



ДЕРЖАВНА СЛУЖБА  
ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ  
ВЛАСНОСТІ  
УКРАЇНИ

УКРАЇНА

(19) **UA** (11) **110355** (13) **C2**  
(51) МПК  
**G01T 1/20** (2006.01)

## (12) ОПИС ДО ПАТЕНТУ НА ВИНАХІД

|                                                   |                             |                                                          |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |
|---------------------------------------------------|-----------------------------|----------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| (21) Номер заявки:                                | <b>а 2013 07673</b>         | (72) Винахідник(и):                                      | <b>Андрющенко Любов Андріївна (UA),<br/>Тарасов Володимир Олексійович (UA),<br/>Трефілова Лариса Миколаївна (UA),<br/>Власова Ірина Дмитрівна (UA),<br/>Дубцов Ігор Миколайович (UA),<br/>Лісцин Віктор Михайлович (RU),<br/>Олешко Владімір Івановіч (RU),<br/>Яковлев Віктор Юрьєвіч (RU)</b>                     |
| (22) Дата подання заявки:                         | <b>17.06.2013</b>           | (73) Власник(и):                                         | <b>ІНСТИТУТ СЦИНТИЛЯЦІЙНИХ<br/>МАТЕРІАЛІВ НАН УКРАЇНИ,<br/>пр. Леніна, 60, м. Харків, 61001 (UA),<br/>НАЦІОНАЛЬНИЙ ІССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ<br/>ТОМСКИЙ ПОЛИТЕХНИЧЕСКИЙ<br/>УНИВЕРСИТЕТ,<br/>пр. Ленина, 30, г. Томск, 634050, Россия<br/>(RU)</b>                                                                         |
| (24) Дата, з якої є чинними<br>права на винахід:  | <b>25.12.2015</b>           | (56) Перелік документів, взятих до уваги<br>експертизою: | <b>UA 77423 C2, 15.12.2006,<br/>WO 2011159702 A2, 22.12.2011,<br/>UA 79947 C2, 10.08.2007,<br/>UA 80507 C2, 25.09.2007,<br/>RU 2003134 C1, 15.11.1993,<br/>RU 2006122745 A, 10.01.2008,<br/>SU 166413, 19.11.1964,<br/>US 7501077 B1, 10.03.2009,<br/>CA 2802251 A1, 26.07.2013,<br/>EP 2461146 A2, 08.11.2010,</b> |
| (41) Публікація відомостей<br>про заяву:          | <b>25.12.2014, Бюл.№ 24</b> |                                                          |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |
| (46) Публікація відомостей<br>про видачу патенту: | <b>25.12.2015, Бюл.№ 24</b> |                                                          |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |

## (54) СЦИНТИЛЯЦІЙНИЙ ДЕТЕКТОР РЕЄСТРАЦІЇ ТЕПЛОВИХ НЕЙТРОНІВ

### (57) Реферат:

Винахід належить до сцинтиляційної техніки, а саме до сцинтиляційних матеріалів, і детекторів на їхній основі, які застосовуються для реєстрації теплових нейтронів. Сцинтилятор містить суміш дрібнокристалічних порошків ZnS(Ag) і  ${}^6\text{LiF}$ , збагаченого до 90 % ізотопом  ${}^6\text{Li}$ , що дисперговані у полімерній матриці. При цьому розмір часток в ZnS(Ag) становить 7-9 мкм, а розмір часток  ${}^6\text{Li}$  становить 0,6-0,8 мкм. Технічним результатом винаходу є підвищення ефективності реєстрації теплових нейтронів на фоні гамма-випромінювання.

UA 110355 C2



Пропонований винахід належить до сцинтиляційної техніки, а саме до сцинтиляційних матеріалів, і детекторів на їхній основі, які застосовуються для реєстрації теплових нейтронів.

Відомий сцинтилятор для реєстрації теплових нейтронів [пат. України 77423. G01T1/20] на основі монокристала літію йодистого, активованого європієм  $\text{LiI:Eu}$ , що має високу ефективність реєстрації теплових нейтронів.

Однак, цей матеріал чутливий до  $\gamma$ -випромінювання, що обмежує його застосування для випадків наявності високого фону  $\gamma$ -випромінювання. Крім того, висока гігроскопічність, складність технологічного виробництва вирощування й обмеженість розмірів за площею монокристала  $\text{LiI:Eu}$ , обумовлюють високу вартість детекторів на його основі.

Відомий сцинтилятор для реєстрації теплових нейтронів (Стенькин Ю.В., Джаппуев Д.Д., Вальдес-Галисия Х.В. Нейтроны в широких атмосферных ливнях. Ядерная физика. 2007. Т. 70. № 6. С. 1123-1135] на основі мікропорошку  $\text{ZnS(Ag)}$  у суміші з борвмісною речовиною, збагаченою ізотопом  $^{10}\text{B}$ .

Використання у складі сцинтилятора порошку  $\text{ZnS(Ag)}$ , що має високий світловий вихід і рекордну ефективність для реєстрації важких часток ( $\alpha/e$  - співвідношення), дозволяє використовувати його у вигляді тонкого шару і в такий спосіб знизити чутливість до  $\gamma$ -квантів.

Збагачена ізотопом  $^{10}\text{B}$  борвмісна речовина, що входить до складу суміші, обумовлює невисоке енерговиділення при взаємодії з тепловими нейтронами. При використанні борвмісних сцинтиляторів реєструються продукти реакції  $^{10}\text{B} (n, \alpha) ^7\text{Li}$ . Утворені в результаті реакції захоплення ядром  $^{10}\text{B}$  теплових нейтронів  $\alpha$ -частки з енергією 2,3-2,8 МеВ мають дуже малий пробіг у щільній речовині й спричиняють сцинтиляції, вихід яких пропорційний їхній енергії (якщо утворюється ядро  $^7\text{Li}$  у збудженому стані, то частину енергії несе  $\gamma$ -квант). Внаслідок невисокої енергії вторинних часток знижується кількість світла, що збирається, і це призводить до зменшення світлового виходу й ефективності реєстрації нейтронів.

Відомий сцинтилятор для реєстрації теплових нейтронів [Литвин В.С., Беляев А.Д., Игнатов С.М. и др. Применение сцинтилляторов на основе  $\text{ZnS(Ag)}^6\text{LiF}$  и  $\text{LiI(Eu)}$  в сочетании с кремниевыми фотоумножителями в детекторах тепловых нейтронов с высоким координатным разрешением. Известия РАН. 2009. Т.71. № 2. С. 230-232], що містить суміш дрібнокристалічних (менш, ніж 60 мкм) порошоків  $\text{ZnS(Ag)}$  і  $^6\text{LiF}$ , збагаченого до 90 % ізотопом  $^6\text{Li}$ , які дисперговані у полімерну матрицю.

Використання у сцинтиляторах  $^6\text{Li}$  замість  $^{10}\text{B}$  збільшує енерговиділення від реакції взаємодії з тепловими нейтронами. Тому для вирішення таких завдань, як, наприклад, реєстрація космічного випромінювання, літійвмісні сцинтилятори мають незаперечну перевагу перед борвмісними. Хоча перетин захоплення нейтронів ядром  $^6\text{Li}$  менший, ніж ядром  $^{10}\text{B}$ , реакція з участю  $^6\text{Li}$  не супроводжується випромінюванням  $\gamma$ -квантів.

Недоліком даного технічного рішення є великі розміри зерен сцинтилюючого порошку  $\text{ZnS(Ag)}$  і порошку  $^6\text{LiF}$ , що виконує функцію конвертора. Пробіг  $\alpha$ -частки й тритона в  $^6\text{LiF}$  становить приблизно 7 мкм. Оскільки розмір зерна  $\text{LiF}$  значно більший, то  $\alpha$ -частки й тритони можуть втрачати значну частину своєї енергії до того, як потраплять у сцинтилятор  $\text{ZnS(Ag)}$ , і це призводить до зменшення ефективності реєстрації нейтронів. Зазначений розмір сцинтилюючих часток також перевершує довжину пробігу  $\alpha$ -часток.

Оскільки прозорість часток  $\text{ZnS(Ag)}$  для власного випромінювання низька, збільшення їхнього розміру до 60 мкм приводить до втрат світла, внаслідок чого спостерігається зниження світлового виходу. При цьому через сильне самопоглинання світла розкид амплітуди сигналу настільки великий, що пік теплових нейтронів є слабо вираженим.

Відомий сцинтилятор для реєстрації теплових нейтронів [WO 2011159702 A2 G01 T1/20, 2012], що містить суміш дрібнокристалічних порошоків  $\text{ZnS(Ag)}$  із середнім розміром часток 16 мкм і більше (20, 80, 100, 120, 200 мкм) і  $^6\text{LiF}$ , збагаченого до 90%  $^6\text{Li}$  із середнім розміром часток 16 мкм і більше (20, 80, 100, 120, 200 мкм), що дисперговані у полімерній матриці.

У порівнянні з попереднім аналогом у даному сцинтиляторі розмір часток конвертора менший, завдяки цьому зменшується ймовірність втрат енергії  $\alpha$ -часток і тритонів до того, як вони потраплять у сцинтилятор  $\text{ZnS(Ag)}$ . Однак розмір часток конвертора 3 мкм і менше (1,5 і 1,0 мкм) не виключає ймовірність таких втрат, а розмір часток конвертора 0,5 мкм приводить до зниження ефективності взаємодії з нейтронами. Зазначений розмір сцинтилюючих часток 16 мкм і більше, як і в попередньому аналогу, також перевищує довжину пробігу  $\alpha$ -часток, що приводить до зниження світлового виходу.

Відомий сцинтилятор для реєстрації теплових нейтронів [Переседов В.Ф. Сцинтилляционный стриповый детектор для регистрации тепловых нейтронов. Приборы и техника эксперимента. 2006. № 5. С. 39-47], що містить суміш дрібнокристалічних порошоків  $\text{ZnS(Ag)}$  із розміром часток 4,5 мкм і  $^6\text{LiF}$ , збагаченого  $^6\text{Li}$ , із розміром часток 2 мкм, що

дисперговані у полімерній матриці. Недоліком цього технічного рішення є те, що в результаті порівняно великого розміру часток конвертора (2 мкм),  $\alpha$ -частки можуть втрачати частину своєї енергії ще до того, як потраплять у сцинтилятор ZnS(Ag). При цьому малий розмір сцинтилюючих часток (4,5 мкм) сприяє зменшенню втрат енергії, яким пропорційний світловий вихід, через що погіршуються параметри цього сцинтилятора: світловий вихід і ефективність реєстрації нейтронів.

Відомі аналоги забезпечують можливість виготовлення відносно дешевих сцинтиляторів великої площі, що є нечутливими до  $\gamma$ -квантів. Останній з аналогів вибрано прототипом.

В основу пропонованого винаходу поставлена задача створення відносно дешевого сцинтилятора великої площі, що має високу ефективність реєстрації теплових нейтронів на фоні гамма-випромінювання.

Рішення поставленої задачі досягається тим, що в сцинтиляторі для реєстрації теплових нейтронів, що містить суміш сцинтилюючого порошку ZnS(Ag) і порошку конвертора  ${}^6\text{LiF}$ , збагаченого до 90 % ізотопом  ${}^6\text{Li}$ , що дисперговані у полімерній матриці, відповідно до винаходу, розмір часток порошку ZnS(Ag) становить 7-9 мкм, а розмір часток порошку  ${}^6\text{LiF}$  становить 0,6-0,8 мкм.

Як показали експерименти, розмір часток конвертора в діапазоні 0,6-0,8 мкм, очевидно, є достатнім для забезпечення високого поглинання нейтронів і високого виходу вторинного випромінювання.

Розмір 7-9 мкм сцинтилюючих часток ZnS(Ag) забезпечує збільшення втрат енергії і мінімальні втрати світла в сцинтиляторі, що сприяє збільшенню інтенсивності сцинтиляцій і підвищенню ефективності реєстрації нейтронів.

Зменшення розміру часток ZnS(Ag) менш ніж 7 мкм (приклад 1) приводить до зменшення втрат енергії у сцинтиляторі, а отже, і зниження світлового виходу й ефективності реєстрації нейтронів. Зменшення розміру часток конвертора менш ніж 0,6 мкм (приклад 2) зменшує ймовірність поглинання нейтронів у конверторі.

Збільшення розміру зерна ZnS(Ag) більш ніж 9 мкм (приклад 8) приводить до зниження світлового виходу сцинтилятора через додаткові втрати світла, що обумовлені зростанням невідповідності довжини пробігу  $\alpha$ -часток і тритонів до розмірів часток ZnS(Ag). Збільшення розміру зерна  ${}^6\text{LiF}$  більше ніж 0,8 мкм (приклад 9) приводить до зниження виходу вторинного випромінювання ( $\alpha$ -часток і тритонів), а отже, і до зниження ефективності реєстрації нейтронів.

У таблиці наведено порівняльні дані ефективності реєстрації теплових нейтронів сцинтиляторів, що виготовлені у відповідності із запропонованим технічним рішенням і прототипом.

Сцинтилятор, що пропонується, одержують відомим способом змішування порошкоподібних компонентів з розчином термопластичного полімеру в органічному розчиннику, що наведено нижче.

У скляний бюкс завантажують 2,0 г 20 % розчину поліметилметакрилату ПММА у дихлоретані, додають 6,0 г порошку ZnS(Ag) з розміром часток 8 мкм. Суміш ретельно перемішують до однорідної маси на магнітній мішалці. В отриману суміш додають 1,5 г порошку  ${}^6\text{LiF}$ , збагаченого ізотопом  ${}^6\text{Li}$  до 90 %, з розміром часток 0,7 мкм і знову перемішують на магнітній мішалці до одержання однорідної пастоподібної маси. Потім наносять отриману суміш на скляну підкладку і за допомогою ракельного пристрою формують шар сцинтилятора товщиною 200 мкм і діаметром 30 мм шляхом повільного випарування розчинника.

Аналогічним способом виготовляли сцинтилятор, що був вибраний як прототип. При цьому використали порошок ZnS(Ag) із розміром часток 4,5 мкм, а порошок  ${}^6\text{LiF}$ , збагачений ізотопом  ${}^6\text{Li}$  до 90 % з розміром часток 2,0 мкм, які вводилися в аналогічних пропорціях у 20 % розчин ПММА в дихлоретані.

Ефективність реєстрації теплових нейтронів сцинтилятором, виготовленим відповідно до запропонованого винаходу, так само, як і прототипом, визначали за допомогою  ${}^{239}\text{Pu-Be}$  джерела з кадмієвою пластинкою і оцінювали за результатами вимірювань в однакових умовах відносно еталону - детектора  $\text{LiI(Eu)}$ .

Вплив розміру сцинтилюючих часток і часток конвертора на характеристики виготовлених з них сцинтиляторів оцінювали шляхом реєстрації  $\alpha$ -часток з енергією 5,5 МэВ від джерела  ${}^{241}\text{Am}$  і нейтронів від джерела  ${}^{239}\text{Pu-Be}$ .

Ефективність реєстрації теплових нейтронів сцинтилятора, виготовленого у відповідності із запропонованим технічним рішенням становить 29,5 %.

Ефективність реєстрації теплових нейтронів сцинтилятора, виготовленого у відповідності із прототипом, становить 20,0 %.

Ці й інші приклади сцинтиляторів представлено в Таблиці.

Як видно в Таблиці, вихід за граничні значення розмірів часток, що заявляються, (прикладі 1, 2, 8, 9) приводить до зниження світлового виходу й ефективності реєстрації теплових нейтронів.

- 5 Таким чином, винахід, що заявляється, забезпечує підвищення ефективності реєстрації нейтронів до 29,5 %, що становить більш ніж на 30 % у порівнянні із прототипом, і поліпшення світлового виходу більш ніж на 25 %.

Таблиця

| № прикладу<br>Пропоноване<br>рішення | Розмір часток, мкм |                  | Світловий вихід,<br>номер каналу 5,5 MeV<br>( <sup>241</sup> Am) | Ефективність реєстрації<br>теплових нейтронів<br>( <sup>239</sup> Pu-Be) |
|--------------------------------------|--------------------|------------------|------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------|
|                                      | ZnS(Ag)            | <sup>6</sup> LiF |                                                                  |                                                                          |
| 1                                    | 6,0                | 0,8              | 450                                                              | 20,6                                                                     |
| 2                                    | 8,0                | 0,5              | 490                                                              | 20,3                                                                     |
| 3                                    | 7,0                | 0,6              | 610                                                              | 28,8                                                                     |
| 4                                    | 8,0                | 0,7              | 630                                                              | 29,5                                                                     |
| 5                                    | 9,0                | 0,7              | 605                                                              | 29,1                                                                     |
| 6                                    | 7,0                | 0,8              | 625                                                              | 28,9                                                                     |
| 7                                    | 9,0                | 0,8              | 610                                                              | 28,6                                                                     |
| 8                                    | 10,0               | 0,6              | 460                                                              | 22,8                                                                     |
| 9                                    | 7,0                | 0,9              | 440                                                              | 23,5                                                                     |
| Прототип                             | 4,5                | 2,0              | 430                                                              | 20,0                                                                     |

## ФОРМУЛА ВИНАХОДУ

10

Сцинтилятор для реєстрації теплових нейтронів, що містить суміш сцинтилюючого порошку ZnS(Ag) і порошку конвертора <sup>6</sup>LiF, збагаченого до 90 % ізотопом <sup>6</sup>Li, що дисперговані у полімерній матриці, який **відрізняється** тим, що розмір часток порошку ZnS(Ag) становить 7-9 мкм, а розмір часток порошку <sup>6</sup>LiF становить 0,6-0,8 мкм.

15

Комп'ютерна верстка А. Крулевський

Державна служба інтелектуальної власності України, вул. Василя Липківського, 45, м. Київ, МСП, 03680, Україна

ДП "Український інститут інтелектуальної власності", вул. Глазунова, 1, м. Київ – 42, 01601