

ИЗГОТОВЛЕНИЕ И ХАРАКТЕРИСТИКИ КОМПОЗИТНЫХ СЦИНТИЛЛЯТОРОВ НА ОСНОВЕ ЛИТИЕВОГО СТЕКЛА

© 2022 г. Е. С. Кузьмин^{а,*}, Г. Д. Бокучава^б, И. Ю. Зимин^а,
А. А. Круглов^б, Н. А. Кучинский^а

^а Объединенный институт ядерных исследований, Лаборатория ядерных проблем им. В.П. Джелепова
Россия, 141980, Дубна Московской обл., ул. Жолио-Кюри, 6

^б Объединенный институт ядерных исследований, Лаборатория нейтронной физики им. И.М. Франка
Россия, 141980, Дубна Московской обл., ул. Жолио-Кюри, 6

*e-mail: e_kuzmin@jinr.ru, e_kuzmin@mail.ru

Поступила в редакцию 03.03.2022 г.

После доработки 17.03.2022 г.

Принята к публикации 20.03.2022 г.

Разработаны и изготовлены образцы композитных сцинтилляторов, состоящих из фрагментов литиевого стекла NE 912, расположенных в органической матрице. Образцы изготавливались размерами $\varnothing 40 \times 2$ мм с концентрацией литиевого стекла 25, 30 и 35%. В качестве нейтральной матрицы использовались эпоксидная и акриловая смолы, а также силиконовый компаунд. Испытания образцов проводились в составе сцинтилляционного детектора на пучке тепловых нейтронов и с источником γ -квантов ^{60}Co . Определялись эффективность регистрации тепловых нейтронов и γ -чувствительность в сравнении с гомогенным стеклянным сцинтиллятором. Полученные результаты подтвердили возможность снижения на два порядка чувствительности детектора к γ -квантам за счет незначительного (50%) снижения эффективности регистрации нейтронов.

DOI: 10.31857/S0032816222040231

ВВЕДЕНИЕ

Литиевые стеклянные сцинтилляторы имеют ряд привлекательных свойств: высокий световой ход (~7000 фотонов/нейтрон), хорошее макроскопическое сечение для тепловых нейтронов (15 см^{-1}) и короткое время высвечивания (70 нс), что позволяет создать стабильный и эффективный к нейтронам сцинтилляционный счетчик с высокой скоростью счета. Основным недостатком счетчика нейтронов с гомогенным стеклянным сцинтиллятором — это его высокая чувствительность к γ -квантам.

В таком счетчике, как и в большинстве современных нейтронных детекторов, амплитудные распределения от нейтронов и γ -квантов перекрывают друг друга. Увеличение порога регистрации позволяет незначительно снизить чувствительность к γ -квантам лишь ценой уменьшения эффективности регистрации нейтронов. Известный метод дискриминации γ -квантов по форме импульса имеет существенный недостаток — обработка сигналов приводит к значительному увеличению “мертвого” времени и ограничивает грузочную способность детектора.

Известный метод, используемый для снижения чувствительности стеклянного сцинтиллято-

ра к γ -квантам, основан на применении композитов, составленных из фрагментов литиевого стекла, размещенных в нейтральной матрице из органического полимера. Такой метод разрабатывался в ряде работ для создания детекторов быстрых нейтронов [1–3]. В данной работе исследуются характеристики композитных сцинтилляторов при регистрации тепловых нейтронов.

Нейтроны, падающие на композитный сцинтиллятор, испытывают взаимодействия преимущественно посредством двух механизмов: рассеяния на ядрах в поддерживающей полимерной матрице и захвата на ядрах ^6Li во встроенных зернах литиевого стекла. Основным каналом взаимодействия γ -квантов с композитом — образование комптоновских электронов. Если пробеги электронов значительно превышают размеры фрагментов литиевого стекла, то часть ионизационных потерь энергии электронов будет приходиться на полимерную матрицу, уменьшая таким образом амплитуду сигнала от γ -квантов.

Для детектора, построенного на композитном сцинтилляторе, такие характеристики, как эффективность регистрации нейтронов и γ -чувствительность, зависят от размеров фрагментов стекла, концентрации фрагментов в композите и оп-

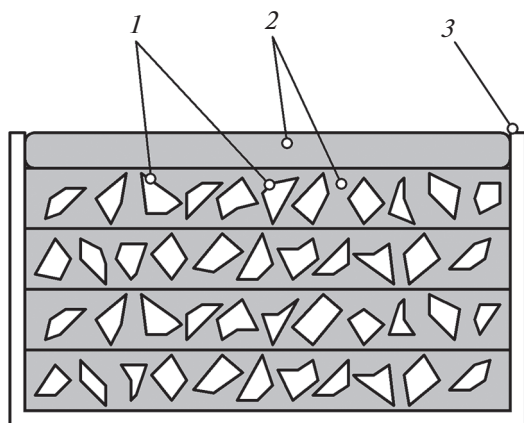


Рис. 1. Структура образца гетерогенного сцинтиллятора. 1 – фрагменты стеклянного сцинтиллятора; 2 – полимер; 3 – корпус кюветы.

тических характеристик материала нейтральной матрицы. Влияние размеров фрагментов и их концентрации на характеристики детектора было исследовано методом Монте-Карло в работе [4] для композитного сцинтиллятора толщиной 2 мм.

В настоящей работе представлены результаты испытаний на пучке тепловых нейтронов и с источником γ -квантов ^{60}Co образцов композитного сцинтиллятора, изготовленных на основе трех различных полимеров.

ИЗГОТОВЛЕНИЕ ОБРАЗЦОВ

В эксперименте использовались образцы гетерогенного сцинтиллятора, изготовленные с разными концентрациями фрагментов литиевого стекла в нейтральных матрицах. В качестве материалов для матриц были использованы следующие полимеры:

- эпоксидная смола Crystal Resin Pebeo Gedeo, Pebeo Industries (<http://www.pebeo.com>),
- силиконовый компаунд Elastosil RT 604, Wacker Chemie AG (<http://www.wacker.com>),
- акриловая смола Clear High Adien, Adien (<http://www.adien.ru>).

Размеры всех образцов соответствовали размерам гомогенного стеклянного сцинтиллятора, использованного для сравнения, и составляли $\text{Ø}40 \times 2$ мм. В процессе изготовления образца стеклянный сцинтиллятор дробился на фрагменты с линейными размерами, не превышающими 0.5 мм. Затем полученный порошок сортировался на ситах с квадратными ячейками. Выделялась фракция фрагментов с размерами $d \geq 0.35$ мм. Для композита с размерами фрагментов в диапазоне $0.35 \leq d \leq 0.5$ мм эффективность регистрации тепловых нейтронов достигает максимума [4]. При создании образцов гетерогенного сцинтиллятора

использовались тонкостенные пластиковые кюветы, изготовленные на 3D-принтере. Структура образца гетерогенного сцинтиллятора показана на рис. 1.

Материалом для кюветы служил пластик белого цвета типа PLA, ООО РЭК (<http://www.rec3d.ru>). Кювета представляла собой цилиндрическую чашку $\text{Ø}40 \times 2.5$ мм с толщиной стенок 0.5 мм. Чтобы добиться равномерного распределения фрагментов сцинтиллятора по объему кюветы, применялся способ послойной заливки. Образец разделялся по высоте на 4 слоя высотой 0.5 мм каждый. Для каждого слоя рассчитывался вес фрагментов стекла и объем полимерного связующего. При формировании слоя фрагменты стекла распределялись по площади кюветы, и слой выравнивался на вибрационном столе. Далее в кювету заливался один из полимерных наполнителей. После отверждения слоя процесс повторялся. По мере готовности последнего четвертого слоя сверху заливался слой чистого полимера для создания гладкой поверхности, пригодной для обеспечения оптического контакта. В дальнейшем изделие оставалось неразъемным при всех измерениях. Всего было изготовлено 9 образцов, для каждого типа связующего были изготовлены образцы с концентрациями фрагментов стеклянного сцинтиллятора $25 \pm 1.5\%$, $30 \pm 1.8\%$ и $35 \pm 2.1\%$. Насыпная плотность порошка отсортированной фракции фрагментов сцинтиллятора такова, что увеличение концентрации стекла выше 35% невозможно.

КОНСТРУКЦИЯ ДЕТЕКТОРА

Схема детектора, использованного в измерениях, показана на рис. 2. Образцы композита, а также гомогенный сцинтиллятор были изготовлены из сцинтилляционного стекла NE 912 (Nuclear Enterprises). Для регистрации сцинтилляций использован фотоумножитель XP 2262B (Photomnis) с делителем напряжения S563/L (Philips).

При изготовлении композитов, содержащих фрагменты стеклянного сцинтиллятора, неизбежным было наличие неоднородности оптических характеристик по площади образца. При непосредственном размещении сцинтиллятора на входном окне фотоумножителя могла возникнуть нежелательная зависимость анодного сигнала от положения образца на входном окне ФЭУ. Такая зависимость может существенно исказить результаты измерений при монтаже различных образцов на детектор. Чтобы исключить такую возможность, образцы гетерогенного и стеклянного сцинтилляторов сочленялись со входным окном фотоумножителя через перемешивающий световод из оргстекла $\text{Ø}40$ и длиной 25 мм.

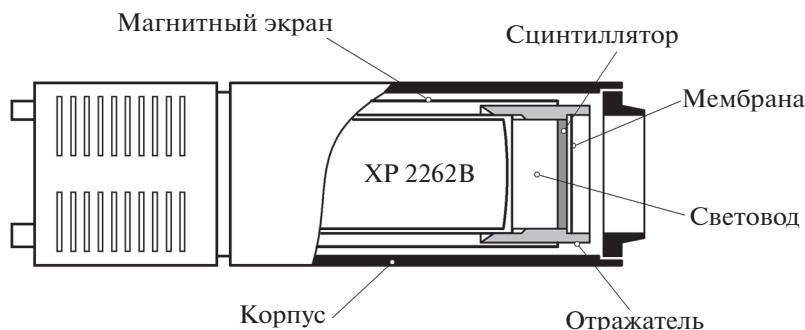


Рис. 2. Схема детектора, использованного в измерениях. Отражатель изготовлен из фторопласта, световод — из оргстекла, корпус детектора — стальной, магнитный экран — из мю-металла, мембрана — из алюминия.

Для создания оптических контактов на поверхностях раздела использовалась оптическая смазка ВС-630 (Vicron). Детектор был изготовлен в двух экземплярах. Второй экземпляр детектора, с монолитным сцинтиллятором, использовался в качестве монитора нейтронного пучка.

ЭКСПЕРИМЕНТ

Испытания сцинтилляторов проводились на пучке тепловых нейтронов канала № 13 реактора ИБР-2 [5]. Постановка эксперимента соответствовала схеме, описанной в работе [6]. Пучок тепловых нейтронов рассеивался на мишени Ø20 мм из реакторного графита, расположенной на расстоянии 500 мм от оконечности нейтронотода. Основной детектор и мониторный счетчик располагались вплотную друг к другу и на расстоянии 1580 мм от мишени под углом 42° к оси пучка нейтронов. Счетчики размещались в зоне, затененной бетонной защитой от нейтронотода, и дополнительно были защищены слоями свинца и борированного полиэтилена. При измерении γ -чувствительности источник ^{60}Co располагался на оси детектора на расстоянии 16 мм от поверхности образца. Сигналы с анодных выходов детектора и монитора подключались на вход дигитайзера CAEN DT5751. Высоковольтное питание обеспечивалось блоком NDT 1470 CAEN.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Эффективность регистрации нейтронов

На рис. 3 представлены зарядовые спектры сигналов, полученные на пучке тепловых нейтронов для композитов с различными нейтральными связующими и гомогенного стекла. При расчете заряда сигнала осуществлялось интегрирование в окне, которое начиналось за 30 нс от триггера и имело длительность 450 нс. Отсеивались импульсы, базовая линия которых содержала шумы. Сигналы, ширина которых на полувысоте была менее 20 нс, в обработке также не участвовали. По

результатам интегрирования были построены зарядовые спектры для тепловых нейтронов.

Форма спектров соответствует модели, построенной в работе [4]. Каждый спектр состоит из пика, хорошо описываемого нормальным распределением, и полочки в низкоэнергетической области. Область спектра, описываемая нормальным распределением, соответствует ситуации, когда короткопробежные продукты распада полностью укладываются в объеме фрагмента стеклянного сцинтиллятора. Полочка в низкоэнерге-

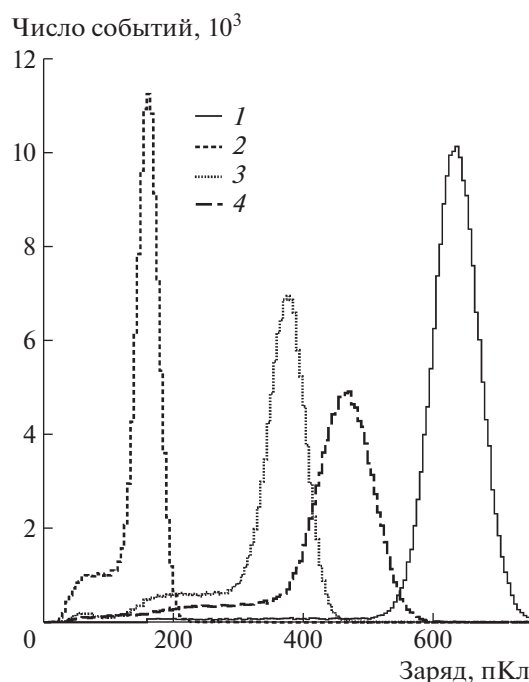


Рис. 3. Спектры сигналов, зарегистрированных на пучке тепловых нейтронов от образцов гетерогенных сцинтилляторов с концентрацией фрагментов стекла 30%: 1 — гомогенный стеклянный сцинтиллятор; 2 — образец на основе акриловой смолы; 3 — образец на основе эпоксидной смолы; 4 — образец на основе силиконового компаунда.

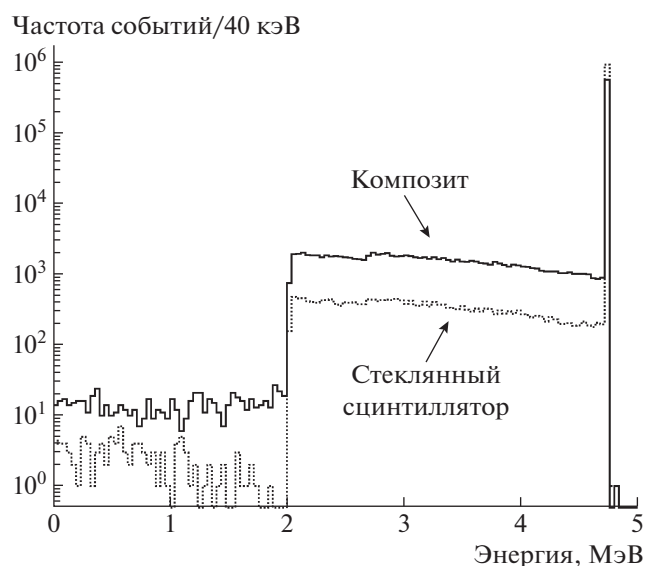


Рис. 4. Функция передачи энергии сцинтиллятору. Рисунок заимствован из работы [4].

тической области описывает распределение переданной энергии во фрагментах сцинтиллятора в случае, когда одна из частиц пересекает границу стеклянного фрагмента.

Для определения параметров зарегистрированных распределений проводилась их аппроксимация с помощью функции, представляющей собой свертку функции, описывающей передачу энергии сцинтиллятору [4] (рис. 4), и нормального распределения.

Результаты аппроксимации показаны на рис. 5. Можно видеть две составляющие спектра: нормальное распределение, соответствующее событиям полной передачи энергии сцинтиллятору, и компонента, образованная сигналами от частиц, пересекающих границы фрагментов сцинтиллятора.

В табл. 1 представлены средние значения, стандартные отклонения и разрешения для различных образцов с концентрацией стеклянных фрагментов 30%. Значения этих параметров соответствуют компоненте с нормальным распределением без учета полочки, соответствующей частичной передаче энергии.

Таблица 1. Характеристики спектров сигналов, полученных при облучении образцов тепловыми нейтронами, для образцов с концентрацией стеклянных фрагментов 30%

Образец	Среднее значение, пКл	Стандартное отклонение, пКл	Разрешение, %
Стеклоанный сцинтиллятор	635	40.4	15.0
Композит (силиконовый компаунд)	466	42.0	21.3
Композит (эпоксидная смола)	376	28.2	17.7
Композит (акриловая смола)	162	17.1	24.9

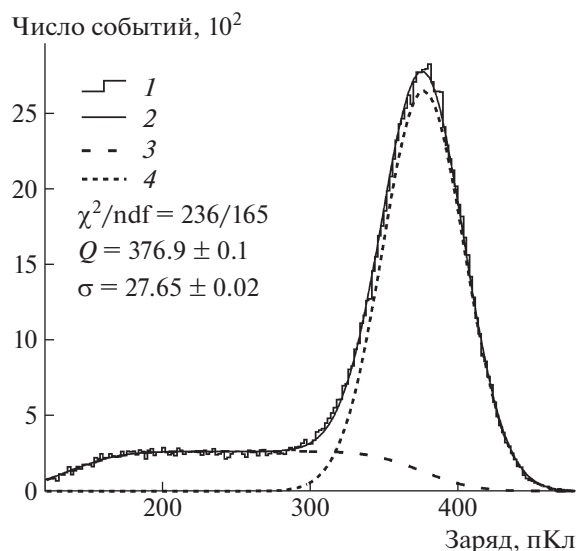


Рис. 5. Результат аппроксимации спектра тепловых нейтронов, полученного на образце с концентрацией стекла 30% и матрицей из эпоксидной смолы. 1 – данные измерений; 2 – результат аппроксимации; 3 – вклад событий от частиц, пересекающих границы фрагмента сцинтиллятора; 4 – вклад событий с полной передачей энергии сцинтиллятору.

Обращает на себя внимание аномальный характер спектра, зарегистрированного для образца с силиконовым компаундом в качестве нейтрального связующего. Образец демонстрирует высокую прозрачность, поскольку по величине среднего значения пика он близок стеклянному сцинтиллятору, но в то же время разрешение оказывается значительно хуже, чем можно было ожидать. На рис. 6 в координатах “среднее значение–разрешение” показаны точки, соответствующие отдельным образцам.

Точки на графике, соответствующие образцам из акриловой и эпоксидной смолы, а также гомогенного стекла, хорошо аппроксимируются зависимостью [7]

$$R = \frac{(\alpha + \beta Q)^{1/2}}{Q}, \quad (1)$$

при $\alpha = -545$ и $\beta = 13.7$, где α и β – свободные параметры, R – разрешение, Q – среднее значение.

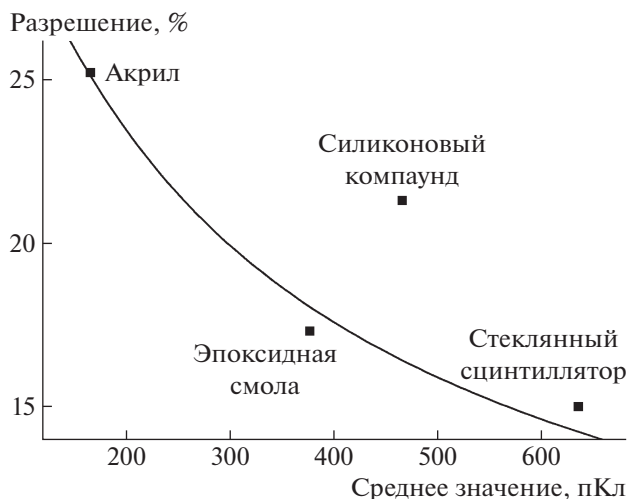


Рис. 6. Зависимость разрешения нейтронного пика от среднего значения. Отдельные точки соответствуют различным образцам. Сплошная линия — аппроксимация по формуле (1).

В то же время разрешение для образца, в котором в качестве связующего используется силиконовый компаунд, значительно превышает ожидаемое.

Такой аномальный характер спектра проявляется для всех образцов, изготовленных на основе силикона. Природа эффекта пока остается невыясненной.

При определении эффективности детектора к нейтронам порог регистрации устанавливался на уровне $Th = Q - 2\sigma$, где σ — стандартное отклонение нормального распределения, описывающего пик на спектре сигналов. Обработка данных, полученных с мониторингового счетчика, происходила аналогичным образом. Число событий, зарегистрированных выше порога регистрации в измерениях с образцами, корректировалось на показания монитора. Эффективность регистрации нейтронов рассчитывалась по отношению к образцу из монолитного стекла.

В табл. 2 приведены значения относительной эффективности регистрации нейтронов для образцов гетерогенного сцинтиллятора с различными

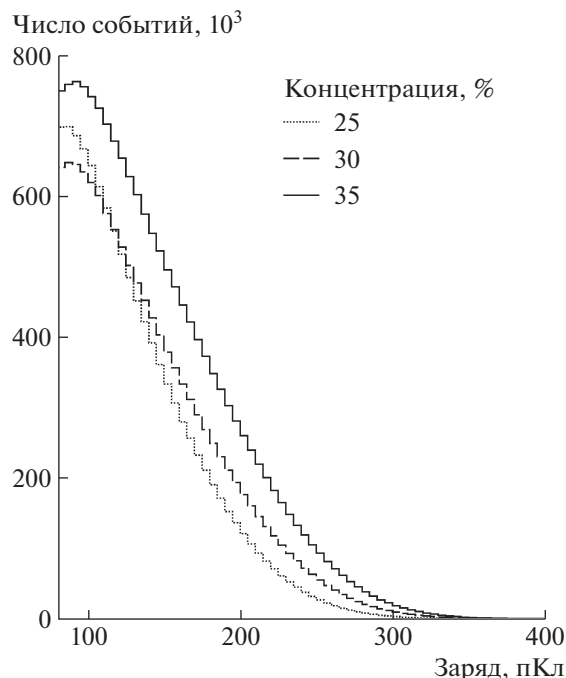


Рис. 7. Спектры событий, зарегистрированных от источника γ -квантов ^{60}Co для образцов гетерогенных сцинтилляторов с различной концентрацией фрагментов стекла. Нейтральное связующее — эпоксидная смола.

ми уровнями концентрации фрагментов стекла и видами нейтральных связующих. Статистические погрешности приведенных величин не превышают 1.5%.

Гамма-чувствительность

На рис. 7 представлены спектры событий, зарегистрированных от γ -квантов изотопа ^{60}Co . Приведены спектры для образцов, в которых концентрация фрагментов составляла 25, 30 и 35%, а в качестве нейтрального связующего использовалась эпоксидная смола.

При расчетах γ -чувствительности использовалось значение порога, выбранного для регистрации нейтронов. Гамма-чувствительность опреде-

Таблица 2. Эффективность регистрации нейтронов для различных образцов композита по отношению к стеклянному сцинтиллятору

Состав	Концентрация фрагментов стекла, %			
	25	30	35	100
Композит (силиконовый компаунд)	0.53	0.56	0.61	1.00
Композит (эпоксидная смола)	0.52	0.57	0.60	
Композит (акриловая смола)	0.46	0.56	0.63	
Гомогенное стекло				

Таблица 3. Значения γ -чувствительности для гомогенного стекла и образцов композита с различными нейтральными связующими и уровнями концентрации фрагментов стекла

Состав	Концентрация фрагментов стекла, %			
	25	30	35	100
Композит (силиконовый компаунд)	1.3 ± 0.11	2.6 ± 0.1	4.9 ± 0.1	
Композит (эпоксидная смола)	9.2 ± 0.1	13.3 ± 0.2	22.5 ± 0.2	
Композит (акриловая смола)	0.53 ± 0.05	6.0 ± 0.1	13.1 ± 0.2	
Гомогенное стекло				142.0 ± 5

лялась как число событий с выделением энергии выше порога регистрации, нормированное на 1 млн γ -квантов, пересекающих объем образца гетерогенного сцинтиллятора.

В табл. 3 приведены значения γ -чувствительности для образцов композита с различными нейтральными связующими и уровнями концентрации фрагментов стекла.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Цель проведенной работы – исследование образцов композитных сцинтилляторов, состоящих из фрагментов литиевого стекла NE 912, размещенных в нейтральной матрице. Описаны технология приготовления образцов и методика измерений эффективности к нейтронам и γ -чувствительности. Образцы изготавливались размером $\varnothing 40 \times 2$ мм с концентрацией фрагментов литиевого стекла 25, 30 и 35%. Размеры фрагментов лежали в диапазоне $0.35 \leq d \leq 0.5$ мм. В качестве нейтральной матрицы использовались эпоксидная и акриловая смолы, а также силиконовый компаунд. Испытания образцов проводились в составе сцинтилляционного детектора на пучке тепловых нейтронов и с источником γ -квантов ^{60}Co . Определялись эффективность регистрации тепловых нейтронов и γ -чувствительность в сравнении с гомогенным стеклянным сцинтиллятором. Показано, что возможно снизить на два порядка чувствительность детектора к γ -квантам за счет

незначительного (50%) снижения эффективности регистрации нейтронов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Ianakiev K.D., Hehlen M.P., Swinhoe M.T., Favalli A., Iliev M.L., Lin T.C., Bennett B.L., Barker M.T.* // Nucl. Instrum. and Methods in Physics Research A. 2015. V. 784. P. 189. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2014.10.073>
2. *Mayer M., Nattress J., Trivelpiece C., Jovanovic I.* // Nucl. Instrum. and Methods in Physics Research A. 2015. V. 784. P. 168. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2014.09.023>
3. *Rich G.C., Kazak K., Martinez H.P., Gushue T.* // Nucl. Instrum. and Methods in Physics Research A. 2015. V. 794. P. 15. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2015.05.004>
4. *Кузьмин Е.С., Зимин И.Ю.* // ПТЭ. 2021. № 5. С. 22. <https://doi.org/10.31857/S0032816221050220>
5. *Бокучава Г.Д., Круглов А.А., Папушкин И.В., Журавлев В.В., Петухова Т.Б., Мурашкевич С.М., Трунтова Л.А., Зернин Н.Д.* // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2022. № 5. С. 1. <https://doi.org/10.31857/S1028096022050077>
6. *Кузьмин Е.С., Бокучава Г.Д., Зимин И.Ю., Круглов А.А., Кучинский Н.А., Малышев В.Л.* // ПТЭ. 2021. № 2. С. 25. <https://doi.org/10.31857/S0032816221010316>
7. *Knoll G.F.* Radiation Detection and Measurement. Third Edition. John Wiley & Sons, 1999.