

05;07;12

Сцинтилляционные характеристики тонкослойных детекторов рентгеновского излучения, изготовленных на основе кристаллов иодистого кальция

© С.С. Новосад

Львовский государственный университет им. И.Франко,
290005 Львов, Украина

(Поступило в Редакцию 29 апреля 1997 г. В окончательной редакции 26 августа 1997 г.)

Предложена конструкция контейнера для изготовления рентгеновских сцинтилляционных детекторов малых энергий. На основе кристаллов CaI_2 и $\text{CaI}_2:\text{Eu}$ изготовлены детекторы и исследованы их характеристики. Показано, что сцинтилляторы на основе иодистого кальция, благодаря их слоистой структуре, совершенной спайности и высокому световыходу, могут использоваться для изготовления тонкослойных детекторов длинноволнового рентгеновского излучения.

Особым применением сцинтилляторов на основе NaI и CsI является спектрометрия мягкого гамма- и рентгеновского излучения, регистрация α -излучения при наличии γ -фона [1–5]. Одной из основных проблем, которые необходимо решать в процессе регистрации ионизирующих излучений с малой проникающей способностью, является обеспечение избирательного детектирования этого излучения на фоне излучения с большой проникающей способностью. При решении данной проблемы в ряде случаев используют тонкослойные сцинтилляционные детекторы [2,5].

Применение тонкослойных детекторов для регистрации ионизирующих излучений малых энергий позволяет также уменьшить потери света сцинтилляций на боковой поверхности и дефектах кристалла, ослабить влияние реабсорбции.

Изготовление детекторов для регистрации ионизирующих излучений малых энергий сопряжено со сложностью получения пластин кристаллических сцинтилляторов и их контейнеризации. В данном случае особо важную роль играет качество поверхности кристалла, ибо в приповерхностном слое поглощается мягкое ионизирующее излучение.

Получение тонкослойных сцинтилляционных детекторов с большой рабочей площадью на основе монокристаллов NaI:Tl , CsI:Tl и CsI:Na методом скальвания, шлифовки, полировки, травления или частичного растворения является трудным технологическим процессом [2].

Кристаллы CaI_2 и $\text{CaI}_2:\text{Eu}$ обладают большим световыходом и лучшим энергетическим разрешением, чем сцинтилляторы NaI:Tl [3,4,6–9]; при этом мало уступают CsI:Na по времени высвечивания и эффективному номеру [10]. В этой связи практический интерес представляют исследования по получению тонкослойных детекторов рентгеновского излучения на основе монокристаллов иодистого кальция и исследования их свойств.

В работе [3] впервые сделана попытка применить кристаллы CaI_2 для детектирования мягкого рентгенов-

ского излучения. На основе расчетных данных в этой работе показано, что рентгеновское излучение с энергией квантов 5.5–20 keV, наиболее широко применяемое в рентгеноструктурном анализе, фактически полностью поглощается кристаллом толщиной 0.1 mm. Однако авторами этой работы для изготовления детекторов рентгеновского излучения на основе кристаллов иодистого кальция использовались монокристаллические пластины сцинтиллятора толщиной 1–1.5 mm и площадью 6×16 mm.

Слоистые кристаллы иодистого кальция имеют гексагональную структуру с ярко выраженной спайностью, они пластичны и обладают невысокой твердостью. Такие свойства CaI_2 позволяют методом скальвания изготавливать из кристалла очень тонкие пластины (толщиной до 0.05 mm) и вырезать их любой формы. Однако изготавливать тонкие пластины из сильно гигроскопического слоистого сцинтиллятора больших размеров можно только в приклеенном (например, к выходному окну детектора) состоянии, поскольку в противном случае монокристаллические пластины в процессе изготовления и упаковки

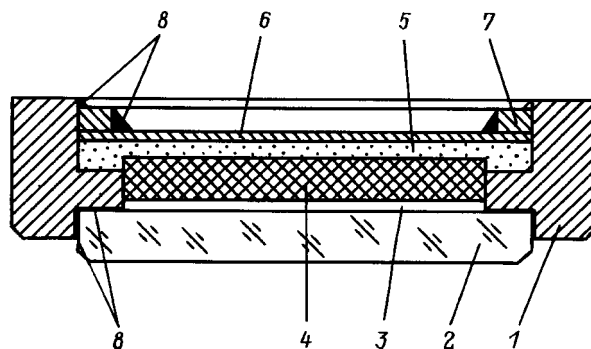


Рис. 1. Конструкция сцинтилляционного рентгеновского детектора. 1 — корпус из дюралюминия, 2 — выходное окно из стекла К-8, 3 — оптический клей ОК-50; 4 — сцинтиллятор, 5 — отражатель MgO , 6 — входное окно (бериллий толщиной 0.2 mm), 7 — прижимное кольцо, 8 — герметизирующее вещество (эпоксидный клей).

деформируются. По этой причине ранее [3,4,7,8] изготовление рентгеновских детекторов на основе CaI_2 производилось толщиной более 1 мм. Кроме того, применяемая типовая конструкция контейнера (рис. 1) не пригодна для упаковки тонкослойных пластин CaI_2 с большой рабочей площадью, поскольку не обеспечивает свободного доступа к сцинтиллятору.

При изготовлении рентгеновских детекторов на основе CaI_2 нами усовершенствовалась технология выращивания монокристаллов [7,8], изготовление кристаллических пластин и конструктивное выполнение самих контейнеров [11]. О некоторых результатах исследований, проводимых в этом направлении, сообщается также в настоящей работе.

В данной работе для упаковки тонких пластин сцинтилляторов нами использовались контейнеры измененной конструкции (рис. 2). Особенностью этой конструкции является то, что оптическое выходное окно 2, изготовленное из стекла в форме усеченного конуса, установлено в гнезде, выполненном во внутренней части корпуса 1. Предложенная конструкция контейнера, как и конструкция, приведенная в [11], позволяет изменить очередность операции по изготовлению и упаковке тонких сцинтилляторов, поскольку окончательную доводку кристаллической пластины 4 по высоте можно осуществлять методом скалывания (при помощи лезвия бритвы) в приклеенном с помощью оптического клея 3 к выходному окну 2 состоянии, при этом имеется возможность использовать отдельные металлические шаблоны. Подготовленную таким образом пластину сцинтиллятора с выходным окном устанавливают в гнездо корпуса, которую механически прочно и герметически закрепляют с помощью герметизирующего вещества 9 (например, эпоксидного клея). Затем в корпус устанавливают разделяющее кольцо из фторопласта 5, отражатель из металлизированной пленки типа "Майлар" 6.

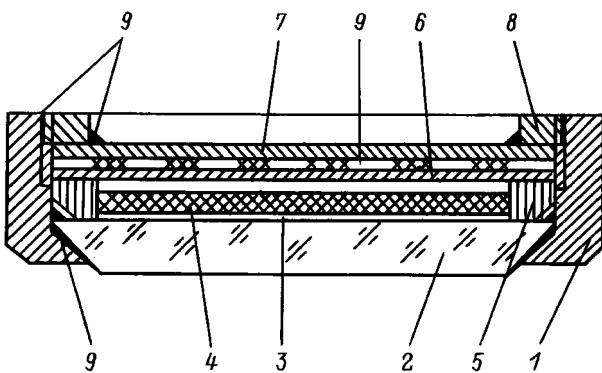


Рис. 2. Конструкция сцинтилляционного детектора длинноволнового рентгеновского излучения. 1 — корпус из дюралюминия, 2 — выходное окно стекла К-8, 3 — оптический клей ОК-50; 4 — сцинтиллятор, 5 — разделяющее кольцо (боковой отражатель из фторопласта), 6 — отражатель из алюминизированной пленки типа "Майлар" (алюминизированная дакроновая пленка), 7 — входное окно из бериллия толщиной 0,2 мм, 8 — прижимное кольцо, 9 — герметизирующее вещество (эпоксидный клей).

С целью дополнительной герметизации отражатель из пленки "Майлар" можно устанавливать непосредственно на входное окно из бериллия 7 при помощи эпоксидного клея 9. Последние детали контейнера закрепляются в корпусе прижимным устройством 8 и одновременно сцинтиллятор герметизируется при помощи клеящего вещества 9.

Предложенный контейнер особенно выгодно использовать для упаковки тонкослойных слоистых сцинтилляторов на основе гигроскопического соединения иодистого кальция, поскольку имеется возможность при изготовлении пластин сцинтиллятора и их упаковки уменьшить степень влияния влаги атмосферы на характеристики детектора. Это достигается за счет меньшего времени пребывания обработанной поверхности сцинтиллятора в контакте с атмосферой, в которой производится упаковка, т.е. можно получать детекторы с меньшей толщиной "мертвого слоя" сцинтиллятора. Эта конструкция контейнера также может успешно использоваться и для упаковки напыленных слоев сцинтилляторов.

Для изготовления тонкослойных детекторов рентгеновского излучения использовались кристаллы CaI_2 и $\text{CaI}_2:\text{Eu}$, выращенные методом Стокберга [7,8], с высокими спектротрическими характеристиками. Изготовленные из этих кристаллов рентгеновские детекторы со сцинтилляционными пластинами толщиной 2,0–2,5 мм и диаметром 16 мм типовой конструкции (рис. 1) при регистрации γ -излучения источника ^{137}Cs имели в 1,6–1,9 раза больший световыход, чем рентгеновские детекторы на основе NaI:Tl , и характеризовались энергетическим разрешением 4,5–5,5%. При комнатной температуре полученные кристаллы также характеризовались в 1,8–2,2 раза большим выходом стационарной рентгенолюминесценции, чем сцинтиллятор NaI:Tl .

Результаты измерения люминесцентных свойств при рентгеновском возбуждении и сцинтилляционных характеристик при γ -возбуждении полученных нами кристаллов CaI_2 и $\text{CaI}_2:\text{Eu}$ согласуются с данными, приведенными в работе [6].

В контейнеры описанной выше конструкции (рис. 2) по методике, проведенной в [11], в атмосфере сухого воздуха в герметических боксах типа 7Б-0С были упакованы монокристаллические пластины сцинтилляторов CaI_2 и $\text{CaI}_2:\text{Eu}$ толщиной 0,2–0,8 мм и диаметром 16 и 20 мм. Измерения сцинтилляционных свойств получения тонких детекторов рентгеновского излучения по методике, описанной в работе [12], показали, что детекторы на основе кристаллов иодистого кальция при регистрации рентгеновского $\text{CuK}\alpha$ -излучения ($E_{\text{ex}} = 8,05 \text{ keV}$) обладали в 1,5–1,75 раз большим световыходом, чем детекторы на основе NaI:Tl , и характеризовались энергетическим разрешением 39–45%. Энергетическое разрешение лучших рентгеновских детекторов на основе иодистого кальция при регистрации $\text{MoK}\alpha$ -излучения ($E_{\text{ex}} = 17,4 \text{ keV}$) достигало 26%.

Люминесцентные и сцинтилляционные характеристики детекторов рентгеновского излучения ($E_{ex} = 17.4 \text{ keV}$, ФЭУ-35А)

Номер кристалла	Кристаллы	Максимум полосы люминесценции, nm	Световыход, а.е.	Энергетическое разрешение, %
1	CaI ₂	410–415	100	30
2	CaI ₂ :0.005 mol.% EuCl ₃	465–470	105	29
3	CaI ₂ :0.01 mol.% EuCl ₃	465–470	105	30
4	CaI ₂ :0.005 mol.% PbI ₂	390–410	95	32
5	CaI ₂ :0.01 mol.% PbI ₂	390–415	95	33
6	CaI ₂ :0.50 mol.% PbI ₂	430–440	70	38
7	CaI ₂ :0.01 mol.% InCl ₃	420–430	95	33
8	CaI ₂ :0.10 mol.% InCl ₃	420–430	105	30
9	CaI ₂ :1.00 mol.% InCl ₃	425–435	75	36
10	CaI ₂ :0.02 mol.% GdCl ₃	420–430	95	32
11	CaI ₂ :0.05 mol.% GdCl ₃	420–440	105	30
12	CaI ₂ :0.50 mol.% GdCl ₃	465–470	73	34
13	CaI ₂ :0.04 mol.% NaI	420–430	90	32
14	CaI ₂ :0.20 mol.% NaI	420–430	85	33

Кривые амплитудного распределения импульсов детекторов, изготовленных на основе CaI₂ и CaI₂:Eu, независимо от энергии квантов регистрируемого рентгеновского излучения в области фотопика соответствовало гауссовому закону.

В процессе проведения поисковых технологических и исследовательских работ было установлено, что кристаллы иодиокальция с примесью свинца, индия, гадолиния и натрия также являются эффективными сцинтилляторами. Световыход кристаллов CaI₂:GdCl₃ и CaI₂:InCl₃ при оптимальной концентрации примеси практически соизмерим со световыходом сцинтиллятора CaI₂:EuCl₃ [12], кристаллы CaI₂:PbI₂ и CaI₂:NaI характеризуются несколько меньшим световыходом, чем высокоэффективные сцинтилляторы, полученные на основе иодиокальция.

Результаты измерения люминесцентных и сцинтилляционных характеристик рентгеновских детекторов, изготовленных на основе чистых и активированных кристаллов иодиокальция, со сцинтилляционными пластинами толщиной 1.5–2.5 mm и диаметром 16 mm, упакованными в контейнеры конструкции, показанной на рис. 1, суммированы в таблице. В таблице приведены усредненные данные световыхода и энергетического разрешения, полученные при регистрации рентгеновского MoK α -излучения не менее трех детекторов, изготовленных из одного монокристалла. Из данных таблицы следует, что для изготовления тонких рентгеновских детекторов кроме кристаллов CaI₂ и CaI₂:Eu в качестве сцинтилляторов можно также использовать кристаллы CaI₂:Gd, CaI₂:Pb и CaI₂:Na. Спектральный состав рентгенолюминесценции этих сцинтилляторов хорошо согласуется со спектральной чувствительностью наиболее применяемых в сцинтилляционной технике фотоэлектронных умножителей.

На основании анализа данных литературы и результатов, полученных при исследовании оптико-люминесцентных свойств кристаллов CaI₂:EuCl₃ и

CaI₂:GdCl₃, установлено, что ионы европия и гадолиния внедряются в решетку иодиокальция в двухвалентном состоянии. Активаторные полосы, наблюдаемые в спектрах поглощения этих кристаллов, сопоставлены с $f-d$ -переходами в ионах Eu²⁺ и Gd²⁺. Свечение кристаллов иодиокальция с примесями европия и гадолиния с максимумом в области 465–470 nm приписано комплексным центрам, образованным редкоземельной примесью и междоузельными ионами кальция. На основании результатов исследования кривых и спектров термостимулированной люминесценции, температурной зависимости интенсивности и спектрального состава рентгенолюминесценции, спектров создания и стимуляции фотостимулированной люминесценции этих кристаллов установлено, что ионы Gd²⁺ и Eu²⁺ в CaI₂ являются эффективными центрами захвата электронов и дырок. В сцинтилляторах CaI₂:Gd и CaI₂:Eu при низкой температуре доминирует электронно-дырочный механизм возникновения свечения. В сильнолегированных кристаллах иодиокальция с примесью европия при рентгеновском возбуждении дополнительно наблюдается излучательно-реабсорбционный механизм переноса энергии к центрам свечения. Ослабление световыхода и ухудшение энергетического разрешения в сильнолегированных кристаллах CaI₂:Gd и CaI₂:Eu вызвано в основном влиянием реабсорбции и инерционными потерями энергии возбуждения на уровнях захвата.

Широкие неэлементарные полосы, наблюдаемые в спектрах рентгенолюминесценции кристаллов CaI₂:Pb, CaI₂:In и CaI₂:Na при комнатной температуре, обусловлены центрами неактивированного происхождения. В сильнолегированных кристаллах CaI₂:Pb имеется значительное запасание светосуммы как на центрах захвата, характерных для CaI₂, так и центрах захвата, связанных с ионами Pb²⁺. Кристаллы иодиокальция с примесью индия и натрия характеризуются слабой термостимулированной люминесценцией. Понижение световыхода в

этих сцинтилляторах при увеличении примесей вызвано в основном потерями энергии возбуждения и излучения на дефектах, связанных с ухудшением структуры кристаллов.

Следует отметить, что предложенные в [11] и в настоящей работе конструкции контейнеров можно также использовать для упаковки толстых (толщиной 2–10 мм) слоистых сцинтилляторов, поскольку их применение позволяет успешно решить вопрос удаления излишков оптического клея, упаковывать более совершенные кристаллические пластины.

Таким образом, из полученных результатов следует, что сцинтилляторы на основе иодистого кальция благодаря их слоистой структуре совершенной спайности и высокому световыходу могут использоваться для изготовления тонких детекторов длинноволнового рентгеновского излучения.

Автор благодарен М.Р.Панасюку за измерения сцинтилляционных свойств тонких рентгеновских детекторов.

Список литературы

- [1] Цирлин Ю.А., Дайч А.Р., Радиванюк А.М. Сцинтилляционные блоки детектирования. М.: Атомиздат, 1973. 264 с.
- [2] Лыскович А.Б. Автореф. докт. дис. Львов, 1971. 30 с.
- [3] Альперович В.Р., Комяк И.И., Лыскович А.Б., Пенцак Г.М. // ПТЭ. 1970. № 4. С. 223–224.
- [4] Альперович В.Р., Комяк И.И., Лыскович А.Б., Пенцак Г.М. // Опт. и спектр. 1972. Т. 33. № 3. С. 499–504.
- [5] Чайковский Э.Ф., Цирлин Ю.А., Видай Ю.Т., Иванова Г.М. // Монокристаллы и техника. Харьков: ВНИИ монокристаллов, 1973. Вып. 2(9). С. 141–145.
- [6] Hofstadter R., O'Dell E.W., Schmidt C.T. // IEEE Trans. Nucl. Sci. 1964. Vol. NS-11. N 3. P. 12–14.
- [7] Лыскович А.Б., Новосад С.С., Панасюк М.Р. // Тез докл. VI Всесоюз. конф. по синтезу и исследованию сцинтилляторов. Харьков: ВНИИ монокристаллов, 1971. С. 18–21.
- [8] Лыскович А.Б., Новосад С.С., Панасюк М.Р., Триска Т.И. // Монокристаллы, сцинтилляторы и органические люминофоры. Черкассы: ВНИИ монокристаллов, 1972. С. 41–43.
- [9] Новосад С.С. // Вестник Львов. ун-та. Сер. физ. Вып. 11. Экспериментальная и теоретическая физика. Львов: Вища школа, 1976. С. 44–57.
- [10] Викторов Л.В., Кружанов А.В., Петров В.К., Скориков В.М., Шульгин Б.В. Деп. в ВИНТИ. М., 1990. 82 с.
- [11] Новосад С.С., Глосковская Н.К. А.с. 784535 (СССР). Способ изготовления сцинтилляционного детектора на основе слоистых сцинтилляторов.
- [12] Лыскович А.Б., Новосад С.С., Триска Т.И. и др. // Тр. VII Всесоюз. конф. "Перспективы развития технологии методов контроля и производства сцинтилляторов и сцинтилляционных устройств в 10-й пятилетке". Харьков, ВНИИ монокристаллов, 1976. Ч. I. С. 223–228. (Рукопись депонирована в справочно-информационном фонде Отделения НИИТЭХИМ. Черкассы, 1977. № 1175/77 ДСП).