

НАЦІОНАЛЬНА АКАДЕМІЯ НАУК УКРАЇНИ

ІНСТИТУТ МОНОКРИСТАЛІВ

Діденко Ганна Володимирівна

УДК [548.5:546.36'15'683]:539.1.074.3:535.376

**МАТЕРІАЛИ І СЦИНТИЛЯЦІЙНІ ФОТОДІОДНІ
ДЕТЕКТОРИ ДЛЯ РЕЄСТРАЦІЇ ЗАРЯЖЕНИХ ЧАСТИНОК
І КВАНТІВ В НАВКОЛОСОНЯЧНОМУ ПРОСТОРІ**

05.02.01 - матеріалознавство

АВТОРЕФЕРАТ

дисертації на здобуття наукового ступеня

кандидата технічних наук

Харків – 2017

Дисертацією є рукопис
Робота виконана в Інституті сцинтиляційних матеріалів
НАН України, м. Харків

Науковий керівник доктор технічних наук, старший
 науковий співробітник
Кудін Олександр Михайлович,
професор кафедри фізико-математичних
дисциплін Національного університету
цивільного захисту України

Офіційні опоненти доктор технічних наук, старший
 науковий співробітник
Білоус Віталій Арсентійович,
заступник директора з наукової роботи
Інституту фізики твердого тіла,
матеріалознавства і технологій
ННЦ «Харківський фізико-технічний
інститут» НАН України

 доктор технічних наук, старший
 науковий співробітник
Береснєв В'ячеслав Мартинович,
професор кафедри матеріалів реакторо-
будування та фізичних технологій
Харківського Національного університету
ім. В.Н. Каразіна МОН України

Захист відбудеться " 17 " жовтня 2017 р. о 14 годині на засіданні
спеціалізованої вченої ради Д 64.169.01 при Інституті монокристалів НАН
України за адресою: 61001, м. Харків, пр. Науки, 60

З дисертацією можна ознайомитись у науковій бібліотеці Інституту
монокристалів НАН України (м. Харків, пр. Науки, 60) та на веб-сайті
інституту за адресою http://isc.kharkov.ua/page-specialized_concuil.html

Автореферат розісланий " ____ " вересня 2017 р.

Вчений секретар
спеціалізованої вченої ради,
кандидат фіз.-мат. наук

М.В. Добротворська

ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

Актуальність теми. Відомо, що детектори на основі неорганічних сцинтиляторів з фотодіодним (ФД) приймачем світла мають цілу низку переваг у порівнянні зі зборками на основі фотоелектронних помножувачів (ФЕП). Переваги фотодіодної реєстрації сигналу виявляються найнаочніше при космічних дослідженнях в умовах жорстких вимог до ваги, габаритів і енергоємності апаратури. Підставою до виконання даної роботи була програма по створенню супутникового телескопа електронів і протонів STEP-Ф для вивчення радіаційних поясів Землі, а також розробка спектрометра SIXS (Solar Intensity X-ray and Particle Spectrometer), призначеного для виміру рентгенівського випромінювання і заряджених частинок під час польоту космічного апарату європейської місії *BepiColombo* до Меркурія.

Необхідність реєстрації заряджених частинок зумовлює вибір сцинтиляційного матеріалу, відомо, що CsI:Tl є кращим матеріалом для детектування і ідентифікації частинок за їх зарядом і масою. Підвищені вимоги до радіаційної стійкості матеріалу, особливо для місії *BepiColombo*, а також до однорідності характеристик за об'ємом, що необхідне для створення багатоелементного детектора, передбачають порівняльну оцінку і вибір матеріалу на основі складнолегованих кристалів CsI:Tl, оскільки на основі цієї матриці відомо декілька матеріалів, що істотно розрізняються за властивостями, зокрема, по радіаційній стійкості і післясвіченню.

При розробці фотодіодних детекторів виникає ряд специфічних проблем, пов'язаних з невеликими розмірами чутливої площадки ФД, слабкою їх чутливістю в синьої області спектру, невеликим коефіцієнтом посилення та ін. Ці обставини обмежують як ефективність реєстрації з боку жорстких квантів, так і енергетичний діапазон детектування з боку м'яких енергій. Тому, актуальним завданням є розробка фотодіодних детекторів збільшеного об'єму, а також розширення діапазону реєстрації у бік низьких енергій.

Умови експлуатації детекторів γ -квантів, рентгенівського випромінювання, заряджених частинок відрізняються, а вимоги до них найчастіше суперечливі. Тому у кожному конкретному випадку необхідно обґрунтувати вибір сцинтиляційного матеріалу, матеріалів оптичної системи сцинтиляційного елемента, провести оптимізацію розмірів і форми чутливого елемента для реалізації найбільш сприятливих умов світлозбирання з врахуванням особливостей експлуатації матеріалів і виробів.

Фотодіодні детектори є відносно молодою областю сцинтиляційної техніки. На момент постановки теми роботи комерційно доступні

спектрометри для роботи з ФД були відсутні, тому актуальним завданням була характеристика спектрометричної якості як самих сенсорних матеріалів, призначених для роботи з ФД, так і атестація готових фотодіодних детекторів.

Зв'язок роботи с науковими програмами. Напрямки досліджень відповідають цільовій комплексній програмі наукових досліджень НАН України «Фундаментальні проблеми створення матеріалів з наперед заданими властивостями, методів їх з'єднання і обробки».

Всі дослідження і розробки виконано в Інституті сцинтиляційних матеріалів НАН України згідно особистого плану аспіранта і відповідно до тематичних планів науково-дослідних робіт, зокрема: "Вплив" (2004-2006 рр.) – "Дослідження процесів тепломасопереносу і їх впливу на стабільність росту великогабаритних лужно-галоїдних сцинтиляційних монокристалів та їх якість" (№ держреєстрації 0104U006375); "Спинодаль" (2010-2012 рр.) – Керування процесами розпаду твердого розчину в складно легованих сцинтиляційних кристалах для ефективної ідентифікації частинок за атомним номером і масою" (№ держреєстрації 0110U001614); "Планетологія" (2008-2009 рр.) – "Розробка наукових засад застосування ефективних детекторів іонізуючих випромінювань для дослідження небесних тіл методами ядерної планетології" (№ держреєстрації 0109 U007225); "Калібратор" (2011р.) – Пошук та реалізація рішень по створенню радіонуклідного калібратора доз нового покоління для ядерної медицини" (№ держреєстрації 0111 U001887).

Мета та задачі дослідження. Мета дисертаційної роботи полягала у виборі і поглибленому вивченні матеріалів для фотодіодних детекторів, а також у розробці сцинтиляційних зборок для реєстрації гамма-квантів і заряджених частинок на орбіті Землі та Меркурія. Для досягнення цієї мети необхідно було розв'язати такі задачі:

- обрати сцинтиляційний матеріал і обґрунтувати доцільність саме такого вибору за результатами досліджень радіаційної стійкості та післясвічення, а також однорідності розподілу світлового виходу по об'єму;
- вдосконалити методи поверхневої обробки виробів, що є адаптованими до технології виготовлення фотодіодних детекторів і забезпечують їх задані й стабільні параметри;
- оптимізувати умови світлозбору з урахуванням форми виробів і вихідного вікна сцинтилятора, а також властивостей матеріалів оптичної системи сцинтиляційних модулів;
- виготовити сцинтиляційні модулі й вивчити їх функціональні характеристики за умов збудження гамма-квантами і протонами;

- оцінити придатність обраних матеріалів чутливого елемента і оптичної системи сцинтиляційних модулів за умов конкретної космічної місії.

Об'єкт дослідження – процеси формування сцинтиляційного спалаху в об'ємі та поблизу вільної поверхні кристалів CsI:Tl, механізми впливу додаткового легування одновалентними катіонами і молекулярними аніонами на умови росту і функціональні характеристики матеріалів і фотодіодних детекторів залежно від складу кристалів і умов їх експлуатації.

Предмет дослідження – сцинтиляційні характеристики матеріалів залежно від типу матеріалу, умов росту, механічної обробки поверхні і упаковки сцинтилятора. Зміна світлового виходу і коефіцієнта оптичного поглинання залежно від дози опромінення.

Методи дослідження. Сцинтиляційні характеристики матеріалів визначались спектрометричними методами, рівень післясвічення – спектрально-кінетичними, радіаційна стійкість визначалась за деградацією світлового виходу і прозорості кристалів в області поглинання центрів забарвлення. Стан поверхні кристалів вивчався методом оптичної мікроскопії й виміром сцинтиляційної ефективності поверхневих шарів за допомогою квантів різної енергії. Концентрація домішок визначалась хімічним аналізом.

Наукова новизна роботи полягає у тому, що в роботі вперше:

1. Показано, що легування кристалів CsI:Tl аніонами CO_3^{2-} і катіонами Na^+ забезпечує завдяки сприятливим умовам росту однорідність, як за домішковим складом, так і за спектрометричними характеристиками. Розміри однорідної частини кристала перевищують 200 см^3 , що достатньо для виготовлення модульної збірки з 16 елементів і більш.
2. Показано, що легування кристалів CsI:Tl іонами NO_2^- , що утворюють центри гасіння, і катіонами Na^+ дозволяє знизити рівень післясвічення цього матеріалу (у середньому на 50 %) і зберегти високі значення світлового виходу і енергетичного розділення. При реєстрації протонів з енергією 20 MeV отримано енергетичне розділення 1,5 % для фотодіодних детекторів.
3. Показано, що радіаційна стійкість сцинтиляційного матеріалу CsI:Tl, легованого NO_2^- і Na^+ , відповідає дозі $7 \cdot 10^3$ Гр при γ -опроміненні, а для протонів з енергією 50 MeV перевищує флюенс 10^{12} см^{-2} , що краще аналогічних показників для CsI:Tl, CO_3 (критична доза $5 \cdot 10^2$ Гр; флюенс $9 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$).
4. Запропоновано шляхи розширення енергетичного діапазону фотодіодних детекторів. Показано, що поріг реєстрації можна знизити до 17 keV, а

чутливість до жорстких квантів покращити за рахунок збільшення об'єму сцинтилятора шляхом модульної зборки.

Практичне значення отриманих результатів. Розроблені фотодіодні детектори для реєстрації протонів на основі кристалів CsI:Tl,NO₂ пройшли всі необхідні випробування і призначені складовою частиною спектрометра SIXS для вивчення сонячної активності на орбіті Меркурія. Старт європейської місії *VeriColombo* призначений на 2017р.

Фотодіодні детектори на основі кристалів CsI:Tl,CO₃ успішно відпрацювали ресурс на борту космічного апарату Коронас-Фотон. Телескоп СТЕП-Ф виявив тонку структуру радіаційних поясів Землі. Авторський колектив розробників цього приладу був удостоєний премії Кабінету Міністрів України за розробку і впровадження інноваційних технологій.

Доз-калібратор фізіологічних розчинів для ядерної медицини отримав схвалення фахівців медичного центру охорони здоров'я дітей і підлітків (м. Харків), пройшов атестацію у ННЦ «Інститут Метрології». В даний час прибор знаходиться на випробуваннях у клініках м. Києва.

Особистий внесок автора. Тему дисертаційної роботи і напрямки досліджень було вибрано спільно з науковим керівником. Разом з ним було вибрано зразки із злитків, що були вирощені у відділі великогабаритних кристалів. Експериментальні зразки і фотодіодні детектори виготовлені самостійно.

Спектрометричний стенд [6] був створений разом с В.В. Білогубом і Ю.О. Бороденко, авторка сконструювала вимірювальну камеру і провела порівняльні дослідження за допомогою стенду. В роботі [1] авторка визначила рівень післясвічення кристалів CsI:Tl,NO₂, в роботі [3] вона провела вимірювання амплітудних спектрів і спектрів оптичного поглинання. В роботі [2] вона провела порівняльні вимірювання оптичних полімерних матеріалів, в [4] розповсюдила і адаптувала методи запобігання появи мертвого шару у разі кристалів CsI:Tl,CO₃ і CsI:Tl,NO₂. В роботі [5] авторка обґрунтувала можливість розширення енергетичного діапазону і визначила поріг реєстрації з боку низьких енергій. В патенті «Полірувальний склад» [7] авторові належить визначення оптимального складу суміші. У патенті [8] їй належить визначення оптимального розташування детектора відносно фізіологічних розчинів.

Всі статті обговорювалися, були написані і оформлені за безпосередньою участю авторки, патент [8] написано і оформлено самостійно, а [9] разом з Л.А. Андрющенко. Тези доповідей написано самостійно, доповіді [10-13] представлено на профільних конференціях особисто дисертанткою.

Апробація результатів роботи. Результати дисертації доповідалися й обговорювалися на міжнародних профільних конференціях:

- International conference "Inorganic Scintillators and Their Applications" (SCINT-05): September 17-21, 2005, Alushta, Crimea (Ukraine);
- 6th European Conference "Luminescent Detectors and Transformers of Ionizing Radiation" (LUMDETR-06), June 19-23, 2006, Lviv (Ukraine);
- Nuclear Science Symposium (NSS-2004), October 18-23, 2004, Rome (Italy);
- Инженерия сцинтилляционных материалов и радиационные технологии (ИСМАРТ-2008), 16-21 листопада 2008 р., Харків (Україна);
- VI Відкрита українська конференція молодих вчених з високомолекулярних сполук (ВМС-2008), 30 вересня – 3 жовтня 2008 р., Київ (Україна);
- Инженерия сцинтилляционных материалов и радиационные технологии (ИСМАРТ-2012), 19-23 листопада 2012 р., Дубна (Росія).

Крім цього матеріали дисертації доповідалися на школах-семінарах молодих вчених «Сцинтиляційні процеси і матеріали для реєстрації іонізуючого випромінювання» (Харків, Україна, 2008 і 2010 рр.).

Публікації. Основні результати роботи опубліковані в 15 наукових працях. Серед них 6 статей у профільних журналах (з них 4, що входять до міжнародної бази даних SCOPUS), 2 патенти України та 7 тез доповідей на міжнародних конференціях.

Структура і обсяг роботи. Дисертація складається зі вступу, літературного огляду, чотирьох експериментальних розділів, висновків, списку використаних джерел і 1 додатку. Вона викладена на 113 сторінках тексту, містить 40 рисунків, 19 таблиць та список цитованої літератури з 189 найменувань.

ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

У вступі обґрунтовано актуальність проблеми, її зв'язок з науковими програмами, сформульована мета і завдання досліджень, наукова новизна і практичне значення отриманих результатів.

Перший розділ «Сцинтиляційні матеріали і сучасні уявлення про методи реєстрації радіації» містить огляд існуючих уявлень про сцинтиляційні матеріали. Відзначено, що, не дивлячись на появу нових матеріалів з високими спектрометричними характеристиками, незамінним матеріалом для реєстрації і ідентифікації заряджених частинок залишається CsI:Tl. Розглянуто властивості складнолегованого матеріалу CsI:Tl,CO₃, у якому талій створює центри свічення в жовтої області спектру, аніони CO₃²⁻ зменшують післясвічення, а

натрій збільшує радіаційну стійкість. Відмічений взаємозв'язок між сцинтиляційними характеристиками матеріалів і умовами їх отримання.

Розглянуто основні функціональні характеристики сцинтиляційних матеріалів, у тому числі мілісекундне післясвічення (J_{100}) і радіаційна стійкість, а також уявлення про чинники, які обмежують ці параметри.

Розглянуто системи реєстрації сигналу. Підкреслено, що космічні дослідження висувають жорсткі вимоги до ваги, габаритів і енергоємності апаратури. Серед розглянутих фотоприймачів найбільш відповідними для космічних вживань є *pin*-фотодіоди завдяки малим розмірам, вазі, низькій робочій напрузі, стабільності, механічній міцності, і хорошим спектрометричним характеристикам. Ще одним істотним достоїнством є нечутливість апаратури до магнітних полів. Відзначено, що недоліком ФД є малий розмір чутливої площадки, розмір якісних ФД не більш 10×10 мм.

Формулюються невирішені завдання і коло питань, які вирішуються в дисертаційній роботі.

У другому розділі «Виготовлення модельних зразків і детекторів і методи їх досліджень» надано короткий опис методу вирощування великогабаритних кристалів на установці «Кристал-400» з підживленням розплавленою сировиною. Відзначено, що розглянутий спосіб вирощування і використане устаткування дозволяють вивчати вплив легуючих добавок на теплові умови росту кристалів. Сприятливими умовами зростання є такі, коли керуючий нагрівач в основному підвищує температуру, уповільнюючи швидкість кристалізації, тобто відношення $T_i / T_0 > 1$, де T_i – поточна температура нагрівача, а T_0 – температура спочатку зростання з постійним діаметром. Відомо, що летуча домішка талія (ТІ) розподілена по висоті злитка однорідне у тому разі, якщо діаметр кристалу є постійним.

Вирощені монокристали орієнтувалися по кристалографічних осях і розрізалися на заготовки методом направлено розчинення на нитяній пилі. Описано верстат прецизійного розпилювання СПР-02, який використовувався для виготовлення мініатюрних елементів і був оснащений діамантовим диском з внутрішньою ріжучою кромкою. Вирізані деталі найчастіше не вимагали подальшої шліфовки і поліровки, а точність геометричних розмірів складала $\delta \sim 0,01$ мм. Глибина порушеного шару була мінімальна. При швидкості обертання шпинделя 7500 об/хв і швидкості подачі заготовки $v \leq 0,05$ мм/с поверхня виробів не мала характерних слідів розпилювання, а рівень післясвічення виготовлених елементів відповідав початковому.

За необхідністю фінішна поліровка виробів була проведена на верстаті СД-2. Для якісної поверхневої обробки було розроблено полірувальний склад, що містить у якості абразивного матеріалу порошок діоксиду кремнію і

нанопорошок оксиду алюмінію сферичної форми, а у якості змочувальної рідини – каучук СКТНЕВ-2БП-Г. Така обробка поверхні забезпечила необхідну площинність вихідного вікна і надійність оптичного зв'язку з ФД.

На момент постановки роботи апаратура для атестації фотодіодних детекторів не випускалася. Описано вимірювальний стенд, сконструйований для вивчення спектрометричних характеристик зразків і виробів. У спектрометрі використовувався ФД фірми Hamamatsu типа S3590-08 (для детекторів з вихідним вікном 10×10 мм) і фотодіод типа FD-05-25 DIP, що випускається ГП «НДІ Мікроприлад», Київ (для детекторів з вихідним вікном 5×5 мм і менше). При тестуванні фотодіодних детекторів сцинтиляції, як правило, збуджувалися γ -квантами від джерел ^{137}Cs , ^{241}Am і ^{60}Co . Світловий вихід визначався для часу формування сигналу $\tau_{\text{RC}} = 8$ мкс. Було передбачено можливість встановлювати величину τ_{RC} : 8, 18 і 48 мкс.

Приведені способи виміру оптичних характеристик сцинтиляційного матеріалу. Поглинання в УФ- і видимій області спектру вимірювалося на спектрофотометрі СФ-26. Поглинання в ІЧ-області вимірювалося на інфрачервоному спектрофотометрі UR-20 при кімнатній температурі. Спектральний склад свічення аналізувався монохроматором МДР-23 і реєструвався фотоприймачем ФЕП-100. Запис спектрів проводився самописцем КСП-4. Для оцінки радіаційної стійкості кристалів проводилися послідовні опромінення зразків-свідків джерелом ^{60}Co дозами 1; 10; 10^2 ; 10^3 і 10^4 Гр. Потужність дози на той період часу складала 1,25 Гр/хв.

Тестування фотодіодних зборок проводилося на устаткуванні прискорювального центру RADEF у Фінляндії (University of Juvaskyla). Зразок опромінювався на повітрі при кімнатній температурі. Початкова енергія пучка протонів була 55 МеВ. Виміри післясвічення J_{100} були проведені на установці NPG3 фірми Smiths-Niemann GmbH.

У третьому розділ «Вибір сенсорних і конструкційних матеріалів для фотодіодних детекторів», перш за все, розглянуто вимоги до сцинтиляційного матеріалу для космічного телескопа СТЕП-Ф. Зроблений висновок про те, що ці вимоги аналогічні таким для телескопа GLAST, який вже працює на орбіті Землі. Відзначено, що для багатоелементних детекторів принципове значення має ідентичність сенсорних елементів за сцинтиляційними характеристиками, такими як світловий вихід, енергетичне розділення і, особливо, рівень мілісекундного післясвічення (J_{100}) і радіаційна стійкість. Однорідність характеристик безпосередньо пов'язана з однорідністю домішкового складу матеріалу за об'ємом.

Проведений патентний аналіз показав, що в даний час на основі кристалів CsI:Tl відомо декілька сцинтиляційних матеріалів, що розрізняються

додатковим легуванням. Порівняння матеріалів по актуальних характеристиках приведене в табл. 1. Умови росту характеризуються відношенням T_i/T_0 , якщо воно більше одиниці, умови сприятливі (+), тобто зростання злитка йде з постійним діаметром і однорідним вмістом талія в розплав і кристалі. Інакше в таблиці вказаний знак мінус (-).

По-перше, це кристали CsI:Tl, які не містять окрім активатора інших добавок. Зважаючи на істотні технологічні труднощі одержання подібного матеріалу, реально вони представлені кристалами, які на стадії росту піддавалися додатковому очищенню. Комерційно доступні кристали CsI:Tl вирощуються методом Стокбаргера (Stb), і тому вони характеризуються неоднорідним розподілом активатора по висоті злитка.

Таблиця 1 – Характеристики відомих сцинтиляційних матеріалів на основі кристалів CsI:Tl

Матеріал		Умови росту		L , MeB ⁻¹	D_c , Гр	δC_{Tl} , %	Післясвічення, %	
		метод	T_i/T_0				J_{MS}	J_{MN}
1	CsI:Tl	Stb		48 000	≥ 10	± 10	0,8÷2,5	+
2	CsI:Tl,IO ₃	Stb		44 000	> 10	100	$\leq 0,7$	-
3	CsI:Tl,BO ₂	Stb/Krp	+	31 000	< 1	± 5	$\leq 0,7$	-
4	CsI:Tl,Eu	Krp	-	48 000	1	± 10	$\leq 0,7$	+++
5	CsI:Tl,CO ₃	Krp	++	48 000	$\sim 10^2$	± 5	0,7÷1,0	++
6	CsI:Tl,NO ₂	Krp	+	45 000	$> 10^2$	± 5	$\leq 0,7$	+/-

По-друге, кристали CsI:Tl,IO₃, з яких промислово виготовлялися детектори заряджених частинок. На жаль, вони вирощувалися лише методом Стокбаргера, тому дані про T_i/T_0 для них відсутні, а розподіл талія неоднорідний по висоті злитка. Спроби використання методу Кіропулоса (Krp) для росту кристалів CsI:Tl,IO₃ привели до негативного результату, матеріал мав велику кількість ростових дефектів. Річ у тому, що в розплав вводиться домішка CsIO₃, що розкладається (з виділенням O₂), з цієї причини в розплаві виникає велика кількість газових бульбашок.

Низький рівень мс-ПС мають кристали CsI:Tl,Eu і CsI:Tl,BO₂. Не дивлячись на те, що ці матеріали можна виростити як методом Стокбаргера, так і Кіропулоса, вони легко забарвлюються під дією іонізуючого випромінювання і не відповідають вимогам радіаційної стійкості.

Показано, що перспективним матеріалом для створення багатоелементних детекторів є кристал CsI:Tl,CO₃, оскільки наявні дані свідчать про однорідний

розподіл активатора по висоті вирощених кристалів. В той же час відзначено, що необхідні додаткові дослідження однорідності кристалів за сцинтиляційними параметрами, такими як світловий вихід, енергетичне розділення і, особливо, рівень післясвічення J_{100} .

Нагадаємо, що супутниковий телескоп GLAST зібраний з кристалів CsI:Tl,CO₃. Враховуючи той факт, що дозове навантаження в нашому випадку вище (орбіта супутника *Коронас-Фотон* багато разів перетинає радіаційні пояси Землі), вимоги до матеріалу по радіаційній стійкості були посилені. Можливим рішенням цієї задачі може бути ретельний відбір найбільш радіаційно-стійких зразків на основі кристалів CsI:Tl,CO₃.

Вимога до радіаційній стійкості матеріалу, що буде використаний для спектрометра SIXS, є ще більш жорсткішими, необхідно аби $D_c > 10^2$ Гр. З аналізу даних таблиці зроблений вивід про те, що перспективним матеріалом для приладу SIXS і місії *BipiColombo* є кристали CsI:Tl,NO₂. У патенті на матеріал затверджується, що його мс-ПС знижено, проте дані про однорідність характеристик не наводяться. За попередніми даними радіаційна стійкість цього матеріалу не гірша, ніж CsI:Tl,CO₃ або CsI:Tl,IO₃, проте зведення про критичну дозу опромінення відсутні.

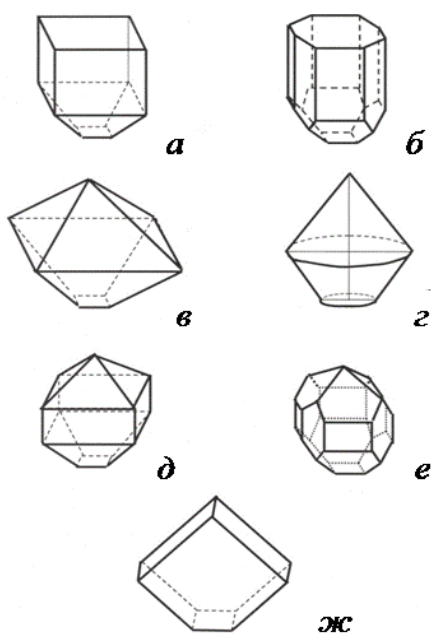
Далі розглянуто сучасні полімерні матеріали для створення відбивачів. В разі реєстрації протонів та α -частинок, суперечність вимог до відбиваючих матеріалів полягає, з одного боку, в максимальній відбивній здатності при мінімальній товщині шару з другого боку. Не зважаючи на появу нових ефективних матеріалів, що відбивають (дзеркальних, як плівка VM-2000, або матових, як Spectralon), вибір був зроблений на користь плівкового покриття на основі лаку КО-08. У якості наповнювача був використаний однофазний і спеціально очищений порошок TiO₂. Було відомо, що таке покриття має надійність, довговічність і стабільність при досить високому коефіцієнті віддзеркалення ($r = 0.95$) і добрій адгезії до поверхні кристалу CsI.

У якості матеріалу для оптичного контактного елемента був вибраний полідиметилсилоксановий каучук СКТН-МЕД. Для створення оптичних контактних покриттів використовувалися композиції на основі каучуку СКТН-МЕД з каталізатором № 68.

Далі в цьому розділі розглянуто особливості світлозбору у фотодіодних детекторах, що виникають при збільшенні об'єму чутливого елемента. Нагадаємо, що основним недоліком фотодіодної реєстрації сигналу є невеликий розмір фоточутливої площадки приймача. Розгляд проведений для вибраного типу фотодіодів з $S = 1$ см². Обґрунтовано необхідність вживання концентруючих світловодів при збільшенні об'єму сцинтилятора. Показано, що

спектрометричні характеристики фотодіодних детекторів залежать від форми елемента і місця розташування фотоприймача.

Розглянуто можливі форми сцинтиляційного елемента (рис. 1) з точки зору технологічності виготовлення і ефективності реєстрації падаючого випромінювання. Проведено порівняльні виміри значень світлового виходу і енергетичного розділення для елементів різної форми, але однакового об'єму, результати приведені в табл. 2. Показано, що кращі спектрометричні характеристики відповідають типові "e" на рис. 1, форма якого найбільш близька до кулястої. Для форми "д" результати трохи гірше, проте, елементи такої форми більш технологічні у виготовленні і щільніше заповнюють об'єм збірки.



Таблиця 2
Спектрометричні характеристики елементів різної форми. Позначення відповідно малюнку

Форма	$^{137}\text{Cs}; 662 \text{ кеВ}$	
	L , канали	R , %
<i>a</i>	2859	6,2
<i>б</i>	2865	6,2
<i>в</i>	2839	6,3
<i>г</i>	2901	6,0
<i>д</i>	2919	5,9
<i>е</i>	2925	5,8
<i>ж</i>	2867	5,9

Рис. 1 – Форми рівного об'єму чутливого елемента фотодіодного детектора

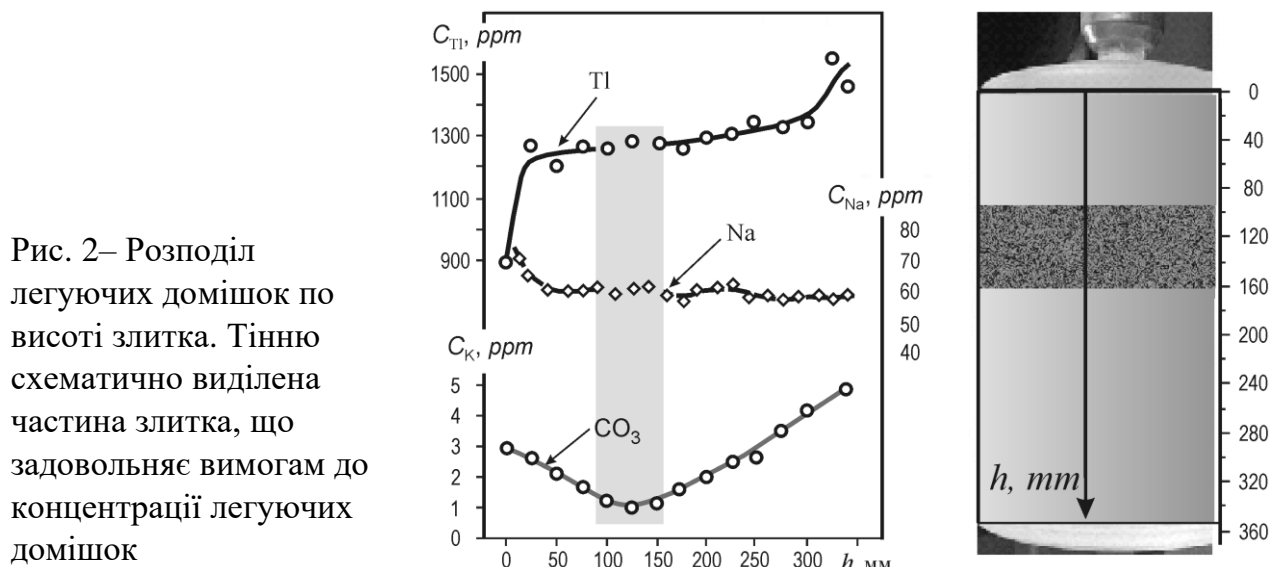
Враховуючи ці міркування у якості базового блоку 16-елементної збірки сумарним об'ємом більше 200 см^3 було вибрано форма типа "д".

Четвертий розділ «Радіаційна стійкість, післясвічення і однорідність характеристик вибраних матеріалів» присвячений поглибленому вивченню функціональних характеристик вибраних матеріалів.

Перш за все, розглянута однорідність матеріалу CsI:Tl,CO_3 за сцинтиляційними параметрами. Підтверджено, що кристали, вирощені автоматизованим методом витягування на затравку в сприятливих умовах зростання, характеризуються однорідним розподілом талію і натрію за об'ємом діловій частині злитка, як це видно з даних рис. 2. Тут і далі концентрацію домішок вказано у молярних долях проценту або *ppm* – *part per million*). Відповідно, однорідний розподіл характерний також для значень світлового

виходу і енергетичного розділення, про що свідчать дані таблиць, що наведено у дисертації.

На відміну від катіонів Tl^+ і Na^+ , термічно нестабільні аніони CO_3^{2-} , розподілені за об'ємом злитка не рівномірно. Ймовірно, тому значення мс-ПС і радіаційної стійкості розподілені також неоднорідно. Проте, із злитка зазвичай можна вирізувати область об'ємом більш 200 см^3 з однорідним вмістом ($\delta C \sim 6\%$) всіх контрольованих домішок (виділена тінню на фотографії рис. 2). Перевірка зразків, вирізаних з такої частини злитка, показала, що вони є однорідними як за світловим виходом ($\delta L \sim 6\%$) та енергетичним розділенням ($\delta R \sim 6\%$), так і за рівнем мс-ПС: $\delta J_{100} \sim 6\%$.



Зроблений висновок про те, що відібрані кристали $CsI:Tl,CO_3$ задовольняють вимогам до матеріалу для виготовлення багатоелементних детекторів. Однорідність вказаних характеристик можна забезпечити в межах вибраної частини злитка, а розміри області найчастіше достатні для виготовлення 16-елементних фотодіодних детекторів загальним об'ємом більш 200 см^3 . Для забезпечення однорідності заготівки, як по світловому виходу, так і енергетичному розділенню запропонований наступний критерій її оцінки:

Концентрація талія	C_{Tl}, ppt	1200 – 1400
Концентрація натрію	C_{Na}, ppt	40 – 60
Концентрація карбонату	C_C, ppt	0,5 – 1,5
Коефіцієнт поглинання	k_{550}, cm^{-1}	$\leq 0,02$

Вказане C_C достатньо для зниження мс-ПС, значення C_{Na} забезпечує радіаційну стійкість, а C_{Tl} максимальний світловий вихід при реєстрації протонів. Показано, що запропоновані методи характеристизації злитка і відбору

зразків забезпечують ідентичність окремих елементів багатоеlementного детектора незалежно від використовуваного фотоприймача: ФЕП чи ФД.

Далі вивчені функціональні характеристики матеріалу CsI:Tl,NO₂. Окрему увагу приділено вивченню післясвічення кристалів CsI:Tl,NO₂. Показано, що його значення менше ніж у еталона і знижене в середньому на 50% у порівнянні з матеріалом CsI:Tl,CO₃, при цьому технічній вимозі $J_{100} \leq 0,7\%$ відповідає вся ділова частина злитка. Підтверджено, що теплові умови росту кристалів CsI:Tl,NO₂ значно кращі ніж CsI:Tl. Показано, що концентрація нітрит-іонів ~ 2 ppm є достатньою для істотного зниження J_{100} і суттєвого покращення умов росту великогабаритних кристалів.

Показано, що відібрані кристали мають такий же світловий вихід і енергетичне розділення, як і розглянуті вище CsI:Tl,CO₃. Для сцинтиляторів розміром 10×10×10 мм отримано енергетичне розділення $R = 4,8\%$ для енергії 662 кеВ, що співпадає з кращими літературними результатами. На рис. 3 приведено амплітудний спектр фотодіодного детектора розміром 4×4×4 мм на основі монокристала CsI:Tl,NO₂ зчленованого звітчизняним фотодіодом FD-05-25. Видно, що енергетичне розділення по лінії 59,6 кеВ ізоотопу ²⁴¹Am складає 19,2%, що помітно краще за відомі літературні дані. Вісь абсцис у цьому разі надано в еквівалентній шкалі енергій для зручного спостереження за зміщенням порогу реєстрації. Видно, що пик повного поглинання добре виділений, а поріг реєстрації знижено до 17 кеВ в порівнянні з порогом ~ 40 кеВ для кривій 2, де приведено аналогічний спектр для ФД з чутливою площадкою розміром 10×10 мм. Аналогічні результати отримано також для тонких кристалів розміром 4×4×2 мм з плівковим дзеркальним відбивачем VM-2000.

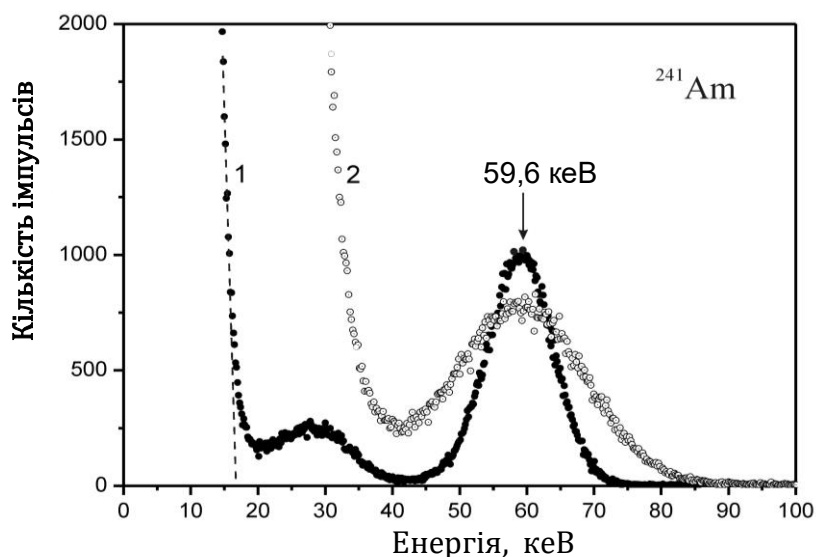


Рис.3 – Амплітудний спектр фотодіодного детектора розміром 4×4×4 мм (1) з фотоприймачем FD-05-25 (1) і 10×10×10 мм (2) з Hamamatsu S3590-08. Збудження сцинтиляцій радіонуклідом ²⁴¹Am

Порівняння результатів по зміні світлового виходу кристалів CsI:Tl,NO_2 після опромінення γ -квантами відносно CsI:Tl,CO_3 показало, що радіаційна стійкість перших збільшена на порядок, див. рис. 4. Аналогічний результат отриманий і в разі опромінення протонами – радіаційна стійкість перевищує флюенс 10^{12} см^{-2} для CsI:Tl,NO_2 , що значно більше такої величини для сцинтиляційного матеріалу CsI:Tl,CO_3 .

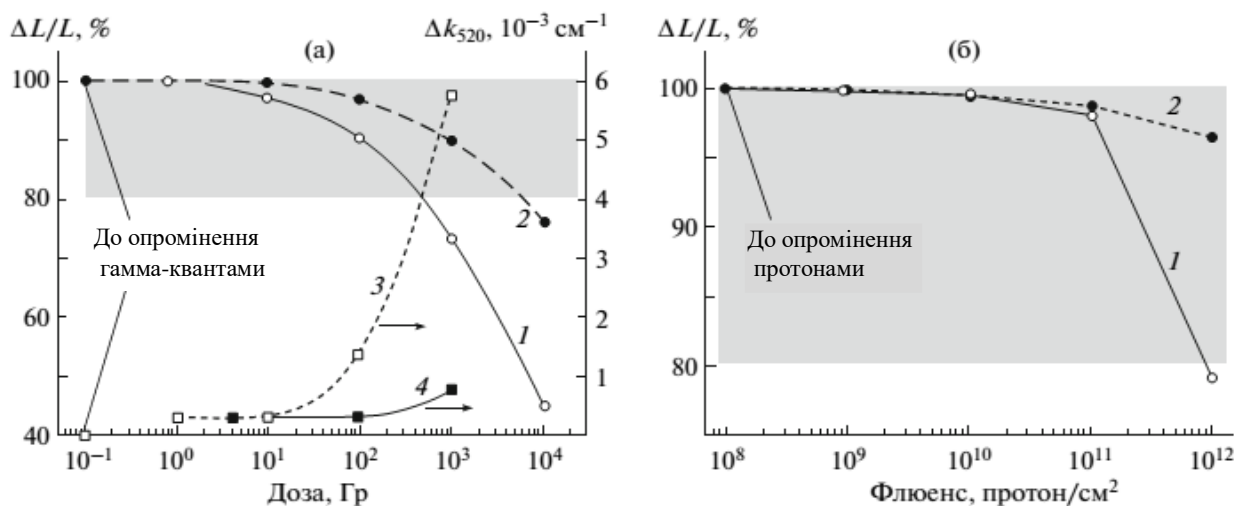


Рис. 4 - Деградація світлового виходу залежно від дози γ -опромінення (а) або від флюенса протонів (б). Зміна коефіцієнта поглинання на довжині хвилі 520 нм (а). Сцинтиляційний матеріал CsI:Tl,CO_3 (криві 1; 3) і CsI:Tl,NO_2 (2; 4)

Зроблено висновок, що сцинтиляційний матеріал CsI:Tl,NO_2 відповідає вимогам для чутливих елементів спектрометра SIXS. Для з'ясування причин позитивного впливу вказаних іонів на сцинтиляційні характеристики кристалів потрібні додаткові дослідження.

У п'ятому розділі розглянуто застосування вибраних матеріалів для виготовлення детекторів γ -квантів і протонів на прикладі чотирьох приладів.

По-перше, розглянуто принципові можливості створення високочутливого блоку детектування γ -квантів. Як альтернатива збільшенню розмірів єдиного цілісного сцинтилятора вибраний багатоелементний принцип збірки. Розроблений 16-елементний блок детектування сумарним об'ємом 216 см^3 . Блок детектування формується з окремих елементів – базових блоків. Базовий блок складається з чутливого елемента, ФД, передпідсилювача, формувача імпульсів і пікового детектора. Сцинтиляційні характеристики блоку в цілому визначаються властивостями базових елементів, а ефективність реєстрації визначається сумарним об'ємом елементів.

Показано, що ефективність реєстрації жорстких квантів (1,33 MeV) розробленим блоком істотно збільшена, а головні переваги фотодіодної реєстрації збережені. Для ілюстрації сказаного, на рис.5 приведені амплітудні

спектри для кожного з 16 базових елементів (а), а також сумарний спектр модульного блоку детектування (б) при збудженні сцинтиляцій ізотопом ^{60}Co . Видно, що отримані хороші значення енергетичного розділення, так для лінії 1,33 МеВ загальне розділення складає $R_{\Sigma} = 4,9\%$. Слід особливо відзначити, що, якщо на окремому спектрі зліва (рис.5 а) піки від джерела ^{60}Co не помітні, то справа (рис.5 б) на сумарному спектрі вони з'являються абсолютно чітко.

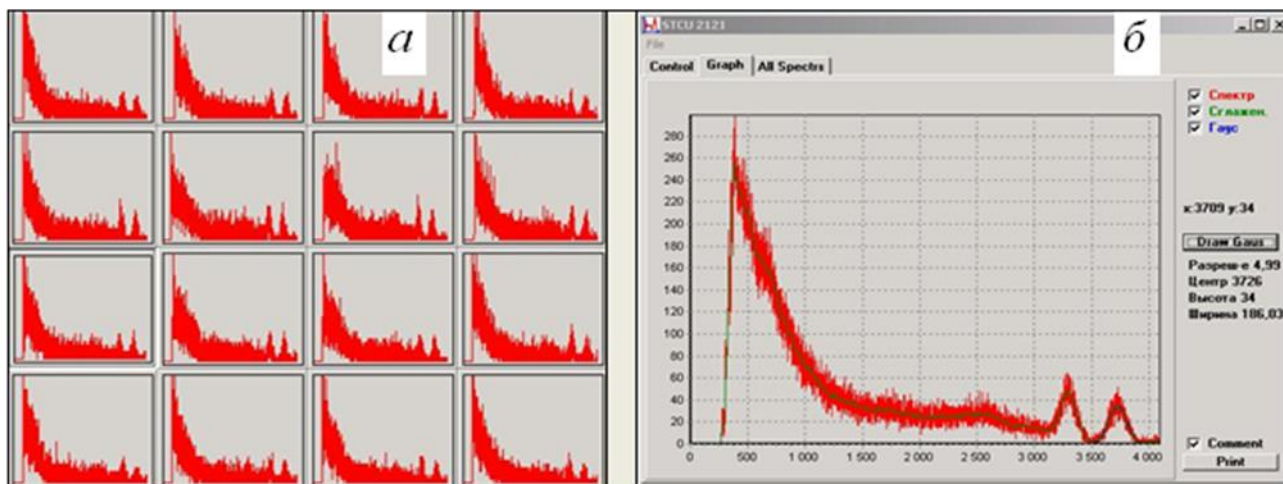


Рис. 5 – Амплітудні спектри 16 базових елементів (а) і сумарного модульного блоку детектування (б) від ^{60}Co (γ -лінії 1270 и 1332 кеВ)

Спектрометричну якість прийнято характеризувати по ^{137}Cs . Як зазначено вище, орієнтиром служила цифра $R_{\Sigma} \leq 6,0\%$ для γ -лінії 662 кеВ. При випробуваннях модульного блоку встановлено, що, не зважаючи на деякий розкид характеристик (5,71...6,14 % при $T = 17^{\circ}\text{C}$) складових елементів, загальне енергетичне розділення блоку детектування виявилось навіть нижче заявлених вимог: $R_{\Sigma} = 5,8\%$. При температурі 20°C $R_{\Sigma} = 6,03\%$.

З отриманих даних випливає, що вимоги до багатоелементного блоку детектування сумарним об'ємом не менше 200 см^3 повністю задоволені. Безперечною перевагою створеного блоку є той факт, що підсумовування спектрів не призводить до помітного погіршення енергетичного розділення завдяки однорідності складових елементів.

По-друге, розглянута конструкція детекторної голівки космічного телескопа СТЕП-Ф. На рис. 6 приведена фотографія шару D3 детекторної голівки і окремого елемента шару. Детекторний шар D3 являє собою чотири щільно складених елементу завтовшки 13 мм і майже квадратного перетину. Зовнішні кути зчленованих квадратних сцинтиляторів обрізані з метою надання круглої форми детекторному шару для створення симетрії його відгуку на прихід пучків частинок під кутами, *відмінними від нормального падіння* до площини шару. Шар D3 призначений для виміру потоку електронів, протонів і α -частинок в 10 енергетичних каналах.

Сформульовані вимоги до чутливих елементів. Розроблена конструкція окремих елементів і детекторного шару в цілому. Реалізована ідентичність чотирьох елементів шару, тобто розкид значень світлового виходу $\delta L \sim 6\%$. Показано, що характеристики приладу повністю відповідають вимогам експлуатації в навколосемному просторі.



Рис. 6 – Зовнішній вигляд шару D3

За допомогою телескопа СТЕП-Ф було виявлено третій радіаційний пояс Землі.

По третє, розроблені фотодіодні детектори для спектрометра SIXS, призначеного реєструвати γ -кванти і протони на борту космічного апарату *Vepi-Colombo* під час польоту до Меркурія і на його орбіті. Товщина ($h = 6,3$ мм) елемента вибрана з розрахунку пробігу ($l = 5,7$ мм) протонів з

максимальною енергією 50 МеВ. Як дифузний відбивач на верхньому торці сцинтилятора використана тонка плівка ($h = 200$ мкм) лаку КО-08 з наповнювачем на основі модифікованого TiO_2 . Відомо, що така захисна плівка характеризується надійною адгезією до кристала CsI.

Показано, що фотодіодні детектори, виготовлені з матеріалу CsI:Tl,NO_2 повністю відповідають пропонованим вимогам як за радіаційній стійкості, так і за спектрометричними характеристиками. Типові амплітудні спектри фотодіодного детектора розміром $5,0 \times 5,0 \times 6,3$ мм, зчленованого з фотоприймачем PDC 50s-CR фірми Detection Technology, представлені на рис. 7. З даних малюнка добре видно, що для протонів з енергією 20 МеВ отримано хороше значення енергетичного розділення: $R = 1,5\%$, а для протонів з $E_p = 10$ МеВ виявилось, що $R = 3,9\%$.

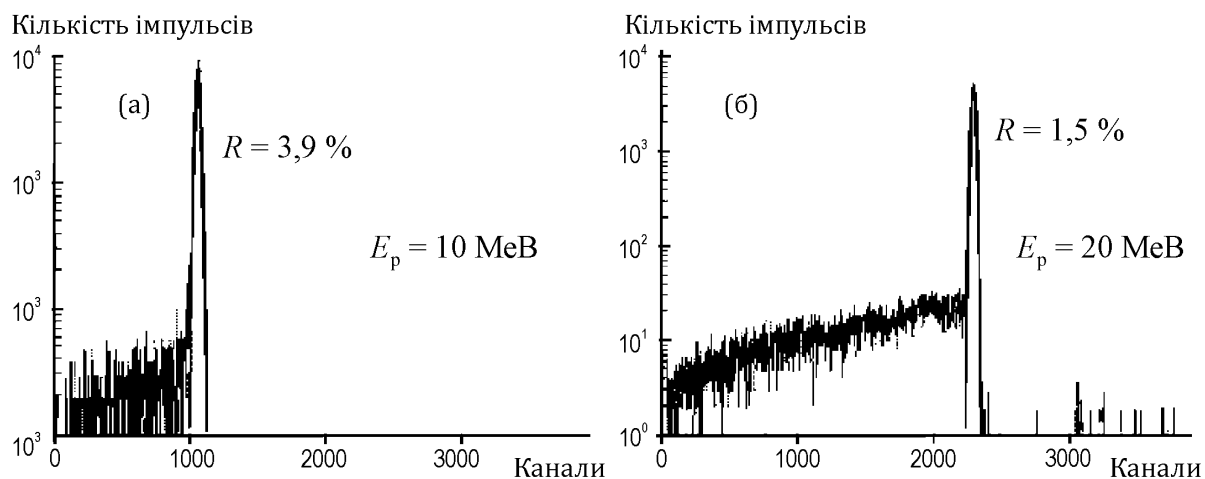


Рис. 7 – Амплітудні спектри виготовлених фотодіодних детекторів при реєстрації протонів з енергією 10 та 20 МеВ

На основі отриманих даних зроблений вивід про те, що виготовлені фотодіодні детектори мають хороші спектрометричні характеристики як при реєстрації фотонів, так і протонів. Вони цілком задовольняють пропонованим до спектрометра SIXS вимогам. З цієї причини, а також враховуючи їх підвищену радіаційну стійкість, матеріал CsI:Tl,NO₂ і описана конструкція спектрометра були вибрані для місії *VepiColombo*.

У четвертих, розроблений вітчизняний доз-калібратор для контролю активності фізіологічних розчинів в ядерній медицині. На відміну від зарубіжних аналогів розроблений калібратор виконаний на основі фотодіодного детектора і може поєднувати ще і функцію спектрометра. Дане технічне рішення захищене патентом України, доз-калібратор пройшов атестацію в ННЦ «Інститут Метрології» і знаходиться на випробуванні в клініках м. Києва.

ВИСНОВКИ

У дисертації обґрунтовано вибір неорганічних і полімерних матеріалів, а також вивчені їх критичні параметри з метою створення сцинтиляційних зборок для реєстрації гамма-квантів і заряджених частинок на орбіті Землі та Меркурія.

1. Розглянуто взаємозв'язок між умовами росту і складом кристалів CsI:Tl. Показано, що легування аніонами CO₃²⁻ і катіонами Na⁺ завдяки стабільним тепловим умовам кристалізації забезпечує однорідність кристалів за домішковим складом і спектрометричними характеристиками.
2. Сприятливі умови росту дозволяють отримати злитки з однорідним розподілом світлового виходу, енергетичного розділення і післясвічення. Розміри однорідної частини злитку CsI:Tl,CO₃ перевищують 200 см³, а радіаційна стійкість є достатньою для роботи в радіаційних поясах Землі. Фотодіодні детектори на основі цих кристалів успішно відпрацювали ресурс на борту космічного апарату у складі телескопу СТЕП-Ф.
3. Вивчено сцинтиляційні характеристики матеріал CsI:Tl,NO₂. Показано, що легування кристалів CsI:Tl аніонами NO₂⁻ и катіонами Na⁺ дозволяє знизити рівень їх післясвічення (у середньому на 50 %) і зберегти високі значення світлового виходу і енергетичного розділення.
4. Сцинтиляційний матеріал CsI:Tl,NO₂ відповідає вимогам космічної місії до Меркурія. При реєстрації протонів з енергією 20 МеВ отримано енергетичне розділення 1,5 % Радіаційна стійкість цього матеріалу складає 7·10³ Гр при γ-опроміненні, і флюенс >10¹² см⁻² для протонів. Кристали CsI:Tl,NO₂ призначені частиною спектрометра SIXS для місії *VepiColombo*.
5. Запропоновано шляхи розширення енергетичного діапазону фотодіодних детекторів. Показано, що їх чутливість до жорстких квантів можна покращити за рахунок модульної зборки детектора без втрати

енергетичного розділення. Для блоку об'ємом 216 см³ отримано розділення $\leq 6\%$.

6. Показано, що поріг реєстрації у рентгенівському діапазоні можна знизити до 17 кеВ за рахунок оптимізації конструкції фотодіодного детектора.
7. Розширений енергетичний діапазон використано у новому доз-калібраторі фізіологічних розчинів для ядерної медицини. Цей прилад захищено патентом і атестовано у ННЦ «Інститут метрології».

Основні результати дисертаційної роботи опубліковано:

1. Radiation tolerance and afterglow of CsI:Tl crystal codoped with NO₂⁻ ions / B.V.Grinev, B.G.Zaslavskii, A.M.Kudin, Yu.A. Borodenko; A.I.Mitichkin, S.I.Vasetskii, **A.V.Didenko** // J. Opt. Technology.– 2009.– Vol. 76, 6. – P. 367-370.
2. **Диденко А.В.** Пленочные полимерные материалы для детектирующих устройств / А.В. Диденко, Л.А. Андрющенко // Полимерный журнал. – 2010. – № 1. – С. 28-35.
3. CsI:Tl + Photodiode Scintillation Assemblies for γ -Ray and Proton Detectors / A.M. Kudin, Yu.A. Borodenko, B.V. Grinyov, **A.V. Didenko**, B.G. Zaslavsky, E. Valtonen, T. Eronen, J. Peltonen, J. Lehti, H. Kettunen, A. Virtanen, J. Huovelin // Instr. & Exp. Technique. – 2010. – vol. 53, 1. – P. 39-44.
4. How the surface-processing conditions affect the intrinsic luminescence of CsI crystal / A.M. Kudin, L.A. Andryushchenko, V.Yu. Gres', **A.V. Didenko**, T.A. Charkina // J. Opt. Technology. – 2010. – Vol. 77, 5. – P. 300-302.
5. Calibrator of radioactive preparation doses for nuclear medicine based on CsI:Tl crystals / Yu.A. Borodenko, V.V. Belogub, B.V. Grinyov, A.V. Gektin, **A.V. Didenko**, E.M. Selegenev, V.A. Tarasov, S.K. Cherevatova, Yu.A.Deruachenko // Functional Materials. – 2011. – vol.18, 3 - P. 386-390.
6. Спектрометрический стенд для измерения сцинтилляционных характеристик детекторов на основе системы «сцинтиллятор – PIN фотодиод» / А.М.Кудин, Ю.А.Бороденко, В.В.Белогуб, **А.В.Диденко** // Вісник національного техн. університету «ХПІ». - 2014. - № 15 (1058). – С. 87-91.
7. Пат. 95885 Україна, С09G 1/00, G01T 1/202. «Полірувальний склад» / Л.А. Андрющенко, Б.В.Гриньов, **Г.В.Діденко**, Ю.О.Бороденко, Е.М. Селегенов, О.М. Кудін. № a201015436. Патентовласник ІСМА НАНУ. заявл. 26.11.2010. опубл. 12.09.2011. Бюл. № 17.
8. Пат. 60782 Україна, Радіонуклідний калібратор для ядерної медицини / Ю.О. Бороденко, В.В. Белогуб, Б.В. Гринев, Г.В. Діденко, Ю.С. Козьмін, Е.М. Селегенов, В.О. Тарасов: Заявка № 201015334. Патентовласник ІСМА НАНУ. заявл. 20.12.2010. опубл. 25.06.2011. Бюл. № 12.
9. Приборы нового поколения для ядерной техники на основе системы сцинтиллятор-фотодиод / Ю.А.Бороденко, В.В.Белогуб, Б.В. Гринев,

- А.В.Диденко**, Е.М.Селегенов, В.А.Тарасов // Тенд. развития сцинтилляцион. техники. Под ред. А.В.Гектина.- Харьков, «ИСМА», 2013. – С. 69-112.
10. Optimization of scintillator-photodiode assembly for X-rays and low energy gamma-rays detection / B.V.Grinyov, Yu.A.Borodenko, A.M.Kudin, **A.V. Didenko**, V.V. Nekrasov, E.M. Selegenev // Nuclear Science Symposium (NSS-2004), Oct. 18-23, 2004: abstracts. – Rome, Italy. – 2004. – P. 73.
11. High Sensitive Spectrometric Scintillation Photodiode Detectors on a Base of CsI:Tl Crystal Coupled with Si PIN Photodiode: State & Perspective // B.V. Grinyov, V.V. Belogub, Yu.A. Borodenko, **A.V. Didenko**, A.M. Kudin, V.V. Nekrasov // Inorganic Scintillators and Their Applications, Sept. 17-21, 2005: abstracts. – Alushta (Crimea, Ukraine). – 2005. – P. 215.
12. **Диденко А.В.** Фотодиодные блоки детектирования с чувствительным объемом более 200 см³ / А.В. Диденко // Тезисы докладов школы-семинара «Сцинтилляционные процессы и материалы для регистрации ионизирующего излучения», 17-20 сентября 2009: тез. докл. - Харьков. - 2009. - С. 35.
13. **Діденко Г.В.** Плівкові полімерні матеріали для детектуючих пристроїв / Г.В. Діденко, Л.А. Андрющенко // VI Відкрита українська конференція молодих вчених з високомолекулярних сполук (ВМС-2008), 30 вересня – 3 жовтня 2008: тез. докл. – Київ. – 2010. – С. 93.
14. Кремнийорганические композиции для сцинтилляционных детекторов с фотодиодной регистрацией / А.В. Диденко, Л.А. Андрющенко, А.И. Бедрик, Ю.А. Бороденко, А.М. Кудин, Д.И. Зосим, Е.Я. Кожурова, В.М. Шершуков, Т.А. Чаркина // Инженерия сцинтилляционных материалов и радиационные технологии (ИСМАРТ-2008), 16-21 листопада 2008 р., Харьков (Украина): тез. докладов. – Харьков. – 2008. – С. 95.
15. Миниатюрный спектрометрический блок детектирования / Ю.А.Бороденко, В.В. Белогуб, Б.В. Гринев, **А.В. Диденко**, Е.М. Селегенов // Инженерия сцинтилляционных материалов и радиационные технологии, 19-23 ноября 2012 г., Дубна, Россия: тез. докладов – Дубна. – 2012. – С. 13.

Анотація

Діденко Г.В. Матеріали і сцинтиляційні фотодіодні детектори для реєстрації заряджених частинок та квантів у навколосонячному просторі.
– Рукопис.

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата технічних наук за спеціальністю 05.02.01 – матеріалознавство. – Інститут монокристалів НАН України, Харків, 2017.

В роботі обґрунтовано вибір матеріалів для створення фотодіодних детекторів заряджених частинок. Проведено поглиблене вивчення властивостей перспективних матеріалів для роботи у навколосонячному просторі. Показано, що матеріал CsI:Tl,CO₃ володіє однорідністю за складом та спектрометричними характеристиками, радіаційна стійкість досягає 10² Гр, а

об'єм однорідної області перевищує 200 см^3 . Показано, що сцинтиляційний матеріал CsI:Tl,NO₂ володіє меншим післясвіченням (у середнім на 50%), а спектрометричні характеристики відповідають CsI:Tl. Для протонів з $E = 20 \text{ MeV}$ отримано розділення $R = 1,5 \%$ с фотодіодом Hamamatsu. Радіаційна стійкість цього матеріалу відповідає дозі $7 \cdot 10^3 \text{ Гр}$ за опромінюванням γ -квантами а також флюенсу більшому 10^{12} см^{-2} за опромінюванням протонами, що відповідає вимогам космічної місії до Меркурія. Для плівкових відбивачів обрано полімерні композиції на основі очищених порошків TiO₂ та MgO. Показано, що поріг реєстрації можна знизити до 17 кеВ за рахунок оптимізації фотодіодних детекторів. Приведено приклади використання приладів у космічних (телескоп STEP-Ф, спектрометр SIXS) и земних умовах (дозкалібратор).

Ключові слова: сцинтиляційний матеріал CsI:Tl, радіаційна стійкість, післясвічення, оптичні та спектрометричні характеристики.

Summary

Didenko A.V. Materials and photodiode detectors for charged particle registration in space. – Manuscript.

Thesis for Candidate Degree of Technical Science in specialty 05.02.01 – Material Science. – Institute for Single Crystals of NAS of Ukraine, Kharkiv, 2017.

In this work the choice of materials for creation of photodiode detector for charged particles registration has been grounded. Detailed study of advanced material properties has been provided to operate in space. It has been shown that CsI:Tl,CO₃ crystal is characterized by uniform distribution of Tl⁺ and Na⁺ along cylindrical part of ingot. The same is thru for spectrometric characteristics like light yield and energy resolution. Contrary it the distribution of CO₃⁻ ions and value of millisecond afterglow is non-uniform as rule. It has been shown that it is possible to select the part of ingot with homogeneous distribution of all dopands and scintillation parameters. It has been shown that radiation hardness of selected area can reach a value of 10^2 Gy and volume of uniform part can be more than 200 cm^3 .

It has been shown that CsI:Tl,NO₂ scintillation material is characterized by suppressed afterglow (up to 50% less) and spectrometric parameters are the same as for CsI:Tl,CO₃ crystal. Energy resolution of 1.5% is obtained for 20 MeV-protons with Hamamatsu S5106 photodiode. Radiation hardness of CsI:Tl,NO₂ material corresponds to dose of $7 \cdot 10^3 \text{ Gy}$ at γ -irradiation and fluence of $>10^{12} \text{ cm}^{-2}$ at proton irradiation that coincides with requirements of *BepiColombo* mission to Mercury. Polymer composition on a base of enhancement powders TiO₂ and MgO have been chosen for thin film reflectors. It has been shown that registration threshold can be decreased to 17 keV due to optimization of photodiode scintillator. The examples of selected materials application in space (telescope STEP-F, spectrometer SIXS) and on the Earth (dose calibrator for nuclear medicine) have been described.

Key words: CsI scintillation materials, radiation hardness, afterglow, optical and spectrometric parameters, photodiode detectors.

Аннотация

Диденко А.В. Материалы и сцинтилляционные фотодиодные детекторы для регистрации заряженных частиц и квантов в околосолнечном пространстве: – Рукопись.

Диссертация на соискание ученой степени кандидата технических наук по специальности 05.02.01 – материаловедение. – Институт монокристаллов НАН Украины, Харьков, 2017.

В работе обоснован выбор материалов для создания фотодиодных детекторов заряженных частиц. Проведено углубленное изучение свойств перспективных материалов для работы в околосолнечном пространстве.

Показано, что материал CsI:Tl,CO₃ обладает высокой однородностью распределения, как легирующих добавок Tl⁺; Na⁺; CO₃²⁻, так и спектрометрических характеристик по объему слитка. Размеры однородной части заготовки превышают необходимый минимум для изготовления модульной сборки из 16 элементов и общим объемом более 200 см³. Радиационная стойкость этих кристаллов достаточна для изучения радиационных поясов Земли. Для изготовления детекторов заряженных частиц в качестве пленочных отражателей выбраны полимерные композиции на основе очищенных TiO₂ и MgO.

Показано, что выбранный сцинтилляционный материал CsI:Tl,NO₂ обладает более высокой радиационной стойкостью и соответствует требованиям космической миссии к Меркурию. Радиационная стойкость данного материала достигает дозы $7 \cdot 10^3$ Гр при γ -облучении, а при облучении протонами с энергией 50 МэВ превышает флюенс 10^{12} см⁻². Показано, что послесвечение этого материала снижено в среднем на 50% по сравнению с CsI:Tl,CO₃, а спектрометрические характеристики соответствуют эталону CsI:Tl. Для протонов с энергией $E = 20$ МэВ получено разрешение 1,5 % с фотодиодом Hamamatsu S5106, что полностью удовлетворяет требованиям к спектрометру SIXS.

Рассмотрены возможности и предложены пути расширения энергетического диапазона регистрируемых энергий за счет оптимизации размеров, формы и материалов оптической системы фотодиодных детекторов. Показано, что порог регистрации можно снизить до 17 кэВ, а чувствительность к жестким квантам можно повысить за счет увеличения объема, используя принцип модульной сборки, без потери энергетического разрешения. Приведены примеры использования разработанных детекторов в космических (телескоп СТЭП-Ф, спектрометр SIXS) и земных приборах (доз-калибратор).

Разработанные фотодиодные детекторы для регистрации протонов на основе кристаллов CsI:Tl,NO₂, прошли все необходимые испытания и назначены составной частью спектрометра SIXS для изучения солнечной активности при полете к Меркурию. Старт европейской миссии BepiColombo назначен на 2017г. Фотодиодные детекторы на основе кристаллов CsI:Tl,CO₃ успешно отработали ресурс на борту космического аппарата Коронас-Фотон. Телескоп СТЕП-Ф выявил тонкую структуру радиационных поясов Земли. Авторский коллектив был удостоен премии Кабинета Министров Украины за разработку и внедрение инновационных технологий.

Ключевые слова: сцинтилляционный материал CsI:Tl, радиационная стойкость, послесвечение, оптические и спектрометрические характеристики.