



ИНЖЕНЕРИЯ СЦИНТИЛЛЯЦИОННЫХ МАТЕРИАЛОВ  
И РАДИАЦИОННЫЕ ТЕХНОЛОГИИ  
МЕЖДУНАРОДНАЯ КОНФЕРЕНЦИЯ

12 - 16 октября 2014

**Тема: «Влияние условий получения  
поликристаллов стибьбена на их  
оптические и сцинтилляционные свойства»**

**Лазарев И.В., Караваяева Н.Л., Тарасенко О.А., Тарасов  
В.А.**

*Институт сцинтилляционных материалов  
НАН Украины*



## *Цель работы:*

### *Определение оптимальных технологических параметров получения поликристаллов стильбена*

- Изучения влияние температуры прессования*
  - Изучения влияние давления прессования*
  - Изучения влияния параметров получения сырья*
-

# Преимущество органических сцинтилляционных материалов

Органические сцинтилляторы

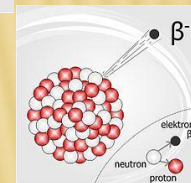
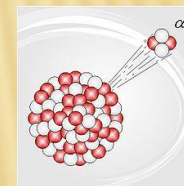
Низкая атомная масса

Низкая вероятность  
обратного рассеивания  
регистрируемых заряженных частиц

Хорошие детекторы  
короткопробежных излучений  
(альфа - и бета- частицы).

Негигроскопичны

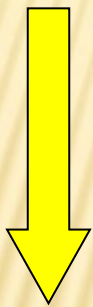
Наиболее эффективны для  
разделения частиц по форме  
импульса (PSD)





# Актуальность задач создания органических поликристаллов

*Недостатки органических монокристаллов*



Относительно высокая себестоимость



Хрупкость



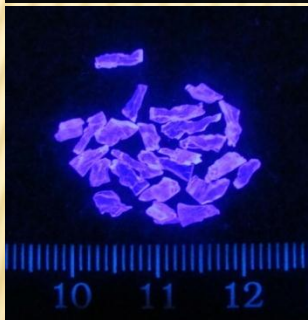
Ограничение площади входного окна детекторов

# ГРАНУЛЫ СТИЛЬБЕНА (Исходный материал)

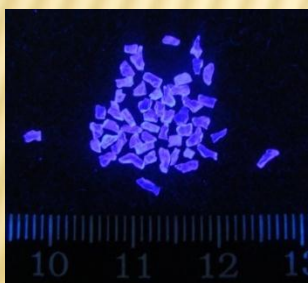
# СЦИНТИЛЛЯТОРЫ (Полученные из гранул)



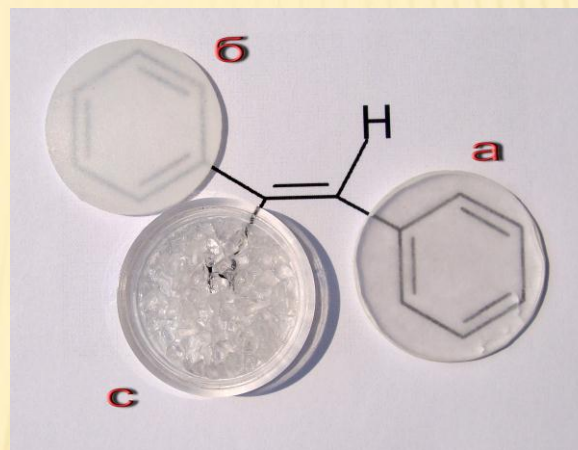
- Размер гранул 0,9-1,0 мм.



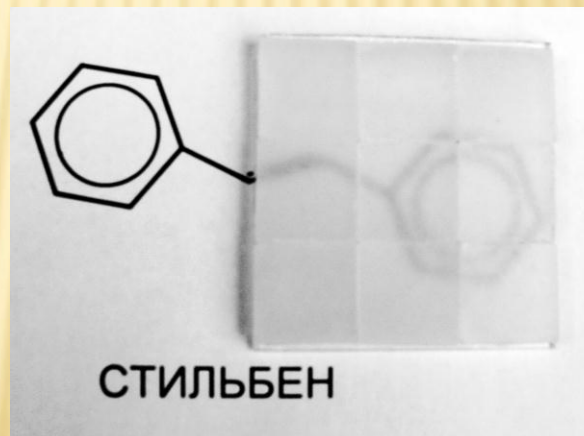
- ✗ Размер гранул-более 3,0 мм.



- Оптимальный размер гранул 2,0 - 2,4 мм.\*



- a) Монокристалл
- b) Поликристалл, полученный методом горячего прессования
- c) Композиционный сцинтиллятор



Поликристаллический мозаичный детектор

\* Горбачева Т.Е., Лебединский А.М., Лазарев И.В., Паникарская В.Д., Косинов Н. Н., Федоров А.Г. Поликристаллические сцинтилляторы на основе стильбена и их свойства // Оптический журнал. – 2012. – Т. 79, № 10. – С. 86-90.

# ОБОРУДОВАНИЕ



Ручной  
пресс



Пресс-форма



Нагреватель

# Порядок выполнения работы

1



+

=



Сборка  
пресс-  
формы

2



Засыпка  
материала

3



=



Вставка  
пуансона

# Порядок выполнения работы

4



=



5



Установка в  
нагреватель

6



Размещение  
под прессом

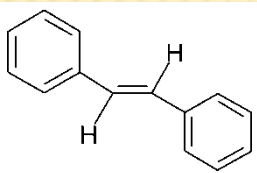


Фиксация пресс-формы

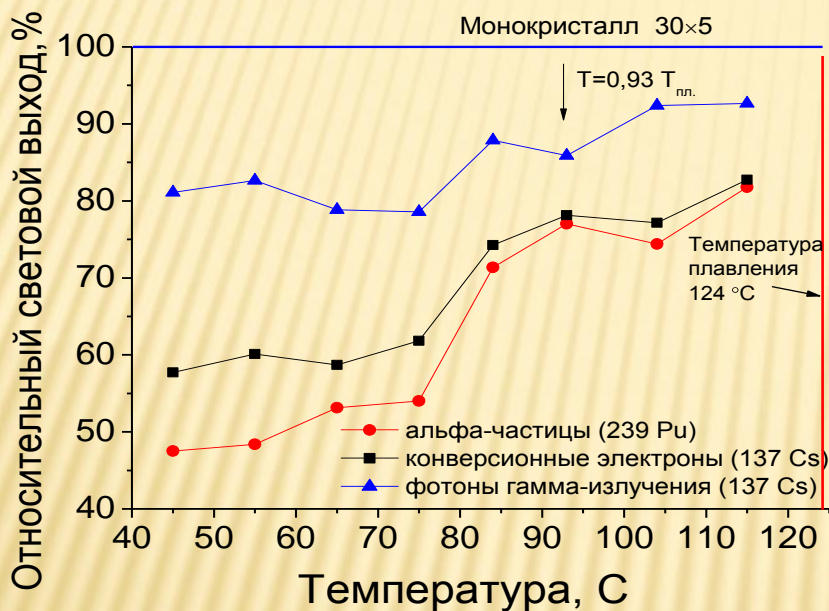




# ЗАВИСИМОСТЬ ОТНОСИТЕЛЬНОГО СВЕТОВОГО ВЫХОДА И ОПТИЧЕСКОГО ПРОПУСКАНИЯ ОТ ТЕМПЕРАТУРЫ

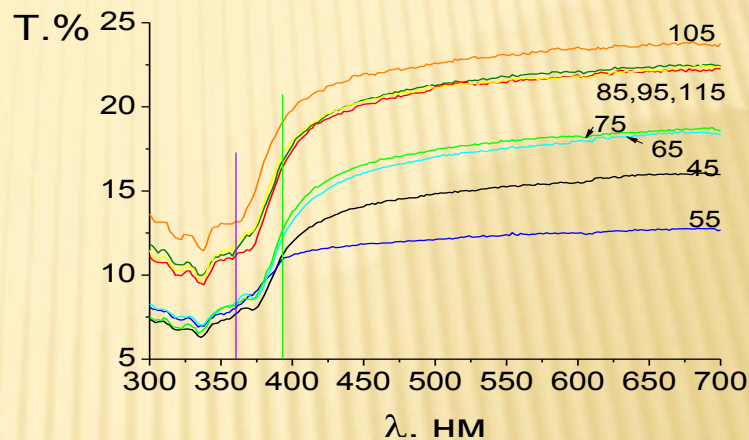


Давление: 100 МПа

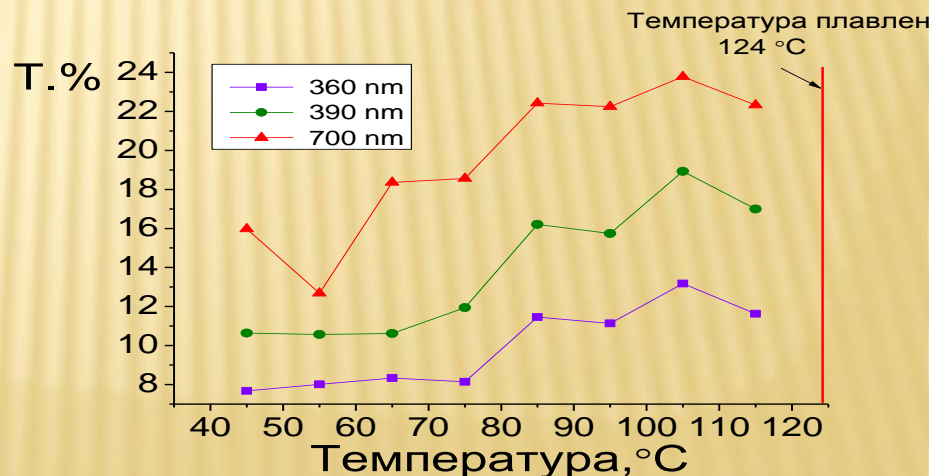


Зависимость относительного светового выхода от изменения температуры для различных видов возбуждения

T – оптическое пропускание в % отн. воздуха



Зависимость оптического пропускания образцов от изменения длины волны проходящего света

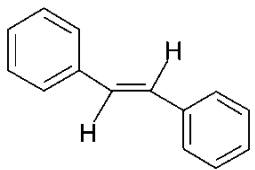


Зависимость оптического пропускания образцов от изменения температуры

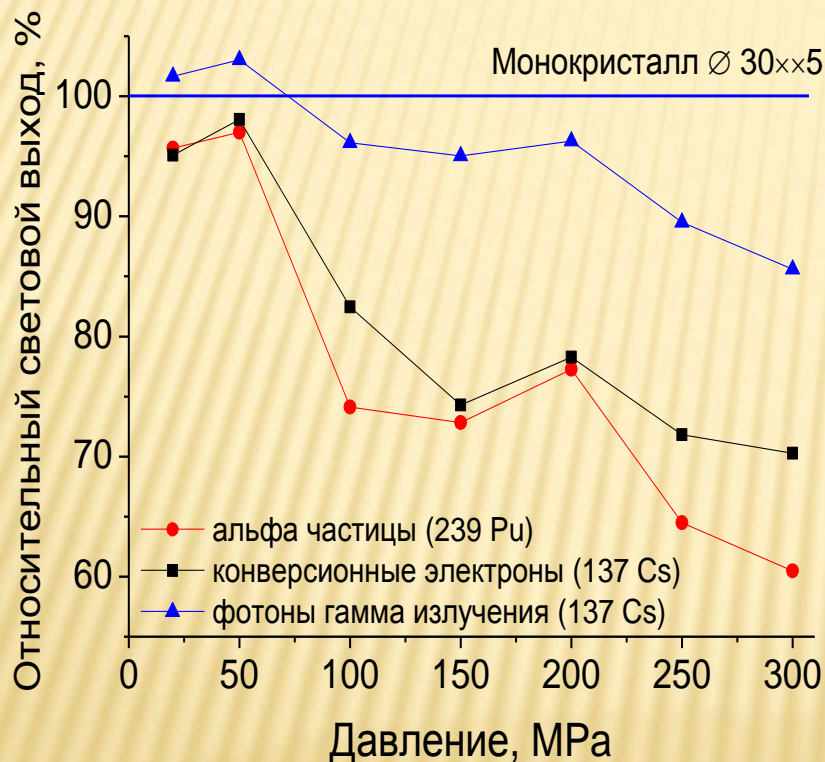
Размер образцов: Ø – 30mm, толщина - 5 mm.



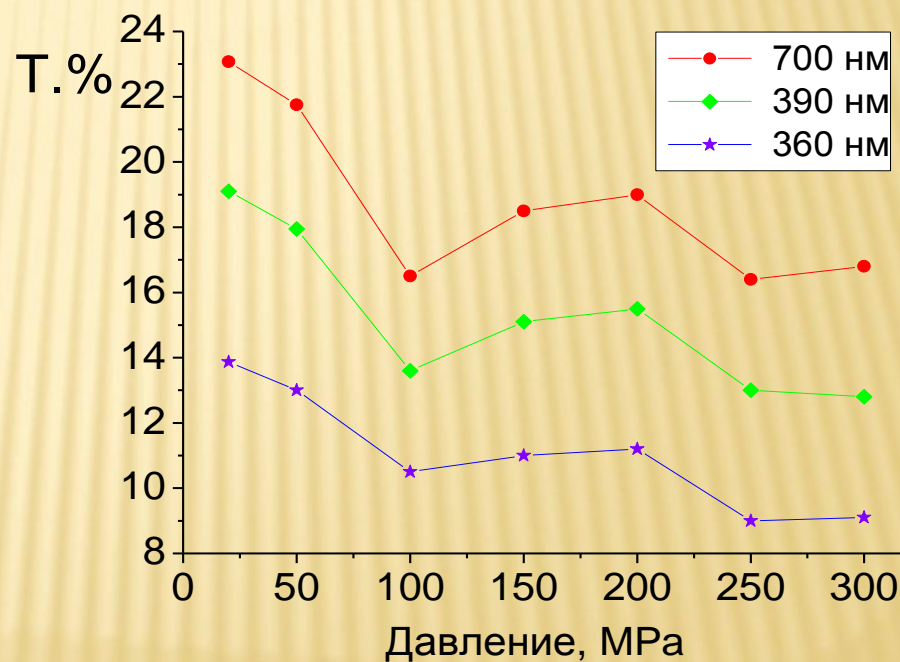
# ЗАВИСИМОСТЬ ОТНОСИТЕЛЬНОГО СВЕТОВОГО ВЫХОДА И ОПТИЧЕСКОГО ПРОПУСКАНИЯ ОТ ДАВЛЕНИЯ



Температура: 100 °С Размер образцов: Ø – 30 мм, толщина - 5 мм.

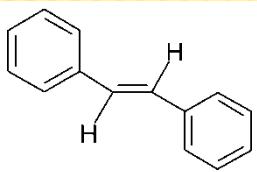


Относительный световой выход как функция изменения давления



Оптическое пропускание как функция изменения давления

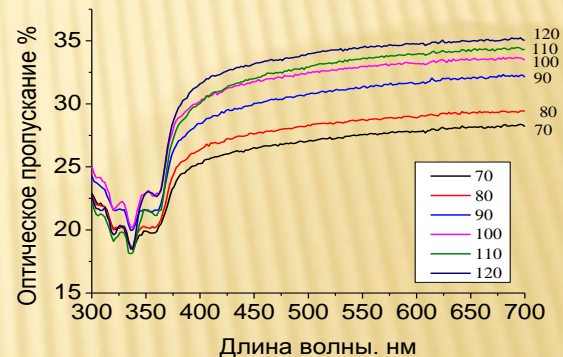
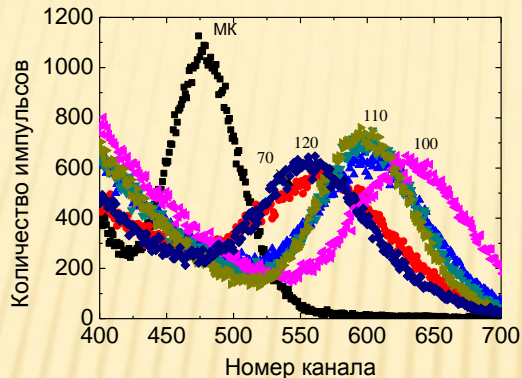
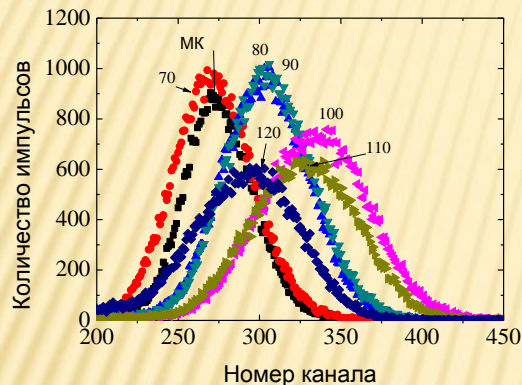
# ЗАВИСИМОСТЬ ОТНОСИТЕЛЬНОГО СВЕТОВОГО ВЫХОДА И ОПТИЧЕСКОГО ПРОПУСКАНИЯ ОТ ТЕМПЕРАТУРЫ



Давление: 30 МПа

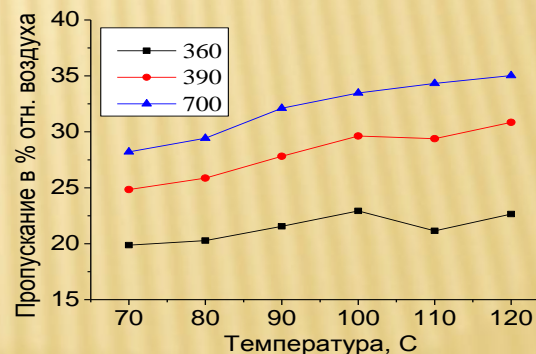
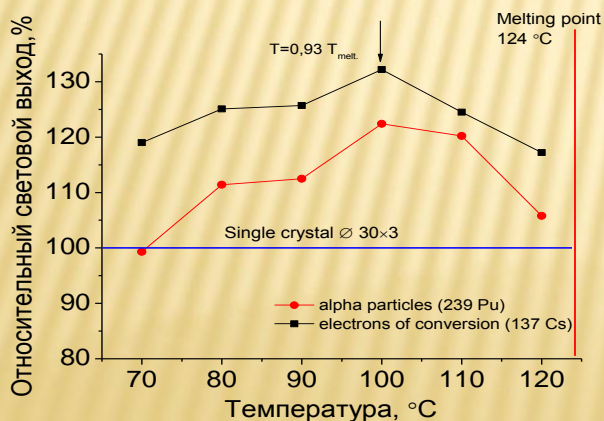
Размер образцов:  $\varnothing$  – 30mm, толщина - 3 mm.

Размер гранул 2,0-2,4 мм.



Зависимость оптического пропускания образцов от изменения длины волны проходящего света

Гранулы дробленного МК а) при возбуждении альфа-частицами  
б) при возбуждении конверсионными электронами



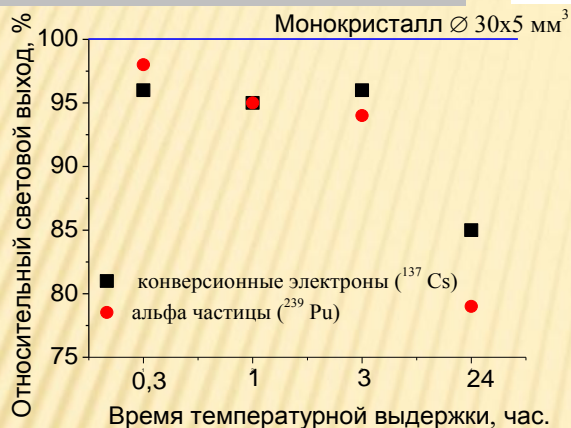
Зависимость оптического пропускания образцов от изменения температуры

# ЗАВИСИМОСТЬ ОТНОСИТЕЛЬНОГО СВЕТОВОГО ВЫХОДА ВЫХОДА И ОПТИЧЕСКОГО ПРОПУСКАНИЯ ОТ ВРЕМЕНИ ПРЕССОВАНИЯ

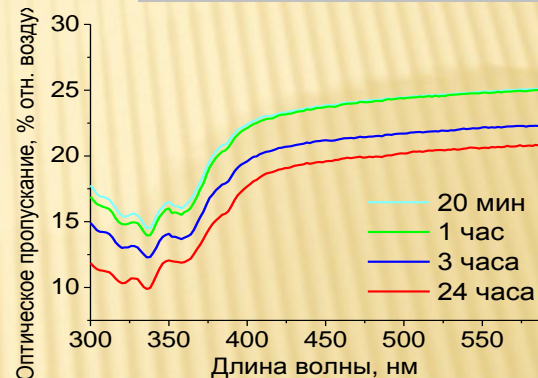
Температура, 100 °С

$$t_0 = r_0^2 \left( \frac{kT}{a^3} \right) 6 D y$$

Давление: 30 МПа



$t_0$  – время спекания  
 $r_0$  – начальный радиус поры  
 $k$  – постоянная Больцмана  
 $T$  – температура спекания  
 $a$  – параметр решетки  
 $D$  – коэффициент самодиффузии  
 $y$  – поверхностное натяжение



Зависимость относительного светового выхода от времени температурной выдержки

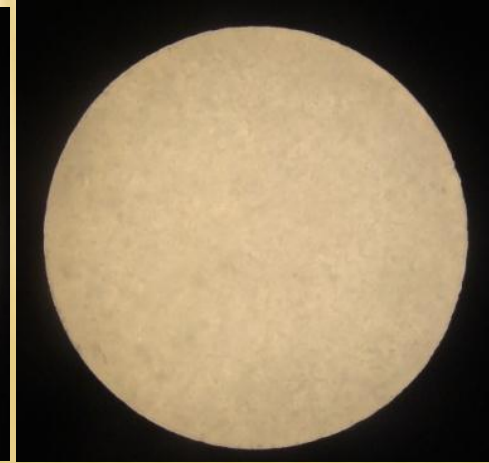
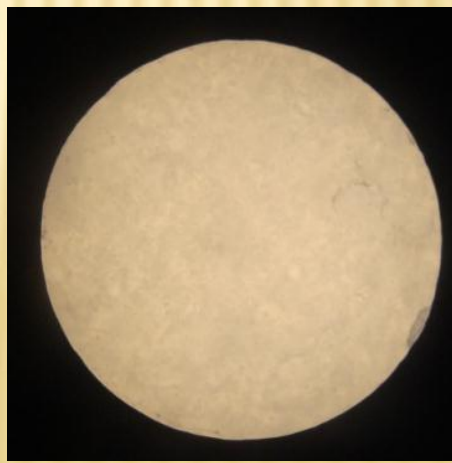
Зависимость оптического пропускания от изменения длины волны проходящего света при различной продолжительности процесса прессования.

20 минут.

60 минут.

3 часа

24 часа





## Характеристики образцов при разных условиях получения монокристаллических гранул

№ п/п	Способ получения гранул для изготовления поликристалла	Относительный световой выход, %		Т в % от воздуха для $\lambda$ , 390 нм
		$^{239}\text{Pu}$	$^{137}\text{Cs}$	
	<i>Эталон, монокристалл стильбена</i>	<b>100</b>	<b>100</b>	<b>76,6</b>
1	<i>Дробление монокристалла</i>	126,6	123,9	32,0
2	<i>Дробление поликристаллического слитка, полученного в результате очистки методом направленной кристаллизации</i>	119	114,6	31,0
3	<i>Дробление поликристаллического слитка, полученного в результате <b>очистки методом зонной плавки</b></i>	<b>132,9</b>	<b>126,3</b>	<b>35,5</b>
4	<i>Перекристаллизация из органического растворителя (1,2-дихлорэтан)</i>	123,0	119,5	29,1

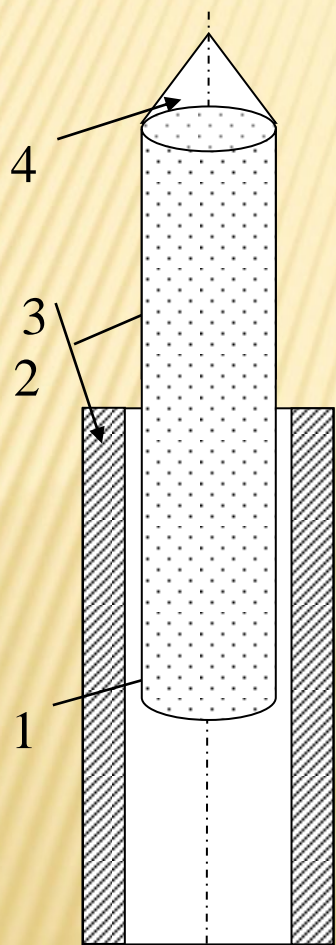
Размер образцов:  $\varnothing$  – 30 мм, толщина - 2 мм.

Размер гранул 2,0-2,4 мм.

Режимы прессования:  
Давление 30 МПа  
Температура 100°C

# УРАВНЕНИЕ ПРОЦЕССА НАПРАВЛЕННОЙ КРИСТАЛЛИЗАЦИИ

## НАПРАВЛЕННАЯ КРИСТАЛЛИЗАЦИЯ



Обозначения:

- 1) жидкая фаза
- 2) твердая фаза
- 3) нагреватель
- 4) контейнер

$$d \approx 10^{-3} - 10^{-4} \text{ см}$$

$$D \approx 10^{-5} - 10^{-4} \text{ см}^2$$

$$d/D \approx 10^4 \text{ см/сек}$$

Уравнение Галливера – Шейла  
(Галливера-Пфанна)

$$C = k_0 C_0 (1 - g)^{k_0 - 1}$$

$k_0$  - равновесный коэффициент  
распределения

$g$  - относительная доля затвердевшей  
жидкости

Уравнение Бартона-Прима-Шлихтера

$$k = k_0 \frac{1}{k_0 + (1 - k_0) \exp(fd/D)}$$

$k$  - эффективный коэффициент  
распределения

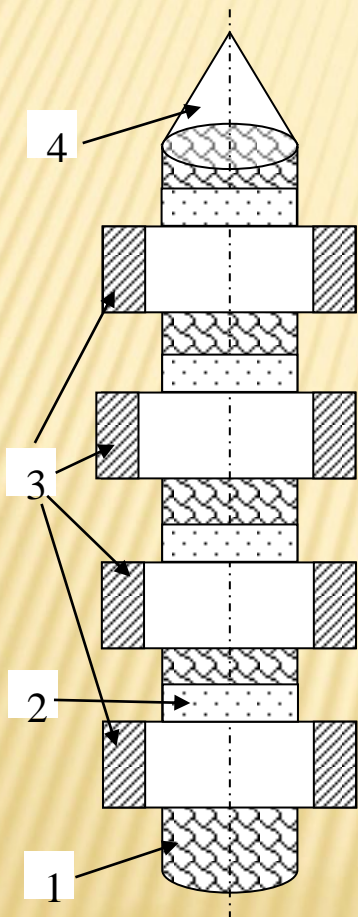
$f$  - скорость роста

$D$  - коэффициент диффузии

$d$  - толщина диффузионного слоя

# УРАВНЕНИЕ ЗОННОЙ ПЛАВКИ

## ЗОННАЯ ПЛАВКА



Обозначения:

- 1) жидкая фаза
- 2) твердая фаза
- 3) нагреватель
- 4) контейнер

Уравнение зонной плавки для одного прохода

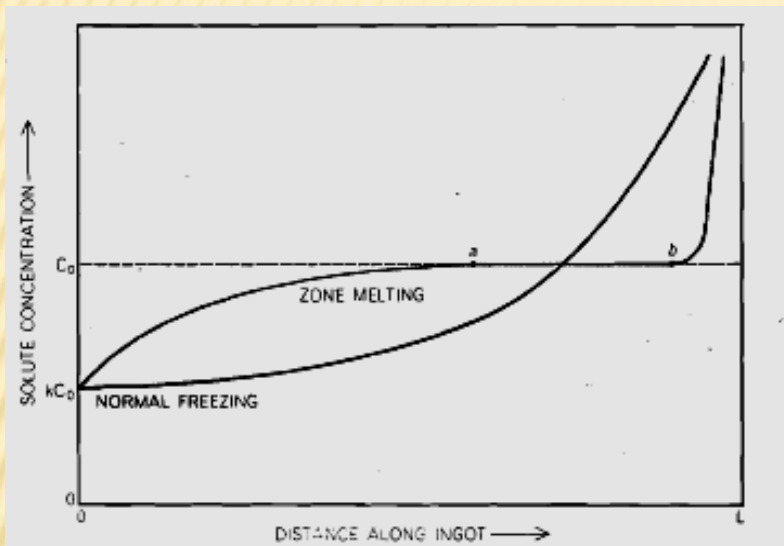
$$C/C_0 = 1 - (1-k)e^{-kx/l}$$

Уравнение зонной плавки для  $n$  проходов

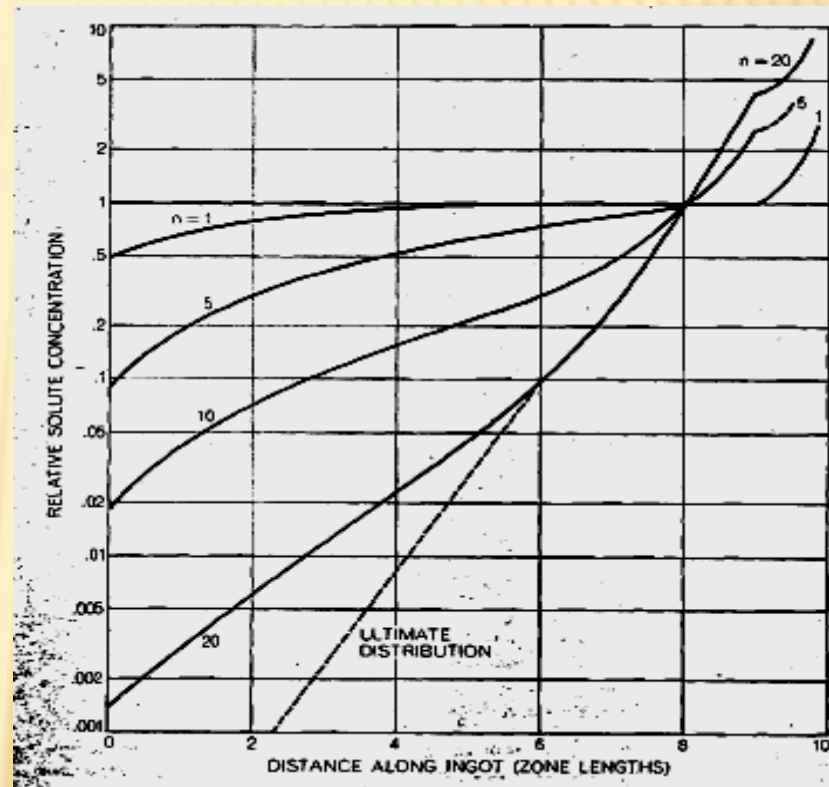
$$C_n(x) = C_n(L-l) \left[ \frac{L-x}{l} \right]^n$$

$L$  – длина образца  
 $l$  – длина расплавленной зоны  
 $x$  – длина участка твердой фазы  
 $n$  – количество проходов зоны

# ЭФФЕКТИВНОСТЬ ОЧИСТКИ ДЛЯ РАЗНЫХ МЕТОДОВ



Распределение примеси, полученное после очистки методом направленной кристаллизации и после одного прохода очистки методом зоной плавки.



Распределение примеси, полученное после нескольких проходов зоны очистки методом зоной плавки.



# ЗАВИСИМОСТЬ ОПТИЧЕСКОГО ПРОПУСКАНИЯ ОТ УСЛОВИЙ ПОЛУЧЕНИЯ МАТЕРИАЛА

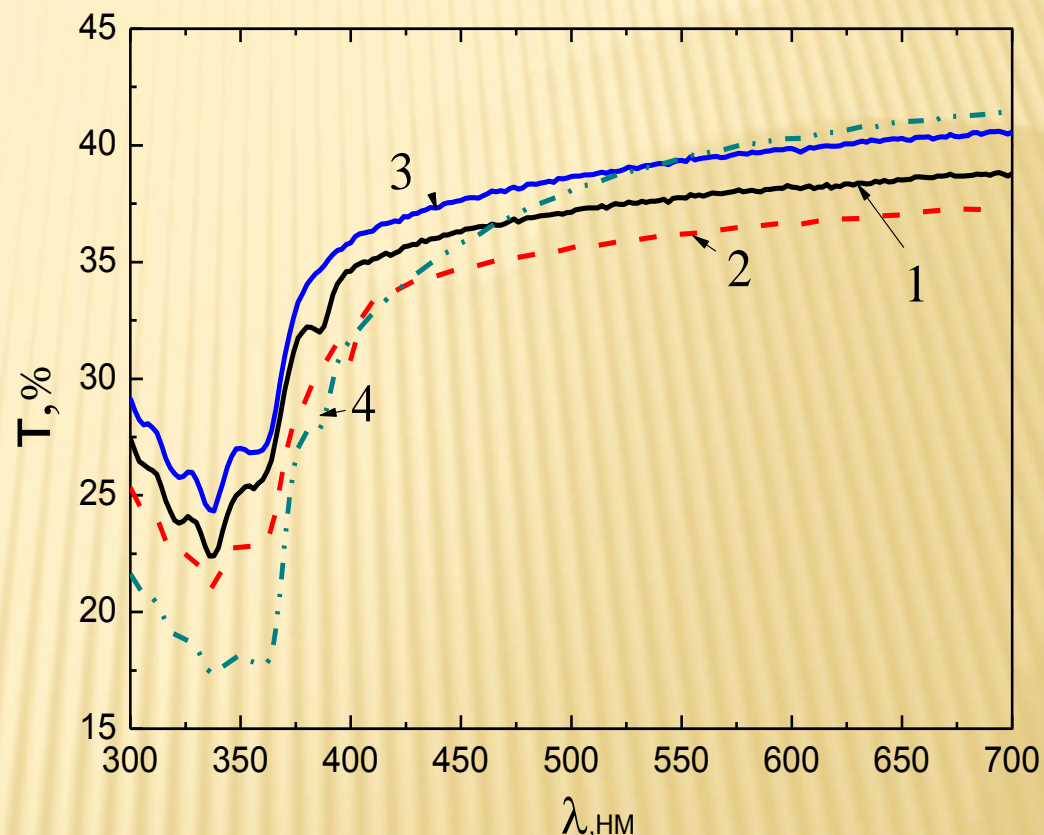


МАТЕРИАЛЫ, ПРИМЕНЯЕМЫЕ ДЛЯ ПОЛУЧЕНИЯ ПОЛИКРИСТАЛЛОВ СТИЛЬБЕНА:

На основе гранул:

1) путем дробления монокристалла  
2) после очистки методом направленной кристаллизации  
3) после очистки методом зонной плавки

4) Из пластин, полученных перекристаллизацией с органического растворителя (1,2-дихлорэтан)



Размер образцов:  $\varnothing$  – 30 мм, толщина - 2 мм.

Размер гранул 2,0-2,4 мм.

Режимы прессования:  
Давление 30 МПа  
Температура 100°C



Значения технического и абсолютного светового выхода ( $L_{\text{техн}}$ ,  $L_{\text{абс}}$ ) и коэффициента светособирания ( $\tau_{\gamma}$ ) для монокристаллов, поликристаллических и композиционных сцинтилляторов

Образец	Размеры, мм	( $L_{\text{техн}}$ ), фотон/МэВ	$\tau_{\gamma}$	( $L_{\text{абс}}$ ), фотон/МэВ
Монокристалл	D=30,h=5	9687	0,659	14700
Поликристалл	D=30,h=3	10879	0,735	14801
--/--	D=30,h=5	10327	0,669	15436
--/--	D=30,h=7	9735	0,610	15960
--/--	D=30,h=10	8157	0,540	15105
Композицион- ный детектор	D=30,h=5	6965	0,515	13524
--/--	D=30,h=10	5396	0,372	14505
--/--	D=30,h=20	3148	0,231	13629

\*\* Н.З. Галунов, О.А. Тарасенко, В.А. Тарасов. Оптические и сцинтилляционные свойства поликристаллических и композиционных материалов на основе стильбена // Оптический журнал (подано в печать).



## Выводы:

- ✘ Значения светового выхода и коэффициента оптического пропускания возрастают в диапазоне температур ниже  $100^{\circ}\text{C}$ . Увеличение температуры прессования не приводит увеличению значений светового выхода.
- ✘ Наиболее высокие значения светового выхода и оптического пропускания для стибена получены при относительно невысоких значениях давления одноосного сжатия (20-30 МПа).
- ✘ Значения относительного светового выхода коррелирует со значениями оптического пропускания в диапазоне температур ниже  $100^{\circ}\text{C}$ .
- ✘ Гранулы стибена, полученные при дроблении слитка сформированного в процессе очистки методом зонной плавки позволяют создавать поликристаллы с наиболее высоким световым выходом. Такие поликристаллы, дешевле в изготовлении.



**Спасибо за  
внимание!**



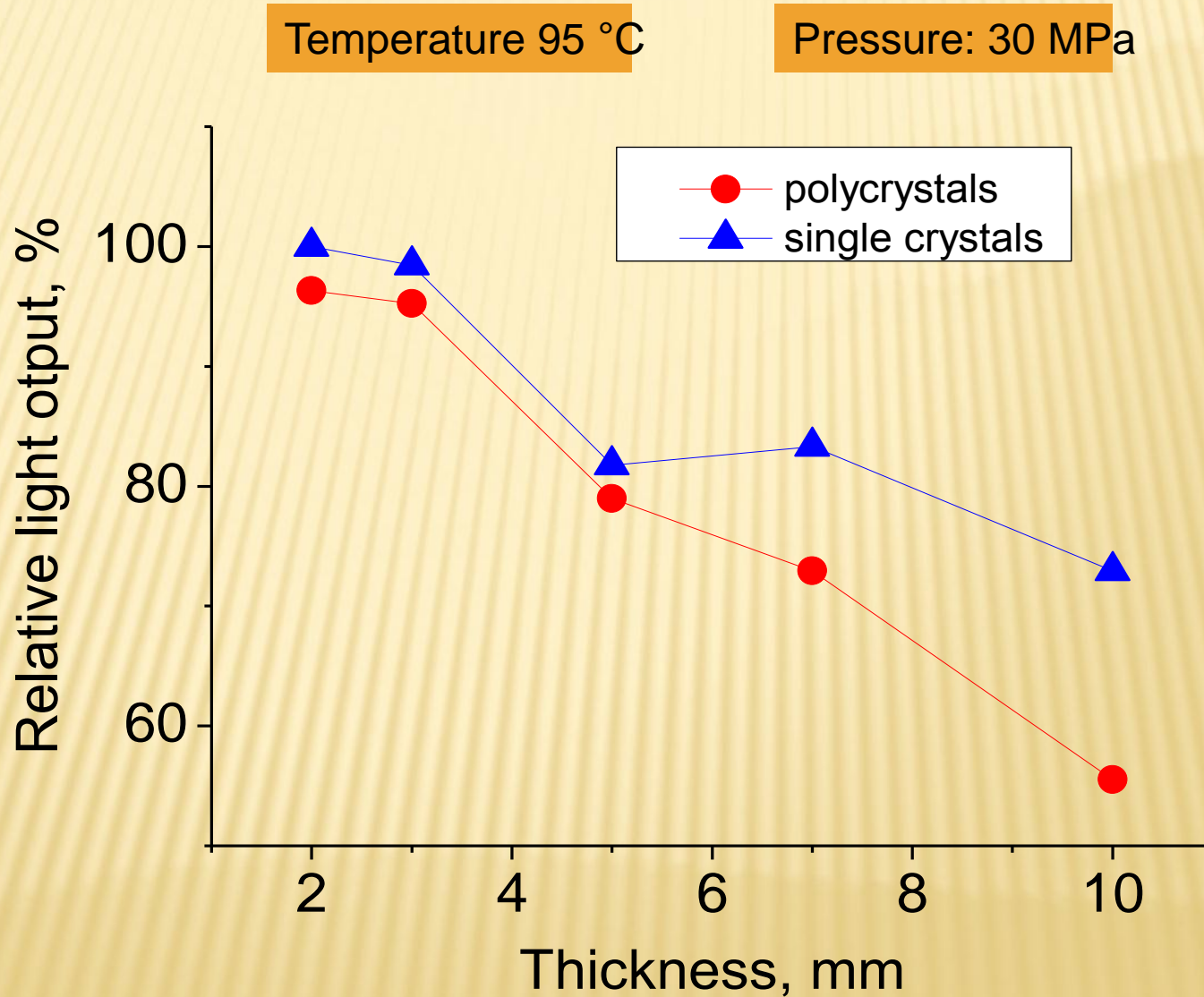


Значения абсолютного светового выхода ( $L_{абс}$ ) и коэффициентов светособирания ( $\tau_e$  и  $\tau_\alpha$ ) монокристаллов, поликристаллических и композиционных сцинтилляторов

Образец	Размеры, мм	( $L_{абс}$ ), фотон/МэВ	$\tau_e$	$\tau_\alpha$
Монокристалл	D=30,h=5	14700	0,649	0,635
Поликристалл	D=30,h=3	14801	0,838	0,831
--//--	D=30,h=5	15436	0,728	0,718
--//--	D=30,h=7	15960	0,604	0,594
--//--	D=30,h=10	15105	0,413	0,415
Композиционный детектор	D=30,h=5	13524	---	0,459
--//--	D=30,h=10	14505	---	0,310
--//--	D=30,h=20	13629	---	0,158

\*\* Н.З. Галунов, О.А. Тарасенко, В.А. Тарасов. Оптические и сцинтилляционные свойства поликристаллических и композиционных материалов на основе стильбена // Оптический журнал (подано в печать).

## THE DEPENDENCE OF RELATIVE LIGHT OUTPUT FROM DETECTOR THICKNESS



# Оптическое пропускание МК vs ПК

