

**А.Ю. Бояринцев, А.В. Гектин, Д.И. Зосим,
А.И. Иванов, В.В. Шляхтуров, В.П. Гаврилюк**

Институт сцинтилляционных материалов НАН Украины, Харьков

РАЗРАБОТКА ПРОМЫШЛЕННЫХ МЕТОДОВ ПОЛУЧЕНИЯ ПОЗИЦИОННО ЧУВСТВИТЕЛЬНЫХ ДЕТЕКТОРОВ CsI(Na)



Описана разработка позиционно чувствительных детекторов на основе сцинтилляционных монокристалла CsI(Na). Показана роль новаций на разных технологических стадиях разработки как материала, так и изготовления собственно детектора, позволивших получить качественно новый вид детектора радиации. Особенностью разработки является комплексность подхода к различным стадиям процесса производства детекторов. Предложенный подход апробирован на статистической серии из 46 штук детекторов.

Ключевые слова: детектирование радиации, сцинтиллятор CsI(Na), длинномерный позиционно-чувствительный детектор, неоднородность световыхода.

1. ВВЕДЕНИЕ

Развитие сцинтилляционной физики и техники регистрации радиационных излучений имеет инновационный характер. Это обусловлено многообразием как практических задач, с одной стороны, так и методов достижения целей, с другой. В этом плане новые разработки позиционно чувствительных длинномерных детекторов не являются исключением. Настоящая статья посвящена описанию комплекса новых разработок, направленных на получение технологий и организацию стабильного производства таких детекторов. Работа выполнена в рамках научно технического проекта «Розробка промислових методів отримання та організації дослідного виробництва позиційно чутливих сцинтиляторів CsI(Na) для радіаційних моніторів», который финансировался инновационным фондом НАН Украины.

До настоящего времени сцинтилляторы NaI(Tl) являлись базовыми для детекторов γ -излуче-

ния, используемых для радиационного мониторинга в экологии, системах радиационной безопасности, геологоразведке и др.

Во многих практически важных случаях (напр., при эксплуатации детекторов в жестких климатических условиях, при необходимости обеспечения повышенных требований к механической устойчивости изделий, при гамма-каротаже и т.п.) сцинтиллятор CsI(Na) более предпочтителен благодаря своим сцинтилляционным и механическим характеристикам [1].

Еще одной тенденцией современной инженерии радиационных мониторинговых систем является использование позиционно чувствительных детекторов (ПЧД). Идея использования длинномерного сцинтилляционного кристалла в качестве позиционно чувствительного детектора родилась в Институте сцинтилляционных материалов (ИСМА) НАН Украины в 2000 г. [2] и впоследствии успешно реализована на примере кристаллов CsI (Tl). Так, в 2007–2008 гг. в рамках международных проектов создания космических γ -телескопов GLAST и AGILE были

изготовлены и успешно запущены в космос (НАСА и Европейское Космическое Агентство) сборки на основе ПЧД, произведенные в Харькове [3]. Однако автоматический перенос методов инженерии позиционной чувствительности на CsI(Na) невозможен в силу специфических отличий физико-химических свойств кристаллов CsI(Na) и CsI(Tl).

Таким образом, выполнение инновационного проекта потребовало реализации инновационных подходов в инженерии сцинтилляционных детекторов, состоящих в разработке методов получения длинномерных сцинтилляционных кристаллов CsI(Na) и технологии создания позиционно чувствительных детекторов на их основе.

2. ОСОБЕННОСТИ ПОЛУЧЕНИЯ ДЛИННОМЕРНЫХ ПОЗИЦИОННО ЧУВСТВИТЕЛЬНЫХ ДЕТЕКТОРОВ НА ОСНОВЕ КРИСТАЛЛОВ CSI(NA)

Важной особенностью описываемой разработки является комплексность подхода к различным стадиям процесса производства детекторов. Собственно процесс разработки можно разделить на несколько этапов: рост монокристаллов, изготовление кристаллических элементов, конструирование детектора, разработка электронных устройств сбора и обработки сигналов.

2.1. Рост монокристаллов CsI(Na)

Монокристаллические слитки CsI(Na) диаметром до 300 мм и высотой до 550 мм выращиваются автоматизированным методом вытягивания на затравку в конусном тигле с подпиткой порошкообразным сырьем [4]. Качественный и количественный состав примесей в выращенных слитках контролировался методами оптической и ИК-спектроскопии. Содержание примесных молекулярных анионов в кристаллах — не более 3×10^{-5} мол. %. Концентрация активатора (C_{Na}) в объеме слитков задается из интервала оптимальных значений, в котором световой выход характеризуется максимальным и постоянным значениями [5]. Меж-

ду тем анализ данных тестирования детекторов на основе кристаллов CsI(Na) самого широкого класса и назначения показывает, что интервал значений C_{Na} , в пределах которого выполняются условия $L = L_{max}$ и $L = const$, определяется неоднозначно. Так, для кристаллов длиной до 350 мм включительно C_{Na} целесообразно ограничить сверху значением $1,45 \times 10^{-3}$ вес. %, а кристаллы больше этой длины показывают лучшие результаты в случае, если C_{Na} больше $1,61 \times 10^{-3}$ вес. %. Это обстоятельство указывает на то, что выбор интервала значений C_{Na} в монокристаллической буле, в пределах которого световой выход максимален и постоянен, необходимо соотносить с геометрическими размерами детекторов.

Флуктуации параметров, определяющих процесс роста кристаллов, могут приводить к появлению в объеме монокристаллических слитков включений газовой фазы, структурных дефектов, образованию блоков с кристаллографической ориентацией, отличной от соседних областей, и возникновению локальных полей упругих деформаций [4], обуславливая тем самым флуктуации оптических свойств по объему кристаллов. Это стимулирует разработку специальных систем стабилизации процесса роста, а также разработку специальных методов контроля распределения внутренних напряжений в кристаллах в дополнение к поляризационно-оптическим.

2.2. Порезка и финишная обработка кристалла

Спецификой материала CsI(Na) являются очень низкие предел текучести ($\tau_g \sim 11-40$ г/мм²) и порог старта скольжения дислокаций ($\tau_p \sim 1-3$ г/мм²) [6], которые даже при «мягкой» полировке способствуют деформации поверхностного слоя и рождению большого количества дефектов структуры [7], а также созданию в поверхностных слоях кристаллов трещиноватого или наклепанного слоев [8]. Процесс изготовления детекторов предполагает приложение к кристаллам деформирующих усилий, на порядки превосходящих τ_g . Это происходит

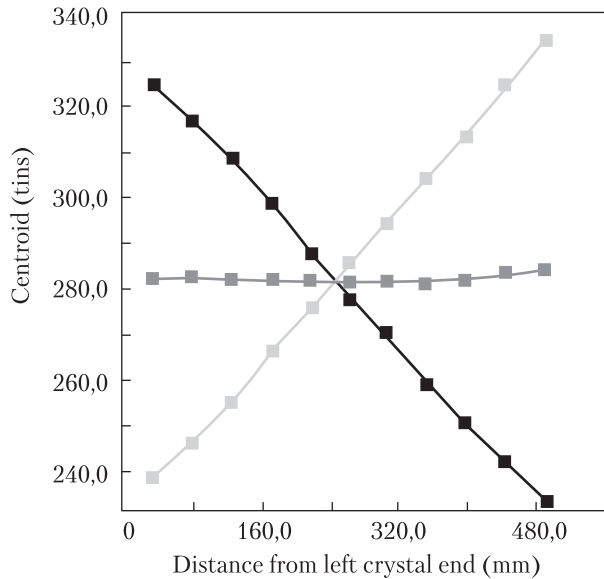


Рис. 1. Распределение световыходов вдоль кристалла CsI(Na) $50 \times 50 \times 500 \text{ мм}^3$ в светоотражающей оболочке ВНА, помещенного между двух ФЭУ

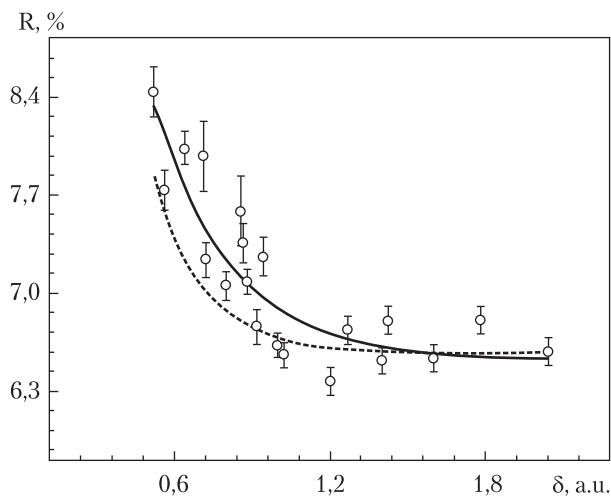


Рис. 2. Зависимость энергетического разрешения ($E_\gamma = 0,662 \text{ МэВ}$) кристаллами с разным отношением их характерных размеров

на этапах резания монокристаллических слитков механической пилой на заготовки и последующей их обработке на токарных станках с целью придания заготовкам заданных геометрической формы и размеров.

Удаление дефектных и снятие упруго напряженных поверхностных слоев производят-

ся шлифовкой поверхности кристаллов абразивными порошками разного размера [9]. При этом величина τ_g может быть превышена в несколько раз, что также ведет к генерации и накоплению структурных дефектов не только в поверхностных слоях, но и в объеме кристаллов. Такие проявления чрезвычайно нежелательны, так как известно, что в кристаллах CsI дефекты типа вакансии участвуют в образовании центров излучательной рекомбинации, т.е. существенно влияют на сцинтилляционный отклик [10–13].

Оптимизация процессов резания кристаллов CsI(Na), цель которой — минимизация деформирующих усилий на кристалл, была развита на основе подходов к обработке кристаллов CsI(Tl) [14, 15]. Исследования влияния механической обработки кристаллов на их сцинтилляционные характеристики показали, что использование в качестве материалов резцов из сапфира и алмаза — наиболее оптимальное решение проблем минимизации в объеме кристаллов дефектов структуры. Глубина и дефектность нарушенных поверхностных слоев в кристаллах контролировалась по величине α -выхода (измерение α/γ -отношения [7]) при регистрации сцинтилляционного свечения с разными временами интегрирования сигнала [16]. Альфа-частицы с энергией 5,15 МэВ (^{238}Pu) имеют в CsI пробег около 30 мкм. В амплитудном спектре пик полного поглощения энергии α -частиц достаточно хорошо выделяется на фоне распределения амплитуд импульсов от γ -фотонов с энергией 0,662 МэВ, что делает измерения α/γ -отношения удобным инструментом экспресс-контроля состояния поверхностного слоя после механической обработки. В результате проведенных разработок глубина нарушенного слоя для кристаллографических плоскостей (100) и (110) не превышала 0,01 мм.

Финишная обработка поверхностей кристаллов заключалась в формировании на них шероховатости, которая задает величину неоднородности и координатную зависимость

сцинтилляционного отклика на внешнее γ -возбуждение. Именно эти характеристики кристаллов придают будущему детектору позиционную чувствительность. Подобная идея управления светосбором в сцинтилляторах, как показано в [17], может эффективно работать при определенных соотношениях высота/диаметр кристалла. Разработка методик создания на поверхности CsI(Na) специальной шероховатости позволила получать распределения светового выхода, пригодные для позиционно чувствительного регистрирования гамма-излучения. В частности, на рис. 1 приведены типичные распределения амплитуд сигналов вдоль длинномерного кристалла, снимаемых с противоположных его торцов.

Таким образом, разработанные специальные технологические подходы к процессам роста кристаллов и их обработки позволили получать заготовки детекторов с позиционно чувствительными характеристиками.

3. КОНСТРУКЦИЯ И ЭЛЕКТРОНИКА ПОЗИЦИОННО ЧУВСТВИТЕЛЬНОГО ДЕТЕКТОРА

Разработки, в основу которых положены описанные выше идеи, создали предпосылки для решения основной инженерной задачи инновационного проекта — создания позиционно чувствительного детектора на основе CsI(Na)-сцинтиллятора.

3.1. Особенности конструкции позиционно чувствительного детектора

В решении задачи создания ПЧД длина кристалла не может быть меньше некоторой характерной длины, определяемой величиной градиента светового выхода и зависимостью энергетического разрешения от него [17]. Поперечное сечение также должно быть больше какого-то характерного размера, поскольку возбуждение детектора зондирующим γ -излучением (с энергией E_γ) осуществляется через его боковую поверхность. На правомочность этого условия указывает зависимость энергетического разрешения от толщины кристалла, входной

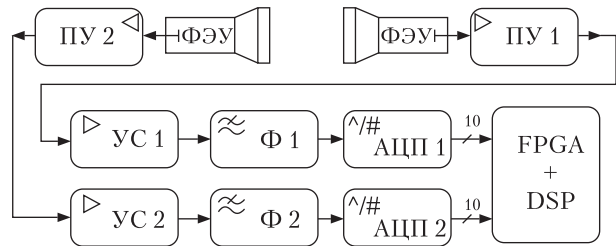


Рис. 3. Блок-схема устройства сбора

для γ -лучей, наблюдаемая в экспериментах (см. рис. 2).

Для настоящей разработки использовались кристаллы в виде прямоугольного параллелепипеда со стороной поперечного сечения 50 мм. Выбор сечения кристалла определен максимальной энергией γ -излучения подлежащей детектированию в рабочих условиях и функцией удельных потерь энергии в нем (для CsI $dE/dx \sim 5$ МэВ/см [18]). Как показали исследования, при выполнении условия $l/X_0 \geq 1$, где l — размер кристалла на входной поверхности, а X_0 — его радиационная длина, размер сечения уже не играет принципиальной роли, но он оказывает влияние на оптимальные параметры шероховатости для разных величин отношения площадей фотокатода ФЭУ и торца кристалла. Кроме того, необходимость достижения минимальных значений энергетического разрешения при регистрации сигналов с противоположных торцов детектора потребовала конструирования термоустойчивого двухканального детектора.

Выбор типа ФЭУ определяется необходимостью высокой квантовой эффективности фотокатода, так как ожидаются незначительные потоки фотонов сцинтилляций, а специальная конфигурация диодной системы должна обеспечивать высокое значение отношения сигнал/шум, поскольку системы мониторинга радиационной обстановки могут размещаться в секторах с повышенным уровнем промышленных электромагнитных помех. С учетом этих особенностей разработан ПЧД с двумя вписанным ФЭУ типа Hamamtsu R6321-01 с диаметром фотокатода

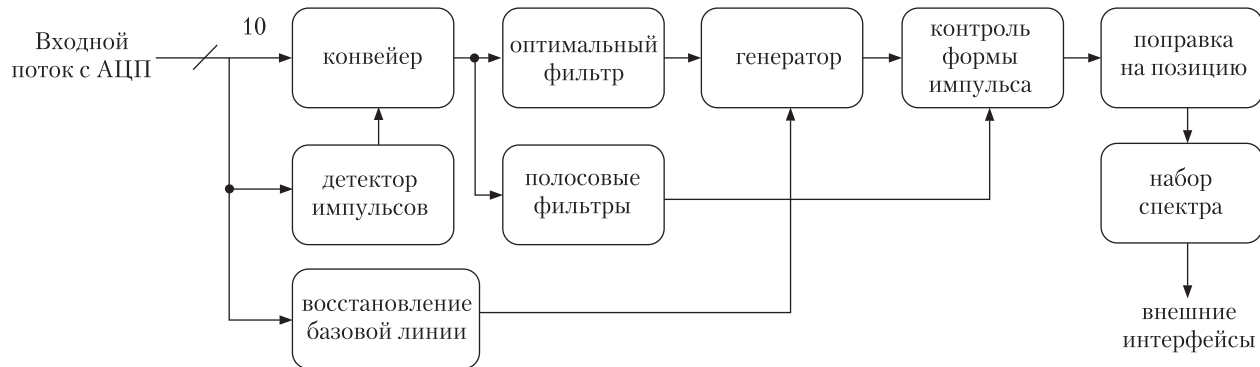


Рис. 4. Тракт обработки сигнала

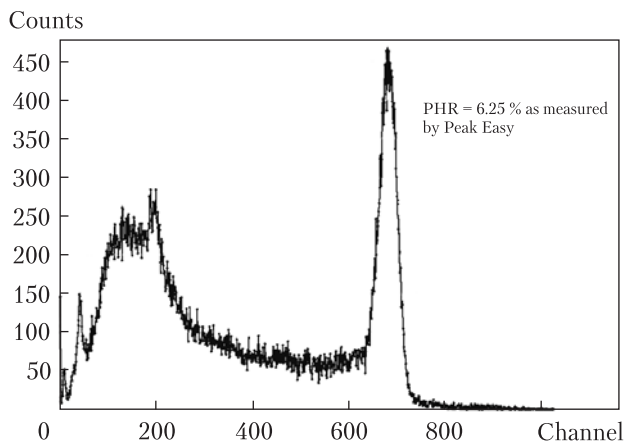


Рис. 5. Типичное распределение амплитуд импульсов, полученное в одной из выбранных точек кристалла CsI(Na) $50 \times 50 \times 500 \text{ мм}^3$ от радионуклида ^{137}Cs

46 мм. Для улучшения светособирания в детекторах использовались световодные переходники «кристалл—ФЭУ».

3.2. Разработка электронных устройств сбора и обработки данных

Определение параметров двухканального позиционно чувствительного детектора основывается на разработке двухканальной системы электронного считывания сигнала. Устройство сбора имеет два канала считывания, подключаемых к ФЭУ. Для уменьшения влияния шумов и помех на набираемый энергетический спектр, а также для исключения ошибочных считываний предусмотрена временная

синхронизация в каналах устройства и идентичность параметров каналов. Это дает возможность построить устройства сбора по принципу непосредственной дискретизации тока анодов ФЭУ с последующей цифровой обработкой полученных сигналов. Блок-схема устройства сбора, разработанного в ИСМА НАН Украины, представлена на рис. 3.

Сигнал с ФЭУ поступает на предусилители (ПУ) 1, 2, преобразующие ток анодов ФЭУ в напряжение. Далее следуют усилители-формирователи (УС) 1, 2, фильтры низкой частоты (Ф) 1, 2 и аналогово-цифровые преобразователи (АЦП) 1, 2. Выходной поток с АЦП1, 2 поступает на блок цифровой обработки, собранный на программируемой логике FPGA и цифровом сигнальном процессоре DSP. Блок-схема тракта обработки одного из каналов устройства представлена на рис. 4.

После дискретизации информация о входном сигнале поступает одновременно на детектор импульсов, конвейер и восстановитель постоянной составляющей. Введение конвейера в тракт сделало возможным учет допороговых и запороговых значений входного сигнала при формировании интегральной суммы, что невозможно при аналоговом интегрировании. Импульсная характеристика оптимального фильтра настроена на форму импульсов сцинтиллятора. Применение дополнительных полосовых фильтров позволяет распознавать наложения импульсов и исключать соответствующие события из про-

цесса обработки. Система сбора допускает передачу собранных спектров через интерфейсы RS485, USB, Ethernet на управляющий компьютер для дальнейшей обработки.

В результате для ПЧД на основе монокристаллов CsI(Na) $50 \times 50 \times 500$ мм³ распределения сигналов сцинтилляционного отклика вдоль детектора (регистрируемые в каждом из каналов), а также суммарное распределение (регистрируемое одновременно обоими каналами) имеют вид, показанный на рис. 1; спектр амплитуд импульсов в произвольной точке вдоль детектора приведен на рис. 5.

Величины неоднородности распределения световых выходов среди 46-и образцов детекторов изменяется в пределах $\pm 0,8\%$ от образца к образцу, энергетическое разрешение отличается не более чем на $\pm 0,2\%$.

4. ВЫВОДЫ

В результате выполнения инновационного проекта завершена разработка нового типа длинномерных позиционно чувствительных детекторов на основе сцинтилляционных монокристаллов типа CsI(Na). Данная разработка не имеет мировых аналогов и реализована вследствие новаций на разных технологических стадиях разработки материала и изготовления ПЧД.

Оптимизация процесса выращивания однородных монокристаллов, новые подходы к созданию шероховатости поверхности, формирующие позиционно чувствительный характер выходного сцинтилляционного сигнала, двухканальная система сбора и обработки сигнала позволили решить поставленную задачу.

Предложенные решения апробированы на практике на 46-и длинномерных ПЧД и дали положительный статистический результат.

В заключение авторы выражают благодарность инновационному фонду НАН Украины за поддержку и финансирование работ по проекту «Розробка промислових методів отримання та організація дослідного виробництва позиційно чутливих сцинтиляторів CsI(Na) для радіаційних моніторів».

ЛИТЕРАТУРА

1. Цирлин Ю.А., Глобус М.Е., Сысоева Е.П. Оптимизация детектирования гамма-излучения сцинтилляционными кристаллами. — М.: Энергоатомиздат, 1991. — 179 с.
2. Gavryluk V., Gektin A., Zosim D., Yankelevich V. Long Length Scintillators for the Position Sensitive Radiation Detectors // Abstracts Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference. — Lyon (France). — 2000. — P. 263.
3. Boyarintsev A., Gavryluk V., Gektin A., Zosim D. Position Sensitive Scintillators for Astrophysical Applications // Proc. of the Int. Conf. on Inorganic Scintillators and their Industrial Applications (Scint-2005). — Alushta (Ukraine). — 2005. — P. 164.
4. Горилецкий В.И., Гринев Б.В., Заславский Б.Г. и др. Рост кристаллов. Галогениды щелочных металлов. — Харьков: Акта, 2002. — 535 с.
5. Панова А.Н. Неорганические сцинтилляторы. Изв. АН СССР. Сер. Физ. // 1985. — Т. 49, № 10. — С. 1994.
6. Тагараджан Р., Урусовская А.А. Движение и размножение дислокаций в кристаллах йодистого цезия // ФТТ. — 1965. — Т. 7, № 1. — С. 88.
7. Kudin A., Sysoeva E.P., Sysoeva E.V., et al. Factors which define on alpha/gamma ratio in CsI:Tl crystals // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. — 2005. — A537. — P. 105.
8. Блистанов А.А. Кристаллы квантовой и нелинейной оптики. — М.: МИСИС, 2000. — 431 с.
9. Патент 2017170 С1 РФ, 5 G01 T 1/202. Способ изготовления щелочно-галогидных сцинтилляторов / Андрющенко Л.А., Гершун А.С., Сотников В.Т., Черников В.В. // Институт монокристаллов НАН Украины. — № 5006562/25. — Заявл. 02.07.91; Опубл. 30.07.94, Бюл. № 14. — 14 с.
10. Гектин А.В., Ширан Н.В., Серебряный В.А. Роль вакансионных дефектов в люминесценции CsI // Оптика и спектроскопия. — 1992. — Т. 22, № 5. — С. 1061.
11. Моргенштерн З.Л. Свечение неактивированных монокристаллов CsI // Оптика и спектроскопия. — 1959. — № 7. — С. 231.
12. Babin V., Elango A., Kalder K., Zazubovich S. Effect of uniaxial stress on exciton luminescence in CsI crystals // Phys. Status Solidi (b). — 1999. — 212. — P. 185.
13. Boyarintsev A., Gayshan V., Gektin A., Zosim D. Mechanical deformation effect on CsI(Tl) scintillators efficiency // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. — 2003. — A505. — P. 97.
14. Рогов В.В., Ветров А.Г., Бояринцев А.Ю. Развитие технологии алмазного микрофрезерования деталей из неметаллических материалов // Сверхтвердые материалы. — 2003. — № 6. — С. 85–86.
15. Рогов В.В., Данько А.Я., Сенчишин В.Г., Бояринцев А.Ю. Резцы из сапфира и рубина (α -Al₂O₃) для лезвийной финишной обработки сцинтилляционных материала-

лов // Сверхтвердые материалы. — 2006. — № 2. — С. 59.

16. *Панова А.Н., Гринев Б.В., Лаврентьев Ф.Ф. и др.* Роль активаторных и вакансионных центров в затухании гамма — сцинтилляций кристаллов CsI-Na // ЖПС. — 2004. — Т. 71, № 4. — С. 502.
17. *Gektin A.V., Gavrylyuk V.P., Zosim D.I., Yankelevich V.L.* Unidimensional Position Sensitive Detector // Functional Materials. — 2005. — V. 12, № 1. — P. 131–141.
18. *Gwin R., Murray R.* // Phys. Rev. — 1963. — V. 131. — P. 501.

*А.Ю. Бояринцев, О.В. Гектін, Д.І. Зосим, О.І. Іванов,
В.В. Шляхтуров, В.П. Гаврилюк*

РОЗРОБКА ПРОМИСЛОВИХ МЕТОДІВ ВИГОТОВЛЕННЯ ПОЗИЦІЙНО ЧУТЛИВИХ ДЕТЕКТОРІВ CsI(Na)

Описана розробка позиційно чутливих детекторів на основі сцинтиляційних монокристалів CsI(Na). Показана роль новацій на різних технологічних стадіях розробки як матеріалу, так і виготовлення власне детектора, що забезпечили створення якісно нового типу детектора радіації. Особливістю розробки є комплексність підходу до різних стадій процесу виробництва детекторів. Запро-

понований підхід випробувано на статистичній серії із 46 детекторів.

Ключові слова: детектування радіації, сцинтилятор CsI(Na), довгомірний сцинтиляційний позиційно-чутливий детектор, неоднорідність світлового виходу.

*A.Yu. Boyarintsev, A.V. Gektin, D.I. Zosim, A.I. Ivanov,
V.V. Shlyakhturov, V.P. Gavrylyuk*

DEVELOPMENT OF INDUSTRIAL METHODS OF POSITION-SENSITIVE CsI(Na) DETECTOR PRODUCTION

Development and engineering of position sensitive radiation detectors on the base on CsI(Na) single crystals is described. It is shown that the line of innovations during development of both material and detector is the core for the new generation of radiation detector production. The main feature of the development is the multi functional approach to each technological step. The proposed approach has been tested at statistical series of 46 detectors.

Key words: radiation detection, CsI(Na) scintillator, long length positive sensitive radiation detector, light output non-uniformity.

Надійшла до редакції 21.05.10