поверхня гранул CsI:Tl є непрозорою через наявність порушеного кристалічного шару та залишків СОЖ, а гранули мають вигляд лусочок з кутами (рис. 2.16). Тому є необхідність в розробленні технологічних операцій підвищення прозорості поверхні гранул CsI:Tl та надання їм сферичної форми.



Рисунок 2.16 – Вигляд поверхні гранул CsI:Tl (кристалічна стружка)

Отримання гранул GAGG:Се методом твердофазного синтезу має такі переваги, як відсутність вартісної стадії вирощування монокристалів, а також можливість виготовлення гранул розміром до 15 мкм для забезпечення високої однорідності сцинтиляційних шарів комбінованих детекторів. Але зараз недостатньо даних щодо технології отримання гранул GAGG:Се методом твердофазного синтезу, тому наобхідно розробляти додаткові технологічні процеси з їх отримання.

## 2.3.1 Технологічні операції процесу хімічного полірування поверхні кристалічних гранул CsI:Tl

Хімічне полірування поверхні кристалічних гранул CsI:Tl базується на процесі обробки поверхневого шару гранул полярним розчинником, що містить OH-групу. Відомо, що CsI:Tl добре розчиняється в воді, етанолі, та слабко розчиняється в метанолі та етиленгліколі [102 – 104]. При виборі поліруючого розчинника визначаючими критеріями є його висока хімічна чистота та низька швидкість розчинення CsI:Tl. Останній параметр є важливим для запобігання зниження концентрації активатора талію в кристалічних гранулах CsI через випадіння нерозчинного в етиленгліколі йодиду талію у матковому розчині CsI:Tl.

Процес хімічного полірування включає такі етапи:

1. Отримання кристалічної стружки CsI:Tl після обробки відповідних кристалів на фрезерному верстаті. Концентрація талію в кристалічному матеріалі має бути в діапазоні 0,05 – 0,1 ваг.%

 Просіювання гранул через калібровані металеві сита та відбір фракції гранул з розмірами 100 – 500 мкм.

3. Змішування 100 г гранул CsI:Tl зі 100 г етиленгліколю кваліфікації "осч" у лабораторній склянці.

4. Перемішування суміші гранул з розчинником на магнітній мішалці протягом однієї хвилини на швидкості 400 об/мін. Фільтрування гранул CsI:Tl, використовуючи колбу Бунзена та воронку Шота (ПОР 16).

5. Переміщення гранул CsI:Tl в лабораторну склянку. Додавання нової порції розчинника масою 50 г.

6. Повторне перемішування суміші на магнітній мішалці протягом однієї хвилини на швидкості 400 об/мін. Фільтрування гранул CsI:Tl, використовуючи колбу Бунзена та воронку Шота (ПОР 16).

7. Переміщення гранул в CsI:Tl у випарну чашу зі скловуглецю. Просушування гранул у сушильній шафі при температурі 100<sup>о</sup>C та відносній вологості повітря 0 – 3% протягом чотирьох годин з періодичним перемішуванням до повного випаровування розчинника.

8. Просіювання гранул CsI:Tl через калібровані сита та відбір фракції гранул з розмірами 1 – 15 мкм для виготовлення комбінованих детекторів рентгенівської візуалізації або 63 – 300 мкм для виготовлення комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання.

9. Контроль гранулометричного складу гранул за допомогою оптичного мікроскопу Axiovert 40 MAT Carl Zeiss. Вигляд гранул після полірування показаний на рисунку 2.17.



Рисунок 2.17 – Форма гранул CsI:Tl розміром 63-100 мкм після оброблення етиленгліколем

10. Зберігання отриманих гранул CsI:Tl в герметичних алюмінізованих пакетах при температурі 20-23<sup>о</sup>С та відносній вологості повітря 0 – 3%

#### 2.3.2 Дослідження характеристик композиційних шарів CsI:Tl

Для дослідження впливу обробки поверхні гранул CsI:Tl на оптичні та сцинтиляційні характеристики композиційних шарів були виготовлені дослідні зразки композиційних сцинтиляторів CsI:Tl, що складалися з гранул розміром 63 – 300 мкм (80 ваг.%) та полісилоксанового каучуку СКТН-мед (20 ваг.%). Розмір гранул 63-300 мкм був обраний через оптимальний коефіцієнт використання матеріалу. Дослідні зразки мали розміри 20х20х0,98 мм<sup>3</sup>.

На рисунку 2.18 показано спектри пропускання сцинтиляційних композиційних шарів CsI:Tl до та після обробки етиленгліколем. Схема вимірювань була аналогічною, описаній в підрозділі 2.2. Як можна бачити, через покращення прозорості та форми гранул після полірування етиленгліколем прозорість зразків також збільшилася у 2,5 – 3 рази в інтервалі довжин хвиль 400 – 800 нм.



Рисунок 2.18 – Спектри пропускання композиційних шарів CsI:Tl (гранули 63 – 300 мкм, товщина 0,98 мм): 1 – поліровані гранули, 2 – необроблені гранули

Також була досліджена залежність світлового виходу композиційних сцинтиляторів CsI:Tl від стану поверхні гранул шляхом вимірювань амплітудних спектрів під час опромінення джерелами <sup>137</sup>Cs (рис. 2.19) та <sup>241</sup>Am (рис. 2.20). Схема вимірювань описана в підрозділі 2.2.



Рисунок 2.19 – Амплітудні спектри композиційних шарів CsI:Tl (гранули 63 – 300 мкм, товщина 0,98 мм) при опроміненні джерелом <sup>137</sup>Cs (33 кеВ): 1– поліровані гранули, 2 – необроблені гранули



Рисунок 2.20 – Амплітудні спектри композиційних шарів CsI:Tl (гранули 63-300 мкм, товщина 0,98 мм) при опроміненні джерелом <sup>241</sup>Am (17 кеВ, 59,6 кеВ):1 – поліровані гранули, 2 – необроблені гранули

Встановлено, що у разі використання полірованих гранул світловий вихід композиційних шарів CsI:Tl збільшується на 20 – 30% при ідентифікації радіонуклідів з енергією 17 – 59,6 кеВ.

Також експериментально визначено, що оптимальна товщина композиційного шару з полірованих гранул CsI:Tl розміром 63 – 300 мкм, що забезпечує найбільший світловий вихід під час опромінення джерелом <sup>241</sup>Am, дорівнює 1 мм (рис. 2.21).



Рисунок 2.21 – Залежність відносного світлового виходу композиційного шару CsI:Tl (гранули 63 – 300 мкм) від товщини (Εγ=59,6 кеВ)

# 2.3.3 Технологічні операції процесу отримання гранул GAGG:Се методом твердофазного синтезу

Метод твердофазного синтезу є найбільш простим та відносно дешевим способом отримання сцинтиляційних гранул GAGG:Ce<sup>2</sup>, що не вимагає використання реагентів, які можуть стати джерелом додаткових домішок.

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>Автор висловлює свою подяку заступнику завідувача відділу технології вирощування монокристалів Інституту сцинтиляційних матеріалів НАН України кандидату технічних наук Я.В. Герасимову за допомогу в проведенні синтезу зразків сцинтиляторів GAGG:Се, які були використані в дисертаційній роботі

Твердофазна реакція протікає при температурі 1650°С протягом тривалого періоду часу (до 10 годин). Це пов'язано з тим, що для її здійснення необхідна дифузія вихідних речовин в реакційну зону, а дифузія в твердих речовинах відбувається повільно. Швидкість твердофазної взаємодії збільшується зі зростанням температури і / або тиску. Твердофазний синтез гранул GAGG:Се проходить згідно з хімічною реакцією:

$$6Gd_2O_3 + 5Al_2O_3 + 5Ga_2O_3 \to 4Gd_3Al_{2,5}Ga_{2,5}O_{12}.$$
 (2.6)

Процес синтезу складається з таких етапів:

1. Прожарювання вихідних оксидів в іридієвому тиглі з метою видалення з поверхні оксидів абсорбованої води та діоксиду вуглецю для забезпечення точної стехіометрії в ході зважування.

2. Охолодження прожарених оксидів до кімнатної температури та зберігання в ексикаторі.

3. Зважування вихідних оксидів на лабораторних вагах з точністю вимірювання  $\pm$  0,01 г. Відповідно до хімічної реакції (2.6) для синтезу 1 кг GAGG з концентрацією церію 0,12 ат.% необхідно використати таку кількість оксидів: оксид гадолінію (Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) – 600,8 г; оксид алюмінію (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) – 138,4г; оксид галію (Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>); оксид церію (CeO<sub>2</sub>) – 60 г.

4. Ретельне змішування зважених оксидів та завантаження отриманої суміші в іридієвий тигель партіями по 100 г.

5. Розміщення тиглю в установці індукційного нагрівання "Кристал" з контролем температури за допомогою термопари Pt/PtRh.

6. Синтез GAGG:Се проводили при двох режимах нагрівання:

- при температурі 1350<sup>о</sup>С протягом 10 годин в атмосфері аргону;

- при температурі 1600<sup>о</sup>С протягом 10 годин в атмосфері аргону додатковим відпалом при температурі 1350<sup>о</sup>С протягом 4 годин на повітрі.

Зовнішній вигляд таблеток GAGG:Се, отриманих при вказаних температурах синтезу, показаний на рисунку 2.22.



Рисунок 2.22 – Вигляд таблеток GAGG:Се після твердофазного синтезу: а) температура відпалу 1350°С; б) температура відпалу 1600°С

Зразки GAGG:Се після відпалу 1350  $^{\rm O}$ С (рис. 2.22 а) є світлішими за кольором, що може бути результатом неповного переходу церію від Ce<sup>4+</sup> до оптично активного валентного стану Ce<sup>3+</sup>.

Фазовий склад отриманих порошків GAGG:Се визначали за допомогою автоматичного рентгенівського порошкового дифрактометра «Siemens D500» [105] з такими параметрами: випромінювання CuK, вигнутий графітовий монохроматор на зустрічному плечі,  $5 \le 2 \le 120^\circ$ ,  $2 = 0,02^\circ$ , час витримки 8 с на точку. Отримані дані оброблялися в програмному пакеті SHELX- 97 та програмі FullProf-2008.

На рисунку 2.23 наведена дифрактограма порошку GAGG:Се з концентрацією церію 0,12 ат %, синтезованого при температурі 1350°С.



Рисунок 2.23 – Дифрактограма шихти GAGG:Се, синтезованої при 1350°С

67

За результатами рентгенфазового аналізу склад основної фази галій гадолінієвого гранату склав 99,6%. Виходячи з рисунка 2.23, нагрівання при температурі 1350<sup>о</sup>С впродовж 10 годин достатньо для повного протікання твердофазної реакції GAGG:Ce.

На рисунку 2.24 наведена дифрактограма порошку, що був синтезований при температурі 1600 °С.



Рисунок 2.24 – Дифрактограма зразку шихти GAGG:Се, синтезованої при 1600°С

Як можна бачити, що окрім фази GAGG:Се в порошку присутня домішка у вигляді незначної кількості Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Наявність домішкової фази можна пояснити незначним випаровуванням Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> при температурах більших за 1500<sup>о</sup>С згідно з рівнянням хімічної реакції.

$$\operatorname{Ga}_2\operatorname{O}_3 \xrightarrow{T} \operatorname{Ga}_2\operatorname{O} + \operatorname{O}_2.$$
 (2.7)

Також для визначення оптимальної концентрації церію для забезпечення отримання шихти з максимально інтенсивною люмінесценцією був виготовлений ряд композиційних шарів з різною концентрацією церію: 0,02 ат%, 0,06 ат %, 0,08 ат. % 0,1 ат. %, 0,12 ат%, 0,15 ат %, 0,18 ат %, 0,3 ат. %, 0,5 ат. %, 0,7 ат. %,

0,9 ат. %. Синтез проводили при температурі 1600<sup>о</sup>С протягом 10 годин в аргоні. Після чого зразки додатково відпалювали при 1350<sup>о</sup>С протягом 4 годин.

#### 2.3.4 Дослідження характеристик композиційних шарів GAGG:Се

Спектри рентгенівської люмінесценції композиційних зразків GAGG:Ce, виготовлених з гранул, отриманих у ході синтезу при температурах 1350°C та 1600°C наведені на рисунку 2.25. Вміст з гранул складав 80 ваг.%. Як оптичний клей був використаний полісилоксановий каучук СКТН-мед у кількості 20 ваг.%). Композиційні зразки мали розміри 20х20х0,5 мм



Рисунок 2.25 – Нормовані спектри люмінесценції GAGG:Ce (Ce<sup>3+</sup>= 0,1ат.%): 1 – монокристал; 2 – композиційний шар (відпал 1600 <sup>O</sup>C); 3 – композційний шар (відпал 1350 <sup>O</sup>C)

У видимій області спектрів композиційних сцинтиляторів GAGG:Се присутня широка смуга люмінесценції з максимумом в області 550 нм, характерна для переходів церію в решітці GAGG:Се. Додаткові фази та світіння домішкових рідкоземельних іонів не були виявлені. Інтенсивність рентгенівської люмінесценції для зразка з гранул, синтезованих при температурі 1600<sup>о</sup>С, майже втричі більша, ніж для синтезованих при 1350<sup>о</sup>С. Це може бути пов'язано з наступними причинами. По-перше, температури 1350 <sup>о</sup>С недостатньо для

перетворення  $Ce^{4+}$  до  $Ce^{3+}$ . Оскільки  $Ce_2O_3 \in$  нестабільною на повітрі речовиною, то церій до шихти додають у вигляді CeO<sub>2</sub>. Під впливом температури та інертного середовища  $CeO_2$ відновлюється  $Ce_2O_3$ . Відомо. до шо y відновлювальній атмосфері CeO<sub>2</sub> перетворюється на Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub> в діапазоні температур 1250 °С – 1400 °С [106]. Тоді логічно припустити, що в інертній атмосфері цей діапазон дещо зрушиться у високотемпературну область. Другою причиною є те, що температури 1350°C недостатньо для енергії активації, що потрібно повідомити системі для заміщення іонів тривалентного гадолінію на іони тривалентного церію.

Спектри рентгенівської люмінесценції композиційних зразків з концентрацією церію 0,1 – 0,9 ат% наведені на рисунку 2.26. Найбільш інтенсивну люмінесценцію демонструє зразок з концентрацією церію 0,1 ат.%. Зі збільшенням концентрації церію інтенсивність люмінесценції зменшується ймовірно через концентраційне гасіння



Рисунок 2.26 – Нормовані спектри люмінесценції композиційних сцинтиляторів GAGG:Ce (концентрація Ce<sup>3+</sup>=0,1-0,9 ат.%)

Також додатково була вивчена концентраційна залежність інтенсивності люмінесценції композиційних сцинтиляторів GAGG:Се, виготовлених з гранул з концентрацією церію 0,05 – 0,18 ат %. Було встановлено, що максимальна

інтенсивність світіння в області 450 – 700 нм спостерігалась для композиційного сцинтилятору GAGG:Се з вмістом церію 0,12 ат.%. (рис. 2.27).



Рисунок 2.27 – Нормовані спектри люмінесценції композиційних сцинтиляторів GAGG:Ce (концентрація Ce<sup>3+</sup>=0,05 – 0,18 ат.%)

З подальшим збільшенням концентрації церію інтенсивність люмінесценції різко зменшувалася (рис.2.28).



Рисунок 2.28 – Залежність інтенсивності люмінесценції композиційних сцинтиляторів GAGG:Се від концентрації Се<sup>3+</sup>

### 2.4 Висновки до розділу 2

Запропоновані комбіновані детектори великої площі для реєстрації малих потоків іонізуючого випромінювання на основі сцинтиляційного сендвічу зі сцинтиляційного та світлопровідного шарів з неорганічних та органічних матеріалів.

Розроблена технологія з'єднання складових елементів комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання з площею вхідної поверхні від 1000 см<sup>2</sup> на основі оптично з'єднаних неорганічних та органічних матеріалів, що відрізняються за лінійними коефіцієнтами теплового розширення у 4,5 – 7 разів, яка забезпечує стабільність функціональних параметрів детекторів у температурному інтервалі від  $-50^{\circ}$ C до  $+70^{\circ}$ C. Визначено загальні умови, що мінімізують напруження в шарі оптичного полісилоксанового клею, що з'єднує шари сендвічу NaI:Tl – ПC: максимальний лінійний розмір пластин NaI:Tl дорівнює 350 мм; між пластинами NaI:Tl є технологічний зазор шириною 1 – 2 мм; товщина оптичного клею в сцинтиляційному сендвічі дорівнює 0,3 – 0,5 мм.

Розроблено технологічне забезпечення виготовлення композиційних сцинтиляцйних шарів комбінованих детекторів іонізуючого випромінювання. Визначені оптимальні умови збирання світла в композиційних шарах в залежності від розміру та форми гранул, а також показників заломлення гранул та оптичної основи. Розроблені технологічні процеси отримання полірованих гранул CsI:Tl та гранул GAGG:Ce, отриманих твердофазним синтезом, для виготовлення комбінованих детекторів великої площі, що реєструють фотони гаммавипромінювання та низькоенергетичних рентгенівських квантів (для візуалізації об'єктів).

Матеріали, що увійшли до цього розділу, опубліковано у роботах автора [115, 116, 118, 121, 122, 127].
# РОЗДІЛ З РОЗРОБЛЕННЯ ТЕХНОЛОГІЧНИХ ПРОЦЕСІВ ВИГОТОВЛЕННЯ КОМБІНОВАНИХ ДЕТЕКТОРІВ ВЕЛИКОЇ ПЛОЩІ ДЛЯ РЕЄСТРАЦІЇ ФОТОНІВ ГАММА-ВИПРОМІНЮВАННЯ

Як показав аналіз літературних джерел, зараз є затребуваними високоефективні детектори для РПМ, які здійснюють дистанційний радіаційний контроль об'єктів, що переміщуються. Однією з основних характеристик РПМ є чутливість реєстрації, яка показує можливість РПМ швидко та надійно виявляти джерела радіаційного забруднення. Математично чутливість обчислюється як відношення кількості імпульсів, що були зареєстровані приладом, до активності джерела та має розмірність імп/с·кБк.

У РПМ найчастіше використовують сцинтиляційні детектори на основі ПС або NaI:Tl. Перевагою детекторів на основі ПС є висока чутливість реєстрації фотонів гамма-квантів з енергією понад 300 кеВ, що обумовлено великою площиною сцинтилятора. Згідно з експериментальними даними, отриманими у даній роботі, чутливість реєстрації ПС у 2 – 3 рази вища, ніж у NaI:Tl (табл. 3.1). Але суттєвим недоліком ПС є відсутність в амплітудному спектрі пику повного поглинання та низька ефективність реєстрації фотонів гамма-випромінювання з низькою енергією. <sup>3</sup>Як можна бачити з даних таблиці 3.1, чутливість реєстрації фотонів гамма-випромінювання до 100кеВ у ПС в 1,5 – 3 рази нижча, ніж у NaI:Tl. Детектори на основі монокристалів NaI:Tl мають добрі спектрометричні характеристики, зокрема високу ефективність реєстрації фотонів гамма-квантів з енергією до 100 кеВ, але технологічні обмеження росту кристалів не дозволяють виробляти детектори великої площі.

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>Автор висловлює свою подяку старшому науковому співробітнику відділу впровадження науково-технічних розробок Інституту сцинтиляційних матеріалів НАН України кандидату технічних наук О.В. Колеснікову за вимірювання сцинтиляційних характеристик комбінованих детекторів гамма-випромінювання

| Снинтицатор               | Pozmin MM <sup>3</sup> | Чутливість, імп/с•кБк |                   |  |
|---------------------------|------------------------|-----------------------|-------------------|--|
| Сциптилитор               | т өзмір, мм            | <sup>241</sup> Am     | <sup>137</sup> Cs |  |
| Сцинтиляційний полістирол | 50x500x1000            | > 1.2                 | > 10              |  |
| Сцинтиляційний полістирол | 50x250x1000            | > 0.7                 | > 5               |  |
| Монокристал NaI:Tl        | 50x100x406             | > 2                   | > 3               |  |

Таблиця 3.1 – Чутливість реєстрації фотонів гамма-випромінювання під час опромінення джерелами <sup>241</sup>Am (59,6 кеВ) та <sup>137</sup>Cs (661 кеВ)

Тому зараз необхідно розробляти технологічні процеси виробництва комбінованих детекторів на основі сцинтиляційного сендвіча, що складається з шарів NaI:Tl та ПС та об'єднує в одному приладі переваги двох гамма-чутливих детекторів. Залежно від дизайну сцинтиляційного шару (монокристалічні пластини або композиційний сцинтлиятори) комбіновані детектори будуть реєструвати фотони гамма-квантів в лічильному та спектрометричному режимах.

# 3.1 Оптимізація розташування шарів NaI:Tl і сцинтиляційного полістирола в сендвічі комбінованого детектора

розташування шарів NaI:Tl i Для встановлення оптимального сцинтиляційного полістрола в сендвічі комбінованого детектора відносно положення радіаційного джерела шляхом порівняння відносної ефективності реєстрації, в роботі були виготовлені дослідні зразки комбінованих детекторів з довжиною та шириною вхідної поверхні 100 мм. Товщина шару NaI:Tl складала 3 мм та 5 мм, товщина шару ПС – 50 мм. Також були додатково протестовані комбінований детектор, що складався з оптично з'єднаних шарів NaI:Tl товщиною 5 мм та ПММА товщиною 50 мм, а також детектор на основі NaI:Tl товщиною 50 мм та детектор на основі ПС товщиною 50 мм. Під час проведення розрахунків комбінований детектор, опромінений зі сторони шару NaI:Tl з товщиною 5 мм, був прийнятий як еталон. Зовнішній вигляд експериментальних зразків на основі NaI:Tl і ПС (NaI:Tl – ПС) показаний на рисунку 3.1.





Рисунок 3.1 – Експериментальний зразок Рисунок 3.2 – Схема вимірювання NaI:Tl – ПС експериментального зразка NaI:Tl – ПС

Швидкість лічення комбінованих та еталонних детекторів вимірювали на аналізаторі імпульсів CANBERRA з використанням фотоелектронного помножувача (ФЕП) R1306. Джерела випромінювання <sup>241</sup>Am (активність 4600 кБк), <sup>137</sup>Cs (активність 140 кБк) <sup>232</sup>Th (активність 2800 кБк) та Pu-Be (активність ) були розташовані в центрі сцинтилятора зі сторони з розмірами 100х100 мм на відстані 100 см від детектора. Поріг реєстрації складав 0,5 кеВ. Схема вимірювань показана на рисунку 3.2.

Значення відносної ефективності реєстрації розраховані за рівнянням 3.1 та наведені у таблицях 3.2 – 3.7

$$\varepsilon_{rel} = (N_{comby} - N_{fon}) / (N_{ref} - N_{fon}), \qquad (3.1)$$

де  $N_{comby}$  – швидкість лічення комбінованого детектора;  $N_{ref}$  – швидкість лічення еталону детектора;  $N_{fon}$  – швидкість лічення фону.

Були розглянуті такі схеми опромінювання комбінованих детекторів Комбінований детектор складається з двох шарів NaI:Tl – ПС Радіаційне джерело розташовано зі сторони NaI:Tl.

У разі використання шару NaI:Tl товщиною 3 мм відносна ефективність комбінованого детектора нижче на 20%, порівняно з шаром NaI:Tl товщиною 5 мм (таб. 3.2).

Таблиця 3.2 – Відносна ефективність реєстрації (вхідна поверхня – шар NaI:Tl)

| *   | Nal PS |      | Джерело           | Відносна ефективність реєстрації |                      |  |
|-----|--------|------|-------------------|----------------------------------|----------------------|--|
| ×   |        |      |                   | NaI:Tl товщиною 3 мм             | NaI:Tl товщиною 5 мм |  |
| * * |        | 50mm | <sup>241</sup> Am | 0,81                             | 1,00                 |  |
| *   | •      | • •  | <sup>137</sup> Cs | 0,78                             | 1,00                 |  |
| ÷   |        |      | <sup>232</sup> Th | 0,81                             | 1,00                 |  |
|     |        |      | Pu-Be             | 0,83                             | 1,00                 |  |

Таким чином можна зробити висновок, що відносна ефективність реєстрації мало залежить від товщини NaI:Tl.

Комбінований детектор складається з двох шарів NaI:Tl – ПС

Радіаційне джерело розташовано зі сторони ПС.

Встановлено, що відносна ефективність реєстрації комбінованого детектора вище, якщо шар NaI:Tl розташований зі сторони опромінення радіаційним джерелом (вхідна поверхня детектору). Дані показані в таблицях 3.2 та 3.3.

| *<br>* | PS   | Nal | Джерело           | Відносна ефективність реєстрації |                      |  |
|--------|------|-----|-------------------|----------------------------------|----------------------|--|
| *      |      |     |                   | NaI:Tl товщиною 3 мм             | NaI:Tl товщиною 5 мм |  |
| *      | 50mm |     | <sup>241</sup> Am | 0,39                             | 0,42                 |  |
| ≯<br>≯ | ← →  |     | <sup>137</sup> Cs | 0,69                             | 0,72                 |  |
| ≻      |      |     | <sup>232</sup> Th | 0,66                             | 0,70                 |  |
|        |      |     | Pu-Be             | 0,51                             | 0,53                 |  |

Таблиця 3.3 – Відносна ефективність реєстрації (вхідна поверхня – шар ПС)

*Комбінований детектор складається з трьох шарів NaI:Tl – ПС – NaI:Tl* Радіаційне джерело розташовано зі сторони NaI:Tl.

На основі даних, наведених у таблиці 3.4 можна зробити висновок, що одночасне розташування шарів NaI:Tl зі сторони вхідної та вихідної поверхонь практично не впливає на відносну ефективність реєстрації комбінованого детектора.

| *           | Nal | PS       | Nal | Джерело           | Відносна ефективність реєстрації |                    |
|-------------|-----|----------|-----|-------------------|----------------------------------|--------------------|
| ~<br>~<br>~ |     | 50mm     |     |                   | Два шари NaI:Tl                  | Два шари NaI:Tl    |
| ≻<br>≯      |     | <b>↓</b> |     |                   | товщиною 3 мм                    | товщиною 5 мм      |
| ≯           |     |          |     |                   | (2 х 3 мм = 6 мм)                | (2 х 5 мм = 10 мм) |
| ≻           |     |          |     | <sup>241</sup> Am | 0,99                             | 1,00               |
|             |     |          |     | <sup>137</sup> Cs | 1,09                             | 1,10               |
|             |     |          |     | <sup>232</sup> Th | 1,06                             | 1,11               |
|             |     |          |     | Pu-Be             | 1,05                             | 1,07               |

Таблиця 3.4 – Відносна ефективність реєстрації (два шари NaI:Tl)

Комбінований детектор складається з двох шарів NaI:Tl – ПММА

Радіаційне джерело розташовано зі сторони NaI:Tl.

Встановлено, що використання несцинтиляційного світлопровідного шару з ПММА забезпечує таку ж саме ефективність реєстрації фотонів гаммавипромінювання, як і у випадку використання ПС або NaI:T1 (табл. 3.5, 3.6, 3.7) за рахунок виникнення в несцинтиляційному органічному матеріалі гамма-квантів зворотного розсіювання. Відносна ефективність реєстрації фотонів гаммавипромінювання з енергією віще 662 кеВ для комбінованого детектора NaI:T1 – ПММА складає 60% порівняно з ефективністю комбінованого детектора NaI:T1 – ПС та дорівнює 20 – 30% відносно ефективності детектора на основі монокристалу NaI:T1.

| Nal         | Light<br>guide | Джерело           | Відносна ефективність реєстрації,<br>NaI:Tl товшиною 5 мм |
|-------------|----------------|-------------------|---|
| ><br>><br>> | 50mm<br>◀──►   | <sup>241</sup> Am | 0,99  |
| >           |                | <sup>137</sup> Cs | 0,59  |
|             |                | <sup>232</sup> Th | 0,66  |
|             |                | Pu-Be             | 0,81  |

Таблиця 3.5 – Відносна ефективність реєстрації (світлопровідний шар – ПММА)

#### Детектор на основі NaI:Tl

| ≻ Nal                                    | Джерело           | Відносна ефективність реєстрації, |
|--|-------------------|-----------------------------------|
| *  |                   | NaI:Tl товщиною 50 мм             |
| <ul> <li>▶ 50m</li> <li>▶ ↓ ↓</li> </ul> | <sup>241</sup> Am | 1,00                              |
| * *                                      | <sup>137</sup> Cs | 1,87                              |
| <b>≯</b>                                 | <sup>232</sup> Th | 1,40                              |
|  | Pu-Be             | 0,92                              |

Таблиця 3.6 – Відносна ефективність реєстрації етектора NaI:Tl

### Детектор на основі ПС

Таблиця 3.7 – Відносна ефективність реєстрації детектора ПС

| ≻   | PS   | Джерело           | Відносна ефективність реєстрації, |
|-----|------|-------------------|-----------------------------------|
| * * |      |                   | ПС товщиною 50 мм                 |
| * * | 50mm | <sup>241</sup> Am | 0,12                              |
| * * |      | <sup>137</sup> Cs | 0,45                              |
| ¥¥  |      | <sup>232</sup> Th | 0,42                              |
|     |      | Pu-Be             | 0,13                              |

За результатами проведених досліджень можна зробити висновки:

- ефективність реєстрації вище, якщо шар NaI:Tl розташований зі сторони радіаційного джерела (вхідна поверхня);

- ефективність реєстрації мало залежить від товщини шару NaI:Tl;

- використання несцинтляційного світлопровідного шару з тонким шаром NaI:Tl забезпечує таку саме ефективність реєстрації фотонів гамма-квантів з низькоє енергією, як у детектора NaI:Tl з еквівалентним об'ємом сцинтилятора.

## 3.2 Математичне моделювання умов збирання світла в комбінованому детекторі на основі NaI:Tl і сцинтиляційного полістирола

Для оцінки перспективи об'єднання сцинтиляторів NaI:Tl та ПС в одному детекторі, що реєструє фотони гамма-випромінювання в діапазоні енергій 20 – 3000 кеВ, було проведено математичне моделювання сцинтиляційних процесів у комбінованому детекторі NaI:Tl – ПС з використанням методу Монте-Карло<sup>4</sup>.

Моделювання включало такі етапи:

- моделювання проходження світла за допомогою програми DETECT 2000, яка дозволяє розрахувати коефіцієнти збирання світла *k* в детекторах різної конфігурації.

В ході моделювання враховуються фізичні параметри матеріалів детектора (густина, показник заломлення), довжина пробігу фотонів, види обробки поверхні сцинтилятора (полірування, матування), форма поверхні сцинтилятору (циліндрична, прямокутна). На основні отриманних даних компонується декілька наборів об'ємів, обмежених поверхнями. Після цього задається місце виникнення сцинтиляційного спалаху з координатими x,y,z у діапазоні від 25 до 100 точок. Встановлюється кількість сцинтиляцій, що досягли фотоприймача. Після чого розраховуються коефіцієнти збирання світла k.

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup>Автор висловлює подяку завідувачу відділу сцинтиляційної радіометрії Інституту сцинтиляційних матеріалів НАН України доктору фізико-математичних наук В.О. Тарасову за допомогу в проведенні комп'ютерного моделювання сцинтиляційних процесів в комбінованих детекторів фотонів гамма-квантів, які були розроблені в дисертаційній роботі.

- розрахунок розподілу коефіцієнтів збирання світла в детекторі з використанням програмного пакета GAMMA 4SP на основі методу Монте Карло.

Використовується аналогічна конфігурація детектора, але з урахуванням вірогідності взаємодій матеріалу детектора з випромінюванням. Розраховується кількість енергії, що виділилося в точці взаємодії, а також кількість утворених фотонів, кількість фотонів, що були зареєстровані фотоприймачем, розраховуються на основі значень  $\tau$ . У ході моделювання "розмиття" фотонів фотоприймачем отримують амплітудний спектр детектора та підраховується кількість фотоелектронів в імпульсі (рис. 3.3).



Рисунок 3.3 – Скріншот інтерфейсу програми моделювання проходження світла в комбінованому детекторі NaI – ПС (55х100х1000 мм<sup>3</sup>)

На рисунку 3.4 наведені симульовані амплітудні спектри в ході реєстрації фотонів гамма-випромінювання різної енергії комбінованим детектором з шару NaI розміром 5x100x1000 мм<sup>3</sup> та шару ПС розміром 50x100x1000 мм<sup>3</sup>. Точкові джерела розташовуються на висоті 1 м над серединою великої грані зі сторони шару сцинтилятора NaI:Tl. Розраховані згідно з рівнянням 3.2 значення повних абсолютних ефективностей реєстрації  $\varepsilon_{abs}$  гамма-випромінювання з різною енергією комбінованим детектором NaI – ПС з розмірами 55x100x1000 мм<sup>3</sup> наведені в таблиці 3.8. У розрахунках враховані імпульси під усім спектром віднесені до усіх гамма-квантів, випущених джерелом. Точкові джерела розташовуються на висоті 1 м над серединою великої грані зі сторони шару

сцинтилятору NaI:Tl. Таким чином,  $\varepsilon_{abs}$  враховує частку випромінювання, яке попало на детектор (геометричний фактор) та долю випромінювання, яке провзаємодіяло у детекторі

$$\varepsilon_{abs} = N_r / N_s, \tag{3.2}$$

де  $N_r$  – кількість зареєстрованих частинок;  $N_s$  – кількість частинок від джерела.



Рисунок 3.4 – Симульовані амплітудні спектри в ході реєстрації гаммавипромінювання комбінованим детектором

Таблиця 3.8 – Абсолютна ефективність реєстрації детекторів

| різних | типів | (молелювання) | ) |
|--------|-------|---------------|---|
| PIJIMA | mind  | (тодолования) | ' |

| Е <sub>гамма</sub> , | Абсолютна ефективність реєстрації |                             |                            |  |  |  |  |
|----------------------|-----------------------------------|-----------------------------|----------------------------|--|--|--|--|
| кеВ                  | Комбінований детектор             | ПС                          | NaI:Tl                     |  |  |  |  |
|                      | 55х100х1000 мм <sup>3</sup>       | 50x100x1000 мм <sup>3</sup> | 50x100x400 мм <sup>3</sup> |  |  |  |  |
| 59,6                 | 0,006677                          | 0,001731                    | 0,002986                   |  |  |  |  |
| 122                  | 0,006355                          | 0,001563                    | 0,002999                   |  |  |  |  |
| 364                  | 0,003751                          | 0,001232                    | 0,002626                   |  |  |  |  |
| 662                  | 0,003033                          | 0,001043                    | 0,002199                   |  |  |  |  |
| 1460                 | 0,002171                          | 0,000749                    | 0,00171                    |  |  |  |  |
| 2614                 | 0,001751                          | 0,000578                    | 0,001495                   |  |  |  |  |
| 4430                 | 0,001411                          | 0,000442                    | 0,001401                   |  |  |  |  |

Для кількісної оцінки сцинтиляційних процесів також був використаний параметр відносної ефективності реєстрації радіонуклідів  $\varepsilon_{rel}$ . Результати моделювання показали, що комбінований детектор має відносну ефективність реєстрації фотонів гамма-квантів з енергією до 100 кеВ удвічі вище, ніж у детектора NaI:Tl з розмірами 50х100х400 мм<sup>3</sup> та в 4 рази вище, ніж у детектора на основі ПС з розмірами 50х100х1000 мм<sup>3</sup> (таб. 3.9).

## Таблиця 3.9 – Відносна ефективність реєстрації

#### комбінованого детектора (моделювання)

|        |                   | Відносна ефективність реєстрації |                       |  |  |  |
|--------|-------------------|----------------------------------|-----------------------|--|--|--|
| Е, кеВ | Ізотоп            | комбінованого детектору          |                       |  |  |  |
|        |                   | Еталонний детектор NaI:Tl        | Еталонний детектор ПС |  |  |  |
| 59,6   | <sup>241</sup> Am | 2,23                             | 3,86                  |  |  |  |
| 122    | <sup>57</sup> Co  | 2,12                             | 4,07                  |  |  |  |
| 662    | <sup>137</sup> Cs | 1,38                             | 2,91                  |  |  |  |
| 1460   | <sup>40</sup> K   | 1,27                             | 2,89                  |  |  |  |
| 2614   | <sup>232</sup> Th | 1,17                             | 3,03                  |  |  |  |

Поліпшену ефективність реєстрації комбінованого детектора можна пояснити принципом його роботи. Під дією гамма-джерела в ПС виникають фотони гамма-квантів зворотного розсіювання  $\gamma'$ , які потім реєструються в шарі NaI:Tl (рис. 3.5).



Рисунок 3.5 – Схематичне зображення сцинтиляційних процесів у комбінованому детекторі NaI – ПС

У результаті зазначених процесів, в амплітудному спектрі комбінованого детектору на основі шарів з NaI:Tl та ПС з'являється додатковий пік (рис. 3.6). Відповідно до розрахункових даних, кількість таких подій дорівнює близько 20%.



Рисунок 3.6 – Амплітудний спектр комбінованого детектора від джерела <sup>37</sup>Сs (результати моделювання)

Так, ідентифікація <sup>137</sup>Cs комбінованим детектором здійснюється за рахунок наявності в амплітудному спектрі піку повного поглинання від NaI:Tl ( $E\gamma = 662$  кеВ) та додаткового пику зворотного розсіювання в NaI:Tl та ПС ( $E\gamma = 290$  кеВ).

Отримані результати моделювання стали основою для розроблення технологічного процесу виготовлення комбінованих детекторів на основі шарів NaI:Tl та ПС з чутливістю реєстрації фотонів гамма-випромінювання з енергією 20 – 3000 кеВ вище, ніж у детекторів на основі NaI:Tl або ПС.

3.3 Розроблення технологічних процесів виготовлення лічильних і спектрометричних комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гаммавипромінювання на основі CsI:Tl і сцинтиляційного полістирола та NaI:Tl і сцинтиляційного полістирола

Проведені дослідження дозволили виготовити два типи комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання у лічильному та спектрометричному режимах, що схематично наведені на рисунку 3.7.



Рисунок 3.7 – Схема комбінованого детектору фотонів гамма-випромінювання (1 – світлопровідний шар з органічного матеріалу, 2 – шар з неорганічного матеріалу, 3 – відбивач світла, 4 – корпус, 5 – фотоелектронний помножувач

Перший тип комбінованого детектора мав габаритні розміри 60x100x1000 мм<sup>3</sup> та складався зі сцинтиляційного шару NaI:Tl та світлопровідного сцинтиляційного шару з ПС.

Технологічний процес виробництва комбінованих детекторів гаммавипромінювання, що складається з ПС марки UPS-923A та кристалічних пластин NaI:Tl, включає такі етапи:

1. Виготовлення заготовки ПС з розмірами 50х100х1000 мм<sup>3</sup> на стрічкопильному верстаті.

2. Фінішна обробка поверхні ПС на фрезерному верстаті шляхом одночасного використання твердосплавного та алмазного різців.

3. Механічне полірування усіх поверхонь заготовки ПС за допомогою дрібнодисперсних абразивів на основі оксиду алюмінію. Заготовка мала фінальні розміри 50x100x1000 мм<sup>3</sup>.

4. Виготовлення заготовок NaI:Tl розміром 110х350х10 мм<sup>3</sup> на нитяній пилі.

5. Шліфовка усіх поверхонь заготовок NaI:Tl на пласкошліфувальному верстаті з використанням водного розчинника.

6. Хімічне полірування усіх поверхонь заготовок NaI:Tl за допомогою сумішей на основі одноатомних аліфатичних спиртів.

7. Оптичне склеювання заготовок ПС та NaI:Tl. Технологічний зазор між монокристалічними пластинами NaI:Tl, необхідний для компенсації температурних розширень, складав 1 – 2 мм (рис. 3.8). Для оптичного склеювання шарів детектора використаний полісилоксановий гель СУРЕЛ-СЛ-1 з показником заломлення n= 1.40. Товщина оптичного контакту склала 0,3 – 0,5 мм.



Рисунок 3.8 – Вигляд сцинтиляційного сендвіча NaI:Tl – ПС

8. Формування шару дифузного відбивача світла на усіх поверхнях сендвіча NaI:Tl – ПС, окрім ділянки на стороні ПС з розмірами 50х100 мм<sup>2</sup>, на яку буде монтований фотоприймач.

9. Упаковка сендвіча NaI:Tl – ПС з відбивачем в світло- та вологозахисний корпус.

10. Монтаж одного фотоприймача R1306 Hamamatsu у світлозахисному корпусі на відкриту ділянку ПС з розмірами 50х100 мм<sup>2</sup> для реєстрації фотонів гамма-випромінювання в лічильному режимі. Монтаж двох фотоприймачів R1306 Hamamatsu у світлозахисному корпусі на відкриті ділянки ПС з розмірами 50х100 мм<sup>2</sup> для реєстрації фотонів гамма-випромінювання в спектрометричному режимі.

11. Вимірювання сцинтиляційних характеристик комбінованого детектора.

Другий тип комбінованого детектора був реалізований в дизайні композиційних сцинтилятор CsI:Tl – ПС. Технологічний процес виробництва комбінованих детекторів гамма-випромінювання, що складається з ПС марки UPS-923A та композиційного сцинтилятора CsI:Tl включає такі етапи:

1. Виготовлення та обробка поверхонь заготовки ПС з розмірами 50х500х1000 мм<sup>3</sup> за технологією, що описана у пунктах 1 – 3 для комбінованих

детекторів гама-випромінювання на основі сцинтиляційного ПС та кристалічних пластин NaI:Tl.

2. Отримання та розділення кристалічних гранул CsI:Tl з розміром 100 – 500 мкм, необхідних для виготовлення композиційного сцинтилятора Cs:Tl за допомогою набору каліброваних сит з розміром комірки 100 та 500 мкм.

3. Дворазове промивання гранул CsI:Tl з розміром 100-500 мікрон в етиленгліколі кваліфікації "осч" та висушування гранул при температурі +100<sup>0</sup>C та відносній вологості повітря 0 – 3% на протягом шести годин.

4. Відділення кристалічних гранул CsI:Tl з розміром 63 – 300 мікрон.

5. Виготовлення заготовок композиційного сцинтилятора CsI:Tl товщиною 1,0 мм. Для забезпечення оптимального збирання світла та високої механічної міцності для виготовлення сцинтиляційного шару був використаний полісилоксановий каучук СКТН-мед з показником заломлення *n* = 1.40.

6. Оптичне склеювання заготовки ПС та композиційних сцинтиляторів CsI:Tl, формування шару з дифузного відбивача світла та упаковка комбінованого сцинтилятора CsI:Tl – ПС з відбивачем в світло- та вологозахисний корпус за технологією, що описана у пунктах 7 – 9 для комбінованого детекторів гаммавипромінювання на основі сцинтиляційного ПС та кристалічних пластин NaI:Tl.



Рисунок 3.9 – Вигляд сцинтиляційного сендвіча CsI:Tl – ПС

7. Монтаж фотоприймача R1306 Hamamatsu у світлозахисному корпусі на відкриту ділянку ПС з розмірами 50х500 мм<sup>3</sup>.

8. Вимірювання сцинтиляційних характеристик комбінованого детектора.

3.4 Дослідження сцинтиляційних характеристик лічильних та спектрометричних комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гаммавипромінювання на основі CsI:Tl і сцинтиляційного полістирола та NaI:Tl і сцинтиляційного полістирола

Для дослідження сцинтиляційних характеристик комбінованих детекторів були використані такі еталонні детектори: на основі сцинтиляційного ПС з розмірами 50x100x1000 мм<sup>3</sup>, 50x500x1000 мм<sup>3</sup> та на основі кристалічного сцинтилятора NaI:Tl з розмірами 50x100x400 мм<sup>3</sup>.

Швидкість лічення комбінованих та еталонних детекторів вимірювали на аналізаторі імпульсів CANBERRA . Для двох ФЕП був використаний суматор імпульсів. Джерела випромінювання: <sup>241</sup>Am (активність 4600 кБк), <sup>137</sup>Cs (активність 140 кБк) та <sup>232</sup>Th (активність 2800 кБк) були розташовані в центрі сцинтилятору NaI:Tl або CsI:Tl на відстані 100 см від детектора. Поріг реєстрації складав 20 кеВ для детектора CsI:Tl – ПС та 0,5 кеВ для детекторів NaI:Tl – ПС.

Чутливість детекторів *η* визначалася за формулою:

$$\eta = \frac{N_{\text{det}} - N_{fon}}{A},\tag{3.3}$$

де  $N_{\text{det}}$  – швидкість лічення детектору,  $N_{\text{fon}}$  – фонова швидкість лічення, A – активність джерела.

Відносна ефективність реєстрації є визначалась за рівнянням:

$$\mathcal{E} = \frac{N_{\text{det}}}{N_{et}},\tag{3.4}$$

де N<sub>det</sub> – швидкість лічення комбінованого детектора, N<sub>et</sub> – швидкість лічення еталонного детектора,

Амплітудні спектри комбінованого детектора CsI:Tl – ПС порівняно з детектором на основі ПС наведені на рисунках 3.10 та 3.11.



Рисунок 3.10 – Амплітудні спектри детекторів на основі ПС та ПС–СsI:Tl під час опромінення джерелом <sup>137</sup>Cs



Рисунок 3.11 – Амплітудні спектри детекторів на основі ПС та ПС – CsI:Tl під час опромінення джерелом <sup>241</sup>Am

Форма амплітудних спектрів комбінованих детекторів CsI:Tl - ПС свідчить про те, що детектори даного типу можуть реєструвати фотони гамма-квантів виключно в лічильному режимі. Під час опромінення джерелом <sup>232</sup>Th різниця в швидкості лічення детекторів на основі ПС та комбінованого детектора

CsI:Tl – ПС склала не більше 2% через те, що товщина композиційного шару була замалою для реєстрації частинок з великою енергією.

Розраховані значення чутливості наведені в таблиці 3.10. Чутливість комбінованого детектора CsI:Tl – ПС на 22% вища під час опромінення джерелом <sup>137</sup>Cs та на 78% вища під час опромінення джерелом <sup>241</sup>Am, якщо порівняти з відповідними значеннями для детектора на основі ПС.

Таблиця 3.10 – Чутливість детекторів на основі ПС та CsI:Tl – ПС

| Тип детектору                  | Чутливість, імп/с·кБк |                   |
|--------------------------------|-----------------------|-------------------|
|                                | <sup>241</sup> Am     | <sup>137</sup> Cs |
| ПС (50х500х1000 мм)            | 7,64                  | 28,59             |
| CsI:Tl - ПС (50,5х100х1000 мм) | 13,65                 | 35,03             |

Амплітудні спектри комбінованого детектора NaI:Tl – ПС та еталонних детекторів ПС та NaI:Tl, отримані з використанням методу розділення сцинтиляційних імпульсів за формою, наведені на рисунках 3.12 – 3.14.



Рисунок 3.12 – Амплітудні спектри детекторів на основі ПС, NaI:Tl – ПС та NaI:Tl під час опромінення джерелом <sup>137</sup>Cs



Рисунок 3.13 – Амплітудні спектри детекторів на основі ПС, NaI:Tl – ПС та NaI:Tl під час опромінення джерелом <sup>241</sup>Am



Рисунок 3.14 – Амплітудні спектри детекторів на основі ПС, NaI:Tl – ПС та NaI:Tl під час опромінення джерелом <sup>232</sup>Th

Як бачимо, наявність в комбінованому детекторі сцинтиляційного шару з кристалічних пластин NaI:Tl на поверхні сцинтиляційного полістиролу призводить до появи в амплітудних спектрах детектора піків повного поглинання. Розраховані значення чутливостей показані в таблиці 3.11.

| Тип летектора                              | Чутливість, імп/с·кБк |                   |                   |  |
|--|-----------------------|-------------------|-------------------|--|
| Thin detektopu                             | <sup>241</sup> Am     | <sup>137</sup> Cs | <sup>232</sup> Th |  |
| ПС (50x100x1000 мм <sup>3</sup> )          | 0,15                  | 2,50              | 0,12              |  |
| NaI:Tl (50x100x400 мм <sup>3</sup> )       | 0,54                  | 3,23              | 0,14              |  |
| NaI:Tl - ПС (60x100x1000 мм <sup>3</sup> ) | 0,90                  | 4,22              | 0,21              |  |

Таблиця 3.11 – Чутливість детекторів на основі ПС, NaI:Tl – ПС та NaI:Tl

Найкращу чутливість має комбінований детектор NaI:Tl – ПC: на 68% вище порівняно з ПС та на 30% вище ніж у детектора NaI:Tl під час опромінення джерелом  $^{137}$ Cs; у 6 разів вищу порівняно з ПС та на 67% вищу, порівняно з NaI:Tl під час опромінення джерелом  $^{241}$ Am; на 75% вищу порівняно з ПС та на 50% вищу, порівняно з NaI:Tl під час опромінення джерелом  $^{232}$ Th.

Розраховані значення відносної ефективності реєстрації детекторів показані в таблиці 3.12.

Таблиця 3.12 – Відносна ефективність реєстрації детекторів на основі ПС,

| Тип детектора                              | <sup>137</sup> Cs | <sup>241</sup> Am | <sup>232</sup> Th |
|--|-------------------|-------------------|-------------------|
| ПС (50х100х1000 мм <sup>3</sup> )          | 1,0               | 1,0               | 1,0               |
| NaI:Tl (50x100x400 мм <sup>3</sup> )       | 1,3               | 5,8               | 1,1               |
| NaI:T1 - ПС (60х100х1000 мм <sup>3</sup> ) | 2,2               | 10,2              | 2,3               |

Як бачимо, відносна ефективність реєстрації комбінованого детектору NaI:Tl – ПС приблизно вдвічі вище, ніж у детекторів NaI:Tl та у 2 – 10 разів вище, якщо порівняти з детектором на основі ПС. Отримані експериментальні результати добре узгоджені з результатами математичного моделювання.

Дослідження сцинтиляційних характеристик спектрометричних комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гама-квантів NaI:Tl - ПС

В ході спектрометричного визначення радіонуклідів комбінованими детекторами на основі шарів NaI:Tl та ПС існує проблема перекриття спектрів від NaI:Tl та ПС в амплітудному спектрі комбінованого детектора (рис. 3.15).



Рисунок 3.15 – Амплітудні спектри комбінованого детектору

Для вирішення даної задачі був використаний метод розділення сцинтиляційного сигналу за формою імпульсу, що складається з системи збору даних, алгоритму відновлення базової лінії та алгоритму розділення сигналу за формою імпульсу.

1. Система збору даних.

Включає такі функціональні блоки модулі: високовольтний та перетворювач, дільник напруги, аналого-цифровий перетворювач (АЦП) та Схема програмовану логічну інтегральну схему (ПЛІС). живлення фотоелектронного помножувача **(ΦΕΠ)** складається 3 високовольтного дільника напруги. Високовольтний перетворювача та перетворювач € регульованим двотактним напівмостовим DC-DC перетворювачем з гальванічною розв'язкою. Діапазон вихідних напруг складає 0,2 – 2,0 кВ. Рекомендований розподіл потенціалів на динодах ФЕП створюється резистивним дільником напруги. Тип ФЕП, що був використаний – Hamamatsu R1306.

Для обробки сигналу використана плата ADC-SoC виробництва Terasic. Сигнал з аноду ФЕП через симетричний трансформатор подається на вхід АЦП AD9254. Параметри оцифрування: частота дискретизації 100 МГц, розрядність 14 біт. Управління АЦП та попередня обробка даних проводиться в ПЛІС Cyclone V SE5CSEMA4U23C6N (Altera). Особливістю Cyclone V є наявність на кристалі фізичного процесору Hard Processor System (HPS) в складі двох ядер ARM Cortex-A9, що працюють на частоті 925 МГц. Зв'язок з персональним комп'ютером здійснюється по інтерфейсу 1 Gigabit Ethernet за допомогою протоколу UDP.

2. Алгоритм відновлення базової лінії.

Відновлення базової лінії є одним з найважливіших етапів обробки сигналу сцинтиляційних детекторів. Від точності, що досягається на цьому етапі, залежить точність ідентифікації ізотопів. Саме точність визначення базової лінії головним чином визначає точність вимірювання амплітуди та енергії імпульсу. Серед досліджених варіантів найкращий результат показав алгоритм, який є комбінацією медіанного фільтра та фільтра середнього арифметичного. На першому етапі фільтрації провидиться сортування перших 45 відліків (450 нс), після чого відкидається 15 мінімальних та 15 максимальних значень. Залишені 15 значень усереднюють. Результат усереднення приймається за значення базової лінії.

3. Алгоритм розділення сигналів за формою імпульсу.

Згідно з фізичними процесами реєстрації фотонів гамма-квантів комбінованим детектором, ми очікуємо появлення на виході детектора імпульсів трьох різних типів.

Імпульси першого типу (type1) виникають внаслідок взаємодії гаммаквантів тільки з матеріалом ПС, при цьому взаємодії гамма-квантів з NaI:Tl не відбувається. Такий імпульс має характерний час наростання 10 нс та час загасання близько 30 нс (рис. 3.16).



Рисунок 3.16 – Форма сцинтиляційного імпульсу від ПС

Імпульси другого типу (type2) виникають внаслідок взаємодії гаммаквантів тільки з NaI:Tl, при цьому взаємодії гамма-квантів з ПС не відбувається. Такий імпульс має характерний час загасання близько 250 нс (рис. 3.17).



Рисунок 3.17 – Форма сцинтиляційного імпульсу від NaI:Tl

Імпульси третього типу (type3) виникають тоді, коли один гамма-квант взаємодіє як з NaI:Tl, так і з ПС. Такий імпульс є суперпозицією відгуку ПС та NaI:Tl (рис. 3.18, 3.19). Залежно від співвідношення вкладів ПС та NaI:Tl в сумарний сигнал, множина імпульсів третього типу розділяються на п'ять підтипів (type31 – type35).



Рисунок 3.18 – Форма сцинтиляційного імпульсу від ПС та NaI:Tl

одночасно, з переважним вкладом від ПС



Рисунок 3.19 – Форма сцинтиляційного імпульсу від ПС та NaI:Tl одночасно, з переважним вкладом від NaI:Tl

Як бачимо з даних рисунків, імпульси першого типу суттєво відрізняються за формою від імпульсів другого типу, тому їхнє розділення не є занадто складним. Інша ситуація виникає в ході дискримінації імпульсів другого та третього типів. Різниця між даними імпульсами менш помітна, але вона спостерігається як на фронті імпульсу (швидкість наростання ближча до імпульсів першого типу), а також на його спаді (час загасання ближче до імпульсів другого типу). Зазначимо, що використання подібних часових характеристик не дозволило з достатньою надійністю розрізняти імпульси різних типів. Для дискримінації імпульсів за формою використаний наївний баєсів класифікатор.

$$c(type_{j}) = \arg\max_{c \in C} P(c \mid a_{1}, a_{2}...a_{n}) = \arg\max_{c \in C} \left[ \ln(P(c)) + \sum_{t}^{N} \ln(P(a_{t} \mid c)) \right]$$
 (3.5)

де  $P(c|a_1,a_2,...a_n)$  – ймовірність того, що пред'явлений класифікатору імпульс a(t) належить класу c; C – множина типів імпульсів  $C = \{type1, type2, type31-type35\}$ ; P(c) – апріорна вірогідність появлення імпульсу класу c,  $P(a_t|c)$  – розподіл вірогідності того, що відлік сигналу в момент часу t приймає значення a для класу c.

На етапі навчання класифікатору було відібрано по 500 імпульсів кожного типу. За цими навчальними вибірками були отримані розподіли  $P(a_t|c)$ . Для усунення впливу амплітуди імпульсу на розподіл,  $P(a_t|c)$  всі імпульси були нормовані за амплітудою. Також було застосовано адитивне згладжування (2) для усунення нульових частот зустрічності відліків.

$$a_t = (a_t + \alpha)/(N + \alpha), \qquad (3.6)$$

де a – згладжена оцінка частоти зустрічальності відліку a в момент часу t;  $\alpha$  – "псевдовідлік"  $\alpha$  = 1; N – кількість імпульсів у вибірці.

Отримані дані стали основою для створення спектрометричних комбінованих детекторів NaI:Tl – ПС для пішохідних та автомобільних РПМ.

Розроблений комбінований детектор на основі сцинтиляційного сендвічу NaI:Tl – ПС з розмірами 60х100х1000 мм<sup>3</sup> показаний на рисунку 3.20.



Рисунок 3.20 – Спектрометричний комбінований детектор NaI:Tl – ПС фотонів гамма-випромінювання (для пішохідних РПМ)

У конструкції комбінованого детектора використовується два ФЕП Hamamatsu R1306 що забезпечує позиційну чутливість в ході реєстрації радіонуклідів (рис.3.21)



Рисунок 3.21 – Розподіл значень енергетичного розділення комбінованого детектора уздовж його довжини (джерело <sup>137</sup>Cs)

Використання додаткової обробки вхідної поверхні пластин NaI:Tl наждачним папером із зернистістю F1200 дозволило досягти однорідності світлового виходу по висоті комбінованого детектора не більше ніж ± 7% (рис. 3.22)



Рисунок 3.22 – Розподіл значень світлового виходу комбінованого детектора уздовж його довжини (джерело <sup>137</sup>Cs)

Запропоновані конструкторсько-технологічні рішення дозволили оптимізувати умови збирання світла в комбінованому детекторі, що разом з використанням методу розділення сцинтиляційного сигналу за формою імпульсу дозволило отримати енергетичне розділення комбінованого детектора 8,5% від колімованого джерела <sup>137</sup>Cs (рис. 3.23, табл. 3.13)



Рисунок 3.23 – Амплітудний спектр комбінованого детектора NaI:Tl – ПС (60х100х1000 мм<sup>3</sup>)

Комбінований детектор для автомобільних РПМ виготовлений на основі сцинтиляційного сендвіча NaI:Tl – ПС з розмірами 55х350х350 мм<sup>3</sup> (рис. 3.24)





Рисунок 3.24 – Спектрометричний комбінований детектор NaI:Tl – ПС фотонів гамма-випромінювання (для автомобільних РПМ)

У разі використання класичної схеми обробки сцинтиляційного сигналу, що включає високовольтний перетворювач, дільник напруги та аналізатор імпульсів, енергетичне розділення детектора складає 11,5% від колімованого джерела <sup>137</sup>Cs (рис. 3.25).



Рисунок 3.25 – Амплітудний спектр комбінованого детектора (55х350х350 мм<sup>3</sup>)

Чутливість реєстрації фотонів гамма-випромінювання від джерела <sup>137</sup>Cs комбінованим детектором для пішохідних та автомобільних портальних моніторів більше у 3 рази та 1,5 рази, відповідно, ніж у детекторів на основі ПС (табл. 3.13).

|   |                           | 127           |  |  |  |
|---|---------------------------|---------------|--|--|--|
|   | Джерело <sup>137</sup> Сs |               |  |  |  |
| T   | тт •                      | Г             |  |  |  |
| Гип детектора                                     | Чутливість,               | Енергетичне   |  |  |  |
|   | імп/с∙кБк                 | розділення, % |  |  |  |
| Пішохідний РПМ                                    |                           |               |  |  |  |
| ПС (50х100х1000 мм <sup>3</sup> )                 | 71                        | -             |  |  |  |
| NaI:Tl – ПС (60х100х1000 мм <sup>3</sup> , 2 ФЕП) | 259                       | 8,5           |  |  |  |
| Автомобільний РПМ                                 |                           |               |  |  |  |
| ПС (50x350x350 мм <sup>3</sup> )                  | 85                        | -             |  |  |  |
| NaI:Tl – ПС (55х350х3500 мм <sup>3</sup> , 1 ФЕП) | 128                       | 11,5          |  |  |  |

Таблиця 3.13 – Характеристики комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання

3.5 Температурні випробування лічильних і спектрометричних комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-квантів на основі CsI:Tl і сцинтиляційного полістирола та NaI:Tl і сцинтиляційного полістирола

Була проведена перевірка стабільності сцинтиляційних характеристик комбінованих детекторів NaI:Tl – ПС з розмірами сцинтиляційних сендвічей 60x100x1000 мм<sup>3</sup> та 55x350x350 мм<sup>3</sup> при температурах від -50<sup>o</sup>C до +70<sup>o</sup>C та відносній вологості повітря 40 – 60% згідно з програмою випробувань, описаній в підрозділі 2.1. Всього проведено 10 циклів нагрівання – охолодження протягом шести місяців. Сцинтиляційні характеристики комбінованих детекторів, виміряні після температурних випробувань, показані в таблиці 3.14.

Таблиця 3.14 – Сцинтиляційні характеристики комбінованих детекторів NaI:Tl – ПС після температурних випробувань в інтервалі -50<sup>o</sup>C – +70<sup>o</sup>C

| Тип детектора  | Номер<br>циклу | Джерело <sup>137</sup> Сs |               |
|--|----------------|---------------------------|---------------|
|  |                | Чутливість,               | Енергетичне   |
|  |                | імп/с•кБк                 | розділення, % |
| NaI:Tl – ПС<br>(60x100x1000 мм <sup>3</sup> , 2 ФЕП) | 1              | 264                       | 8,25          |
|  | 5              | 257                       | 8,39          |
|  | 10             | 259                       | 8,21          |
| NaI:Tl – ПС<br>(55x350x3500 мм <sup>3</sup> , 1 ФЕП) | 1              | 131                       | 11,43         |
|  | 5              | 125                       | 11,52         |
|  | 10             | 128                       | 11,50         |

Після температурних випробувань зміна сцинтиляційних параметрів комбінованих детекторів не перевищила 5%, тому можна зробити висновок, що розроблені технологічні процеси виготовлення складових елементів комбінованих детекторів великої площі забезпечують стабільність функціональних параметрів детекторів при температурах від  $-50^{\circ}$ C до  $+70^{\circ}$ C.

#### 3.6 Висновки до розділу 3

Визначено фізико-технічні параметри процесу виготовлення лічильних комбінованих детекторів великої площі на основі сцинтиляційних сендвічей NaI:Tl – ПС та CsI:Tl – ПС: чутливість реєстрації фотонів гамма-квантів з енергією 20 – 3000 кеВ підвищується на 30 – 80% порівняно з детекторами на основі монокристалу NaI:Tl або сцинтиляційного полістиролу, якщо товщина шару NaI:Tl дорівнює 5 –10 мм, а композиційний шар CsI:Tl товщиною 1 –2 мм складається з полірованих кристалічних гранул розміром 63 – 300 мкм;

Розроблено технологічний процес виробництва спектрометричних комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-випромінювання на основі монокристалічних пластин NaI:Tl та сцинтиляційного полістролу з площею вхідної поверхні від 1000 см<sup>2</sup>. Виготовлені детектори мають енергетичне розділення не більше 8,5% та ідентифікують радіонуклід <sup>137</sup>Cs за рахунок наявності в спектрі амплітуд імпульсів піку повного поглинання від NaI:Tl та сцинтиляційному полістиролі ( $E_{\gamma}$ = 290 кеВ). Неоднорідність світлового виходу детекторів по довжині не перевищує 7% за рахунок використання двох фотоприймачів та спеціальної обробки поверхонь сцинтиляторів.

Матеріали, що увійшли до цього розділу, опубліковано у роботах автора [114, 115, 118, 119, 120, 127].

#### РОЗДІЛ 4

# ТЕХНОЛОГІЯ ВИГОТОВЛЕННЯ СПЕКТРОМЕТРИЧНИХ КОМБІНОВАНИХ ДЕТЕКТОРІВ АЛЬФА- ТА БЕТА- ЧАСТИНОК ВЕЛИКОЇ ПЛОЩІ

# 4.1 Розроблення технологічного процесу виготовлення гетерогенного шару ZnSe:Al

Халькогенідні сцинтилятори на основі селеніду цинку, зокрема ZnSe:Al, є перспективним матеріалом для створення спектрометричних та лічильних альфата альфа-бета-детекторів з високою чутливістю реєстрації даного типу випромінювання. Перевагами ZnSe:Al порівняно з ZnS:Ag є квантовий вихід 65 000 фотон/MeB, рівень післясвітіння <0,05% після 3 мс, час висвічування ~1 мкс, значення альфа/бета відношення >0,8 та відсутність фосфоресценції [44, 93]. Також для виробництва альфа- та альфа-бета-детекторів можна використовувати кристали ZnSe:Al з механічними дефектами, з яких далі отримують дрібнодисперсні кристалічні порошки, кристалічні гранули заданого розміру та невеликі кристалічні сцинтилятори для спектрометричних детекторів. Таке використання матеріалу знижує кількість відходів на етапах механічної обробки кристалів та підвищує екологічність та економічність виробництва.

Залежно від дизайну, комбіновані детектори на основі сцинтиляційного шару ZnSe:Al та органічного світлопровідного шару можуть реєструвати сцинтиляційні імпульси в спектрометричному або лічильному режимах при середніх та великих потоках альфа- та бета- частинок. Спектральний діапазон люмінесценції ZnSe:Al (550 – 700 нм) дозволяє застосовувати як фотодетектор фотоелектронні помножувачі (ФЕП) та напівпровідникові фотоприймачі.

У ций роботі для виготовлення сцинтиляційного шару комбінованого детектора альфа- та бета-частинок були використані кристалічні гранули ZnSe:Al. Під час розробки дизайну шару були забезпечені такі вимоги до детектора, як висока чутливість реєстрації альфа- та бета-частинок, неоднорідність світлового виходу по площі детектора не більше ніж ±2%, відсутність фосфоресценції та можливість розділення сцинтиляційного сигналу від альфа- та бета-частинок за їхньою формою.

Було запропоновано конструкторське рішення, що забезпечило високу чутливість реєстрації альфа- та бета-частинок комбінованим детектором. У конструкції детектора був використаний гетерогенний сцинтиляційний шар ZnSe:Al, що складався з альфа-чутливого та бета-чутливого підшарів (рис. 4.1)



Рисунок 4.1 – Схематичне зображення гетерогенного шару ZnSe:Al з кристалічних гранул

Важливим моментом є розташування підшарів ZnSe:Al в конструкції детектора, а саме їхнє положення відносно радіоактивних джерел та фотоприймача. Для досягнення максимальної ефективності реєстрації альфачутливий шар має бути розташований на вхідній поверхні детектора для безперешкодної взаємодії з альфа-частинками. Бета-чутливий підшар, що є достатньо прозорим для виведення сцинтиляційного світла, формують на поверхні світлопровідного шару зі сторони фотоприймача.

В конструкці альфа-бета детекторів необхідно використовувати світловод, призначення якого полягає в збиранні та передачі на фотоприймач фотонів, що виникають в результаті взаємодії альфа-частинок з гранулами ZnSe:Al. Тому для виготовлення світловодів необхідно використовувати матеріали, які не мають полос поглинання в області люмінесценції сцинтлиятора, наприклад, поліефіри, полісульфони або акрилати [36].

Наявність несцинтиляційного світлопровідного шару з поліметилметакрилату (ПММА) в конструкції детектору забезпечує ефективне збирання світла зі сцинтиляційного шару ZnSe:Al, а також його механічну міцність. Для виготовлення детекторів був використаний ПММА марки CO-120 ГОСТ 10667-90 через відсутність у його спектрі домішок, що поглинають в інтервалі довжин хвиль 400 – 800 нм.



Рисунок 4.2 – Спектр пропускання зразка ПММА товщиною 6 мм

Таким чином, під час розробки альфа-бета чутливого шару на основі кристалічних гранул ZnSe:Al необхідно вирішити завдання підвищення чутливості реєстрації альфа- та бета-частинок комбінованим детектором порівняно з існуючими аналогами, виготовленими на основі люмінофору ZnS:Ag та сцинтиляційної пластмаси при збереженні необхідного діапазону вимірювань флюенсу альфа- та бета-частинок.

#### 4.1.1 Розроблення складу альфа-чутливого підшару ZnSe:Al

Довжина пробігу альфа-частинок з енергією 5 – 10 MeB у ZnSe:Al складає приблизно 20 – 50 мкм [107]. Як було визначено в роботі [114], для забезпечення оптимального збирання світла в гетерогенних системах, що розсіюють світло, кількість шарів гранул у сцинтиляційному шарі має бути не більше 10, а щільність

пакування гранул має складати 80 – 90 ваг. %. Тобто, для реєстрації альфачастинок з максимальною ефективність має сенс використовувати кристалічні гранули з розміром 5 – 50 мкм. Товщина сцинтиляційного шару при цьому не має перевищувати 100 мкм. Також у ході виготовлення шару важливо технологічно забезпечити високу щільність та однорідність розташування кристалічних гранул.

Для визначення оптимального значення чутливості реєстрації альфа-шару ZnSe:Al були виготовлені дослідні зразки комбінованих детекторів, що складалися з сцинтиляційного шару на основі гранул ZnSe:Al та світлопровідного шару з ПММА. Для досліджень були обрані наступні склади шару: розмір гранул від 5 до 40 мкм, вміст гранул від 58 до 82%, поверхнева щільність шару від 10,75 до 15,22 мг/см<sup>2</sup>. Як оптичне зв'язуюче гранул був обраний водорозчинний акриловий лак Triora [108], який не містить додаткових смуг поглинання в спектрі пропускання (рис. 4.3).



Рисунок 4.3 – Спектр пропускання водорозчинного лаку Trioira (товщина 0,1 мм)

Альфа-чутливий сцинтиляційний шар ZnSe:Al товщиною 0,1 мм був нанесений на оптично прозорий світлопровідний шар з ПММА.

Як було встановлено експериментально, підвищена чутливість детектора забезпечується тим, що поверхнева щільність альфа-чутливого шару ZnSe:Al складає 11,0 ± 0,25 мг/см<sup>2</sup>, розмір гранул дорівнює 5 – 15 мкм, а гранули з'єднані між собою водорозчинним акриловим лаком у співвідношенні складових:

ZnSe:Al – 60 – 80 мас. %, акриловий лак – решта. Зазначений склад шару забезпечує ефективне поглинання короткопробіжних альфа-частинок у шарі та конвертування енергії іонізуючої альфа-частинки в сцинтиляційний сигнал за рахунок наявності тонкого шару лаку та розвиненої поверхні гранул ZnSe:Al з високою концентрацією поверхневих точкових дефектів.

Було встановлено, що зменшення поверхневої щільності альфа-чутливого шару ZnSe:Al до рівня менш ніж 10,75 мг/см<sup>2</sup> призводить до збільшення неоднорідності чутливості альфа-детектора по площині більш ніж на ±1,5%, що є неприйнятним параметром для промислових детектуючих систем. Збільшення поверхневої щільності альфа-чутливого шару ZnSe:Al більш ніж 11,25 мг/см<sup>2</sup> є недоцільним через зниження його прозорості внаслідок чого альфа-детектор має гірші параметри чутливості порівняно з альфа-детектором, який має оптимальний склад альфа-чутливого шару.

Розмір гранул ZnSe:Al 5 – 15 мкм є оптимальним. Використання гранул з розміром більш ніж 15 мкм призводить до збільшення неоднорідності чутливості альфа-детектора по площині через погіршення однорідності поверхневого розподілу кристалічних гранул, що є непридатним для використання в системах альфа-детектування. Використання кристалічних гранул з розміром менш ніж 5 мкм є недоцільним через погіршення дифузної прозорості люмінофорного шару до власного випромінення та зниження чутливості альфа-детектора.

Використання як зв'язуючого водорозчинного акрилового лаку дозволяє ефективно поглинати альфа частинки безпосередньо в альфа-чутливому шарі внаслідок того, що під час полімеризації випаровується водний розчинник акрилового лаку та на поверхні ZnSe:Al утворюється тонкий шар лаку, який не суттєво впливає на величину чутливості альфа-детектора.

Експериментально визначено, що зменшення вмісту гранул ZnSe:Al менш ніж 60 мас.% є недоцільним через те, що збільшується товщина шару лаку на поверхні ZnSe:Al, що призводить до погіршення проникнення альфа-частинок у люмінофор та зменшення чутливості альфа-детектора. Збільшення вмісту гранул ZnSe:Al більш ніж 80 мас.% призводить до погіршення механічної міцності альфа-чутливого шару та до можливості його відокремлення від бета-чутливого шару детектора.

Таким чином, було встановлено що під час використання шарів ZnSe:Al товщиною 90 – 100 мкм, виготовлених з гранул розміром 5 – 15 мкм забезпечується високий рівень режекції альфа-частинок відносно бета-частинок та гамма-квантів за рахунок того, що відбувається повне поглинання альфа-частинок у сцинтиляційному шарі. При цьому бета-частинки та гамма-кванти пронизують шар практично без поглинання.

Дослідження сцинтиляційних характеристик альфа-чутливого підшару на основі гранул ZnSe:Al<sup>5</sup>

Вигляд альфа-чутливого шару на основі гранул ZnSe:Al показаний на рисунку 4.4.



Рисунок 4.4 – Альфа-чутливий підшар ZnSe:Al, нанесений на підкладку з ПММА для виготовлення альфа-детектора (Ø60x0,1 мм)

Чутливість та неоднорідність світлового виходу по площині для альфачутливого підшару детектора розраховували на основі вимірювань, зроблених на аналізаторі імпульсів CANBERRA.

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup>Автор висловлює свою подяку співробітнику відділу сцинтиляційної радіометрії Інституту сцинтиляційних матеріалів НАН України Ю.Д. Онуфрієву за вимірювання сцинтиляційних характеристик комбінованих детекторів альфа- та бета-частинок

Чутливість детекторів *η* визначалася згідно з рівнянням 3.3, наведеним в підрозділі 3.4. Як джерело випромінення альфа-частинок використовували ізотоп <sup>239</sup>Pu (активність 1140 кБк), Фотоприймачами були ФЕП R1307 Hamamatsu (максимум чутливості 420 нм) та R669 Hamamatsu (максимум чутливості 700 нм).

Амплітудний спектр альфа-чутливого шару на основі гранул ZnSe:Al товщиною 0,095 мм (розмір гранул 5 –15 мкм) під час опромінення джерелом <sup>239</sup>Pu показаний на рис. 4.5. Для вимірювань був використаний ФЕП R669 Нататаtsu. Форма амплітуд сцинтиляцій є близькою до розподілу Гаусса, але цього недостатньо для спектрометричного визначення радіонуклідів. Розроблений детектор може бути використаний для реєстрації альфа-частинок у режимі підрахунку імпульсів.



Рисунок 4.5 – Амплітудний спектр альфа-чутливого шару на основі гранул ZnSe:Al та воднорозчинного акрилатного лаку

У разі використання алкідо-акрилатного лаку [101] як оптичної основи для гранул ZnSe:Al розміром 5 – 15 мкм амплітудний спектр альфа-чутливого шару товщиною 0,096 мм під час опромінення джерелом <sup>239</sup>Pu мав експоненціальну форму (рис. 4.6), а чутливість реєстрації альфа-частинок зменшилася на 10% (табл. 4.1).


Рисунок 4.6 – Амплітудний спектр альфа-чутливого шару на основі гранул ZnSe:Al та алкідно-акрилатного лаку

Розраховані значення чутливості реєстрації розроблених альфа-чутливих шарів наведені в таблиці 4.1. Як можна бачити, через низьку спектральну узгодженість квантової ефективності фотоприймача R1307 та люмінесценції ZnSe:Al, в конструкції детектора краще використовувати ФЕП R669. У цьому випадку альфа-шар має чутливість на 15% кращу, ніж у аналога на основі ZnS:Ag.

| Travination | Tun op'gougopo        | Тип   | Чутливість,   | Піторотиро |
|-------------|-----------------------|-------|---------------|------------|
| люмінофор   | тип зв язуючого       | ФЕП   | імпульс•/с•Бк | лпература  |
| ZnSe:Al     | Водорозчинний акрилат | R1307 | 0,22          | -          |
| ZnSe:Al     | Водорозчинний акрилат | R669  | 0,35          | -          |
| ZnSe:Al     | Алкідно-акрилатний    | R669  | 0,32          |            |
| ZnS:Ag      | -                     | -     | >0,3          | [29]       |

Таблиця 4.1 – Параметри альфа-чутливого шару ZnSe:Al з діаметром активної поверхні 60 мм

Значення чутливості реєстрації альфа-шару ZnSe:Al з розміром гранул від 5 до 40 мкм, вмістом гранул від 58 до 82% та поверхневою щільністю шару від 10,75 до 15,22 мг/см<sup>2</sup> наведені в таблиці 4.2.

|           | Вміст    | Розмір    | Поверхнева     |                         | Неоднорідність |
|-----------|----------|-----------|----------------|-------------------------|----------------|
| Люмінофор | ZnSe:Al, | частинок, | щільність,     | Чутливість,<br>імп/с.Бк | світлового     |
|           | мас.%,   | МКМ       | $M\Gamma/cM^2$ |                         | виходу, %      |
| ZnSe:Al   | 76, 0    | 5-15      | 11,25          | 0,332                   | ±1,4           |
| ZnSe:Al   | 75,9     | 5-15      | 11,09          | 0,338                   | ±1,5           |
| ZnSe:Al   | 75,9     | 5-15      | 11,04          | 0,345                   | ±1,3           |
| ZnSe:Al   | 76,1     | 20-40     | 15,22          | 0,281                   | ±5,0           |
| ZnSe:Al   | 76, 0    | 1-5       | 10,96          | 0,215                   | ±1,5           |
| ZnSe:Al   | 76, 0    | 5-15      | 10,33          | 0,227                   | ±5,5           |
| ZnSe:Al   | 76, 1    | 5-15      | 13,41          | 0,132                   | ±1,5           |
| ZnSe:Al   | 58,0     | 5-15      | 10,75          | 0,246                   | ±2,2           |
| ZnSe:Al   | 82,0     | 5-15      | 11,35          | 0,295                   | ±1,6           |
| ZnS:Ag    | -        | 4-9       | 3,25           | 0,220                   | ±1,5           |

Таблиця 4.2 – Параметри альфа-чутливого підшару ZnSe:Al з діаметром активної поверхні 60 мм, ФЕП R669

З таблиці 4.2 видно, що чутливість реєстрації альфа-частинок сцинтиляційним шаром на основі гранул ZnSe:Al з розміром 5 – 15 мкм, вмістом гранул 76 ваг.% та поверхневою щільністю шару 11,0  $\pm$  0,25 мг/см<sup>2</sup> у 1,5 рази краще ніж у покриття на основі люмінофору ZnS:Ag під час вимірювання на ФЕП з максимумом чутливості 700 нм. Неоднорідність світлового виходу альфачутливого шару з вказаним складом та покриття ZnS:Ag є однаковою та не перевищує  $\pm 1,5\%$ .

#### 4.1.2 Розроблення складу бета-чутливого підшару ZnSe:Al

Довжина пробігу бета частинок  $l_{ZnSe}$  з енергією 2,2 MeB у монокристалі ZnSe:Al дорівнює приблизно 1,7 мм. Розрахунок був зроблений на основі рівняння:

$$l_{ZnSe} = \frac{l_{PS} \cdot d_{PS}}{d_{ZnSe}}, \qquad (4.1)$$

де  $l_{PS}$  – довжини пробігу бета частинок з енергією 2,2 МеВ в полістиролі, що дорівнює 9 мм;  $d_{ZnSe}$  та  $d_{PS}$  – значення густини ZnSe:A1 та полістиролу, що дорівнює 5.42 г/см<sup>3</sup> та 1.03 г/см<sup>3</sup>, відповідно [93, 109, 110].

Необхідно зазначити, що кристал ZnSe:Al товщиною 1,7 мм окрім альфата бета-частинок також реєструватиме фотони гамма-квантів. Тобто необхідно визначити оптимальну товщину бета-чутливого сцинтиляційного шару, що забезпечить максимальне поглинання бета-частинок, буде достатньо прозорим для виведення сцинтиляційного світла на фотоприймач та мати мінімальну ефективність реєстрації фотонів гамма-випромінювання. Експериментально встановлено, що товщина шару монокристалу, яка селективно реєструє тільки альфа- та бета-частинки дорівнює приблизно 1 мм. Для забезпечення однорідністі світового виходу комбінованого детектора не менше ніж 90% масова частка гранул ZnSe:Al має дорівнювати не менш ніж 80%. Відповідно до рівняння (4.1) товщина композиційного шару має бути 2,3 мм.

Було визначено експериментально, розмір гранул ZnSe:Al 100 – 140 мкм є оптимальним для виготовлення бета-чутливого підшару. Використання гранул з розміром більш ніж 140 мкм призводить до збільшення неоднорідності світлового виходу бета-шару альфа-детектора по площині через погіршення однорідності поверхневого розподілу кристалічних гранул (табл. 4.3). Також у цьому випадку на 20 – 30% збільшуються кількість відходів, що утворюється під час подрібнення монокристалічних злитків.

Використання кристалічних гранул з розміром менш ніж 100 мкм є недоцільним через погіршення прозорості сцинтиляційного шару до власного випромінювання та зниження швидкості лічення комбінованого детектору (табл. 4.3).

Залежність пропускання композиційного сцинтилятора ZnSe:Al на основі гранул 100 – 140 мкм від його товщини показана на рисунку. Дані отримані на

основі спектрів пропускання, виміряних на спектрофотометрі Shimazu 2450 із використанням інтегруючої сфери.



Рисунок 4.7 – Залежність пропускання композиційного сцинтилятора ZnSe:Al (100 – 140 мкм) від товщини на довжині хвилі 590 нм

Як бачимо, товщина шару 0,7 – 0,9 мм забезпечує пропусканя не менш ніж 11% світла на довжині хвилі 590 нм. Експериментально встановлено, зазначеної прозорості сцинтиляційного шару достатньо для виведення сцинтиляційного світла на фотоприймач.

Дослідження сцинтиляційних характеристик бета-чутливого підшару на основі гранул ZnSe:Al

Чутливість та неоднорідність світлового виходу по площині для бетачутливого підшару детектора розрахована на основі вимірювань, зроблених на імпульсів CANBERRA. Чутливість розрахована аналізаторі з рівнянням, наведеним підрозділі 3.4. Як джерело випромінення бета-частинок В <sup>90</sup>Sr-<sup>90</sup>Y (активність використовували ізотоп 120 кБк). Як фотоприймач використаний ФЕП R669.

Значення сцинтиляційних параметрів наведено в таблиці 4.3.

| Вміст ZnSe:Al, | Розмір        | Чутливість, | Неоднорідність       |
|----------------|---------------|-------------|----------------------|
| мас.%,         | частинок, мкм | імп/с.Бк    | світлового виходу, % |
| 80             | 100-140       | 0,26        | ±1,5                 |
| 80             | 63-100        | 0,21        | ±1,1                 |
| 80             | 140-200       | 0,29        | ±3,0                 |

Таблиця 4.3 – Параметри бета-чутливого підшару ZnSe:Al з діаметром активної поверхні 60 мм, ФЕП R669

На підставі отриманих результатів був визначений оптимальний склад матеріалів для виготовлення бета-чутливого сцинтиляційного підшару комбінованого детектора. Розмір кристалічних гранул ZnSe:Al має бути 100 – 140 мкм. Як оптичне зв'язуюче гранул необхідно використовувати водорозчинний акриловий лак Triora. Товщина шару складає 0,7 – 0,9 мм. Щільність пакування гранул дорівнює 80 ваг.%. Зазначений склад забезпечує ефективність реєстрації бета-частинок є ~ 30%, що відповідає функціональним параметрам комерційних бета-детекторів.

Загальний дизайн альфа-бета гетерогенного шару ZnSe:Al показаний на рисунку 4.8. Використання гранул розміром 5 – 15 мкм та 100 – 140 мкм забезпечує високу чутливість реєстрації альфа- та бета-частинок, а також має оптимальний коефіцієнт використання сцинтиляційної сировини.



Рисунок 4.8 – Схематичне зображення гетерогенного шару ZnSe:Al з кристалічних гранул (оптимальний склад)

4.2 Розроблення технологічних процесів виготовлення спектрометричних комбінованих детекторів альфа- та бета-частинок на основі гетерогенного шару ZnSe:Al

Для визначення оптимального складу гетерогенного сцинтиляційного шару ZnSe:Al, що забезпечує одночасну ефективну реєстрацію альфа- та бетачастинок, були виготовлені три детектори на основі гетерогенного композиційного сцинтилятора ZnSe:Al. Шар для реєстрації альфа-частинок товщиною 50 мкм, 80 мкм та 100 мкм складався з гранул розміром 5 – 15 мкм, 15 – 40 мкм або 40 – 63 мкм, відповідно. Бета-чутливий шар товщиною 0,7 мм складався з гранул 100 – 140 мкм.

Технологічний процес виготовлення комбінованих детекторів альфа-та бета частинок на основі кристалічних гранул ZnSe:Al складався з таких етапів:

1. Отримання кристалічних гранул ZnSe:Al шляхом механічного подрібнення монокристалів ZnSe:Al, просіювання гранул через калібровані сита та відбір фракції з такими розмірами: 40 – 63 мкм та 100 – 140 мкм. Промивання гранул у неполярному розчиннику та просушування гранул на фільтрувальному папері до повного випаровування розчинника.

2. Відбір фракції гранул з розміром менш ніж 40 мкм за допомогою каліброваного сита з відповідним розміром осередку.

3. Виготовлення водно-спиртової суспензії з відібраної фракції гранул. Послідовне пропускання суспензії через два сита з розміром осередку 5 мкм та 15 мкм. Просушування гранул розміром 5 – 15 мкм та 15 – 40 мкм на фільтрувальному папері до повного випаровування водно-спиртової суміші.

Виготовлення заготовки світлопровідного шару з ПММА діаметром
 60 – 200 мм на токарному верстаті.

5. Обробка пласких поверхонь світлопровідного шару на фрезерному верстаті шляхом одночасного використання твердосплавного та алмазного різців до отримання затребуваної висоти шару.

6. Полірування усіх поверхонь світлопровідного шару сумішшю, що має склад: оксид алюмінію – 18%, нітрат алюмінію – 2%, решта – 80%.

7. Нанесення світловідбиваючої фарби з вмістом ТіО<sub>2</sub> 30 ваг.% на бокову поверхню світлопровідного шару.

8. Змішування кристалічних гранул, розділених за фракціями, з водорозчинним акрилатним лаком у співвідношенні ZnSe:Al – 80 мас.%, лак – 20 ваг.%.

9. Розміщення світлопровідного шару з ПММА в технологічній оснастці. Нанесення першого шару суміші гранул 100 – 140 мкм з лаком на шар з ПММА у кількості, що забезпечує товщину першого шару 0,7 ± 0,02 мм. Витримка шару 24 години до повного випаровування розчинника лаку.

10. Нанесення другого шару з суміші гранул 5 – 15 мкм з лаком або 15 - 40 мкм або 40 - 63 мкм у співвідношенні: ZnSe:Al – 75 мас.%, лак – 25 ваг.%. у кількості, що забезпечує товщину другого шару  $0,05 \pm 0,01$  мм. Витримка шару 24 години до повного випаровування розчинника лаку. У разі використання для виготовлення другого шару гранул з розмірами 15 - 40 мкм та 40 - 63 мкм, його товщина має дорівнювати  $0,08 \pm 0,01$  мм та  $0,10 \pm 0,01$  мм, відповідно.

11. Монтаж світлозахисної металізованої з двох сторін ПЕТ плівки товщиною 2 мкм зі сторони гетерогенного шару ZnSe:Al. Монтаж ФЕП у світлозахисному корпусі з протилежної сторони світлопровідного шару з ПММА.

12. Вимірювання сцинтиляційних характеристик комбінованого детектора альфа- та бета-частинок.

4.3 Дослідження сцинтиляційних характеристик спектрометричних комбінованих детекторів альфа- та бета-частинок на основі гетерогенного шару ZnSe:Al

Вигляд комбінованого детектора для роздільної рестрації альфа- та бета-частинок показаний на рисунку 4.9.



Рисунок 4.9 – Комбінований детектор альфа- та бета-частинок на основі гетерогенного шару ZnSe:Al (Ø130x0,9 мм)

Амплітудні спектри комбінованих детекторів альфа- та бета-частинок, що складається з гетерогенного сцинтиляційного шару ZnSe:Al товщиною 0,85 - 0,90 мм та світлопровідного шару з ПММА при опроміненні джерелом <sup>239</sup>Pu та <sup>90</sup>Sr-<sup>90</sup>Y показані на рис. 4.10 – 4.12. Вимірювання проводилися на аналізаторі імпульсів CANBERRA з використанням ФЕП R669 Натать.



Рисунок 4.10 – Амплітудні спектри альфа-бета-детектора ZnSe:Al (гранули 5 –15 мкм і 100 – 140 мкм, товщина 0,85 мм) під час опромінення: 1 – <sup>90</sup>Sr-<sup>90</sup>Y; 2 – <sup>239</sup>Pu

Форма амплітуди сцинтиляцій від <sup>239</sup>Ри є найбільш близькою до розподілу Гаусса у детектора на основі гранул 5 – 15 мкм та 100 – 140 мкм. Але для цього детектора ми також бачимо найбільше перекриття спектрів альфа- та бетачастинок.

Максимально розділяє за енергією альфа- та бета-частинки від <sup>239</sup>Ри та <sup>90</sup>Sr-<sup>90</sup>Y детектор на основі гранул 40 – 63 мкм та 100 – 140 мкм. Також цей детектор має найвищу чутливість реєстрації альфа- та бета-частинок (табл. 4.4).



Рисунок 4.11 – Амплітудні спектри альфа-бета-детектора ZnSe:Al (гранули 15 –40 мкм та 100 – 140 мкм, товщина 0,88 мм) під час опромінення:  $1 - {}^{90}$ Sr- ${}^{90}$ Y;  $2 - {}^{239}$ Pu

1



Рисунок 4.12 – Амплітудні спектри альфа-бета-детектору ZnSe:Al (гранули 40 –63 мкм та 100 –140 мкм, товщина 0,90 мм) під час опромінення: 1 –<sup>90</sup>Sr-<sup>90</sup>Y; 2 –<sup>239</sup>Pu

| Люмінофор / розмір                     | Чутливість,<br>імпульс·/с·Бк |                                   | Неоднорідність<br>світлового виходу<br>по площині, % |                                   | Література |
|--|------------------------------|-----------------------------------|--|-----------------------------------|------------|
| транул                                 | <sup>239</sup> Pu            | <sup>90</sup> Sr- <sup>90</sup> Y | <sup>239</sup> Pu                                    | <sup>90</sup> Sr- <sup>90</sup> Y |            |
| ZnSe:Al / 5 – 15 мкм<br>100 – 140 мкм  | 0,29                         | 0,30                              | ±1,4   | ±1,2                              | -          |
| ZnSe:Al / 15 – 40 мкм<br>100 – 140 мкм | 0,30                         | 0,32                              | ±1,5   | ±1,4                              | -          |
| ZnSe:Al / 40 – 63 мкм<br>100 – 140 мкм | 0,32                         | 0,34                              | ±2,0   | ±2,2                              |            |
| ZnS:Ag з сцинтиляційною пластмасою     | >0,25                        | >0,3                              | -  | -                                 | [29]       |

Таблиця 4.4 – Параметри детектору альфа-бета-частинок ZnSe:Al

Також було проведено розділення сигналів від альфа- та бета-частинок за формою імпульсу. Вимірювальна схема для розділення сцинтиляційного сигналу від альфа- та бета-детекторів була така саме, як описано в розділі 3.5.

Для дискримінації імпульсів за формою був також використаний наївний Баєсів класифікатор. Розділення проводилося згідно з рівнянням (4.2).

$$c(type_{j}) = \arg\max_{c \in C} P(c \mid a_{1}, a_{2}...a_{n}) =$$

$$= \arg\max_{c \in C} \left[ \ln(P(c)) + \sum_{t}^{N} \ln(P(a_{t} \mid c)) \right]$$
(4.2)

де  $P(c|a_1,a_2,...a_n)$  – ймовірність того, що пред'явлений класифікатору імпульс a(t) належить класу c; C – множина типів імпульсів  $C=\{Alpha, Beta, Noise/Unrecognized\}$ ; P(c) – апріорна вірогідність появлення імпульсу класу c,  $P(a_t|c)$  – розподіл вірогідності того, що відлік сигналу в момент часу t приймає значення a для класу c.

На етапі навчання класифікатора було відібрано по 300 імпульсів кожного типу. За цими навчальними вибірками були отримані розподіли  $P(a_t|c)$ . Для усунення впливу амплітуди імпульсу на розподіл,  $P(a_t|c)$  всі імпульси були нормовані за амплітудою. Також було застосовано адитивне згладжування (4.3) для усунення нульових частот зустрічності відліків.

$$\hat{a}_t = (a_t + \alpha) / (N + \alpha) \tag{4.3}$$

де a – згладжена оцінка частоти зустрічальності відліку a в момент часу t;  $\alpha$  – псевдовідлік  $\alpha$  = 1; N – кількість імпульсів у вибірці.

Типові форми сцинтиляційних імпульсів, що виникають в детекторі ZnSe:Al від альфа-частинок (джерело <sup>239</sup>Pu) та бета-частинок (джерело <sup>90</sup>Sr-<sup>90</sup>Y) показані на рисуну 4.13. Як можна побачити, основна відмінність у формі імпульсів зосереджена на його початку. Сцинтиляційний імпульс від альфачастинок характеризується більшою швидкістю наростання фронту імпульсу і настільки ж різким падінням на рівень приблизно 2/3 амплітуди. Сцинтиляційний від бета-частинок дещо іншу форму фронту. Спочатку імпульс має спостерігається зростання до приблизно 2/3 амплітуди імпульсу, після чого йде етап відносно повільного зростання до досягнення максимуму імпульсу.



Рисунок 4.13 – Форма сцинтиляційного імпульсу від альфа-бета-детектора ZnSe:Al (гранули 40 – 63 мкм та 100 – 140 мкм, товщина 0,90 мм) під час опромінення: 1 - <sup>90</sup>Sr-<sup>90</sup>Y; 2 - <sup>239</sup>Pu

Відмінність у формі імпульсів від альфа- та бета-частинок обумовлена різним механізмом збудження та люмінесценції кристалічних гранул зарядженими частинками з різною масою. Сцинтиляційні імпульси від бетачастинок не містять швидкої компоненти та відрізняються від імпульсів від альфа-частинок за часом загасання. Це підтверджує те, що розроблений комбінований детектор селективно ідентифікує альфа- та бета-частинки.

## 4.4 Температурні випробування спектрометричних комбінованих детекторів альфа- та бета-частинок на основі гетерогенного шару ZnSe:Al

Була проведена перевірка стабільності сцинтиляційних характеристик комбінованих детекторів на основі гетерогенного шару ZnSe:Al з діаметром вихідної поверхні 130 мм при температурах від -50°C до +70°C та відносній вологості повітря 40 – 60% згідно з програмою випробувань, описаній в підрозділі 2.1. Всього проведено 10 циклів нагрівання-охолодження протягом чотирьох місяців. Сцинтиляційні характеристики після температурних випробувань показані в таблиці 4.5.

| Номер циклу | Чутливість, імп/с•кБк |                                   |  |
|-------------|-----------------------|-----------------------------------|--|
| 1           | <sup>239</sup> Pu     | <sup>90</sup> Sr- <sup>90</sup> Y |  |
| 1           | 0,31                  | 0,36                              |  |
| 5           | 0,33                  | 0,34                              |  |
| 10          | 0,32                  | 0,34                              |  |

Таблиця 4.5 – Чутливість комбінованих детекторів ZnSe:Al після температурних випробувань в інтервалі -50°C – +70°C

Після температурних випробувань чутливість комбінованих детекторів змінилася не більше, ніж на 6%, тому можна зробити висновок, що розроблені технологічні процеси виготовлення складових елементів комбінованих детекторів альфа-бета детекторів забезпечують стабільність функціональних параметрів детекторів при температурах від -50°С до +70°С.

#### 4.5 Висновки до розділу 4

Розроблено технологічне забезпечення виготовлення спектрометричних комбінованих детекторів з площею вхідної поверхні до 180 см<sup>2</sup> для роздільної реєстрації альфа- та бета-частинок на основі гетерогенних структур ZnSe:Al, що складаються з альфа-чутливого та бета-чутливого сцинтиляційних підшарів з гранул ZnSe:Al розміром 40 – 63 мкм та 100 – 140 мкм та водорозчинного акрилатного лаку, оптично з'єднаних з шаром ПММА.

Розроблений технологічний процес виготовлення детекторів забезпечує чутливість реєстрації альфа-частинок 0,32 імп/с·Бк ( $E_{\alpha} = 5157$  кеВ) та чутливість реєстрації бета-частинок 0,34 імп/с·Бк, ( $E_{\beta} = 546$  кеВ, 2274 кеВ) що на 26% та 14% більше, ніж у детекторів на основі ZnS:Ag, нанесеного на сцинтиляційну пластмасу.

Розроблений комбінований детектор розділяє імпульси від альфа- та бетачастинок, які відрізняються часом загасання.

Матеріали, що увійшли до цього розділу, опубліковано у роботах автора [117, 125, 126].

## РОЗДІЛ 5 ТЕХНОЛОГІЯ ВИГОТОВЛЕННЯ КОМБІНОВАНИХ ДЕТЕКТОРІВ ДЛЯ РЕЄСТРАЦІЇ ФОТОНІВ РЕНТГЕНІВСЬКОГО ВИПРОМІНЮВАННЯ (ДЛЯ ВІЗУАЛІЗАЦІЇ ОБ'ЄКТІВ)

### 5.1 Особливості виготовлення комбінованих детекторів для рентгенівської візуалізації на основі гранул GAGG:Се або CsI:Tl

Сучасні детекторні системи для рентгенівської візуалізації складаються з тонкошарового сцинтилятора, розміщеного на волоконно-оптичному світловоді та основі високочутливої CMOS або CCD фотоприймача на матриці. Широкоформатні багатоелементні матриці з високою чутливістю до фотонів рентгенівського випромінювання мають широке застосування в медичній діагностиці. Матриці є двомірною розбитою на осередки поверхнею. З їхньою допомогою формують цифрове зображення з високим просторовим розділенням та контрастністю на досить великій площі.

Під час розроблення комбінованих детекторів для рентгенівської візуалізації внутрішньої структури об'єктів було поставлено завдання створення детекторних систем, що мають такі параметри:

- високий світловий вихід;
- неоднорідність світлового виходу ±5%;
- просторове розділення більше ніж, 3,94 пар ліній/мм;
- поглинання фотонів рентгенівських квантів з енергією до 100 кеВ
- довгочасна стабільність характеристик.

Зазначені вимоги задовольняють комбіновані детектори для реєстрації фотонів рентгенівського випромінювання на основі сцинтиляційного шару з гранул GAGG:Ce або CsI:Tl, що оптично з'єднаний з оптоволоконним світловодом [111]. Схематичний вигляд комбінованого детектора для рентгенівської візуалізації показаний на рисунку 5.1.



Рисунок 5.1 – Схема комбінованого детектора для рентгенівської візуалізації

Для виготовлення сцинтиляційного шару були використані гранули GAGG:Ce, отримані твердофазним синтезом, та монокристалічні гранули CsI:Tl. Вибір матеріалу обумовлений високим світловим виходом сцинтиляторів, часом загасання до 1 мкм технологічною можливістю отримання гранул розміром до 15 мкм.

Вміст гранул у складі сцинтиляційного шару складав 80 ваг.%. Дана кількість заповнення забезпечує баланс між оптимальними умовами виведення сцинтиляційних спалахів зі сцинтиляційного шару детектора та ефективне поглинання рентгенівського випромінювання.

Для зв'язування сцинтиляційних гранул були використані оптично прозорі клейові матеріали СКТН- мед та Magic Crystal з показниками заломлення 1,40 та 1,55, відповідно.

Волоконно-оптичний світловод у конструкції комбінованого детектору виконує такі функції:

- забезпечує захист фоточутливого датчика від радіаційного випромінювання (особливо, якщо містить свинець), а також є селективним ізолятором;

- дозволяє отримати роздільну здатність детектора до 100 пар ліній/мм;

- може бути підкладкою для люмінофору та забезпечувати оптимальне виведення сцинтиляційного світла на фотодетектор. Але, треба враховувати, що не всі оптоволоконні світловоди сумісні з люмінофорами.

Схематичне зображення волоконно-оптичної пластини показано на рисунку 5.2.



Рисунок 5.2 – Схема волоконно-оптичної пластини

Під час виготовлення детекторів треба враховувати, що в процесі з'єднаня волоконно-оптичної пластини з мікросхемою фотодатчика зазвичай не можна точно поєднати кожен піксель датчика з окремим волокном світловоду, через недостатню регулярність розташування волокон у пластині світловоду. У цьому випадку кожен піксель отримує приблизно однакову кількість світла від кількох приєднаних волокон. Недоліком цього є виникнення в зображенні розмитості, яку зазвичай намагаються мінімізувати математичною обробкою сигналу.

## 5.2 Розроблення технологічних процесів, що підвищують прозорість та просторове розділення комбінованих детекторів для рентгенівської візуалізації на основі гранул GAGG:Ce

Підвищення світлового виходу і, як наслідок, покращення просторового розділення комбінованих детекторів для рентгенівської візуалізації було здійснено шляхом оптимізації концентрації активатора в сцинтиляційних гранулах та зменшення різниці показників матеріалів гранул та оптичного клею.

Значення просторового розділення (*SR*) комбінованих детекторів для рентгенівської візуалізації були розраховані згідно з рівнянням:

$$SR = 1 / D, \tag{5.1}$$

де *D* – сума діаметру дроту та відстані між дротами для EN 462-5 Duplex IQ.

Еталонний зразок EN 462-5 Duplex IQ, використаний для вимірювання нерізкості зображення на радіографічних знімках, складається з 13 пар дротів діаметром від 0,050 до 0,80 мм, що впаяні в пластикову підкладку.

Значення просторового розділення, що можуть бути отримані за допомогою еталонного зразка EN 462-5 Duplex IQ, розраховані на основі значень діаметрів відповідних дротів, наведені в таблиці 5.1.

| Номер | Діаметр дроту, | Діаметр дроту та         | Просторове розділення, |
|-------|----------------|--------------------------|------------------------|
| дроту | ММ             | відстань між дротами, мм | кількість пар ліній/мм |
| 13D   | 0,050          | 0,10                     | 10,00                  |
| 12D   | 0,065          | 0,13                     | 7,69                   |
| 11D   | 0,080          | 0,16                     | 6,25                   |
| 10D   | 0,10           | 0,20                     | 5,00                   |
| 9D    | 0,13           | 0,26                     | 3,85                   |
| 8D    | 0,16           | 0,32                     | 3,13                   |
| 7D    | 0,20           | 0,40                     | 2,50                   |
| 6D    | 0,25           | 0,50                     | 2,00                   |
| 5D    | 0,32           | 0,64                     | 1,56                   |
| 4D    | 0,40           | 0,80                     | 1,25                   |
| 3D    | 0,50           | 1,00                     | 1,00                   |
| 2D    | 0,63           | 1,26                     | 0,79                   |
| 1D    | 0,80           | 1,60                     | 0,63                   |

Таблиця 5.2 – Просторове розділення еталонного зразку EN 462-5 Duplex IQ

Стенд для реєстрації зображення від комбінованого детектора під впливом рентгенівського випромінювання складався з рентгенівського випромінювача, прозорого столу, дзеркала та цифрової фотокамери. Анодна напруга на рентгенівській трубці дорівнювала 80 кВт. Рентгенівський знімок еталону, отриманий за допомогою цифрової фотокамери Canon, розглядався при чотириразовому збільшенні, після чого визначалася максимальна пара дротів, яку можна було розрізнити як подвійну.

Підвищення просторового розділення комбінованих детекторів GAGG:Ce за рахунок оптимізації концентрації активатора

У пункті 2.3.4 було визначено, що оптимальна концентрація церію в сцинтиляційних гранулах GAGG:Ce, отриманих ТФС, становить 0,12 ат.%. На рисунку 5.3 наведена фотографія тіньових рентгенівських зображень еталонного зразка EN 462-5 Duplex IQ, отриманих за допомогою комбінованих детекторів GAGG:Ce, де концентрація церію складала 0,02 ат.% (рис. 5.3, а) та 0,12 ат.% (рис. 5.3, б)<sup>6</sup>. Як можна побачити, нижнє зображення є більш яскравим, тобто вміст 0,12 ат.% церію забезпечує більш високий світловий вихід.



Рисунок 5.3 – Тіньове рентгенівське зображення еталонного зразка EN 462-5 Duplex IQ, комбінований детектор GAGG:Ce: a) 0.02 ат.% Ce, б) 0.12 ат.% Ce

<sup>6</sup>Автор висловлює подяку науковому співробітнику відділу гетероструктурованих матеріалів Інституту сцинтиляційних матеріалів НАН України О.Д. Ополоніну за вимірювання сцинтиляційних характеристик комбінованих детекторів фотонів низькоенергетичних рентгенівських квантів Залежність значень просторового розділення комбінованих детекторів GAGG:Се від концентрації церію показана в таблиці 5.3. Результати добре корелюють з даними, отриманими у пункті 2.3.4 під час дослідження спектрів рентгенлюмінесценції композиційних сцинтиляторів GAGG:Се аналогічного складу...

Таблиця 5.3 – Залежність просторового розділення комбінованих детекторів GAGG:Се від концентрації церію

| Концентрація Ce <sup>3+</sup> , | Номер дроту | Просторове розділення, |
|---------------------------------|-------------|------------------------|
| ат.%                            |             | пара ліній/мм          |
| 0,02                            | 7D          | 2,50                   |
| 0,05                            | 7D          | 2,50                   |
| 0,08                            | 8D          | 3,13                   |
| 0,12                            | 9D          | 3,85                   |
| 0,15                            | 8D          | 3,13                   |
| 0,18                            | 8D          | 3,13                   |

Підвищення просторового розділення комбінованих детекторів GAGG:Ce CsI:Tl при зменшенні різниці показників матеріалів гранул та оптичного клею.

У розділі 2 було встановлено, що збирання світла в розсіюючих композиційних сцинтиляційних шарах можна значно покращити при зменшенні різниці показників заломлення матеріалів гранул та оптичного зв'язуючого. Для експериментальної перевірки даного твердження були виготовлені експериментальні зразки сцинтиляційних композиційних шарів товщиною 0,1 мм на основі гранул GAGG:Се та CsI:Tl, а також полісилоксанового клею СКТН-мед з показником заломлення n = 1,40 та епоксидного клею Magic Crystal з показником заломлення n = 1,55.

Абсорбційні характеристики отриманих зразків у діапазоні 190 –1100 нм визначалися за допомогою спектрофотометра SPECORD 40 AnalytikJena. Спектри

пропускання в ІЧ-області (400 –4000 см<sup>-1</sup>) реєструвалися ІЧ-Фур'є спектрофотометром IRAffinity-1(Shimadzu). Як було встановлено, зазначені оптичні клеї товщиною 0,1 – 0,5 мм мають пропускання більше ніж 93% в інтервалі довжин хвиль 400 – 800 нм (рис. 5.4). Також у зазначеному хвильовому діапазоні відсутні будь-які полоси поглинання.



Рисунок 5.4 – Спектри пропускання світла зразків СКТН-мед та Magic Crystal товщиною 0,1 мм

Дослідження спектрів люмінесценції зразків оптичного клею під час збудження фотонів в діапазоні 200 – 850 нм здійснювалися за допомогою комбінованого спектрофлюориметру FLS 920 Edinburgh Instruments. Як джерело збудження використовувалася ксенонова лампа з дуговим розрядом Xe 900 450W. Приймачем випромінювання в діапазоні від 200 до 850 нм слугував фотопомножувач Нататаtsu R1527. У спектрах фотолюмінісценції СКТН-мед та Magic Crystal присутні смуги люмінесценції з максимумом в області 320 – 350 нм (рис. 5.5). При цьому в області світіння сцинтиляторів CsI:Tl та GAGG:Ce 530 – 550 нм будь-які смуги люмінесценції відсутні.



Рисунок 5.5 - Спектри фотолюмінесценції: а) СКТН-мед; б) Magic Crystal

На рисунку 5.6 наведена фотографія тіньових рентгенівських зображень еталонного зразка EN 462-5 Duplex IQ, отриманих за допомогою комбінованих детекторів GAGG:Се та CsI:Tl, виготовлених з використанням клею СКТН-мед та Magic Crystal. Як можна побачити, верхнє зображення (рис. 5.6, а) є більш яскравим, ніж нижнє (рис. 5.6, б).



Рисунок 5.6 – Тіньове рентгенівське зображення еталонного зразка EN 462-5 Duplex IQ, комбінований детектор GAGG:Ce: a) *n*<sub>клей</sub>=1.55; б) *n*<sub>клей</sub>=1.40

При збільшенні показника заломлення клею з 1,40 до 1,55 просторове розділення комбінованого детектора також підвищується на 30% внаслідок підвищення прозорості композиційного шару GAGG:Се (табл. 5.4 та 5.5).

Таблиця 5.4 – Залежність просторового розділення комбінованих детекторів GAGG:Се від показника заломлення оптичного клею

| Показник заломлення |               | Номер дроту | Просторове розділення, |
|---------------------|---------------|-------------|------------------------|
| GAGG:Ce             | Оптичний клей |             | пара ліній/мм          |
| 1,80                | 1,40          | 9D          | 3,85                   |
| 1,80                | 1,55          | 10D         | 5,00                   |

Таблиця 5.5 – Залежність просторового розділення комбінованих детекторів CsI:Tl від показника заломлення оптичного клею

| Показник заломлення |               | Номер дроту | Просторове розділення, |
|---------------------|---------------|-------------|------------------------|
| CsI:Tl              | Оптичний клей |             | пара ліній/мм          |
| 1,80                | 1,40          | 9D          | 3,85                   |
| 1,80                | 1,55          | 10D         | 5,00                   |

Способи підвищення ефективної товщини сцинтиляційного шару комбінованого детектора для рентгенівської візуалізації

Завдання підвищення ефективної товщини сцинтиляційного шару комбінованого детектора було вирішене за рахунок використання волоконнооптичного світловоду марки B7D61-6 (INCOM, Inc.), спектр оптичного пропускання якого [111] наведено на рисунку 5.7.



Рисунок 5.7 – Спектр пропускання волоконно-оптичного світловоду B7D61-6

Використання волоконно-оптичного світловоду дозволило збільшити просторове розділення сцинтиляційних шарів GAGG:Се товщиною 0,1 – 0,25 мм на 25% (табл. 5.6)

|           | Товщина         | Hower | Просторове    | Неоднорідність |
|-----------|-----------------|-------|---------------|----------------|
| Світловод | сцинтиляційного | помер | розділення,   | світлового     |
|           | шару, мм        | дроту | пара ліній/мм | виходу, %      |
| Немає     | 0,10            | 8D    | 3,13          | 7              |
| FOP       | 0,10            | 9D    | 3,85          | 6              |
| Немає     | 0,25            | 6D    | 2,00          | 5              |
| FOP       | 0,25            | 7D    | 2,50          | 5              |

Таблиця 5.6 – Просторове розділення детекторів GAGG:Се

# 5.3 Розроблення технологічних етапів виготовлення комбінованих детекторів для рентгенівської візуалізації на основі гранул GAGG:Се або CsI:Tl

Технологічний процес виготовлення комбінованих детекторів з гранул GAGG:Се або CsI:Tl складається з таких етапів:

1. Отримання сцинтиляційних гранул.

2. Виготовлення композиційного сцинтиляційного шару.

3. Формування відбивача світла.

4. Склеювання сцинтиляційного шару зі світлопровідним шаром (волоконно-оптичною пластиною).

5. Монтаж фотоприймача

6. Монтаж захисного корпусу.

#### Отримання сцинтиляційних гранул

Отримання сцинтиляційних гранул CsI:Tl або GAGG:Се розміром 1–15 мкм проводиться згідно з методиками, описаним в пунктах 2.3.1 та 2.3.3.

1. Підготувати технологічну форму для виготовлення композиційного шару: знежирити поверхні форми шляхом послідовної обробки етилацетатом та ізопропіловим спиртом, сформувати шар захисної поліетиленової плівки.

2. У разі використання оптичного клею СКТН-мед, зважити сцинтиляційні гранули та основну компоненту оптичного клею СКТН-мед з в'язкістю 5 – 20 пуаз у скляній чашці на лабораторних вагах з точністю зважування 0,01 г у співвідношенні: гранули – 80 ваг.%, клей – 19 ваг.%. Ретельно перемішати компоненти в скляній чашці протягом п'яти хвилин за допомогою скальпелю або шпателю для рівномірного змочування поверхні гранул оптичним клеєм.

3. Розмістити скляну чашку з сумішшю на лабораторних вагах з точністю зважування 0,01 г. Додати затверджувач оптичного клею К-68 у співвідношенні: суміш з гранул з СКТН-мед – 99 ваг.%, К-68 – 1 ваг.%. Ретельно перемішати компоненти в скляній чашці протягом однієї хвилини за допомогою скальпелю. Приклади розрахованої кількості компонентів для виготовлення композиційного шару з розмірами 200х200х0,1 мм та 20х30 мм наведені в таблиці 5.7.

Таблиця 5.7 – Кількості компонентів для виготовлення композиційних шарів комбінованих детекторів для рентгенівської візуалізації

| Розмір композиційного | Маса компонентів, г        |          |                  |  |
|-----------------------|----------------------------|----------|------------------|--|
| сцинтиляційного шару  | Гранули<br>GAGG:Ce /CsI:Tl | СКТН-мед | Каталізатор К-68 |  |
| 200х200х0,1 мм        | 32                         | 7,6      | 0,4              |  |
| 30х20х0,1 мм          | 4                          | 0,95     | 0,05             |  |

4. У разі використання оптичного клею Magic Crystal, зважити в скляній чашці сцинтиляційні гранули та оптичний клей Magic Crystal (компонент 1) на лабораторних вагах з точністю зважування 0,01 г у співвідношенні: гранули – 80 ваг.%, клей – 19 ваг.%. Ретельно перемішати компоненти в скляній чашці

протягом п'яти хвилин за допомогою скальпелю або шпателю для рівномірного змочування поверхні гранул оптичним клеєм.

5. Розмістити скляну чашку з сумішшю на лабораторних вагах з точністю зважування 0,01 г. Додати оптичний клей Magic Crystal (компонент 2) у співвідношенні: суміш з гранул з компонентом 1 – 99 ваг.%, компонент 2 – 1 ваг.%. Ретельно перемішати компоненти в скляній чашці протягом 1 хвилин за допомогою скальпелю. Приклади розрахованої кількості компонентів для виготовлення композиційного шару з розмірами 200х200х0,1 мм та 20х30 мм наведені в таблиці 5.8

Таблиця 5.8 – Кількості компонентів для виготовлення композиційних шарів комбінованих детекторів для рентгенівської візуалізації

| Розмір композиційного | Маса компонентів, г |               |               |  |
|-----------------------|---------------------|---------------|---------------|--|
|                       | Гранули             | Magic Crystal | Magic Crystal |  |
| сцинтиляциного шару   | GAGG:Ce /CsI:Tl     | (компонент 1) | (компонент 2) |  |
| 200х200х0,1 мм        | 32                  | 5,4           | 2,7           |  |
| 30х20х0,1 мм          | 4                   | 0,67          | 0,33          |  |

 Розмістити композиційну суміш у технологічній формі шаром товщиною 2 – 3 мм. Провести дегазацію композиційної суміші в вакуумній шафі протягом п'яти хвилин.

7. Встановити дистанційні підкладки в технологічній формі для забезпечення товщини композиційного шару 0,1 мм. Провести технологічну витримку композиційної суміші протягом 24 годин для полімеризації оптичного клею.

8. Отримати заготовку композиційного сцинтиляційного шару з технологічної форми. Провести контроль товщини за допомогою штангенциркуля з точністю вимірювання 0,01 мм.

9. Вирізати заготовки композиційного сцинтиляційного шару з лінійними розмірами 200х200 мм або 30х25 мм за допомогою шаблону та ножу. Вигляд сцинтиляційних шарів GAGG:Се та CsI:Tl показаний на рисунку 5.8.



Рисунок 5.8 – Сцинтиляційні шарів GAGG:Се та CsI:Тl товщиною 100 мкм

Формування відбивача світла (алюмінізованої плівки)

1. Вирізати заготовку алюмінізованої плівки з лінійними розмірами 200х200 мм або 30х25 мм за допомогою шаблону та ножа.

2. На відстані 10 мм від краю зняти захисну підкладку алюмінізованої плівки та приклеїти її край на композиційний сцинтиляційний шар.

3. Сформувати шар алюмінізованої плівки на поверхні композиційного сцинтиляційного шару за допомогою гумового валика, одночасно знімаючи захисну підкладку. Поверхня відбивача має щільно прилягати до шару сцинтилятора. Провести контроль товщини за допомогою штангенциркуля з точністю вимірювання 0,01 мм.

Склеювання сцинтиляційного шару зі світлопровідним шаром (волоконнооптичною пластиною)

1. У разі використання оптичного клею СКТН-мед в'язкістю 5 – 20 пуаз розмістити скляний стакан на лабораторних вагах з точністю зважування 0,01 г. Зважити основну компоненту СКТН-мед та каталізатор К-68 у співвідношенні: СКТН-мед – 95 ваг. %, К-68 – 5 ваг. %. Ретельно перемішати компоненти в

стакані протягом однієї хвилини за допомогою скальпелю. Провести дегазацію оптичного клею в вакуумній шафі протягом 3 – 5 хвилин.

2. У разі використання оптичного клею Magic Crystal розмістити скляний стакан на лабораторних вагах з точністю зважування 0,01 г. Зважити дві компоненти клею у співвідношенні: компонента 1 –2 вагові частини, компонента 2 – 1 вагова частина Ретельно перемішати компоненти в стакані протягом однієї хвилини за допомогою скальпелю. Провести дегазацію оптичного клею у вакуумній шафі протягом 5 – 10 хвилин.

3. Помістити оптоволоконну пластину товщиною 1,5 мм у технологічну центруючу форму та нанести на її поверхню тонкий шар оптичного клею за допомогою скальпелю. З'єднати сцинтиляційний шар з оптоволоконною пластиною та зафіксувати отриману конструкцію. Провести технологічну витримку клею протягом 24 годин. Вигляд сцинтиляційного та світлопровідного шарів з лінійними розмірами 25х35 мм до та після склеювання показаний на рисунку 5.9



Рисунок 5.9 – Сцинтиляційний сендвіч на основі композиційного шару та волоконно-оптичної пластини

#### Монтаж фотоприймача та захисного корпусу

Тип фотоприймача, а також матеріал та конструкція корпусу детектора визначається згідно з вимогами до детекторної системи.

# 5.4 Дослідження сцинтиляційних характеристик комбінованих детекторів для рентгенівської візуалізації на основі гранул GAGG:Се або CsI:Tl

Визначені значення просторового розділення та неоднорідності світлового сигналу (інтенсивності люмінесценції) комбінованих детекторів на основі гранул CsI:Tl або GAGG:Ce, також комерційного екрану KYOKKO Blue High Plus [112].

Просторове розділення комбінованих детекторів

Методика вимірювань та розрахунків значень просторового розділення описана у підрозділі 5.2.

Фотографії тіньових рентгенівських зображень еталонного зразку EN 462-5 Duplex IQ, отримані з використанням вказаних типів детекторів, наведені на рисунках 5.10 та 5.11.



Рисунок 5.10 – Тіньове рентгенівське зображення еталонного зразка EN 462-5 Duplex IQ для комбінованого детектору GAGG:Ce (a) та екрана KYOKKO Blue High Plus (б)



Рисунок 5.11 – Тіньове рентгенівське зображення еталонного зразку EN 462-5 Duplex IQ для детектора CsI:Tl (ліворуч) та детектора GAGG:Се (праворуч)

В таблиці 5.11 наведено значення просторового розділення комбінованих детекторів.

| Тин нолонторо          | Сцинтилятор                                  | Довжина /  | Просторове розділення, |  |
|------------------------|--|------------|------------------------|--|
| тип детектора          |  | ширина, мм | пар ліній/мм           |  |
| Комбінований           | GAGG:Ce                                      | 200x200    | 5,00                   |  |
| Комбінований           | CsI:Tl                                       | 200x200    | 3,85                   |  |
| Екран КҮОККО           | CaWO4 +                                      | 300x400    | 3.85                   |  |
| Blue High Plus         | BaFBr:Eu                                     | 5004400    | 5,05                   |  |
| AirDR <sup>TM</sup> LE | CsI:Tl / Gd <sub>2</sub> O <sub>2</sub> S:Tb | 432x432    | 3,50                   |  |
| PaxScan 2520DX         | CsI:Tl / Gd <sub>2</sub> O <sub>2</sub> S:Tb | 250x80     | 3,94                   |  |

Таблиця 5.11 – Просторове розділення комбінованих детекторів

Також в таблиці 5.11 для порівняння наведено дані для комерційних плоскопанельних детекторів на основі CsI:Tl або  $Gd_2O_2S$ :Te виробництва AirDR<sup>TM</sup>LE та PaxScan [59, 60]. Як можна побачити, просторове розділення комбінованого детектора з гранул GAGG:Ce на 25% краще, ніж у комерційних аналогів.

Просторове розділення комбінованого детектору з гранул CsI:Tl співпадає з даними для екрана KYOKKO Blue High Plus

#### Неоднорідність світлового сигналу по площині комбінованого детектора

Неоднорідність світлового сигналу по площині комбінованого детектора визначалася за методикою, описаною в роботі [113] на вимірювальному стенді з такими технічними параметрами:

- 1) випромінювач рентгенівська трубка з W- анодом;
- 2) напруга на аноді випромінювача 70 кВ;
- 3) діаметр коліматора 5 мм;
- 4) розмір активної області фотодіоду 5х5 мм;
- 5) дискретність переміщення детектора по площині 2 мм.

В таблиці 5.12 наведено значення неоднорідності світлового сигналу розроблених комбінованих детекторів та комерційного екрана КҮОККО Blue High Plus.

| Тин допомпоро          | Довжина х ширина, | Неоднорідність світлового |  |
|------------------------|-------------------|---------------------------|--|
| гип детектора          | ММ                | сигналу по площині, %     |  |
| Комбінований (GAGG:Ce) | 200x200           | ±5                        |  |
| Комбінований (CsI:Tl)  | 200x200           | ±6                        |  |
| Екран КҮОККО Blue      | 300v/00           | ±5                        |  |
| High Plus              | 3002400           |                           |  |

Таблиця 5.12 – Неоднорідності світлового сигналу комбінованих детекторів

З наведених результатів випливає, що за параметрами однорідності досліджені детектори є однаковими.

# 5.5 Температурні випробування сцинтиляційних сендвічей комбінованих детекторів для рентгенівської візуалізації основі гранул GAGG:Ce або CsI:Tl

Для температурних випробувань були виготовлені сцинтиляційні сендвічі комбінованих детекторів з лінійними розмірами 200х200 мм, що складалися з оптично з'єднаних сцинтиляційного композиційного шару CsI:Tl або GAGG:Се та Як зв'язуюче оптоволоконної пластини. оптичне були використані СКТН-мед полісилоксановий епоксидний клей Magic Crystal клей та Експериментальні зразки були випробувані в камері тепла та холоду згідно програмою, описаній в підрозділі 2.1. Всього проведено 30 циклів нагріванняохолодження в інтервалі температур -50°С +70°С протягом шести місяців. Після температурних випробувань механічних пошкоджень у сендвічах не виявлено.

У сцинтиляційному шарі сендвіча на основі гранул CsI:Tl та епоксидного клею Magic Crystal, через 6 місяців спостерігалася поява жовтого забарвлення, що є результатом хімічної взаємодії компонентів епоксидного клею з матеріалом

гранул. Як наслідок даного процесу, просторове розділення сендвічу погіршилося на 37% (таб. 5.9). Характеристики сендвіча, виготовленого з використанням клею СКТН-мед, не змінилися.

| Таблиця 5.9 – Довготривала стабільність характеристик с | сендвіча на | основі CsI:Tl |
|---|-------------|---------------|
|---|-------------|---------------|

| Оптичний клей | Показник заломлення<br>CsI:Tl / клей | Просторове розділення, |                 |  |
|---------------|--------------------------------------|------------------------|-----------------|--|
|               |                                      | пара ліній/мм          |                 |  |
|               |                                      | Після виготовлення     | Через 6 місяців |  |
| СКТН-мед      | 1,80 / 1,40                          | 3,85                   | 3,85            |  |
| Magic Crystal | 1,80 / 1,55                          | 5,00                   | 3,13            |  |

Візуальних змін кольору сцинтиляційного шару GAGG:Се після температурних випробувань не виявлено, значення просторового розділення також не змінилися (табл. 5.10)

Таблиця 5.10 – Довготривала стабільність характеристик

сендвіча на основі GAGG:Се

| Оптичний клей | Показник заломлення<br>GAGG:Ce / клей | Просторове розділення, |                  |  |
|---------------|---------------------------------------|------------------------|------------------|--|
|               |                                       | пара ліній/мм          |                  |  |
|               |                                       | Після виготовлення     | Через 12 місяців |  |
| СКТН-мед      | 1,80 / 1,40                           | 3,85                   | 3,85             |  |
| Magic Crystal | 1,80 / 1,55                           | 5,00                   | 5.00             |  |

Таким чином, було встановлено, що для виготовлення сцинтиляційних шарів з гранул CsI:Tl необхідно використовувати оптичний полісилоксановий клей, під час використання гранул GAGG:Ce – оптично прозорий епоксидний клей. Результати досліджень підтверджують вирішення завдання розроблення технологічного процесу виготовлення комбінованих детекторів для рентгенівської візуалізації із стабільними функціональними параметрами, які є кращими, ніж у комерційних аналогів.

#### 5.6 Висновки до розділу 5

Розроблено конструкторсько-технологічне забезпечення та технологічний процес виготовлення комбінованих детекторів великої площі для реєстрації низькоенергетичних фотонів гамма-випромінювання (для візуалізації об'єктів) з площею вхідної поверхні до 400 см<sup>2</sup>.

Підвищено просторове розділення комбінованих детекторів за рахунок зменшення різниці показників заломлення матеріалів гранул та оптичного зв'язуючого. Вирішено завдання підвищення ефективної товщини сцинтиляційного композиційного шару за рахунок використання волоконного світловоду. Встановлено, шо лля забезпечення оптичного довгочасної стабільності комбінованого детектора необхідно використовувати оптичний клей з урахуванням хімічного складу матеріалу сцинтиляційних гранул.

Просторове розділення розроблених комбінованих детекторів на основі тонкошарового композиційного сцинтилятора GAGG:Се з гранул, отриманих твердофазним синтезом, що оптично з'єднаний з неорганічною волоконнооптичною пластиною дорівнює 5 пар ліній/мм, що на 25% краще ніж у плоскопанельних детекторів на основі CsI:Tl або  $Gd_2O_2S$ :Te.

Просторове розділення розроблених комбінованих детекторів, що складаються з тонкошарового композиційного сцинтилятору CsI:Tl на основі хімічно полірованих монокристалічних гранул, який оптично з'єднаний з неорганічним оптоволоконним світловодом дорівнює 3,85 пар ліній/мм, що співпадає з даними для екранів КҮОККО Blue High Plus

Основні положення, що увійшли до цього розділу, опубліковано у роботах автора [116, 121 – 124 ].

140

#### ВИСНОВКИ

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

При цьому отримано такі наукові та практичні результати:

1. Запропоновано технологію виробництва складових елементів комбінованих детекторів для реєстрації фотонів гамма-квантів з площею вхідної поверхні від 1000 см<sup>2</sup> на основі сцинтиляційного та світлопровідного шарів з неорганічних та органічних матеріалів, що відрізняються за лінійними коефіцієнтами теплового розширення у 4,5–7 разів. Спектрометричне визначення радіонуклідів та стабільність функціональних параметрів детекторів в інтервалі температур від  $-50^{\circ}$ C до  $+70^{\circ}$ C забезпечується, якщо:

- для оптичного склеювання сцинтиляційного та світлопровідного шарів використовують полісилоксанові композиції зі структурою гелю, які полімеризуються за реакцією гідросилірування без утворення низькомолекулярних продуктів реакції;

- товщина оптичного клею між сцинтиляційним та світлопровідним шарами дорівнює 0,3 – 0,5 мм для зменшення втрат сцинтиляційного світла;

- між пластинами неорганічного сцинтиляційного шару з максимальним лінійним розміром до 350 мм є технологічний зазор шириною 1 – 2 мм, який забезпечує зниження дотичних напружень в клейовому шві до розрахункових допустимих значень.

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

- наявність сцинтиляційного шару з пластин NaI:Tl товщиною 5–10 мм або композиційного шару CsI:Tl товщиною 1–2 мм з гранул розміром 63–300 мкм на поверхні шару сцинтиляційного полістиролу забезпечує чутливість реєстрації фотонів гамма-квантів з енергією 20–3000 кеВ на 30–80% вище, ніж у детекторів на основі монокристалу NaI:Tl або сцинтиляційного полістиролу;

- після хімічної поліровки поверхні гранул CsI:Tl етиленгліколем світловий вихід композиційного шару CsI:Tl товщиною 1 мм, виготовленого на основі гранул розміром 63–300 мкм, збільшується на 30%;

- під час виготовлення композиційних сцинтиляційних шарів товщиною 1 мм та вище з гранул розміром 100–500 мкм, коефіцієнт збирання світла підвищується на 17%, якщо показник заломлення оптичної основи нижче на 30%, ніж у гранул; це пов'язано з дифузним відбиванням світла в частині сцинтиляційного шару, віддаленій від фотоприймача.

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

4. Визначено фізико-технологічні параметри процесу виготовлення комбінованих детекторів для роздільної реєстрації альфа- та бета-частинок з площею вхидної поверхні до 180 см<sup>2</sup> на основі гетерогенного шару ZnSe:Al:

- склад та товщина гетерогенного шару ZnSe:Al комбінованих детекторів розроблений з урахуванням довжини пробігу альфа- та бета-частинок та умов збирання світла в гетерогенних системах, що розсіюють світло;

142

- використання альфа-чутливого підшару ZnSe:Al товщиною 0,10 мм з гранул розміром 40 – 63 мкм, бета-чутливого підшару ZnSe:Al товщиною 0,7 мм з гранул розміром 100–140 мкм та водорозчинного акрилатного лаку забезпечує чутливість реєстрації альфа- та бета-частинок більше на 26% та 14%, ніж у детектора на основі ZnS:Ag та пластмасового сцинтлиятора.

5. Удосконалено технологічні процеси виготовлення комбінованих детекторів великої площі реєстрації низькоенергетичних фотонів для рентгенівського випромінювання (для візуалізації об'єктів) на основі тонкошарового композиційного сцинтилятора GAGG:Се з гранул, отриманих твердофазним синтезом, оптично з'єднаного з волоконно-оптичною пластиною. Просторове розділення детекторів на 25% краще, ніж у рентгенівських плоскопанельних детекторів з ТГТ-матрицею на основі сцинтиляційних екранів CsI:Tl або  $Gd_2O_2S$ :Tb за рахунок того, що:

- оптимальна концентрація Ce<sup>3+</sup> дорівнює 0,12 ат.%;

- прозорість композиційного шару товщиною 0,1 мм з гранул розміром 1–15 мкм збільшена шляхом підвищення показника заломлення оптичної основи.

#### ПЕРЕЛІК ДЖЕРЕЛ ПОСИЛАННЯ

1. Ruskov I., Kopach Yu.N., Skoy V., Hambsh F.-J., Oberstedt S. A multi-detector NaI(Tl) gamma-ray spectrometry system for investigation of neutron induced capture and fission reaction. *Physics Procedia*. 2014. Vol. 59. P. 107 – 113.

2. Agarwal Y.K., Baba C.V.K., Chakrabarty D.R., Datar V.M., Gothe D.A., Jain H.C., Sharan M.K. A multy NaI(Tl) detector array for medium energy  $\gamma$ -ray spectroscopy. *Journal of Physics*. 1990. Vol. 35. No.1. P. 49 – 65.

 Belushkin A., Bogdzel A., Buzdavin A., Zhuravlev A., Zhuravlev V., Kozlenko D., Kulikov S., Kirilov A., Levtchanovski F., Milkov V., Panteleev Ts., Prihodko E.V. Multi-Section Ring-Shaped Detector for Thermal Neutrons. *Neutron News*. 2014. Vol. 24. P. 28 – 29.

4. Britton R., Burnett J.L., Davies A.V., Regan P.H. Coincidence correction for a multi-detector gamma spectrometer. *Nuclear Instruments and methods in Physics Recearch Section A*. 2015. Vol.769. P. 20 – 5.

5. Budnev N.M., Barbashina N.S., Astapov I., Buker M. The Tunka detector complex: From cosmic ray to gamma ray astronomy. *Journal of Physics:Conference Series*. 2015. Vol.732. P.01234.

6. Karavaeva N.L., Galunov N.Z., Martynenko E.V., Kosinova A.V. Combined composite scintillation detector for separate measurements of fast and thermal neutrons. *Functional Materials*. 2010. Vol. 17. No. 4. P. 549 – 553.

Viererbl L., Novakova O., Jursova L. Combined scintillation detector for gamma dose rate measurement. *Radiation Protection Dosimentry*. 1990. Vol. 32. No. 4. P.273 – 277.

8. Hamarashdi H.A., Cheneler D., Monk S. A fast and portable imager for neutron and gamma emitting radionuclides. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. *Section A*. 2020. Vol. 953. P.163253 – 163269.

9. Cadieux J.R., Fugate G.A., King III G.S. An alpha-gamma coincidence spectrometer based on the photon-electron rejecting alpha liquid scintillation (PERALS) system.
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. Section A. 2015. Vol. 783. P. 22 – 27.

10. Henning W., Tan H., Warburton W.K., McIntyre J.I. Digital pulse shape analysis with phoswich detectors to simplify coincidence measurements of radioactive xenon. *Proceedings of the 27<sup>th</sup> Seismic Research Review: Groun-Based Nuclear Explasion Monitoring Technologies.* 2005. P. 787 – 794.

11. Ashida Y., Nagata H., Koshio Y., Nakaya T., Wendell R. Separation of gamma-ray and neutron events with CsI(Tl) pulse shape analysis. *Progress of Theoretical and Experimental Physics*. 2018. Vol. 2018. No. 6. P.069201-069211.

12. Miller W.H., de Leon M.D., Utilization of phoswich detectors for simultaneous, multiple radiation detection. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2005.
Vol. 264. No. 1. P. 1 – 13.

Ascari M., Mirzahasanlou M.A., Sasanpour M.T., Taheri A. Position estimation of a gamma-ray source using NaI – plastic combined detectors. *Journal of Instrumentation*. 2018. Vol. 13. P. 07014 – 07024.

14. Combating illicit trafficking in nuclear and other radioactive material: Technical guidance, reference manual. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2007.P. 95 – 103.

15. PORTIA Portal Monitor for Radiation Detection. URL:

https://www.canberra.com/cbns/products/pdf/portia.pdf

16. Grinyov B.V., Gurdzhyan N.R., Zelenskaya O.V., Lyubynskiy V.R., Mitsay L.I., Molchanova N.I., Tarasov V.A. Detectors based on plastic scintillators for portal monitors – the evaluation of sensitivity uncertainty. *Ukrainian Metrological Journal*. 2018. No. 2. P. 46 – 54.

17. Deyglun C. Testing and performances of Spectroscopic Radiation Portal Monitor for homeland security. *EPJ Web of Conferences ANIMMA 2019*. 2020. Vol. 225. P.07008.

18. Дубина В.Н., Ковтун В.Е. Концепция радиационного портального монитора нового поколения. Вісник Харківського університету. 2009. № 845. С. 108 – 121.

19. Ely J., Kouzes R., Schweppe J., Siciliano E., Strachan D., Weier D. The use of energy windowing to discriminate SNM from NORM in radiation portal monitors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Recearch Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment.* 2006. Vol. 560. P. 373 – 387.

20. Транспортные мониторы. URL: https://ru.polimaster.com/catalog/radiation-portalmonitors.

21. Radiological Control of Container Load (RCCL). URL: https://www.bertin-instruments.com.

22. FHT1388S modular radiation portal monitors. URL: https://www.thermofisher.com.

23. Arktis FRPM-B Radiation Portal Monitor. URL: https://www.arktis-detectors.com.

24. P2000: MultipurposePortable Radiation Portal Monitor. URL: https://www.arktis-detectors.com.

25. P-RPM-IDn Pedestrian Radiation Portal Monitor. URL: https://www.arktis-detectors.com.

26. GCS-1500 SERIES Radiation Portal Monitor. URL: https://www.rapiscan-ase.com

27. Crompton A.J., Gamage K.A.A., Jenkins A., Taylor C.J. Alpha Particle Detection Using Alpha-Induced Air Radioluminescence: A Review and Future Prospects for Preliminary Radiological Characterisation for Nuclear Facilities Decommisioning. *Sensors.* 2018. Vol. 18. P. 1015 – 1037.

28. Foster J. A comparision of the ZnS(Ag) scintillation detector to the silicon semiconductor detector for quantification of alpha radioactivity in aqueos solutions. A Thesis. *Graduate School of Clemson University*. 2006. P. 1 – 144.

29. ATOMTEX. URL: https://atomtex.com/ru/radiometr-rks-at1329.

30. ЮЕ Интернейшил. URL: https://www.yeint.ru/materialy\_iz\_sulfida.

31. ООО «НПП Тетра». URL: http://tetra.ua/production/dosimeter\_radiometer/isaa-97.

32. Luflum Measurements, Inc. URL: https://ludlums.com/products/all-

products/product/model-43-1-1

33. Luflum Measurements, Inc. URL: https://ludlums.com/products/allproducts/product/model-44-88 34. NuviaTech Instruments. URL: https://www.nuviatech-instruments.com/

35. Thermo Fisher Scitntific. URL: https://www.thermofisher.com/order/catalog/produc t/BP19AD?SID=srch-srp-BP19AD#/BP19AD?SID=srch-srp-BP19AD

36. Lee S.K., Kang S.Y., Jang D.Y., Lee C.H., Kang S.M., Kang B.H., Lee W.G., Kim Y.K. Comparision of New Simple Methods in fabrication ZnS(Ag) Scintillators for Detecting Alpha Particles. *Progress in nuclear Science and Technology*. 2011. Vol. 1. P.194 – 197.

37. Morishita Yu., Torii T., Usami H., Kikuchi H., Utsugi W., Takahira S. Detection of alpha particle emitters origination from nuclear fuel inside reactor building of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Scientific reports*. 2019. Vol. 9. P. 581–594.

38. D'Amen G., Keach M., Nomerotski A., Svihra P., Tricoli A. Novel imaging technique for  $\alpha$ -particles using a fast optical camera. *Journal of Instrumentation*. 2021. Vol. 16 (2). P. 1 – 14.

39. Лобко А.С., Мисевич О.В., Федоров А.А., Кучинский Н.А. Фосфич-детектор легких ионов и электронов. Материалы: *11-я Международная научно- техническая конференция «Приборостроение – 2018»*. 2018. Р. 41 – 43.

40. McElhaney S.A., Ramsey J.A., Bauer M.L., Chiles M.M. A ruggedized ZnS(Ag)/epoxy alpha scintillation detector. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Recearch Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment.* 1990. Vol. 299. P. 111 – 114.

41. Bagan H., Tarancon A., Rauret G., Garcia J.F. Alpha/beta pulse shape discrimination in plastic scintillation using commercial scintillation detectors. *Analytica Chimica Acta*. 2010. Vol. 670. P. 11 – 17.

42. Yamamoto S., Hatazawa J. Development of an alpha/beta/gamma detector for radiation monitoring. *Review of Scientific Instruments*. 2011.Vol.82. P. 113503-113510.

43. Litichevskyi V., Tarasov V., Galkin S., Lalaiants O., Voronkin E. Scintillation panels based on zinc selenide for detection of alpha radiation. *Functional materials*.
2012. Vol. 19. No.4. P. 546 – 550.

44. Sysoeva E.V., Tarasov V.A., Zelenskaya O.V., Sulyga V.A. The study of  $\alpha/\gamma$  ratio for inorganic scintillation detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics* 

*Recearch Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment.* 1998. Vol. 414. P. 274 – 278.

45. Wolszczak W., Dorenbos P. Nonproportional Response of Scintillators to Alpha Particla Excitation. *IEEE Transaction of Nuclear Science*. 2017. Vol. 64. P.1580 – 1591
46. Марченко Е.С. Основі медицин ской интроскопии: учебное пособие. Томск:

Издательский Дом ТГУ, 2018. 156 с.

47. Ristic G.S. The digital flat-panel x-ray detectors. *Proceedings of the Third Conference on Medical Physics and Biomedical Engineering*. 2013. P.65 – 71.

48. Seibert J.A. Flat-panel detectors: how much better are they. *Pediatr Radiol*. 2006. Vol. 36. P. 173 – 181.

49. Lindstrom J. Radioluminescence: A simple model for fluorescent layer. *Thesis for: Licentiate*. 2011. P. 61.

50. Zentai G., Schieber M., Partain L., Pavlyuchkova R., Proano C. Large area mercuric iodide and lead iodide X-ray detectors for medical and non-destructive industrial imaging. *Journal of Crystal Growth*. 2005. Vol. 275. P.1327 – 1331.

51. Schieber M., Hermon H., Zuck A., Vilensky A., Melekhov L., Shatunovsky R., Meerson E., Saado Y., Lukach M., Pinkhasy E., Ready S.E., Street R.A. Thick films of X-ray polycrystalline mercuric iodide detectors. *Journal of Crystal Growth.* 2001. Vol. 225. P. 118 – 123.

52. Sellin P.J., Vaitkus J. New materials for radiation hard semiconductor detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Recearch Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment.* 2006. Vol. 557. P. 479 – 489.

53. Kasap S.O., Kabir M.Z., Rowlands J.A. Recent advances in X-ray photoconductors for direct conversion X-ray image detectors. *Current Applied Physics*. 2006. Vol. 6. P.288 – 292.

54. Moy J.-P. Recent development in X-ray imaging detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Recearch Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment.* 2000. Vol. 442. P. 26 – 37.

55. Custom coatings. Designed to enhance the performance of CCD or CMOS devices. URL: http://www.scintacor.com

56. Tyrrel G.C. phosphors and scintillators in radiation imaging detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Recearch Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment.* 2005. Vol. 456. P. 180 – 187.

57. Гектин А., Лебединський А. Радиационные детекторы для цифровой медицинской радиографии. Сцинтилляционные материалы. Инженерия, устройства, применение. Харьков: «ИСМА», 2009. С. 128 – 160.

58. Zhao W. X-ray imaging performance of structured cesium iodide scintillators. *Medical Physics*. 2004. Vol. 31(9). P. 2594 – 2605.

59. X-ray Scintillators. Solutions for X-ray Conversion. URL: http://www.siemens.com/vacuumtechnology.

60. Yang X., Hopwood J. Plasma etcing of cesium iodide. *Journal of Vacuum Science and Technology*. A. 2002. Vol. 20(1). P. 132 – 137.

61. Nagarkar V.V. Gupta T.K., Miller S.R., Klugerman Y., Squillante M.R., Entine G. Structured CsI(Tl) Scintillators for X-ray Imaging Application. *IEEE Transaction of Nuclear Science*. 1998. Vol. 45. No. 3. P. 492 – 496.

62. FOP. Fiber Optic Plates. URL: http://www.hamamatsu.com.

63. Digital Radiography Faceplate. URL: http://www.incomusa.com/faceplate.

64. Fiber Optic Plates. URL: https://www.gz-honsun.com/supply/fiber-optic-plate.

65. AirDR LE by *i*CRco. Innovative Direct Radiography. URL: https://pdf.medicalexpo.com/pdf/icrco/airdr-le/84431-225017.html.

66. PaxScan 2520DX. Flat Panel Detector. URL: https://www.vareximaging.com.

67. Aquarius 8600. URL: https://www.imagingdynamics.com/en/product/detector

68. X-Panel 1615. URL: https://www.deetee.com

69. Portable DR. URL: http://www.trixell.com/radiography-portable-family/portable-dr

70. Fedorov A., Lebedynskiy A., Boiaryntseva I., Dubovik A., Tupitsyna I., Yakubovskaya A., Mateychenko P.  $ZnWO_4$  luminescent filmas obtained by hydrothermal method. *Functional materials*. 2013. Vol. 20. No.2. P. 239 – 242.

71. Cooke D.W., Bennett B.L., Muenchausen R.E., Wrobleski D.A., Orler E.B. Flexible Composite Radiation Detectors. *United States Patent*. 2006. Patent No. US 7145149B2.

72. Jung I.D., Cho M.K., Lee S.M., Bae K.M., Jung P.G., Lee C.H., Lee J.M., Yun S., Kim H.K., Kim S.S., Ko J.S. Flexible  $Gd_2O_2S$ :Tb scintillators pixelated with polyethylene microstructures for digital x-ray image sensors. *Journal of Micromechanics and Microengineering*. 2009. Vol. 19. P. 15014 – 15025.

73. Sahlholm A., Svenonius O., Petersson S. Scintilator technology for enhanced resolution and contrast in X-ray imaging. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Recearch Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment.*2011. Vol. 648. P. 16 – 19.

74. Forrest K., Haehner C., Heslin T., Magida M., Uber J., Freiman S., Hicho G., Polvani R. Engineering and Design Properties of Thallium-Doped Sodium Iodide and Selected Propertied of Sodium-Doped Cesium Iodide. NASA. Scientific and Technical Information Branch, 1984. P. 76.

75. Polystyrene. URL: https://designerdata.nl/materials/plastics/thermoplastics.

76. Sylgard 184 Silicone Elastomer.URL:https://www.dow.com/content/dam/dcc/docu ments/en-us/productdatasheet/11/11-31/11-3184-sylgard-184elastomer.pdf?iframe=true. 77. СУРЭЛ-СЛ-1. Оптически прозрачная силоксановая гель-композиция. URL: http://www.surel.ru/silicone/76.

78. 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., Tarasemko O.A. Study of radiation-resistant gel bases for composite detectors. *Functional materials*. 2013. Vol. 20. No.4. P. 471–476.

79. Тростянская Е.Б. термопласті конструкционного назначения. М: «Химия», 1975. 240 С.

80. Johnston I.D., McCluskey D.K., Tan C.K.L., Tracey M.C. Mechanical characterization of bulk Sylgard 184 for microfluidics and microengineering. *Journal of Micromechanics and Microengineering*. 2014. Vol. 24. P. 35017 – 35025.

81. Muller A., Wapler M.C., Wallrabe U. A quick and accurate method to determine the Poisson's ratio and the coefficient of thermal expansion of PDMS. *Soft Matter*. 2019. P. 1 - 6.

82. Артюхин Ю.П. Напряжения в клеевых соединениях. Исследования по теории пластин и оболочек. 1973. № 10. С. 3 – 27.

83. Семин М.И. Расчеты соединений элементов конструкций из полимерных материалов на прочность и долговечность. М: МАДИ, 2016. 92 С.

84. da Silva L.F.M., Ochsner A., Adams R.D. Handbook of Adhesion Technology: Springer, 2011. Vol. 2. 1569 P.

85. Гринев Б.В., Андрущенко Л.А. Конструкционные и оптические материалы сцинтилляционной техники. *ПТЭ*. 1992. № 2. С. 27 – 51.

86. 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.

87. Глобус М.Е., Гринёв Б.В. Неорганические сцинтилляторы. Новые и традиционные материалы. Харьков: Акта, 2000. 409 С.

88. Dorenbos P., de Haas J.T., van Eijk C.W.E. Non-Proportionality in the Scintillation response and the Energy Resolution Obtainable with Scintillation Crystals. *IEEE Transaction of Nuclear Science*. 1995. Vol. 42. No. 6. P. 2190 – 2202.

89. Kamada K., Yanagida T., Endo T., Tsutumi K., Usuki Y., Nikl M., Fujimoto Y., Yoshikawa A. 2-inch size single crystal growth and scintillation properties of new scintillatirs Ce:Gd<sub>3</sub>Al<sub>2</sub>Ga<sub>3</sub>O<sub>12</sub>. *IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record*. 2011. No. 38-3. P. 1927 – 1929.

90. Yanagida T., Kamada K., Fujimoto Y., Yagi H., Yanagitani T. Comparative study of ceramic and single crystal Ce:GAGG scintillator. *Optical Materials*. 2013. Vol. 35.
P. 2480 – 2485.

91. Kamada K., Yanagida T., Pejchal J., Nikl M, Endo T., Tsutsumi K., Fujimoto Y., Fukabori A., Yoshikawa A. Crystal Growth and Scintillation Properties of Ce Doped  $Gd_3(Ga,Al)_5O_{12}$  Single Crystals. *IEEE Transaction of Nuclear Science*. 2012. Vol. 59. No. 5. P. 2112 – 2115.

92. Chaiphaksa W., Limkitjaroenporn P., Kim H.J., Kaewkhao J. The mass attenuation coefficients, effective atomic numbers and effective electron densities for GAGG:Ce and CaMoO<sub>4</sub> scintillators. *Progress in Nuclear Energy*. 2016. Vol. 92. P. 48 – 53.

93. Ryzhikov V., Grynyov B., Galkin S., Starzhinskiy N., Rybalka I. Growing technol ogy and lumines cent characteristics of ZnSe doped crystals. *Journal of Crystal Growth.* 2016. Vol. 364. P. 111 – 117.

94. Морозова Н.К., Кузнецов В.А., Рыжиков В.Д., Галстян В.Д. Селенид цинка. Получение и оптические свойстваю М.: Наука, 1992. 95 С.

95. Gorbacheva T.E., Tarasov V.A., Galunov N.Z. Light collection simulation when determining light yield of single crystal and polycrystalline organic scintillators. *Funstional Materials*. 2015. Vol. 22. No. 3. P. 408 – 415.

96. Бояринцев А., Бобовников А., Гектин А., Ковальчук С., Непокупная Т., Онуфриев Ю., Тарасов В. Композиционный детектор <sup>6</sup>LiI(Eu) для регистрации тепловіх нейтронов. Функциональные материалы: Аспекты сцинтилляционной техники: Харьков, 2017. С.132 – 140.

97. Радіаційно стійкий сцинтиляційний елемент: пат. 119798 Україна. №а201705477; заявл. 02.06.2017; опубл. 10.10.2017; Бюл. № 19.

98. СКТН-мед. Каучук низкомолекулярный. URL: http://www.surel.ru/silicone/77/.

99. Magic Crystal 3D Clear. URL: https://elastoform.com.ua/p325169716-magic-crystal-clear.html.

100. Спектрофотометры фирмы Shimadzu UV-2450 и UV-2550. "Руководство по эксплуатации" Корпорация SHIMADZU, Отдел аналитического оборудования, Киото, Япония.

101. Norland Optical Adhesive 170. URL: https://www.norlandprod.com/adhesives/NO A170.html.

102. CsI(Tl)-Cesium Iodide (Thallium). URL: https://advatech-k.co.uk/csi\_tl.html.

103. Wang W., Si H., LiI F., Meng H., Cai J., Xu S., Jing S., Hong F., Zhu Y., Xu H., Xu R., Lai J., Xu F., Wang L. Approaching the Theoretical Light Yield Limit in CsI (Tl) Scintillator Single Crystals by a Low-Temperature Solution Method. *Crystal Growth and Design.* 2020. Vol. 20. P. 3474 – 3481.

104. Рабинович В.А., Хавин З.Я. Краткий химический справочник. Л.: Химия, 1977, 392 С.

105. Сектор элементного и структурного анализа.

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

106. Christin M. Hamm, Lambert Alff, Barbara Albert, Z. Anorg. Synthesis of Microcrystalline Ce2O3 and Formation of Solid Solutions between Cerium and Lanthanum Oxides. *Zeitschrift für anorganische und allgemeine Chemie*. 2014. Vol. 660. P. 1050 – 1053.

107. Комащенко А.В., Комащенко В.Н., Колежук К.В., Шереметова Г.И., Фурсенко В.Д., Бобренко Ю.Н. Энергия внутренней ионизации в соединениях А<sub>Ш</sub>В<sub>IV</sub>. *Физика и техника полупроводников*. 2002. Т. 36. № 3. С.305 – 309.

108. Акриловый лак "Natur lack" Triora. URL: https://www.triora.ua.

109. Гринев Б.В., Сенчишин В.Г. Пластмассовые сцинтиллятори. Харьков: Акта, 2003. 324 С.

110. Чернушевич Г.А. радиационная безопасность. Лабораторный практикум: учебное пособие для студентов по профилю образования "Техника и технология". Минск: БГТУ. 2018. 198 С.

111. B7D61. URL: https://incomusa.com/wp-content/uploads/Digital-Radiography-FOP-Product-Sheet-08-19.pdf.

112. KYOKKO Blue High Plus. URL: https://acnkru.ru/catalog/jekrany-high-plus.

113. Tretyak S.O., Popkova E.V. A measuring complex for control the uniformity of the light output of scintillators. *Functional Materials*. 2018. Vol. 25. No. 4. P. 835 – 837.

114. 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.

115. Boyarintsev A.Yu., Nepokupnaya T.A., Onyfriyev Yu.D., Tarasov V.A. Composite scintillator. *Springer Proceedings in Physics*, 2017.Vol. 200. P. 167 – 194.

116. Gerasymov I., Nepokupnaya T., Boyarintsev A., Opolonin O., Tretyak S. GAGG:Ce composite scintillators for X-ray imaging. *Optical Materials*. 2020. Vol. 109, 110305.

117. Непокупна Т.А., Бояринцев А.Ю., Галкін С.М., Сібілєва Т.Г., Онуфрієв Ю.Д., Колесніков О.В. Сучасна інженерія детекторів альфа- та бета-випромінювання. *Радиоэлектроника и інформатика*, 2020. Т.91. № 4. С.52 – 57.

118. Непокупна Т.А., Колесніков О.В., Бояринцев А.Ю., Тарасов В.О., Тавровський І.І. Особливості реєстрації гамма-випрмінювання комбінованими сцинтиляційними детекторами. *Радиоэлектроника и інформатика*, 2020. Т. 90. № 3. С. 18 – 23.

119. Бояринцев А.Ю., Непокупна Т.А., Онуфрієв Ю.Д., Сібілєва Т.Г. Комбінований детектор гамма-випромінення: пат. 126169 Україна. №u20171289; заявл. 26.12.2017; опубл. 11.06.2018; Бюл. № 11.

120. Ananenko A., Boyarintsev A., Bobovnikov A., Gektin A., Kovalchuk S., Nepokupnaya T., Onufriyev Yu., Pedash V. Combined detectors for registration of lowenergy γ-radiation: матеріали *The Fifth International Conference on Engineering of scintillation materials and radiation technologies ISMART 2016*, (Minsk, 2016.). Minsk, 2016. P.16.

121. Boyarintsev A., Bobovnikov A., Gektin A., Gerasimov Ya., Kovalchuk S., Nepokupnaya T., Onufriyev Yu., Tarasov V., Composite scintillators for neutron and X-ray detection: матеріали 2016 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, (Strasbourg, 2016). Strasbourg 2016. P.29.

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

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

124. Nepokupnaya T.A., Boyarintsev A.Yu., Galkin S.N., Gektin A.V., Gerasymov Ia., Kovalchuk S.N., Minenko S.S., Onufriyev Yu.D., Sibilieva T.G.,

Tretyak S.E. New composite detectors for medical x-ray diagnostics: матеріали *The Sixth International Conference on Engineering of scintillation materials and radiation technologies ISMART 2018*, (Minsk, 2018). Minsk, 2018. P.75.

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

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

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

# ДОДАТОК А

# Список публікацій здобувача

1. Nepokupnaya T.A., Ananenko A.A., Boyarintsev A.Yu., Bobovnikov A.A., Gektin A.V., Kovalchuk S.N., Onufriyev Yu.D., Pedash V.Yu. Large area detector of lowenergy gamma radiation. *Functional Materials*. 2017. Vol. 24. No. 4. P. 678 – 681.

2. Boyarintsev A.Yu., Nepokupnaya T.A., Onyfriyev Yu.D., Tarasov V.A. Composite scintillator. *Springer Proceedings in Physics*, 2017.Vol. 200. P. 167 – 194.

3. Gerasymov I., Nepokupnaya T., Boyarintsev A., Opolonin O., Tretyak S. GAGG:Ce composite scintillators for X-ray imaging. *Optical Materials*. 2020. Vol. 109, 110305.

4. Непокупна Т.А., Бояринцев А.Ю., Галкін С.М., Сібілєва Т.Г., Онуфрієв Ю.Д., Колесніков О.В. Сучасна інженерія детекторів альфа- та бета-випромінювання. *Радиоэлектроника и информатика*, 2020. Т.91. № 4. С.4 – 10.

5. Непокупна Т.А., Колесніков О.В., Бояринцев А.Ю., Тарасов В.О., Тавровський І.І. Особливості реєстрації гамма-випрмінювання комбінованими сцинтиляційними детекторами. *Радиоэлектроника и информатика*, 2020. Т. 90. № 3. С. 4 – 9.

 Бояринцев А.Ю., Непокупна Т.А., Онуфрієв Ю.Д., Сібілєва Т.Г. Комбінований детектор гамма-випромінення: пат. 126169 Україна. №u20171289; заявл. 26.12.2017; опубл. 11.06.2018; Бюл. № 11.

7. Ananenko A., Boyarintsev A., Bobovnikov A., Gektin A., Kovalchuk S., Nepokupnaya T., Onufriyev Yu., Pedash V. Combined detectors for registration of lowenergy γ-radiation: матеріали *The Fifth International Conference on Engineering of scintillation materials and radiation technologies ISMART 2016*, (Minsk, 2016.). Minsk, 2016. P.16.

8. Boyarintsev A., Bobovnikov A., Gektin A., Gerasimov Ya., Kovalchuk S., Nepokupnaya T., Onufriyev Yu., Tarasov V., Composite scintillators for neutron and X-ray detection: матеріали 2016 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, (Strasbourg, 2016). Strasbourg 2016. P.29.

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

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

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

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

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

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

### ДОДАТОК Б. Акти впровадження

ЗАТВЕРДЖУЮ Директор Інстичуту спинтиляційних матеріалів НАН України пьнот В.В. Гриньов A - 2020 p.

#### АКТ впровадження результатів дисертаційної роботи

Даним актом підтверджується, що результати дисертаційної роботи

ТЕХНОЛОГІЯ ВИРОБНИЦТВА КОМБІНОВАНИХ ДЕТЕКТОРІВ **ІОНІЗУЮЧОГО** ВИПРОМІНЮВАННЯ

яка виконувалась в Інституті сцинтиляційних матеріалів НАН України.

автором якої є Непокупна Тетяна Анатоліївна (прізвище, ім'я, по-батькові)

впроваджено в Інституті сцинтиляційних матеріалів НАН України

(назва організації де призводиться впровадженя)

Термін впровадження:\_\_ 2020 p. Форма впровадження результатів 1. Лабораторний регламент № 15:2020. Виготовлення детекторів альфа-бета випромінень в спектрометричному режимі реєстрації. Лабораторний регламент № 24:2020. Виготовлення детекторів альфа- та альфа-бета

випромінень в лічильному режимі реєстрації. (методики, системи, прилади, технологічні процеси та ін., їх назва)

Характеристика масштабу впровадження впровадження є унікальним (унікальне, одиночне, партія, масове, серійне)

Новизна впроваджених результатів: впровадження є новим за своїм походженням, оскільки базується на використанні низки нових технологічних підходів до виготовлення високоефективних комбінованих детекторів великої площі для реєстрації альфа- та бетачастинок в лічильному та спектрометричному режимах.

(нове, модифікація, модернізація)

Ефективність впровадження: використання розробленої низки технологічних процесів з виготовлення комбінованих детекторів для реєстрації альфа-та бета частинок дозволило здійснити експортні поставки комбінованих детекторів ZnSe згідно господарському договору ICMA №O/18-20 для приватного підприємства «НВПП Спарінг-Віст Центр» (Україна).

(з соціальним, економічним чи науково-технічним ефектом)

Зав. лаб. 2302-2-ІСМА НАНУ

Головний інженер ІСМА НАНУ Бреславський І.А. (підпис)

Тупіцина І.А. (підпис)

Старш. наук, співроб. лаб. 2302-2 ІСМА НАНУ Рибалка І.А. підпис

## ДОДАТОК В. Акти використання



АКТ

використання комбінованих альфа-бета детекторів, що отримані за результатами дисертаційної роботи Непокупної Т.А. у практиці підприємства

Приватне підприємство Товариство з обмеженою відповідальністю "НВП "Тетра" має великий практичний досвід розробки та виробництва пристроїв, які забезпечують вирішення різноманітних завдань радіаційного та технологічного контролю. Компанія багато років співпрацює з Інститутом сцинтиляційних матеріалів Національної академії наук України та розглядає детектори альфа- та бета-частинок, запропоновані в дисертаційній роботі Непокупної Т.А., як сучасні та перспективне рішення для виготовлення нових приладів радіаційного контролю.

TET Генеральний дирек Л.О. Боталов

Р/р UA553052990000026002060196085 в АТ КБ «ПРИВАТБАНК», МФО 300001, IHH 230772004046, № свід. 100232490

159



52204, Україна, Дніпропетровська обл., м. Жовті Води, вул. 8-го Березня, 46 тел.: (05652) 6-10-88 р e-mail: info@positron.dp.ua www.positron.dp.ua

46 Прилади та системи радіаційного контролю для промисловості, науки, екології. Автоматизовані системи.

Ha No від Вих. № 08/93 BIA 03.06. 2021

ПОЗИТРОН

АКТ

використання комбінованих детекторів бета частинок, що отримані за результатами дисертаційної роботи Непокупної Т.А. у практиці підприємства

Товариство 3 обмеженою відповідальністю "Позитрон GMBH" спеціалізується в області розробки і виробництва приладів радіаційного та радіоекологічного контролю, призначених для використання на підприємствах атомної енергетики, пропускних пунктах на державному кордоні, в наукових дослідженнях, медицині, екологічному моніторингу. Детектори бета-частинок, виготовлені за результатами дисертаційній роботі Непокупної Т.А., є актуальною розробкою, що пройшла успішні тестування в системах радіаційного контролю підприємства. ТОВ "Позитрон GMBH" плідно співпрацює з Інститутом сцинтиляційних матеріалів НАН України та успішно використовує бета-детектори, виготовлені в ІСМА впродовж багатьох років.

облас IO3WTPO RmbH" NU AKD

С.П. Зонов