



СЦИНТИЛЛЯЦИОННЫЕ ЭКРАНЫ НА ОСНОВЕ СЕЛЕНИДА ЦИНКА И ОКСИДНЫХ СЦИНТИЛЛЯТОРОВ ДЛЯ НЕРАЗРУШАЮЩЕГО КОНТРОЛЯ

Е. Ф. ВОРОНКИН

Ин-т сцинтилляционных материалов НАН Украины.
61001, Харьков, пр-т Ленина, 60. E-mail: voronkin@isma.kharkov.ua

Показана возможность получения дисперсных сцинтилляторов большой площади для дефектоскопии сварных швов труб или дефектоскопии изделий сложной формы, полученных методом литья, взамен рентгеновской пленки на основе селенида цинка, а также исследована возможность получения двухкомпонентных сцинтилляционных экранов на основе ZnSe(Te) и других сцинтилляторов (CdWO₄, ZnWO₄, GSO, LGSO), характеризующихся максимумом люминесценции в области фотопоглощения селенида цинка. Приведены экспериментальные данные о влиянии добавок оксидных сцинтилляторов на спектры радиолюминесценции образцов и на поглощение рентгеновского излучения сцинтилляционными экранами на основе халькогенидного сцинтиллятора селенида цинка. Определен оптимальный размер частиц неорганического сцинтиллятора ZnSe(Te) для получения максимально высоких сцинтилляционных параметров в сцинтилляционных экранах. Разработана методика получения сцинтилляционных экранов на основе мелкодисперсных порошков ZnSe(Te), имеющих стабильные и равномерные сцинтилляционные характеристики по площади образцов. Библиогр. 13, табл. 2, рис. 6.

Ключевые слова: неразрушающий контроль, сцинтилляционные экраны, дефектоскопия сварных швов

Сцинтиллятор ZnSe(Te) относится к классу полупроводниковых материалов группы A₂B₆ и широко применяется в рентгеновских детекторах типа сцинтиллятор-фотодиод для современных многоканальных низкоэнергетических радиационных средств визуализации скрытого изображения (системы неразрушающего контроля (НК), медицинская томография, радиография) [1]. Сцинтилляционные кристаллы селенида цинка характеризуются высоким квантовым выходом (60 тыс. фотон/МэВ), максимум люминесценции в красной области спектра оптимален для регистрации кремниевым фотоприемником, время высвечивания и уровень послесвечения позволяют регистрировать теневое изображение биологических объектов в реальном режиме времени [2].

В некоторых областях радиационного приборостроения фотоприемники имеют не только линейную конфигурацию, но и сложный профиль. К примеру, в медицинской рентгенографии существуют сферические ПЗС-матрицы для томографов, в области радиационной дефектоскопии разработаны фотоприемники сложного профиля для исследования изделий такого же профиля (дефектоскопия сварных швов труб или дефектоскопия изделий сложной формы, полученных методом литья). Такая оптимизация конечной формы фотоприемника позволяет получать наиболее полную информацию об исследуемом объекте. Для эффективной регистрации рентгеновского излучения и во избежание искажения информации об объекте сцинтиллятор должен точно повторять форму фо-

топриемника и наиболее удачным решением этой задачи является гибкая сцинтилляционная панель, которая максимально плотно прилегает к поверхности фотоприемника любого профиля и может стать альтернативой фотопленки.

В настоящее время в качестве сцинтилляционных материалов для изготовления сцинтилляционных панелей, рентгеновских усиливающих экранов и других дисперсных сцинтилляторов в мире широко используются Gd₂O₂S:Tb, CsI:Na, CsI:Tl, NaI:Tl, ZnS:Cu, (Zn, Cd)S:Cu, (Zn, Cd)S:Ag, CdWO₄, Bi₄Ge₃O₁₂ (BGO), (Y,Gd)₂O₃:Eu³⁺(Pr), Gd₂O₂S:Pr(Ce, F) и др. [3]. Наиболее часто применяемым материалом для изготовления дисперсных сцинтилляторов различного назначения является Gd₂O₂S:Tb [4]. В табл. 1 представлены сравнительные данные сцинтилляционных характеристик ZnSe(Te) и Gd₂O₂S(Tb), из которых следует, что селенид цинка не уступает по своим характеристикам Gd₂O₂S:Tb, а по некоторым параметрам и превосходит его (конверсионная эффективность, послесвечение). В дисперсном виде сцинтиллятор на основе ZnSe(Te) не ограничен по площади и имеет на порядок более высокую равномерность люминесценции, чем кристаллический образец [5–10]. Возможность получения кристаллических образцов ZnSe(Te) большой площади технологически ограничена, причем с увеличением площади кристалла равномерность люминесценции ухудшается вследствие сегрегации легирующих добавок в кристалле при их выращивании.

В настоящей работе представлены характеристики экспериментальных образцов гибких



Таблица 1. Сцинтилляционные и физические характеристики сцинтилляторов $Gd_2O_2S(Tb)$ и $ZnSe(Te)$

Параметр	Сцинтиллятор	
	$Gd_2O_2S(Tb)$	$ZnSe(Te)$
Плотность ρ , г/см ³	7,3	5,42
Эффективный атомный номер Z	60	33
Световой выход, фотоны/МэВ	60 000	60 000
Максимум излучения λ_{max} , нм	545	640
Конверсионная эффективность, %	19	до 22
Послесвечение (после 6 мкс), %	1	<0,05
Гигроскопичность	Нет	Нет
Химическая стабильность	Неограниченная	Неограниченная
Механическая и термическая стойкость	Хорошая	Хорошая
Радиационная стойкость	-"	-"

сцинтилляционных панелей, изготовленных на основе мелкодисперсных порошков $ZnSe(Te)$, а также ряда оксидных сцинтилляторов, таких как $CdWO_4$, $ZnWO_4$, GSO, LGSO. Цель работы заключалась в получении дисперсных сцинтилляционных панелей большой площади, имеющих высокий квантовый выход и равномерность люминесценции. Также в работе исследовали возможность увеличения светового выхода основного сцинтиллятора (селенид цинка) в двухкомпонентных системах за счет введения дополнительного сцинтилляционного материала, характеризующегося максимумом люминесценции в области фотопоглощения селенида цинка.

Эксперимент. Объектами исследования были однокомпонентные и двухкомпонентные сцинтилляционные панели, выполненные в виде слоя поликристаллических частиц неправильной геометрической формы неорганических сцинтилляторов в оптической иммерсионной среде – силиконовый каучук. Образцы панелей изготовлены методом полива смеси порошок сцинтиллятора/иммерсионная среда в форму, покрытую антиадгезивным материалом.

В рамках данной работы были изготовлены однокомпонентные и двухкомпонентные образцы сцинтилляционных панелей на основе различных сцинтилляторов ($ZnSe(Te)$, $CdWO_4$, $ZnWO_4$, GSO, LGSO) с различными процентными соотношениями компонент в образцах. Спектры радиолуминесценции полученных образцов были сняты с помощью монохроматора МДР-23 с АЦП преобразователем сигнала и фотодетектором ФЭУ-80, в качестве источника ионизирующего излучения использовали ^{241}Am с энергией квантов порядка 60 кэВ. Измерения интенсивности светового выхода образцов осуществлялось по известной методике при помощи установки по измерению свето-

выхода и послесвечения – «Smiths Heimann AMS-1».

Результаты и обсуждение. Для оптимизации сцинтилляционных параметров сцинтилляционных панелей определили зависимость светового выхода панелей от размера частиц сцинтиллятора $ZnSe(Te)$ и толщины экрана (рис. 1). Зависимость светового выхода $ZnSe(Te)$ от дисперсности частиц определяется степенью поглощения частицами рентгеновского излучения. Чем крупнее частица, тем больший процент рентгеновского излучения будет поглощен, следовательно, интенсивность люминесценции растет при увеличении размера частиц.

Согласно рис. 1 наибольшую интенсивность имеют частицы с дисперсностью 200...600 мкм. Если двигаться в сторону уменьшения размера частиц, то интенсивность люминесценции падает, причем при достижении определенного размера (около 30 мкм) люминесценция становится очень низкой. Это связано с длиной пробега электрона в данном материале и если она становится больше размера частиц, то лишь незначительная часть рентгеновского излучения поглощается в материале и индуцирует люминесценцию. К ослаблению люминесценции при уменьшении размера частиц приводят также диссипативные свойства среды дисперсного сцинтиллятора (рассеяние и перепоглощение испущенных квантов люминесценции). Оптимальная толщина образцов сцинтилляционных панелей для достижения максимального уровня квантового выхода при дисперсности частиц 40...120 мкм составля-

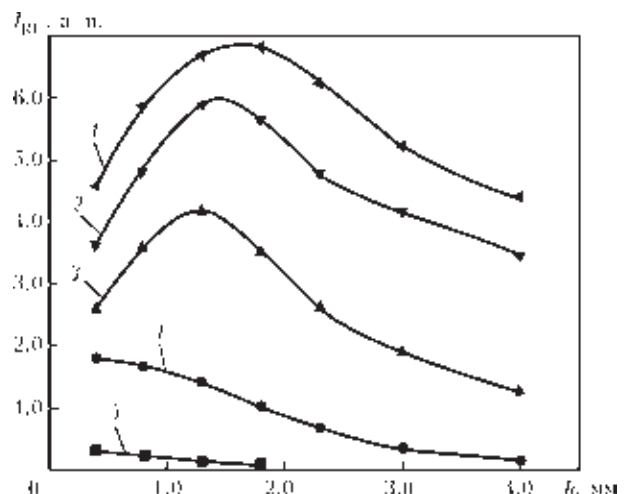


Рис. 1. Зависимость уровня светового выхода сцинтилляционных панелей на основе $ZnSe(Te)$ от размера частиц поликристаллического порошка и толщины образца: 1 – образец панели с диаметром частиц порошка 200...600 мкм; 2 – 120...200; 3 – 40...120; 4 – 25...40; 5 – 1...25



ет 1,0...1,5 мм, для 120...200 мкм – 1,3...1,8 мм и 200...600 мкм – 1,5...2,0 мм. При толщине панели больше оптимальной рентгеновское излучение поглощается в верхнем слое образца и его интенсивность в нижних слоях образца недостаточна для возбуждения максимального уровня люминесценции, а кванты люминесценции из верхних слоев не достигают фотоприемника и выделяются в виде тепловой энергии. При толщине панели меньше оптимальной количества сцинтилляционного материала в образце недостаточно для получения максимального уровня люминесценции. Для образцов панелей более мелких фракций оптимальная толщина экрана уменьшается.

Относительный световой выход кристаллических и дисперсных образцов сцинтилляторов на основе ZnSe(Te) представлен на рис. 2. Сцинтилляционные панели, выполненные из наиболее крупной фракции порошка селенида цинка – 200...600 мкм – по уровню светового выхода приближаются к кристаллическому образцу (до 95 % светового выхода кристалла). При уменьшении размера частиц световой выход падает (согласно приведенным ранее разъяснениям) и для частиц с дисперсностью 120...200 мкм составляет около 80 %, для частиц 40...120 – до 55 % и 25...40 мкм – до 30 %. Частицы наименьшей дисперсности не имеют практического интереса за счет крайне низкого светового выхода – до 10 %. Сравнение светового выхода проводится с кристаллическими образцами тех же типоразмеров как и сцинтилляционные панели.

Для определения возможности увеличения светового выхода основного сцинтиллятора (селенид цинка) за счет введения дополнительного сцинтилляционного материала, имеющего максимум люминесценции в области фотопоглощения ос-

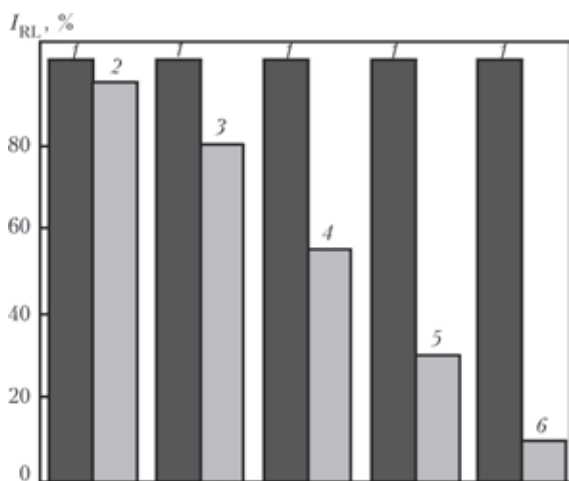


Рис. 2. Сравнительные величины светового выхода дисперсного и монолитного кристаллического сцинтилляторов одинаковых типоразмеров на основе ZnSe(Te): 1 – монолитный кристаллический сцинтиллятор; 2–6 – дисперсный сцинтиллятор (2 – частицы 200...600 мкм; 3 – 120...200; 4 – 40...120; 5 – 25...40; 6 – 1...2)

новного сцинтиллятора и для применения технологии изготовления сцинтилляционных панелей на других сцинтилляционных материалах, изготовлены однокомпонентные и двухкомпонентные сцинтилляционные панели на основе ZnSe(Te), CdWO₄, ZnWO₄, GSO и LGSO. Спектры радиолюминесценции таких сцинтилляционных панелей показаны на рис. 3 и 4. В двухкомпонентных системах в зависимости от соотношения селенида цинка и дополнительного сцинтиллятора наблюдается перераспределение интенсивности люминесценции образцов и изменение вида спектров люминесценции, согласно интенсивности и спектральной области люминесценции каждой компоненты панели. Максимальную интенсивность люминесценции имеют однокомпонентные панели на основе селенида цинка. Увеличения интенсивности люминесценции за счет фотовозбуждения ZnSe(Te) не наблюдается. Суммарный световой выход у двухкомпонентных образцов ниже, чем

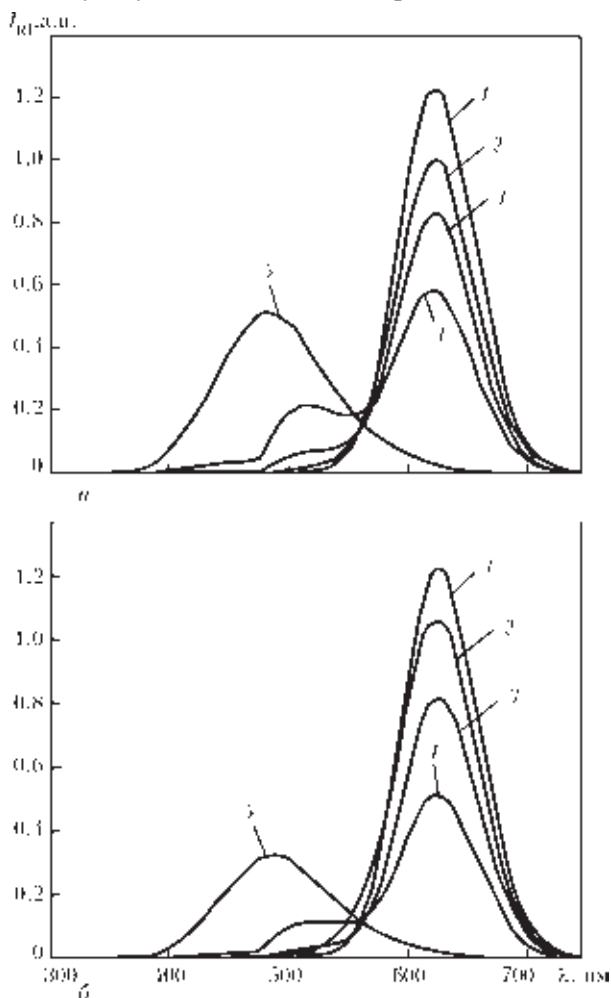


Рис. 3. Спектры радиолюминесценции образцов сцинтилляционных панелей на основе ZnSe(Te), CdWO₄, ZnWO₄ при разных концентрациях компонент в панелях: а – ZnSe(Te) + CdWO₄; б – ZnSe(Te) + ZnWO₄ (кривые 1 соответствуют образцам на основе ZnSe(Te); для а – 2–4 соответствуют концентрациям CdWO₄/ZnSe(Te) – 1:3, 1:1, 3:1, 5 – CdWO₄; для б – 2–4 соответствуют концентрациям ZnWO₄/ZnSe(Te) – 1:3, 1:1, 3:1; 5 – ZnWO₄)

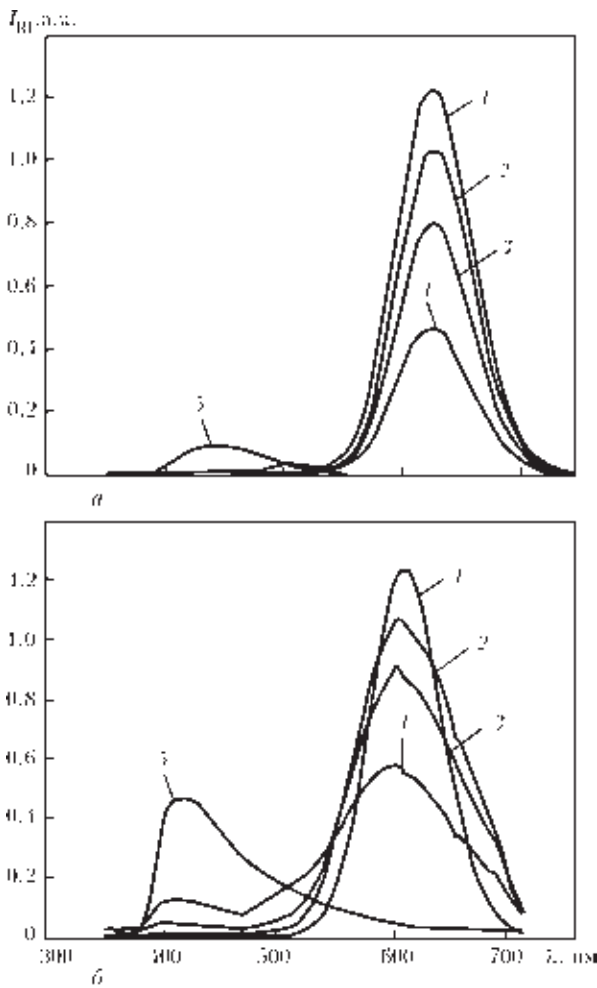


Рис. 4. Спектры радиолюминесценции образцов сцинтилляционных панелей на основе ZnSe(Te), GSO и LGSO при разных концентрациях компонент в панелях: а – ZnSe(Te) + GSO:Ce; б – ZnSe(Te) + LGSO:Ce (1 соответствуют образцам на основе ZnSe(Te); для а – 2–4 соответствуют концентрациям GSO/ZnSe(Te) – 1:3, 1:1, 3:1; 5 – GSO; для б – 2–4 соответствуют концентрациям LGSO/ZnSe(Te) – 1:3, 1:1, 3:1; 5 – LGSO)

у однокомпонентных на основе селенида цинка, что можно связать с существенной разницей световых выходов селенида цинка и дополнительных сцинтилляторов. Также специфика дисперсной среды препятствует эффективному переносу энергии от дополнительного сцинтиллятора к основному. При попытке увеличить процентное соотношение основной/дополнительный сцинтиллятор фотовозбуждение селенида цинка не компенсирует потери светового выхода панели за счет уменьшения процентной доли основного сцинтиллятора в образце, что и приводит к уменьшению суммарного светового выхода.

Зависимость интенсивности люминесценции однокомпонентных и смешанных панелей на основе селенида цинка и вольфрамов цинка или кадмия от энергии квантов рентгеновского излучения показана на рис. 5. Сцинтиллятор ZnSe(Te) имеет абсолютный световой выход на уровне примерно 60 000 фотон/МэВ, абсолютный свето-

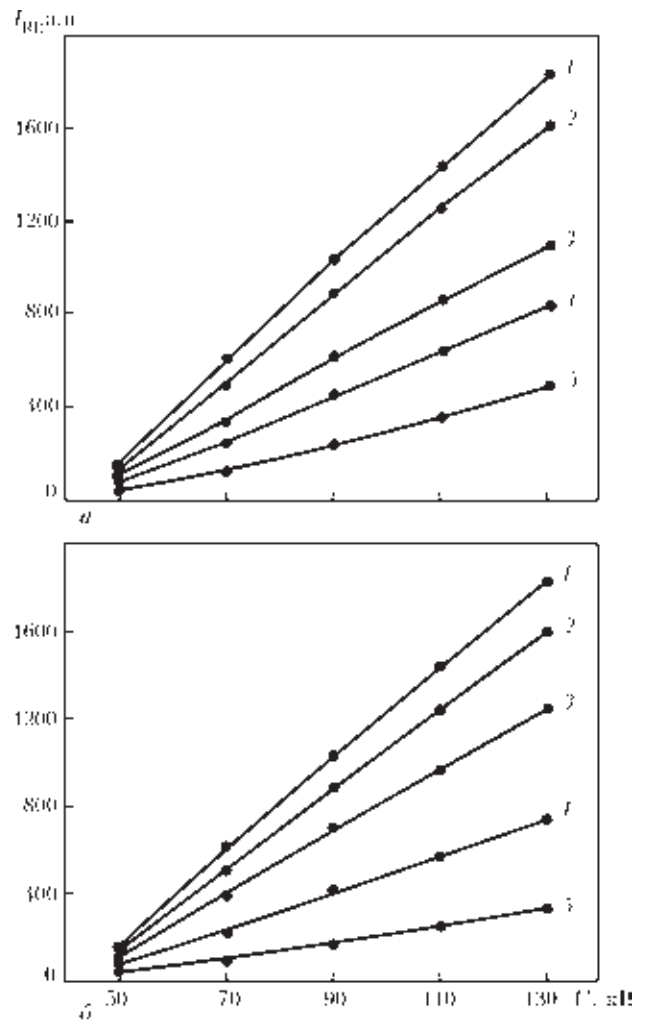


Рис. 5. Зависимость интенсивности радиолюминесценции образцов сцинтилляционных панелей на основе ZnSe(Te), CdWO₄, ZnWO₄ от напряжения на рентгеновской трубке (напряжение варьируется в пределах от 50 до 130 кВ): а – ZnSe(Te) + CdWO₄; б – ZnSe(Te) + ZnWO₄ (кривые 1, б соответствуют образцам на основе ZnSe(Te); для а – 2–4 соответствуют концентрациям CdWO₄/ZnSe(Te) – 1:3, 1:1, 3:1, 5 – CdWO₄; для б – 2–4 соответствуют концентрациям ZnWO₄/ZnSe(Te) – 1:3, 1:1, 3:1, 5 – ZnWO₄)

выход CdWO₄ и ZnWO₄ составляет около 22 000 фотон/МэВ. Таким образом, анализируя полученные экспериментальные данные, наблюдаем линейную зависимость изменения интенсивности люминесценции двухкомпонентных образцов относительно интенсивности люминесценции однокомпонентных образцов пропорционально соотношению селенида цинка и вольфрамов. Интенсивность люминесценции панелей растет при увеличении энергии квантов рентгеновского излучения за счет повышения процента конверсии рентгеновского излучения.

Данные о поглощении рентгеновского излучения однокомпонентными и двухкомпонентными образцами сцинтилляционных панелей приведены на рис. 6. Степень поглощения рентгеновского излучения двухкомпонентных образцов аддитивная величина и определяется процентным соотноше-

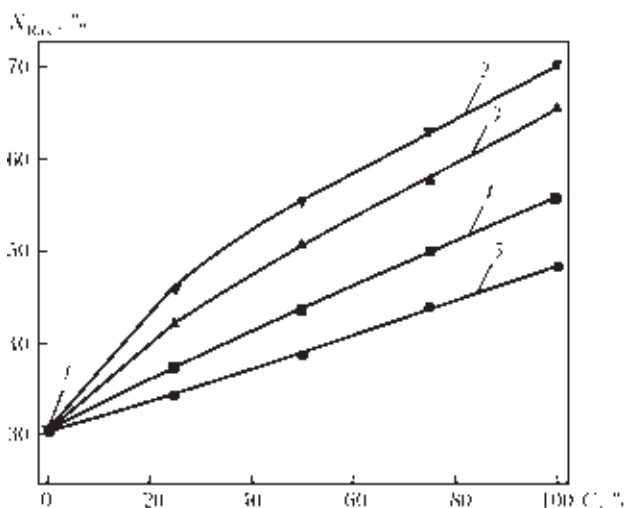


Рис. 6. Данные поглощения рентгеновского излучения двухкомпонентными и однокомпонентными сцинтилляционными панелями (напряжение на рентгеновской трубке 140 кВ). Точка 1 соответствует панели на основе ZnSe(Te); 2 – CdWO₄; 3 – ZnWO₄; 4 – GSO:Ce; 5 – LGSO:Ce, остальные точки соответствуют промежуточным концентрациям компонентов смешанных сцинтилляционных панелей (X_{Ray} – поглощение)

нием компонент в смешанной системе. Благодаря более высокому эффективному атомному номеру оксидные сцинтилляторы имеют более высокие коэффициенты поглощения рентгеновского излучения, чем селенид цинка. Соответственно добавки таких сцинтилляторов приводят к увеличению доли поглощенного рентгеновского излучения в образцах двухкомпонентных сцинтилляционных экранов.

Для практического применения сцинтилляционных панелей необходимо обеспечить равномерность люминесценции по площади панели. Измерение равномерности люминесценции по площади кристаллических и дисперсных образцов одинаковых типоразмеров на основе селенида цинка показало, что дисперсный сцинтиллятор характеризуется примерно в 6-7 раз большей равномерностью люминесценции (табл. 2). Это достигается гомогенизацией порошка ZnSe(Te) в процессе его приготовления и равномерным распределением его по площади панели.

Таблица 2. Сцинтилляционные и физические характеристики дисперсных и кристаллических сцинтилляторов на основе ZnSe(Te)

Параметр	Кристалл ZnSe(Te)	Сцинтилляционная панель ZnSe(Te)
Неравномерность люминесценции по площади образца, %	30	5
Площадь рабочей поверхности образца, см ²	25	400
Механические характеристики	Хрупкий Твердый	Упругий Гибкий

Сцинтилляционные панели, полученные в процессе исследований, могут быть применены в рентгеновской интроскопии, спектрометрии и дозиметрии ионизирующих излучений средних и малых энергий [11–13]. К примеру, порошковые сцинтилляторы могут быть применены вместо кристаллических образцов в 16, 32, 62 и 128 элементных кремниевых фотодиодах, имея за счет своей дисперсности меньшее взаимовлияние по каналам фотодиода, чем кристаллический аналог. Другой областью применения панелей на основе ZnSe(Te) может выступить рентгенография внутренних органов (в частности, сердечной мышцы). Селенид цинка, имея более высокое быстродействие чем широко распространенный оксисульфид гадолиния, за счет низкого послесвечения позволяет получить более четкую картину движущихся объектов и, соответственно, более качественно произвести диагностику заболеваний сердца. Селенид цинка является низкоэнергетическим сцинтиллятором и при применении импульсного рентгеновского излучения, синхронизированного с фазами работы сердца, вместо непрерывного воздействия есть возможность существенного снижения лучевой нагрузки на пациента.

Выводы

Разработана методика получения дисперсных сцинтилляционных панелей большой площади на основе быстродействующего люминофора ZnSe(Te), характеризующихся высоким квантовым выходом и равномерностью люминесценции.

Определены размеры частиц и толщина композитного слоя сцинтиллятора ZnSe(Te), обеспечивающие высокий квантовый выход и удовлетворительное пространственное разрешение для рентгеновского излучения с напряжением на аноде 50...130 кВ.

Установлен характер влияния добавок оксидных сцинтилляторов на спектры радиoluminesценции образцов и на поглощение рентгеновского излучения люминесцентными экранами на основе халькогенидного сцинтиллятора селенида цинка, что дает возможность варьировать оптические и люминесцентные параметры получаемых экранов в широком диапазоне.

1. Рюдигер Ю. Г. О применении синей и зеленой систем визуализации изображения в рентгенографии // Медицинская техника. – 2004. – № 6. – С. 32–36.
2. Трансформация дефектной структуры кристаллов селенида цинка под воздействием водорода / В. Д. Гальчицкий, Н. Г. Рыжиков, К. А. Старжинский и др. // Вopr. атомной науки и техники. Сер. Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение. – 2005. – 88, № 5. – С. 58–62.
3. Carel W. E van Eijk. Inorganic scintillators in medical imaging // Physics in medicine and biology. – 2002. – № 47. – P. 85–88.



4. *Ананьева Г. В., Горохова Е. И., Демиденко В. А.* Оптические свойства керамики на основе Gd_2O_3S // Оптический журнал. – 2005. – № 72(1). – С. 68–72.
5. *Pat. 1512339* Украина G01T 1 / 20. Детектор рентгеновского и мягкого гамма-излучений // Квитницкая В.З. и др. – 1988.
6. *Pat. 4362946* США G01T 1 / 164 Distributed phosphor scintillator structures / Dominic A. Cusano and others. – 1982.
7. *Pat. 1075726* Украина. Сцинтилляционный материал // Рыжиков В.Д. и др. – 1981.
8. *Pat. 7081627* US. Image detector for X-ray radiation // Bjoern Heismann and others. – 2006.
9. *Pat. 4138361* US. Radiation-conversion screens // Andre R. Suys and others. – 1979.
10. *Pat. 5411806* US. Method for the manufacture of a phosphor screen and resulting article // John C. Dahlquist. – 1995.
11. *Гурвич А. М.* Рентгенолюминофоры и рентгеновские экраны. – М.: Атомиздат, 1976. – С. 63.
12. *Блинов Н. Н.* Стандартизация технических условий выполнения рентгенологических исследований / Медицинская рентгенология / Под ред. Р. В. Ставицкого. – М.: МНПИ, 2003. – С. 28.
13. *Гурвич А. М.* Физические основы радиационного контроля и диагностики. – М.: Энергоатомиздат, 1989. – С. 35.

Possibility of producing large-area disperse scintillators for flaw detection in pipe welds or flaw detection in cast complex-shaped items, instead of zinc selenide based X-Ray film, was demonstrated, and possibility of producing two-component scintillation shields based on ZnSe(Te) and other scintillators ($CdWO_4$, $ZnWO_4$, GSO, LGSO), characterized by luminescence maximum in the field of zinc selenide photoabsorption, was studied. Experimental data are given on the influence of oxide scintillator additives on radioluminescence spectra of samples and on X-Ray radiation absorption by scintillation screens based on zinc selenide chalcogenide scintillator. Optimum size of particles of inorganic scintillator ZnSe(Te) was determined to produce maximum high scintillation parameters in scintillation screens. A procedure was developed to produce scintillation screens based on finely-dispersed ZnSe(Te) powders having stable and uniform scintillation characteristics over sample area. References 13, Tables 2, Figures 6.

Keywords: nondestructive testing, scintillation screens, weld flaw detection.

Поступила в редакцию
04.07.2013

ИЗДАТЕЛЬСКИЙ ДОМ «ПАТОН»

www.patonpublishinghouse.com

Заказы на книги можно оформить на сайте издательства либо направив запрос в редакцию журнала ТД и НК.



СВАРКА И НАПЛАВКА МЕДИ И СПЛАВОВ НА ЕЕ ОСНОВЕ / Составители: В.М. Илюшенко, Е. П. Лукьянченко. – Киев: Международная ассоциация «Сварка», 2013. – 396 с. Мягкий переплет, 165x235 мм. Сборник включает основные публикации — статьи, доклады, информационные материалы и изобретения в области сварки и наплавки меди и ее сплавов за период с 1953 по 2013 гг., авторами которых являлись в основном сотрудники Института электросварки им. Е.О. Патона НАН Украины. В представленных материалах освещен широкий круг вопросов разработки прогрессивных технологических процессов сварки и наплавки этих материалов и опыт их производственного применения в различных отраслях промышленности. Сборник может быть полезен инженерно-техническим работникам сварочного производства, а также специалистам, развивающим исследования в этой области. ISBN 978-966-96309-1-9.



ДЕТЕРМИНИРОВАННЫЙ ХАОС В НЕЛИНЕЙНЫХ ЦЕПЯХ С ЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ДУГОЙ. В.Н. Сидоренко, И.В. Пенгетов. – Киев: Международная ассоциация «Сварка», 2013. – 272 с. Твердый переплет, 165x235 мм. Монография посвящена изложению результатов исследования фундаментальных свойств электрической дуги как нелинейного элемента электрических цепей. Описаны выявленные закономерности и механизмы возникновения детерминированного хаоса в этих цепях и сценарии его развития. Особое внимание уделено оригинальным математическим методам исследования нелинейных динамических систем. Все полученные результаты проиллюстрированы. Монография рассчитана на широкий круг специалистов в областях теоретической электротехники и нелинейных динамических систем. Она может быть полезна ученым, аспирантам и студентам. ISBN 978-966-96309-0-2.



МЕТАЛЛУРГИЯ ДУГОВОЙ СВАРКИ И СВАРОЧНЫЕ МАТЕРИАЛЫ. - Киев: Академперіодика, 2012. - 526 с. Мягкий переплет, 200x290 мм. Сборник включает 120 статей сотрудников отдела исследований физико-химических процессов в сварочной дуге Института электросварки им. Е.О. Патона НАН Украины, опубликованных ранее, преимущественно в журнале «Автоматическая сварка», которые обобщают полувековой опыт научно-исследовательской деятельности отдела. Представленные статьи охватывают широкий круг вопросов металлургии дуговой сварки плавлением и разработки сварочных материалов. Сборник предназначен для широкого круга специалистов, занимающихся изучением металлургии дуговой сварки, разработкой сварочных материалов и технологий их производства.