

ОСОБЕННОСТИ РЕГИСТРАЦИИ УСКОРЕННЫХ ТЯЖЕЛЫХ ИОНОВ ДЕТЕКТОРАМИ ИЗ ФОСФАТНОГО СТЕКЛА ПРИ РАЗЛИЧНЫХ ТЕМПЕРАТУРАХ

*Н. Буртебаев^{a,b}, К. Аргынова^{a,c}, М. М. Чернявский^d, А. А. Гиппиус^d,
Н. С. Коновалова^d, Т. Н. Квочкина^a, М. Насурлла^{a,b}, Н. М. Окатьева^{a,d},
А. Н. Пан^a, Н. Г. Полухина^{a,d}, Ж. Т. Садыков^{a,c,e*}, Т. В. Щедрина^d,
Н. И. Старков^d, Е. Н. Старкова^{a,d}, И. И. Засавицкий^d*

^a *Институт ядерной физики
050032, Алматы, Казахстан*

^b *Казахский национальный университет им. Аль-Фараби
050040, Алматы, Казахстан*

^c *ТОО Физико-технический институт, университет им. К. И. Сатбаева
050032, Алматы, Казахстан*

^d *Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук
119991, Москва, Россия*

^e *Национальный исследовательский технологический университет «МИСиС»
119049, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 20 ноября 2021 г.,
после переработки 20 ноября 2021 г.
Принята к публикации 25 ноября 2021 г.

Представлены результаты исследования характеристик треков тяжелых ионов в фосфатных стеклах при облучении в разных температурных режимах. Проведены калибровочные эксперименты для получения зависимости параметров протравленных треков от температуры и продолжительности нагрева образца, а также от момента его нагревания по отношению к облучению и травлению. Чтобы эффективно идентифицировать заряды ионов, при обработке облученных стекол строго соблюдалась стабильность воспроизведения оптимальных условий химического травления (состав травящего химического раствора, концентрация, время травления). Результаты проведенного исследования позволяют сделать заключение о возможности эффективного использования фосфатных стекол для регистрации и идентификации сверхтяжелых ядер, синтезированных на Фабрике сверхтяжелых элементов Объединенного института ядерных исследований (ОИЯИ).

Статья для специального выпуска ЖЭТФ, посвященного 100-летию А. Е. Чудакова

DOI: 10.31857/S0044451022040162
EDN: DRLIOK

1. ВВЕДЕНИЕ

Вопрос о существовании сверхтяжелых ядер имеет важнейшее значение для понимания свойств ядерной материи. На протяжении последних десяти-

летий крупнейшими исследователями в области физики тяжелых ионов (Г. Т. Сиборг, Г. Н. Флеров, Ю. Ц. Оганесян и др.) были получены уникальные экспериментальные результаты, позволившие проникнуть в область трансурановых и трансфермиевых элементов. А. Е. Чудаков как председатель Комиссии по космическим лучам Международного союза по теоретической и прикладной физике активно поддерживал исследования, связанные с поиском

* E-mail: zhakansadykov@gmail.com

сверхтяжелых элементов в природе и их синтезом в лабораторных условиях.

В 1869 г. Д. И. Менделеев сформировал Периодическую систему, систематизировавшую типы атомов и включавшую 63 известных к тому времени химических элемента, где периодичность изменения химических свойств отражала периодичность заполнения электронных оболочек атома. Систематизация элементов позволила Менделееву предсказать существование таких элементов, как галлий, скандий и германий, которые впоследствии были обнаружены в составе природных минералов. Принятая в настоящее время расширенная периодическая таблица элементов включает как предсказанные, так и новые искусственно синтезированные элементы, вплоть до последнего подтвержденного элемента 118 [1]. В этой связи особый интерес представляет проверка предсказания значительного увеличения стабильности ядер вблизи магических чисел $Z = 114$ и $N = 184$ (где Z — число протонов, N — число нейтронов) [2], которая могла бы приводить к существованию в этой области «островов стабильности» сверхтяжелых ядер с относительно высоким, по сравнению с соседними элементами, временем жизни. Теория предсказывает, что элемент с зарядом 110 и атомной массой 294 может жить до распада порядка ста миллионов (а может, и миллиард) лет. Однако если число нейтронов или протонов будет отличаться на 2–3 единицы, т. е. всего на 1 %, то время жизни изотопа уменьшится до 10^7 раз. Этот эффект наблюдается, например, у дважды магического ядра свинца, состоящего из 82 протонов и 126 нейтронов. Свинец-208 настолько стабилен, что его распад до настоящего времени не зафиксирован, а изотоп свинца со 127 нейтронами распадается в течение 3.3 ч.

В настоящее время применение синтетических химических элементов огромно. Их производство выросло с миллиардных долей грамма до многих килограммов и даже тонн в год. Самым «работающим» из всех синтезированных элементов оказался плутоний-239. В реакторах на быстрых нейтронах после сгорания 1 кг урана-238 получается 1.6 кг плутония-239, который является ядерным горючим, по своему качеству превышающим уран-235.

Одним из мировых лидеров по синтезу новых элементов в земных условиях является Лаборатория ядерных реакций Объединенного института ядерных исследований (ЛЯР ОИЯИ), где удалось получить 12 из 18 искусственно синтезированных трансфермиевых элементов (102, 103, 104, 105, 106 под руководством Г. Н. Флерова и 112, 113, 114, 115,

116, 117, 118 под руководством Ю. Ц. Оганесяна). Ключевым технологическим требованием в этих исследованиях является возможность регистрации и идентификации синтезированных сверхтяжелых ядер.

На рубеже 1950-х и 1960-х гг. были опубликованы первые работы, посвященные возможности применения твердотельных трековых детекторов для регистрации тяжелых ионов [3–5], в том числе на основе стекла [6]. В это же время начались эксперименты по синтезу многозарядных ионов на ускорителях [7, 8], потребовавшие новых методов регистрации и идентификации тяжелых ядер и прежде всего определения их заряда. Неудивительно поэтому, что диэлектрические детекторы впервые нашли свое применение именно при изучении спонтанного деления ядер [9]. С тех пор были разработаны новые виды диэлектрических детекторов с заданными свойствами, адаптированными для условий ускорительного эксперимента, которые обладают высокой эффективностью регистрации и чувствительностью к ядрам определенного типа, низким содержанием примесей, термической стабильностью и т. д. С этой точки зрения, одним из самых привлекательных материалов можно назвать фосфатное стекло, которое использовалось, в частности, при регистрации элемента 105 таблицы Менделеева, синтезированного в ЛЯР ОИЯИ [10].

В настоящее время при изучении синтезированных на ускорителях новых трансурановых элементов используются разнообразные типы детекторов, в том числе твердотельных, выбор которых зависит от условий образования и регистрации этих элементов. Поскольку в регистрирующей системе могут существовать различные температурные режимы, разработка методики регистрации сверхтяжелых ядер требует изучения возможного влияния высоких температур на материал детекторов и их регистрирующие свойства и, следовательно, проведения калибровочных исследований.

В Лаборатории элементарных частиц (ЛЭЧ) ФИАН совместно с Национальным исследовательским технологическим университетом МИСиС и Институтом ядерной физики республики Казахстан проводятся испытания фосфатного стекла с целью исследования его применимости в качестве материала детекторов регистрации сверхтяжелых ядер. В частности, проводятся калибровочные эксперименты для получения зависимости параметров протравленных треков от температуры и продолжительности нагрева образца, а также от момента его нагрева по отношению к облучению и травлению.

Нагревание фосфатного стекла до высоких температур может приводить к термическому отжигу треков вплоть до их полного исчезновения. При нагревании в стекле могут происходить термоокислительные процессы, изменяющие его свойства. Однако, согласно классическим исследованиям [11], фосфатное стекло даже после плавления (и остывания) не меняет своих регистрационных свойств вплоть до температур порядка $500\text{ }^{\circ}\text{C}$ [12].

Авторами настоящей работы проведена серия экспериментов по изучению влияния нагревания на характеристики треков при облучении образцов фосфатного стекла ядрами ксенона с энергией 167 МэВ. Целью работы был анализ изменения характеристик треков тяжелых ядер в результате нагревания в различных режимах фосфатных стекол и определение возможности использования их для работы на Фабрике сверхтяжелых элементов ОИЯИ.

2. МЕТОДИКА ТРАВЛЕНИЯ И КАЛИБРОВОЧНЫЙ ЭКСПЕРИМЕНТ

Фосфатные стекла облучались на резонансном циклическом ускорителе ИЦ-100 ЛЯР ОИЯИ [13]. Целью исследований было получение зависимости геометрических размеров протравленных треков и их количества (эффективность регистрации) от температуры предварительного нагрева образца, изменявшейся при облучении в диапазоне от 100 до $500\text{ }^{\circ}\text{C}$. Изучалась возможность определения заряда ускоренных ядер по параметрам их треков в фосфатных стеклах, подвергнутых облучению в нагретом состоянии с последующим остыванием в двух режимах: охлаждение непосредственно после облучения и охлаждение после 10 ч выдержки при заданной температуре. В экспериментах со стеклами измеряются такие геометрические параметры протравленных треков, как глубина и размеры осей лунок, появляющихся в виде эллипсов на поверхности детектора (что является следствием аморфной структуры материала). В данном эксперименте, поскольку пучок ионов был направлен перпендикулярно поверхности стекла, лунки имели форму круга, и в качестве параметра исследования брался диаметр этого круга.

Строгое отслеживание тщательно выверенной авторами методики позволило проводить сравнение измеренных характеристик треков при разных температурных условиях [13]. Для травления использовалась плавиковая кислота с концентрацией

20 %, обеспечивающая травление облученных образцов стекол за относительно небольшое время. Практика обработки показала, что травление с большей концентрацией (40 %) приводит к слишком быстрому вытравливанию каналов вплоть до конца трека. Наоборот, использование кислоты с меньшей концентрацией (10–15 %) удлиняет процесс обработки, не приводя к увеличению точности. Сканирование облученных и протравленных фосфатных стекол, по результатам которого проводился анализ полученных данных, осуществлялось на автоматизированном оптическом микроскопе ПАВИКОМ в ЛЭЧ ФИАН [14].

Были проведены две серии калибровочных экспериментов. В первой серии образцы фосфатного стекла (далее обозначенные как образцы типа V), предварительно нагревавшиеся от 200 до $500\text{ }^{\circ}\text{C}$ с шагом $100\text{ }^{\circ}\text{C}$, облучались пучком ионов $^{132}\text{Xe}^{26+}$ с энергией 167 МэВ и сразу после облучения остывали естественным путем до комнатной температуры. При нагревании время выхода на требуемую температуру составляло меньше 1 ч, а время остывания образца — от 30 мин для температуры $200\text{ }^{\circ}\text{C}$ до нескольких часов для $500\text{ }^{\circ}\text{C}$. Плотность облучения составляла 10^6 треков на см^2 .

Во второй серии экспериментов было облучено 10 образцов фосфатного стекла, по два для каждой температуры от 100 до $500\text{ }^{\circ}\text{C}$ с шагом $100\text{ }^{\circ}\text{C}$. Образцы (обозначенные как образцы типа W) нагревались до требуемой температуры не более чем за 60 мин, затем облучались пучком ионов $^{132}\text{Xe}^{26+}$ с энергией 167 МэВ и выдерживались при температуре нагревания в течение еще 10 ч. Время последующего остывания образцов составляло от 30 мин для $100\text{ }^{\circ}\text{C}$ до нескольких часов для $500\text{ }^{\circ}\text{C}$. Плотность облучения этих образцов, нагретых до температуры $300\text{ }^{\circ}\text{C}$, составляла 10^6 треков на см^2 , а для остальных, облученных при температурах 100, 200, 400 и $500\text{ }^{\circ}\text{C}$, $(5-8) \cdot 10^5\text{ см}^{-2}$ (согласно авторским расчетным оценкам, оптимальной является плотность облучения в диапазоне 10^5-10^6 см^{-2}) [13].

Во всех экспериментах облучение проводилось при нормальном падении пучка ионов на плоскость детектора. Травление образцов осуществлялось с интервалом 5 или 10 мин до достижения общего времени травления 90 мин. На рис. 1 и 2 представлены фотографии одного поля зрения протравленных поверхностей образцов V и W размером $75 \times 45\text{ мкм}$ при увеличении $40\times$ (цифра в обозначении образца соответствует температуре травления). На рис. 1 показаны результаты, полученные при температурах 200 и $300\text{ }^{\circ}\text{C}$, а на рис. 2 — при температурах 400 и

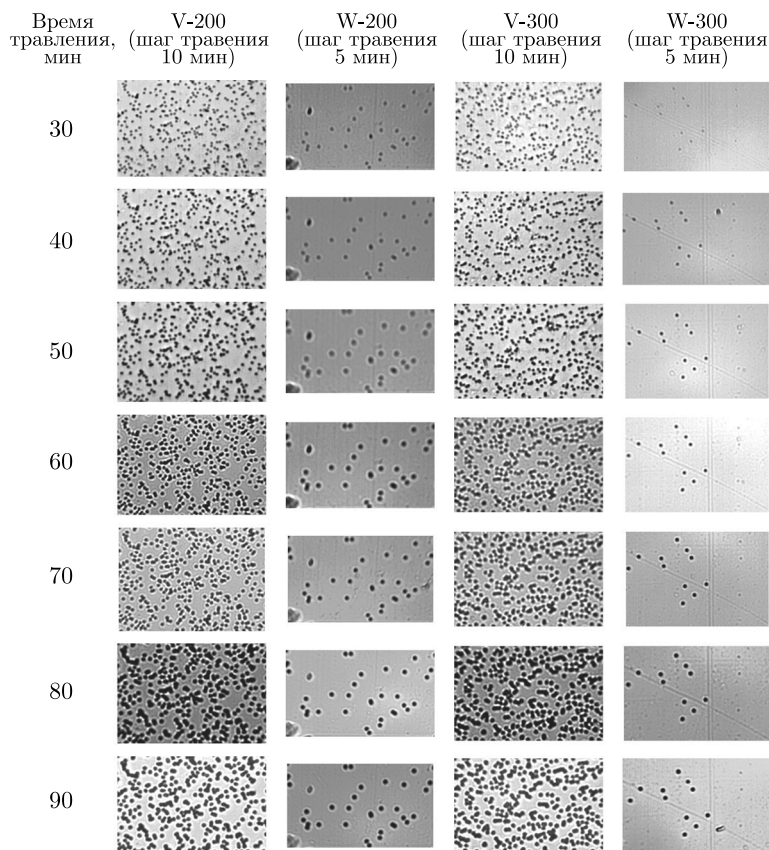


Рис. 1. Поверхности образцов при разных временах травления

500 °С. Видно, что плотность протравленных треков в образцах V и W различна, что может свидетельствовать о зависимости количества протравленных треков от времени нахождения образца в нагретом состоянии.

После обработки изображений были получены графики зависимости диаметров лунок от времени травления с шагом 5 мин. Сводный график для детекторов W, которые выдерживались 10 ч при высокой температуре после облучения, представлен на рис. 3а, а для образцов V, которые остывали сразу после облучения, результаты показаны на рис. 3б.

3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Результаты калибровочных экспериментов по облучению нагретых образцов с их последующим остыванием показывают, что нагрев детекторов не оказывает заметного влияния на размеры протравленных входных каналов (лунок), см. рис. 1б. В то же время выдерживание образцов после облучения при высокой температуре в течение 10 ч по-разному влияет на диаметры входных каналов треков. Так, нагрев до 100 и 200 °С не оказывает заметного влияния

на диаметры лунок, которые появляются уже при небольшом времени травления. Однако уже при нагреве до 300 °С каналы появляются только после 20 мин травления. На этой стадии травления треки представляют собой очень мелкие углубления диаметром около 1.5 мкм и глубиной менее 2 мкм и выглядят под микроскопом как небольшие светло-серые пятна. При увеличении времени травления их диаметры увеличиваются и после 70–80 мин травления достигают размеров, полученных в эксперименте без выдерживания 10 ч при высокой температуре.

При нагреве до 400 и 500 °С первые заметные треки появляются только после 40 мин травления и под микроскопом также выглядят как светло-серые пятна очень небольших размеров. Затем они медленно увеличиваются, но не до такой степени, как при нагреве до температур не более 300 °С.

В качестве интерпретации полученных результатов можно предположить, что длительная выдержка облученных образцов при температуре 300 °С и выше приводит к восстановлению дефектов атомов и нарушенных межатомных связей, возникших при прохождении иона через стекло. При этом «залечи-

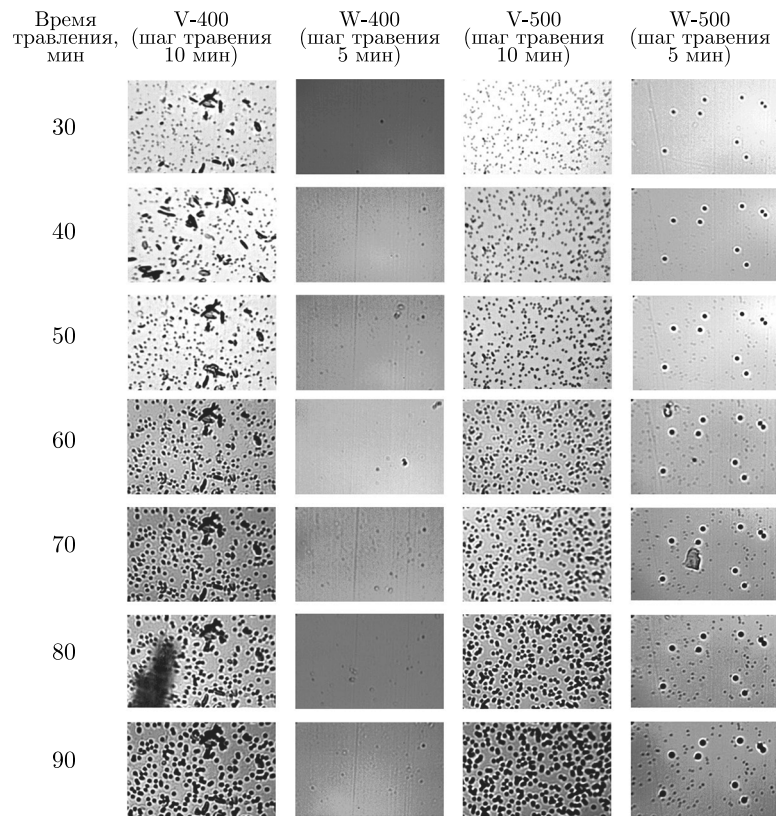


Рис. 2. Поверхности образцов при разных временах травления

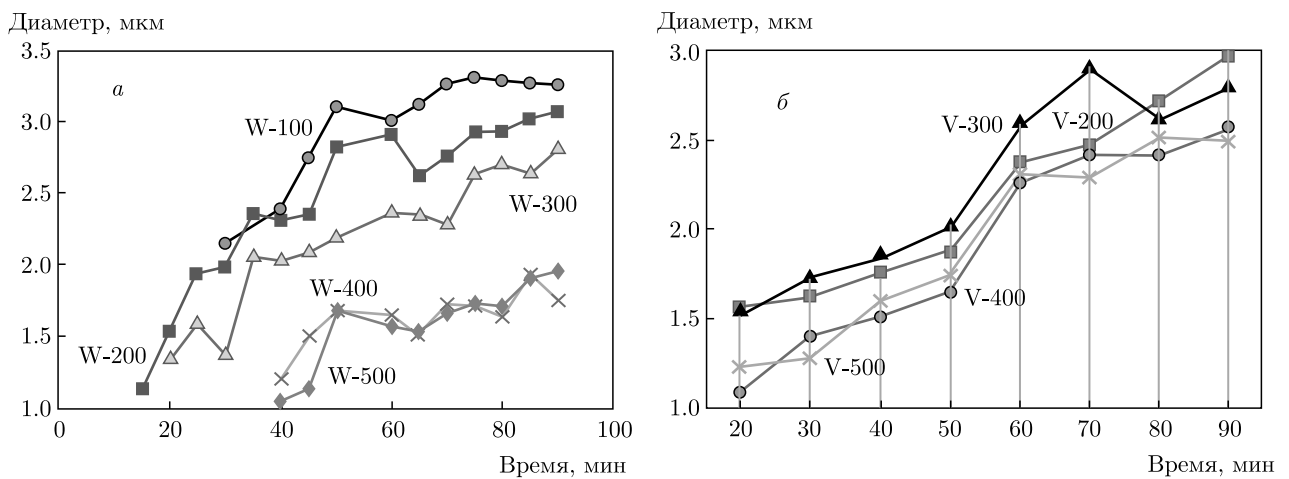


Рис. 3. Зависимости диаметров лунок от времени травления при различных температурах: *а* — в образцах W, сохранявшихся после облучения при высоких температурах в течение 10 ч; *б* — в образцах V, остывавших сразу после облучения

вание» треков, по-видимому, начинается с поверхности, и чем выше температура образца и продолжительнее время выдержки после облучения, тем глубже проникает этот процесс. Тем не менее даже при температуре 500 °C и времени выдержки 10 ч в глубине образца латентные треки сохраняются.

Процесс восстановления происходит не сразу, а протекает с конечной скоростью. Когда процесс травления образцов, выдержанных при температуре 300 °C и выше, достигает области, где сохранился остаток латентного трека, формируется след относительно маленького радиуса, а его светло-серый цвет под

микроскопом означает небольшую глубину протравленного на данном этапе канала. При 300 °С, по мере дальнейшего травления, размер пятен увеличивается, а цвет темнеет, т. е. глубина канала растет. При температурах 400 и 500 °С пятна остаются светло-серыми и едва различимыми даже после полуторачасового травления.

Возможной причиной изменения характеристик треков при облучении нагретых образцов фосфатного стекла может быть снижение его вязкости или большая подвижность атомов при высокой температуре, приводящая к заполнению вакансий, возникших в результате прохождения иона.

Следует отметить, что при обработке образцов W-500 обнаружилось два набора пятен, один из которых, с размером пятен около 2.5 мкм, появился на 20-й минуте травления. При дальнейшем травлении размер пятен увеличился до 3.5 мкм. Плотность таких пятен составила величину порядка 10^5 см^{-2} . Другой набор пятен стал виден только на 45-й минуте травления. Пятна этого набора имели размер 1.5–2 мкм и мало изменялись в процессе последующего травления. Их плотность составляла величину порядка 10^6 см^{-2} . Для анализа и обсуждения был выбран второй набор, в большей степени соответствующий установленным закономерностям изменения характеристик треков с температурой. Появление двух групп пятен, возможно, связано с разными условиями облучения.

Полученные результаты авторы сравнили с теми, которые были получены ранее в эксперименте по отжигу треков при медленном нагреве образцов после облучения и последующем естественном остывании. Отжиг в этих условиях привел к исчезновению треков уже при температуре выше 200 °С, в то время как при нагревании стекла в процессе облучения до гораздо более высоких температур треки ионов сохраняются, хотя и меняют свои характеристики.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты проведенных калибровочных экспериментов показывают, что облучение нагретых фосфатных стекол, а также их последующая выдержка при температурах 100 и 200 °С незначительно влияют на характеристики протравленных в них треков ускоренных тяжелых ионов. При этом облучение нагретых образцов и длительное выдерживание их при высокой температуре приводят к сохранению треков даже при температуре 500 °С. Однако характеристики треков при такой процедуре сильно меняются, что требует дополнительного изучения влияния

температурных режимов на зоны травимых дефектов для идентификации ионов при этих условиях.

В целом выполненное исследование характеристик треков тяжелых ионов на основе калибровочных облучений нагретых в различных режимах фосфатных стекол свидетельствует о возможности их использования для регистрации и идентификации сверхтяжелых ядер, синтезированных на Фабрике сверхтяжелых элементов ОИЯИ.

Финансирование. Работа выполнена при поддержке программы BR10965191 (Комплексные исследования в области ядерной и радиационной физики, физики высоких энергий и космологии для разработки конкурентоспособных технологий) Министерства образования и науки Республики Казахстан.

ЛИТЕРАТУРА

1. Yu. Ts. Oganessian, V. K. Utyonkov, Yu. V. Lobanov et al., *Phys. Rev. C* **74**, 044602 (2006).
2. V. M. Strutinsky, *Nucl. Phys. A* **95**, 420 (1967).
3. D. A. Young, *Nature* **182**, 375 (1958).
4. E. C. H. Silk and R. S. Barnes, *Phil. Mag.* **4**, 970 (1959).
5. R. L. Fleischer, P. B. Price, and R. M. Walker, *J. Appl. Phys.* **36**, 3645 (1965).
6. В. П. Перельгин, С. П. Третьякова, И. Звара, ПТЭ № 4, 78 (1964).
7. A. Ghiorso, R. A. James, L. O. Marian, and G. T. Seaborg, *Phys. Rev.* **78**, 472 (1950).
8. Г. Н. Флёрв, *Атомная энергия* **28**, 302 (1970).
9. G. N. Flerov, S. M. Polikanov, V. L. Mischev et al., in *Reactions Between Complex Nuclei*, ed. by A. Ghiorso, V. C. Press, Berkeley (1963), p. 219.
10. Г. Н. Флёрв, Ю. Ц. Оганесян, Ю. В. Лобанов и др., *Атомная энергия* **29**, 243 (1970).
11. С. П. Третьякова, *Сообщения ОИЯИ № P7-88-711* (1988).
12. В. А. Николаев, В. П. Перельгин, ПТЭ № 2, 7 (1976).
13. L. A. Goncharova, N. S. Konovalova, N. M. Okateva et al., *Phys. Atom. Nuclei* **83**, 1304 (2020).
14. A. Alexandrov, N. Konovalova, N. Okateva et al., *Measurement* **187**, 110244 (2022).