

A nátrium-jodid szcintillációs kristály gyártástechnológiájának fejlesztése, korszerűsítése

Petrányi János*, Albert-Tóth Ildikó, Sarkadi András, Körmendy Gábor, Horváth József
Gamma Műszaki Zrt., 1097 Bp Illatos út 9
*petranyi@gammatech.hu

A kézirat beérkezett: 2010.04.15

Közlésre elfogadva: 2010.07.15

Abstract – The reason of the split off between the thallium activated sodium iodide [NaI(Tl)] scintillation crystal and the glass can be trace back to more causes. It has been created a new examination method, which made the split off reproducible, and a technology, which eliminate the split off. Modernization in crystal production made it possible the production of crystals in a big quantity, with high-quality and with high level of availability.

Keywords- Scintillation detector, NaI(Tl) crystal, production technology

Kivonat – Talliummal aktivált nátrium-jodid [NaI(Tl)] szcintillátor kristály, és a lezáró üveg között kialakuló elválás több okra vezethető vissza. Kidolgozásra került egy vizsgálati módszer, amelynek segítségével a elválás reprodukálható, és egy technológia, amellyel megszüntethető. A kristály gyártásba bevezetett korszerűsítések lehetővé tették nagy mennyiségben jó minőségű egykristály biztonságos előállíthatóságát, magas rendelkezésre állás mellett.

Kulcsszavak – Szcintillátor kristály, NaI(Tl) kristály, gyártás technológia

BEVEZETÉS

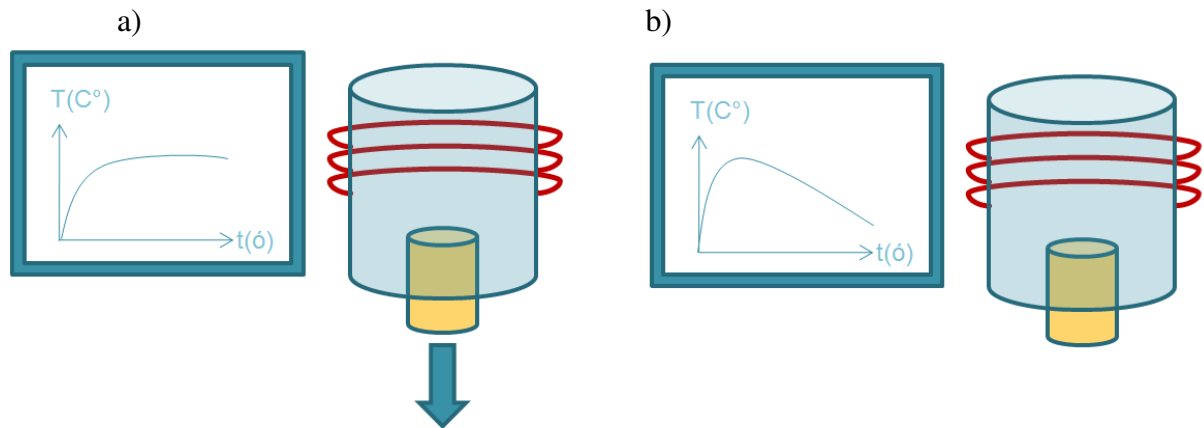
A szcintillációs elven működő ionizáló sugárzás mérő műszerek előnye a GM-csöves műszerekkel szemben, hogy a részecske számon túl az adott sugárzás kvantum energiája is mérhető. A félvezető detektorokon egyszerű alkalmazhatóságukkal, és alacsony árukkal tesznek túl. Ezen műszerekben használt detektorok egyike a talliummal aktivált nátrium-jodid szcintillációs kristályok, amelyek elsősorban γ -kvantumok észlelésére alkalmasak.

A szcintillációs kristályok történelme az 20. század elejére nyúlik vissza. 1903-ban felfedezték, hogy cinkszulfid kristályok alfa-részecskék hatására fényt sugároznak ki. Kezdetben mikroszkóppal számlálták a felvillanásokat. Később 1945-ben fotoelektron-sokszorozóval érzékelhető elektromos jelet állítottak elő, mellyel a fotonenergia mérhető. 1948-ban növesztették az első talliummal aktivált nátrium-jodid [NaI(Tl)] kristályt [1], mellyel a foton-energia mérhető.

Magyarországon először 1952-53-ban növesztettek szcintillációs kristályt a Budapesti Orvostudományi Egyetem Orvosi Fizikai Intézetében Nagy János, Tarján Imre, Turchányi György és Voszka Rudolf fejlesztő munkájának köszönhetően. A Gammában először 1960-ban kezdtek foglalkozni NaI(Tl) kristálygyártással. Kísérletek sorozatával sikerült egy gyártási technológiát létrehozni, amely alapját képezi a mai gyártó sornak is. A kristályok növesztése kisebb megszakításokkal folyamatosnak mondható. Változást a technológiában az 1994 év hozott, amikor a Gamma teljes gyártósorát átköltöztették, az épület egyik szárnyából a másikba, és számítógépes vezérlést kapott a rendszer. A technika fejlődésének, az elvárások növekedésének, egy meghibásodásnak, és egy nagyobb költözésnek köszönhetően fejlesztések sora indult be, amelynek eredményeként több újítás is megszületett.

A NÁTRIUM-JODID KRISTÁLYOK NÖVESZTÉSE

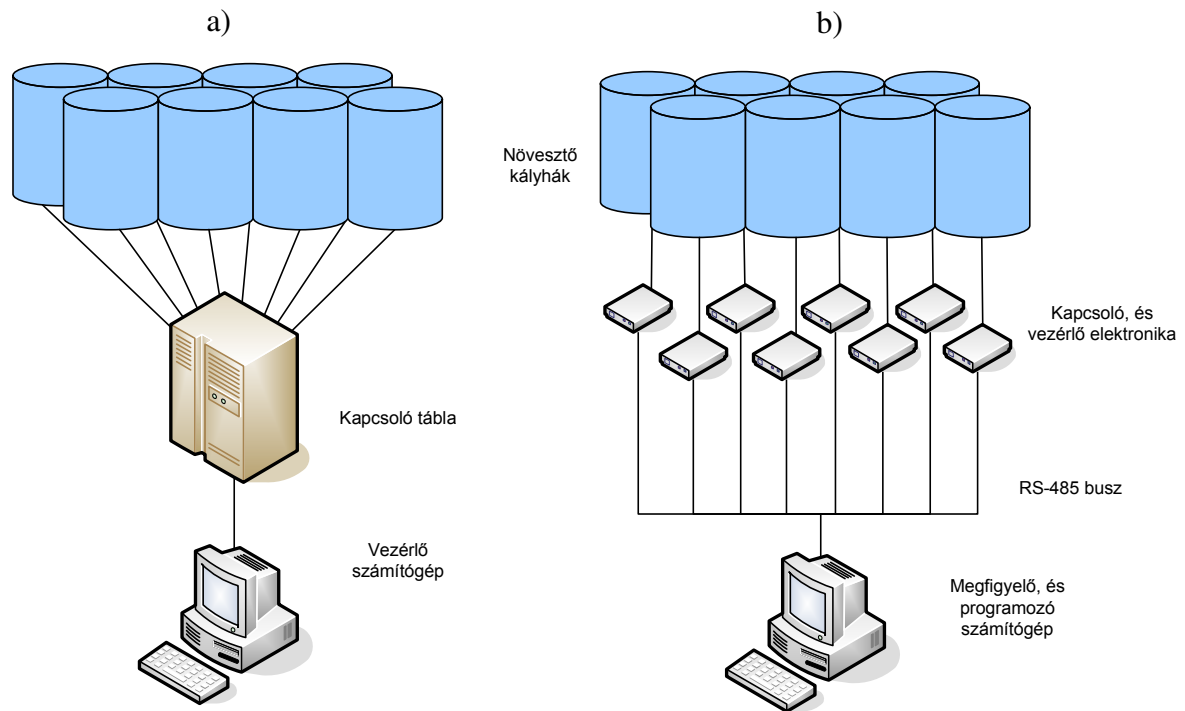
A NaI(Tl) kristály gyártásához egykristályokat kell növeszteni, amelyben a keletkező fény optikailag homogén közegben tud terjedni. A polikristályos NaI-ot, és a vele megfelelő arányban összekevert TlI-ot egy kályhában a NaI olvadáspontja (651°C) fölé hevítik. Egyenletes lehűlés hatására egykristály növekedés indul meg, amely több nap alatt éri el a kívánt, akár 127 mm magasságot, illetve 127 mm átmérőt. Az egyenletes kihűlést több módon lehet biztosítani, vagy állandó hőmérsékleten tartják a kályha belsejét, miközben az olvadékat lassan kihúzzák, vagy a kályhát lassan hagyják lehűlni, miközben az olvadék egy helyben áll. A növesztés két módját az 1. ábra szemlélteti.



1. ábra. NaI(Tl) kristály növesztés a) kihúzásos, b) kihűtéses technológia

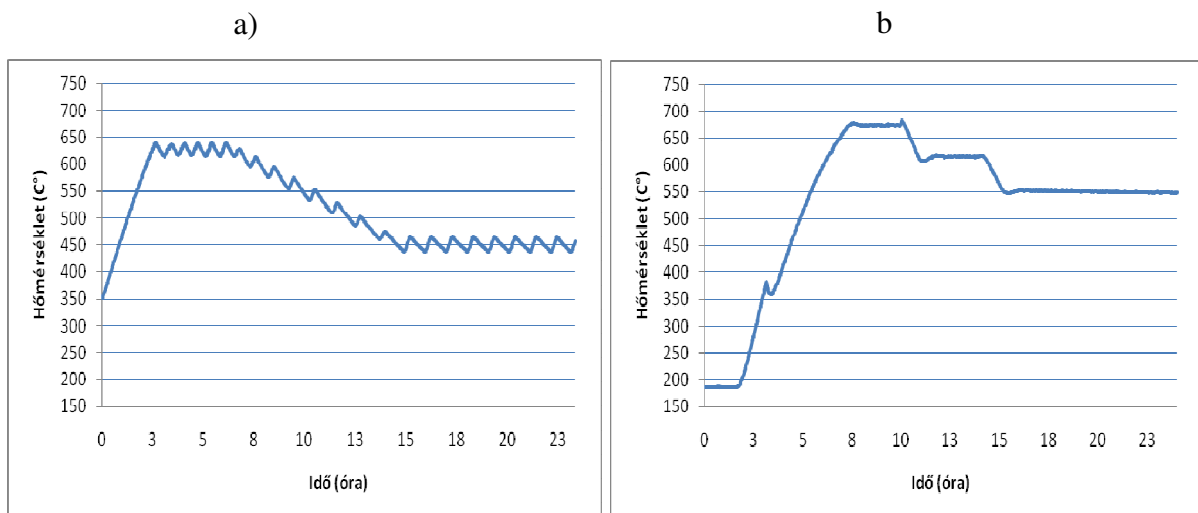
Mindkét növesztési eljárás szükségessé teszi vezérlő elektronika alkalmazását, mivel egykristály csak megfelelő hőmérsékleti viszonyok mellett növekszik. A vezérlő elektronika a kályhában elhelyezett hőelem segítségével méri a hőmérsékletet, és ez alapján döntést hoz, hogy a kályhába épített fűtőszálakra adott energiával tovább fűtse a kályhát, vagy engedje azt kihűlni.

A Gammában kezdetben csak a kihúzásos technikát alkalmazták, mert az állandó hőmérsékleten tartás, és az egyenletes kihúzás nem igényelt bonyolult vezérlést. Az 1994-ben kiépítésre került vezérlő rendszer már mindkét növesztési technológiát képes volt kiszolgálni, mivel az Intel 80386 alapú számítógépes vezérlés le tudta kezelni több kályhára párhuzamosan a kihűlési görbéket. A központi vezérlés hátránya, hogy a vezérlő számítógép meghibásodása esetén az összes növesztő kályha leállhat. 2008-ban a vezérlő rendszer meghibásodott, és az 1994-ben még korszerű, de 2008-ra már elavult számítógépes rendszer cseréjére, javítására nem volt lehetőség. 2008-ban a gyártósor költöztetése is szükségessé vált, ezért egy új számítógép-független, osztott intelligenciával rendelkező vezérlés kialakítása kezdődött meg. Jelenleg az egyes vezérlő egységekbe betöltött, az adott kályhához tartozó karakterisztika szerint történik a növesztés, egymástól teljesen függetlenül. Egy vezérlő egység meghibásodása nem veszélyezteti a teljes gyártósor működését, és a számítógép csak megfigyelő, és programozó szerepet tölt be a rendszerben (2. ábra)



2. ábra. NaI(Tl) kristály növesztés vezérlése a) központi, b) osztott intelligenciával

Az egyes vezérlő, és kapcsoló modulokba PID típusú szabályozó algoritmus került, amely pontosabb görbe követést tett lehetővé, a korábban használt hiszterézises szabályozásokhoz képest. A korábbi, és a mostani szabályozási idő diagramok a 3. ábrán láthatóak.



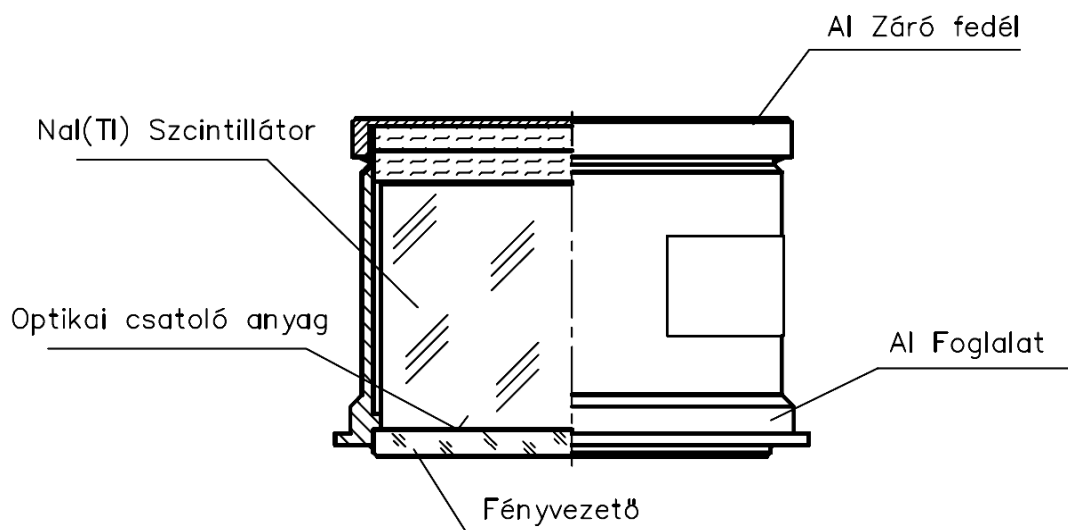
3. ábra NaI(Tl) kristálynövesztés mért hőmérséklet, idő diagramja a) hiszterézis, b) PID vezérlés esetén

A hiszterézis elven működtetett vezérlés során a kályha fűtése bekapcsol, amennyiben a mért hőmérséklet a referencia szinthez képesti hiszterézis tartomány alsó szintje alá került, és kikapcsol, amennyiben a tartomány felső határát lépte át.

A PID szabályozás csökkenti a hirtelen változás okozta túlmelegedést, csökkenti a külső zajokból eredő hibát, és képes a referencia görbe követésére kismértékű túllengés mellett. Így kevesebb a diszlokáció, egyenletesebb a TII eloszlása a kristályban, ennek eredményeképpen kevesebb a selejt, jobb az energiafelbontás.

A NÁTRIUM-JODID KRISTÁLYOK TOKOZÁSA

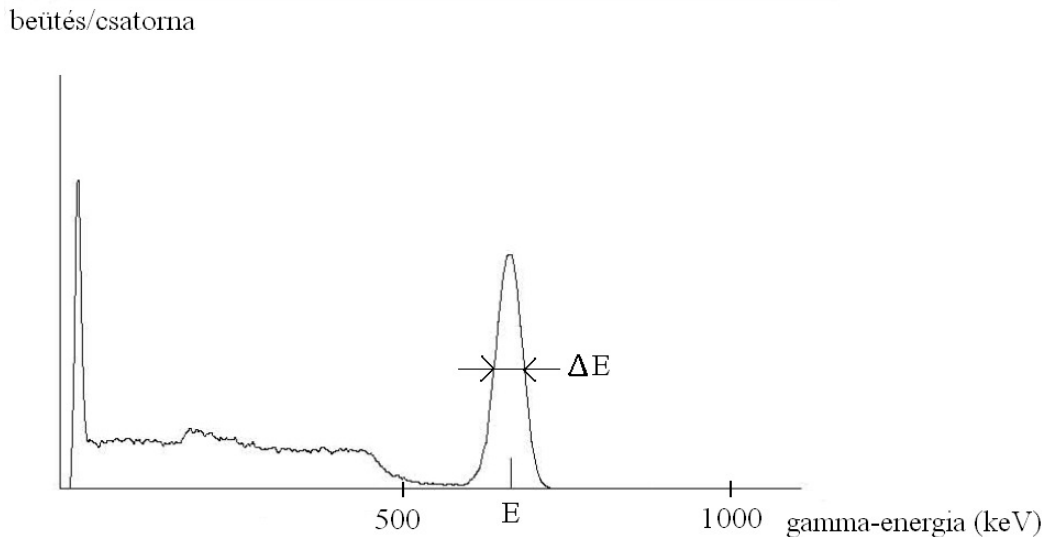
A NaI(Tl) kristály nagyon higroszkópos, a kristály felülete szabad levegőn, szobahőmérsékleten megsárgul, fény hatására elemi jód válik ki belőle, a levegő nedvességtartalma miatt elfolyósodik, ezért a NaI(Tl) kristályt hermetikusan lezárva használják. Alkalmazástól függően különböző méretben, formában, és összetételben gyártják a tokozott NaI(Tl) kristályokat, egy gyakran használt összeállítás a 4. ábrán látható. A kristály alumínium foglalatban foglal helyet, a kristályból kilépő fotonok egy optikai üveg ablakon keresztül lépnek ki, amely fotonokat általában foto-elektronsokszorozóval szokták detektálni.



4. ábra. NaI(Tl) kristály foglalatban

A NaI(Tl) szcintillációs kristálynak a légzáró alumíniumfoglalatba történő beépítését montírozásnak hívják. A montírozás a NaI higroszkópos tulajdonsága miatt szilikagéllal kifűtött szárazkamrában történik. A montírozás során a kristályt meg kell tisztítani a felületi polikristály rétegtől, az alumíniumházzal érintkező részét reflektáló anyaggal (pl.: magnézium oxiddal) kell bevonni, valamint a szabad kristályfelületet optikai csatolóanyag segítségével az alumínium foglalatba ragasztott fényvezetőhöz kell ütköztetni, végül a záró fedelet rá kell ragasztani.

A lezárt kész detektorokkal referencia sugárforrás segítségével amplitúdó spektrumot vesznek fel. A spektrumban a sugárforrás csúcs relatív fél-érték ($\Delta E/E \cdot 100$ [%]) szélessége határozza meg a kristály minőségét. Minél keskenyebb a csúcs, annál jobb a kristály (5. ábra). A Gamma 50 mm átmérőjű, 50 mm magasságú szcintillációs detektorainak a tipikus relatív fél-érték szélessége ^{137}Cs -al mérve 6.8 – 9% intervallumba esnek.

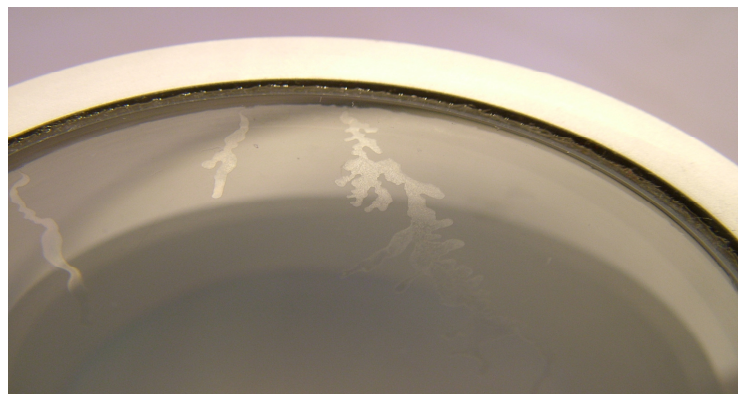


5. ábra. ^{137}Cs (47.5 kBq) amplitúdó spektruma

KRISTÁLY ELVÁLÁS

Amióta NaI(Tl) kristályt gyártanak, ismert az elválás (6. ábra) jelensége. Az elválás az üveglap és a kristály között, szemmel jól látható, eltérő helyen, és változó alakban megjelenő lég-/gőz buborék. Az elválás az elhelyezkedésétől, és méretétől függően rontja a detektor hatásfokát, és felbontó képességét. Az elválás a gyártás után azonnal megjelenhet, de előfordulhat, hogy csak évek után jelentkezik. Kialakulását okozhatja, hogy

- a kristály, az optikai csatoló anyag és a foglalat eltérő hőtágulási együtthatóval rendelkeznek, ezért a hőmérsékletváltozásokra másképp reagálnak,
- az illesztés a foglalat, és a kristály között nem tökéletes, rázkódás hatására a kristály elmozdulhat, elválást okozva,
- az ütköztető optikai csatoló anyagban levegő buborékok találhatóak, amelyek idővel egy nagyobb buborékká állhatnak össze.



6. ábra. A NaI(Tl) kristály elválása

Megfigyeléseink alapján az elválásoknak több típusa is van. Az elválás keletkezése alapján tapasztaltunk közepesen kialakuló buborék formájú, és a kristály szélé felől meginduló erezet formájú elválást. Megfigyelhető volt, hogy az elválások egy része az idő múlásával eltűnik, ez a jelenség elsősorban közvetlenül a gyártás után fordult elő. Az évek óta elvált mintáknál az elválás az idővel terjedt, a detektor bepókhálósodott.

Az elválás jelenségével sokáig nem foglalkoztak, részben, azért mert labor körülmények között csak évek alatt jelentkezett, részben azért mert a hatását rendszeres kalibrálással, vagy automatikus háttér kompenzációs algoritmussal csökkenteni lehetett. A jelenséget a műszer saját hibájának tekintették, és kompenzálták. Azonban az utóbbi időben az alkalmazási területek kiszélesedtek, és kültéren, mozgó járművekben is igény lett a szcintillációs műszerek használata. Ezeknél az alkalmazásoknál az elválások hamarabb, és nagyobb kiterjedéssel jelentkeztek.

A FEJLESZTÉS LÉPÉSEI

Első lépésben kifejlesztettük az eljárást, amely segítségével az elválás reprodukálhatóvá vált. A tokozott NaI(Tl) kristály mechanikai rázásnak lett kitéve a következő paraméterekkel, frekvencia: 50-60 Hz, amplitúdó: 1-1,2 mm, gyorsulás: 10-12 g ($98-118 \text{ m/s}^2$), majd a külső hőmérséklet változtatása következett szobahőmérsékletről előbb 0 majd 55 °C-ra, 5 °C/óra hőmérséklet változási sebesség mellett. A vizsgálati körülmények megválasztásánál figyelembe kellett venni, hogy a rázás, és a klímázás túlzott mértéke maradandó károsodást, repedést okozhat a kristályban. Az eljárás elvégzése után a minták szemrevételezésre, és relatív fél-érték meghatározásra kerültek. Azok a kristályok feleltek meg a tesztnek, amelyeken látható elválás nem volt és a fél-érték szélesség 10 % alatt maradt.

Az elválások megszüntetésére több irányba is elindult a fejlesztés.

1. Beszerzésre kerültek más gyártók kristályai, valamint az általuk használt optikai csatoló anyag. A bevizsgált minták sorra elváltak.
2. A foglalatot átterveztük úgy, hogy az optikai csatoló anyagnak bemélyedést hagytunk, amelyben az anyagfölség elterülhet. Az üveg beragasztásakor használt ragasztó kitöltötte a bemélyedést, ezért a kísérlet eredménytelen volt.
3. A vákuum impregnálásnál szokásosan alkalmazott eljárással próbáltuk a buborékok jelenlétét megszüntetni. Az apró buborékok a vákuum és az ultrahangos kezelés ellenére az optikai csatoló anyagban maradtak, az elválás továbbra is jelentkezett.
4. Új anyagokat próbáltunk ki optikai csatoló anyagként. Végül ezek a kísérleteink jártak sikerrel.

OPTIKAI CSATOLÓ ANYAG

A vizsgálatok alapján összefüggés volt felfedezhető az optikai csatoló anyag tixotróp (bizonyos mechanikai igénybevétel során az anyag viszkozitása csökken) tulajdonsága és az elválások kialakulása között. A tixotróp tulajdonsággal rendelkező csatoló anyagok minden esetben elváltak.

Megszületett egy specifikáció a csatoló anyaggal szemben:

- nem tixotróp,
- hőálló,
- 0-50°C hőmérsékleti tartományban átlátszó,
- törésmutatója közel azonos az üveg, illetve a kristály törésmutatójával.

Hosszas kísérletezés során sikerült találni egy olyan optikai csatolóanyagot, amely megfelel a fent említett követelményeknek, ezáltal buborékmentes határfelület biztosítható a kristály és üveg között.

Az új optikai csatolóanyag, amely megfelel a fenti specifikációnak, üzemi titkot képez, számos előnyös tulajdonsággal rendelkezik, pl.: széles hőmérsékleti intervallumban (-55°C-200°C) megtartja rugalmasságát, a hőállóságot különböző stabilizátorokkal akár 310°C-ig is

lehet növelni; kémiai szempontból teljesen inaktív, kitűnő mechanikai tulajdonságokkal rendelkezik.

A fejlesztés eredményeképpen szcintillációs kristályok új nemzedéke született meg, amelyek hosszabb élettartammal rendelkeznek, rázásállóbbak, és szélesebb működési hőmérséklettartományban használhatók. Az első példányok már alkalmazásra is kerültek a BNS-94FM járműre szerelhető, a háttérsugárzást minimálisan túllépő 25 keV-1.5MeV tartományba eső gamma-sugárforrások kimutatására szolgáló műszerben. A készülék ólom kollimátorban 75 mm átmérőjű, 50 mm magasságú szcintillációs kristályt tartalmaz (7. ábra). A detektor többek között egy katonai naszádon, egy felderítő járművön, és önállóan állványra szerelve is teljesít szolgálatot.



7. ábra. BNS-94FM járműfedélzeti rendszer

IRODALOM

- [1] Dr. Keszthelyi Lajos Szcintillációs számlálók Műszaki Könyvkiadó, Budapest, 1964
- [2] Wikipedia http://en.wikipedia.org/wiki/PID_controller

A pályamű a SOMOS Alapítvány támogatásával készült