### = ЭЛЕМЕНТАРНЫЕ ЧАСТИЦЫ И ПОЛЯ =

# ИДЕНТИФИКАЦИЯ МНОГОЗАРЯДНЫХ ИОНОВ С ПОМОЩЬЮ ДЕТЕКТОРОВ НА ОСНОВЕ ФОСФАТНОГО СТЕКЛА

© 2021 г. Л. А. Гончарова<sup>1)</sup>, Н. С. Коновалова<sup>1)</sup>, Н. М. Окатьева<sup>1)\*</sup>, Н. Г. Полухина<sup>1)</sup>, Ж. Т. Садыков<sup>2)</sup>, Н. И. Старков<sup>1)</sup>, Е. Н. Старкова<sup>1)</sup>, М. М. Чернявский<sup>1)</sup>, Т. В. Щедрина<sup>1)</sup>

Поступила в редакцию 23.06.2021 г.; после доработки 23.06.2021 г.; принята к публикации 23.06.2021 г.

Принцип регистрации и идентификации ионов тяжелых ядер в фосфатных стеклах основан на анализе геометрических параметров треков, проявившихся в результате травления облученных стекол в специальном растворе. Форма и размер образовавшихся треков зависят как от параметров ионов (заряда, энергии, угла падения), так и от условий травления (состава и концентрации травящего вещества, времени травления). Фосфатное стекло представляет собой тип твердотельного трекового детектора, действие которого основано на том, что частицы, имеющие большой электрический заряд, разрушают локальную структуру твердого тела вдоль своей траектории. Это локальное разрушение можно интенсифицировать последующим селективным травлением, благодаря чему след удается визуализировать. Поврежденные части материала реагируют с травящим агентом более интенсивно, чем неповрежденные. В результате этой реакции образуются характерные конусы травления. Радиационное повреждение материала, как и удельные энергетические потери заряженных частиц, пропорционально квадрату их заряда и зависит также от скорости частицы.

#### DOI: 10.31857/S0044002721060064

### 1. ВВЕДЕНИЕ

Начиная с 1960-х гг., для регистрации осколков деления ядер применяются твердотельные трековые детекторы из стекла [1-3] с высокой эффективностью регистрации, малочувствительные к свету, фону бета- и гамма-излучений и имеющие низкий собственный фон. В результате прохождения многозарядного иона в стеклах возникает скрытое изображение в форме остаточных дефектов вдоль трека частицы (латентных треков) шириной  $\sim \! 10$  нм, которые выявляются химическим травлением. Протравленные следы наблюдаются под оптическим микроскопом как углубления конической формы с вершиной, совпадающей с траекторией частицы, и с диаметром на поверхности стекла порядка 5-10 мкм.

По сравнению с другими твердотельными детекторами многозарядных ионов (слюдами, пластиками), стекла обладают рядом преимуществ, в том числе:

— отсутствием слоистости, препятствующей восстановлению полной длины трека (в отличие от слюды, слоистость которой, обусловленная кристаллическим строением, составляет  $\sim 10^{-6}$  мм);

- общедоступностью и относительной дешевизной;
- высокой устойчивостью к изменяющимся внешним условиям.

Особо необходимо отметить спектрометрическое свойство стекол, а именно пропорциональность линейного размера зоны травимых дефектов атомному номеру Z частицы, замедляющейся в детекторе до остановки. Это свойство позволяет установить зависимость между зарядом частицы и геометрическими параметрами трека.

Применяемые в описываемом эксперименте фосфатные стекла относятся к материалам с широким классом составов, в которых основной стеклообразующей компонентой является пятиокись фосфора  $P_2O_5$ . Такие стекла, в частности, были успешно применены в эксперименте по поиску 105 элемента по спонтанному делению в 1969 г. в ЛЯР ОИЯИ [4]. Фосфатное стекло, содержащее окись церия, имеет эффективность регистрации осколков  $(70\pm8)\%$  [5].

Для образования видимого трека необходимо, чтобы скорость проникновения травящего раствора в зону радиационных повреждений — скорость травления вдоль трека  $V_T$  — превышала скорость травления неповрежденного материала  $V_M$ . В результате химического травления на месте латентного трека происходит образование трека травления, размер которого превышает размеры латентного трека на четыре порядка. При длительном

<sup>1)</sup> Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Москва, Россия

<sup>&</sup>lt;sup>2)</sup>Национальный исследовательский технологический университет "МИСиС", Москва, Россия.

<sup>\*</sup>E-mail: okatevanm@lebedev.ru

**Таблица 1.** Массовый состав фосфатных стекол ГЛС-22 и КНФС-3

Химический состав, % массы	ГЛС-22	КНФС-3 (патент)
$P_2O_5$	49-65	60-66
$Al_2O_3$	2-9	4-8.5
$\mathrm{B_2O_3}$	1.6-10	0.2-3
${ m Li_2O}$	0.9-9.5	
$Na_2O$		0.5 - 3.5
$K_2O$		4.5-11.5
$Nd_2O_3$	0.5-7.5	0.5-5
$\mathrm{CeO}_2$		0.1-1
BaO		0.8-12
${ m SiO_2}$		0.5-3
SrO		2-17
CaO		0.1-3

травлении контрастность треков под микроскопом постепенно уменьшается, что затрудняет их
идентификацию. (Для фосфатных стекол ухудшение разрешения наблюдается при диаметре треков
больше 100 мкм.) Поэтому при разработке методики обработки облученных стекол первостепенное
значение имеет выбор оптимального режима химического травления. В зависимости от регистрируемых частиц и состава фосфатного стекла используют различные способы и режимы травления,
в которых варьируются реагенты, концентрации,
температуры и длительность травления.

Эффективность регистрации детектора из фосфатного стекла зависит в том числе от угла входа частицы в диэлектрик. Так, при скользящем падении (угол входа близок к  $90^\circ$ ) повреждения создаются вблизи поверхности, и при последующем травлении видимый трек не возникает. Эффективность регистрации близка к 1 при угле падения, меньшем критического, а при угле, большем критического, резко спадает до 0. Критический угол образования трека  $\theta$  определяется как  $\sin \theta = Vm/Vt$  и зависит от многих переменных, таких как энергетические потери частицы в веществе dE/dx, состав стекла, технологии травления.

Важными факторами, влияющими на эффективность регистрации многозарядных ионов в стеклах, является плотность облучения и качество обработки изображений. При больших плотностях треков возрастает вклад перекрывающихся треков, что приводит к нелинейности характеристик детектора. Поэтому диапазон измерений параметров

треков, в котором детектор имеет линейные характеристики, зависит от размера и плотности треков, а также от качества обработки их изображения на микроскопе [1].

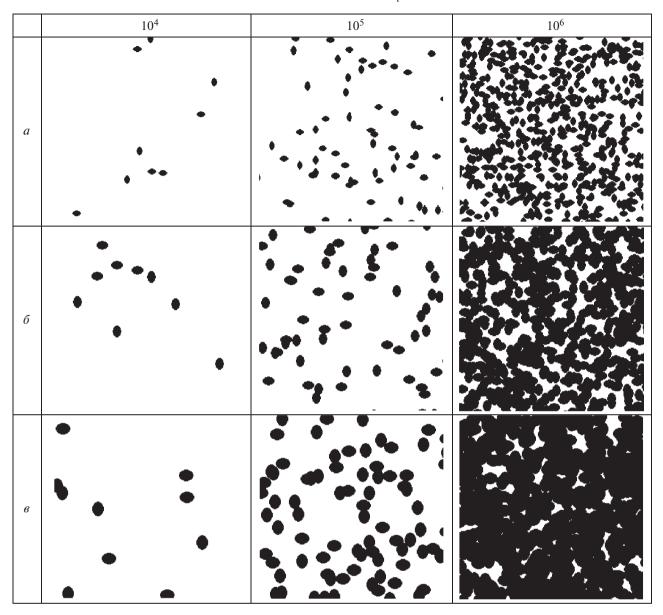
# 2. ОПТИМАЛЬНАЯ ПЛОТНОСТЬ ПОТОКА ОБЛУЧЕНИЯ

Для выбора оптимальных условий облучения создана программа, позволяющая по заданным размерам следов частиц, образовавшихся в стекле после травления, оценить степень заполнения ими исследуемой поверхности при различных плотностях загрузки. Размеры следов эллиптической формы, а также плотность их загрузки задаются в качестве входных параметров. Положение центров эллипсов разыгрывается случайным образом, с учетом заданной плотности загрузки. С помощью созданной программы была проведена серия расчетов с разными размерами протравленных треков на поверхности стекла и их плотностью, полученные результаты представлены на рис. 1.

Таким образом, показано, что наибольшая эффективность регистрации треков тяжелых ионов при сохранении линейности характеристик детектора достигается при плотности облучения  $\sim 10^4 - 10^5$  част. см $^{-2}$ , в зависимости от размеров следов.

## 3. АВТОМАТИЗИРОВАННАЯ ОБРАБОТКА ДАННЫХ

Принцип регистрации и идентификации ионов тяжелых ядер в фосфатных стеклах основан, прежде всего, на анализе геометрических параметров треков, проявившихся в результате травления. При таком большом объеме получаемой информации необходимым условием является ее автоматизированная обработка, для которой была разработана и реализована программа обработки изображений треков. Протравленные образцы после каждого этапа травления сканируются на автоматизированном микроскопе измерительного комплекса ПАВИКОМ (ЛЭЧ ФИАН) [6]. Программный пакет позволяет выделять следы треков и определять их геометрическую форму. Так как трек многозарядного иона на поверхности стекла имеет эллиптическую форму, в программе предусмотрена процедура описания контура следа эллипсом, малая ось которого связана с зарядом и энергией частицы, а большая — с углом вхождения частицы в мишень. При наличии калибровочных экспериментов по облучению стекол ионами различных зарядов, энергий и углов падения существует возможность построения функции, напрямую связывающей измеренные геометрические характеристики следа с этими величинами. С помощью созданной программы обрабатываются изображения треков в



**Рис. 1.** Протравленные треки частиц на поверхности стекла с различной плотностью потока от  $10^4$  до  $10^6$  част. см $^{-2}$ . Заданные в расчете размеры треков:  $a-12\times 8$  мкм;  $\delta-16\times 12$  мкм;  $s-20\times 16$  мкм. Размер изображения  $250\times 250$  мкм $^2$ .

фосфатных стеклах, полученных в результате облучения. Примеры обработки изображений представлены на рис. 2.

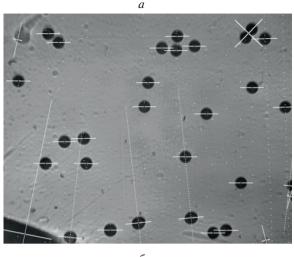
## 4. КАЛИБРОВОЧНЫЕ ОБЛУЧЕНИЯ

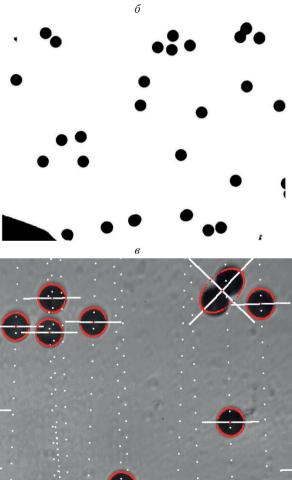
Начальным этапом подготовки эксперимента по регистрации осколков деления сверхтяжелых ядер является тестовое облучение образцов фосфатного стекла различных марок и выбор оптимального способа их травления. Образцы фосфатного стекла марки ГЛС-22 облучались на пучке ионов  $^{132}\mathrm{Xe}^{26+}$  на резонансном циклическом ускорителе ИЦ-100

ЛЯР ОИЯИ. Энергия ускоренных ионов ксенона составляла 1.16 МэВ/нуклон.

Травление образцов проводилось в 40%-ном растворе плавиковой кислоты HF и гидроксиде натрия в несколько этапов. Полученные изображения промежуточных результатов травления показаны на рис. 3. Как видно из рис. 3в, в результате длительного (в течение 7 ч) травления плавиковой кислотой поверхность стекла стравилась на глубину, превышающую глубину треков ионов (треки отсутствуют).

Экспериментальная зависимость толщины стравленного материала от времени травления





**Рис. 2.** Результат обработки следов ионов  $^{132}$  Xе $^{26+}$  с энергией 1 МэВ/А (нормальное падение, стекло ГЛС-22) после травления плавиковой кислотой в течение 20 мин: a — исходное изображение на микроскопе; b — результат обработки изображения с помощью разработанной программы; b — небольшой фрагмент результата обработки. Диаметр следов b мкм.

облученных образцов стекла марки ГЛС-22 в плавиковой кислоте и в гидроксиде натрия позволили определить диапазоны времени травления образцов: до 1 ч в плавиковой кислоте и от 5 до 10 ч в гидроксиде натрия. Также эксперимент показал необходимость более точного измерения размеров и масс образцов фосфатного стекла до и после травления.

Следующие этапы калибровочных и тестовых работ проводились с использованием партии фосфатного стекла марки КНФС-3, специально изготовленной на Лыткаринском заводе. В табл. 1 дан примерный массовый состав использовавшихся неодимовых фосфатных стекол.

Проведены серии тестовых травлений образцов фосфатного стекла КНФС-3 в плавиковой кислоте 40HF и в гидроксиде натрия 10N NaOH. При травлении в щелочи были скачки при измерении геометрических размеров образцов, в отличие от метода определения по массе. Это объясняется тем, что щелочь при взаимодействии с компонентами стекла дает соли, которые могут оседать на образце. Кроме того, время травления в NaOH значительно превышает время травления в HF. По результатам измерений для дальнейших работ была выбрана плавиковая кислота HF.

Важным параметром при идентификации ядер является длина трека, а при ее оценке необходимо знать толщину стравленного слоя. Эта величина должна быть добавлена к видимой в микроскоп длине канала. Обычный микрометр обладает недостаточной точностью ( $\sim$ 1 мкм) для измерения толщины стравленного слоя  $\Delta$ , толщина которого на одном этапе травления составляет от 0.3 до 0.5 мкм.

Первоначально толщина стравленного слоя  $\Delta$  определялась несколькими способами:

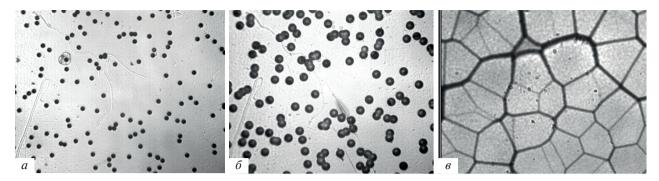
1. На основе результатов взвешивания образца до и после травления по формуле

$$\Delta = \frac{m_{\Delta}}{2\rho \left( L_{1}D_{1} + L_{1}h_{1} + D_{1}h_{1} \right)},$$

где  $L_1,\,D_1,\,h_1$  — длина, ширина и толщина бруска до травления,  $m_\Delta=m_1-m_2$  — стравленная масса  $(m_1$  — масса бруска до травления,  $m_2$  — масса бруска после травления),  $\rho=2.7$  г/см $^3=2.7\times 10^{-12}$  г/мкм $^3=2.7\times 10^{-9}$  мг/мкм $^3$  — плотность фосфатного стекла КНФС-3.

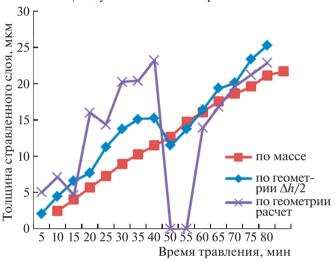
2. На основе результатов измерений геометрических размеров всех граней образца до и после травления по формуле

$$\Delta = \frac{L_1 D_1 h_1 - L_2 D_2 h_2}{2(L_1 D_1 + D_1 h_1 + L_1 h_1)},$$



**Рис. 3.** Изображения поверхности одного из образцов первой группы после травления в плавиковой кислоте в течение  $a-20\,$  мин,  $b-40\,$  мин,  $b-7\,$  ч. Изображения получены на микроскопе измерительного комплекса ПАВИКОМ с объективом  $20^{\times}$ . Размер поля зрения  $555\times444\,$  мкм.

Толщина стравленного слоя в НГ для образца КНФС-3, полученная по геометрии и по массе



**Рис. 4.** Сравнительные результаты разных способов определения толщины стравленного слоя в HF для образца КНФС-3. Данные: квадраты — по массе, ромбы — по геометрии  $\Delta h/2$ , кресты — по геометрии (расчет).

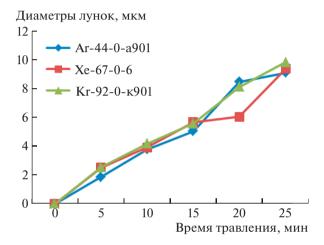
где  $L_1,\,D_1,\,h_1$  — длина, ширина и толщина бруска до травления,  $L_2,\,D_2,\,h_2$  — длина, ширина и толщина бруска после травления.

3. Путем прямого измерения одного из геометрических размеров (толщины h) образца до и после травления.

Проведенные исследования показали, что толщина стравленного слоя с наилучшей точностью определяется через взвешивание образца до и после травления при однократном измерении геометрических размеров (рис. 4).

#### 5. АНАЛИЗ РЕЗУЛЬТАТОВ

Всего был облучен 71 образец стекла, из которых 31 был облучен ионами Хе, 20 — ионами



**Рис. 5.** Зависимость диаметров лунок от времени травления в 40HF для различных ядер при нормальном падении пучка.

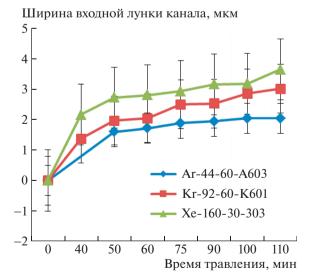
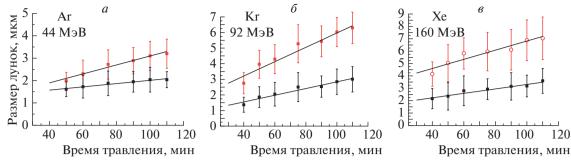
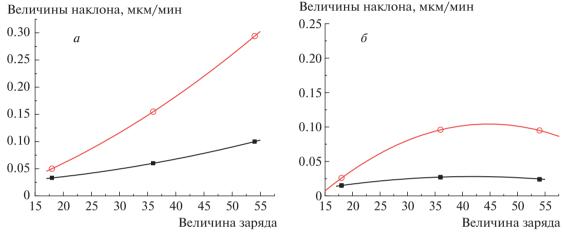


Рис. 6. Ширина входной лунки от разных ионов.



**Рис. 7.** Зависимость длин (красные точки) и ширин (черные точки) лунок на поверхности от времени травления. Угол падения частиц  $30^{\circ}$  к нормали. Точки аппроксимированы прямыми линиями: a — для Ar ( $44 M \ni B$ ),  $\delta$  — для Kr ( $92 M \ni B$ ),  $\delta$  — для Xe ( $160 M \ni B$ ).



**Рис. 8.** Величины наклонов отрезков прямых в зависимостях размеров лунок от времени травления как функции заряда: a— для длины (красная линия) и для ширины (черная линия); время травления  $30 \leqslant T \leqslant 45$  мин, 6— для длины (красная линия) и для ширины (черная линия); время травления  $T \geqslant 50$  мин. Точки аппроксимированы параболами.

Аг и 20 — ионами Кг. На первом этапе обработки облученных фосфатных стекол травление образцов осуществлялось в концентрированной плавиковой кислоте 40НГ. Для травления образцов применялась фтористоводородная кислота НГ производства ООО "Сигма Тек" ГОСТ 10484-78 (40HF). Результаты травления в 40НГ на рис. 5 не показывают зависимости размеров лунок от заряда ионов, вследствие чего было сделано предположение, что при высокой концентрации травящего раствора при выбранных интервалах травления мы пропускаем фазу оптимальной растравленности треков, обуславливающую наилучшее для данных стекла и травителя разрешение. Согласно [1] при травлении в более слабом растворе НГ должна наблюдаться более высокая эффективность регистрации, т.е. большее значение отношения скоростей травления по треку и по массе детектора Vt/Vm. Это объясняется, в частности, более хорошими условиями для конвекции травителя в зоне трека при медленном травлении, чем при быстром травлении в концентрированных растворах. По этой причине исследования были продолжены с кислотой более слабой концентрации 20% НГ и удалось "разделить" геометрические характеристики следов различных ионов (рис. 6).

Результаты травления образцов в 20%-ном растворе HF для угла падения ядер 30° к нормали приведены на рис. 7. Точки на графиках могут быть аппроксимированы прямыми линиями, параметр наклона которых характеризует скорость изменения размера лунок в зависимости от времени травления. При использовании нового режима обработки процесс травления распадается на две части. Одна из них (левая на рисунках) соответствует травлению зоны повреждения материала стекла до точки останова ядра. Вторая связана с простым растравливанием материала в области, где трека уже нет и где скорость травления существенно ниже. Коэффициенты наклонов отрезков прямых в зависимостях размеров лунок от времени травления отражают скорость травления на данном участке.

На рис. 8, приведенном ниже, показаны эти коэффициенты как функции заряда. Видно, что коэффициенты, а, следовательно, и скорости изменения размеров лунок, существенно зависят от заряда на начальном этапе травления. Второй этап в этом отношении намного менее чувствителен к заряду. По этим кривым производится оценка заряда ядра методом интерполяции обратной функции. В настоящей работе калибровочные кривые получены только для случая ядер при фиксированной энергии около 1.1 МэВ/нуклон. Поведение этих кривых может зависеть не только от заряда, но также от энергии и угла падения ядра. Тогда функция для определения характеристик ядра будет задаваться не кривыми на плоскости, а поверхностью. В этом случае для определения заряда можно использовать двойную интерполяцию.

#### 6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенное исследование позволило обнаружить зависимость геометрических параметров треков тяжелых ионов, протравленных в использованном фосфатном стекле типа КНФС-3, от параметров этих ионов. Результаты работ следующие:

- выбраны оптимальные условия химического травления облученного фосфатного стекла (состав травящего химического раствора, концентрация, время травления) для эффективной идентификации зарядов ионов;
- разработан пакет программ для автоматизированного измерения размеров протравленных каналов ионов:
- получены результаты обработки изображений каналов в фосфатном стекле на измерительном комплексе ПАВИКОМ;
- характеристики треков ионов Ar, Kr и Xe, протравленных в фосфатном стекле для энергии
   1.1 МэВ/нуклон;

 параметрическая зависимость заряда ионов по измеряемым геометрическим характеристикам треков.

В настоящее время продолжаются исследования температурных и геометрических особенностей методики идентификации ядер в детекторах из фосфатного стекла.

Работа поддержана программой "Complex Research in Nuclear and Radiation Physics, High Energy Physics and Cosmology for the Development of Competitive Technologies" Министерства образования и науки Республики Қазахстан.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. В. А. Николаев, *Твердотельные трековые детекторы в радиационных исследованиях* (Изд-во Политехн. ун-та, С.-Петербург, 2012).
- 2. В. А. Николаев, В. П. Перелыгин, ПТЭ, № 2, 7 (1976).
- 3. С. П. Третьякова, ЭЧАЯ 23, 364 (1992).
- 4. Г. Н. Флеров, Ю. Ц. Оганесян, Ю. В. Лобанов, Ю. А. Лазарев, С. П. Третьякова, И. В. Колесов, В. М. Плотко, Ат. энергия **29**, 243 (1970).
- 5. В. П. Перелыгин, Дис. . . . д-ра физ.-мат. наук, ОИЯИ (Дубна, 1993).
- 6. А. Б. Александров, М. С. Владимиров, Л. А. Гончарова, Н. С. Коновалова, Г. И. Орлова, Н. Г. Пересадько, Н. Г. Полухина, Н. И. Старков, М. М. Чернявский, А. О. Щелканов, ПТЭ, № 4, 46 (2007) [A. B. Aleskandrov, M. S. Vladimirov, L. A. Goncharova, N. S. Konovalova, G. I. Orlova, N. G. Peresad'ko, N. G. Polukhina, N. I. Starkov, M. M. Chernyavskii, and A. O. Shchelkanov, Instrum. Exp. Tech. **50**, 469 (2007)].

# IDENTIFICATION OF MULTIPARTICLE IONS BY PHOSPHATE GLASS

L. A. Goncharova<sup>1)</sup>, N. S. Konovalova<sup>1)</sup>, N. M. Okateva<sup>1)</sup>, N. G. Polukhina<sup>1)</sup>, Zh. T. Sadykov<sup>2)</sup>, N. I. Starkov<sup>1)</sup>, E. N. Starkova<sup>1)</sup>, M. M. Chernyavsky<sup>1)</sup>, T. V. Shchedrina<sup>1)</sup>

1) Lebedev Physical Institute of the Russian Academy of Sciences, Moscow, Russia
2) National University of Science and Technology "MISiS", Moscow, Russia

The principle of registration and identifying ions of heavy nuclei in phosphate glasses is based primarily on the analysis of the geometric parameters of tracks manifested as a result of etching irradiated glasses in a special solution. The shape and size of the resulting tracks depend both on the parameters of the ions (charge, energy, incidence angle) and on the etching conditions (composition and concentration of the etching substance, etching time). Phosphate glass is a type of solid-state track detector, the effect of which is based on the fact that particles having a large electric charge destroy the local structure of a solid body along its trajectory. This local degradation can be intensified by subsequent selective etching, so that the trace can be visualized. Damaged parts of the material react more intensively with the etching agent than intact ones. As a result of this reaction, characteristic etching cones are formed. Radiation damage to the material, as well as specific energy losses of charged particles, is proportional to the square of their charge and also depends on the velocity of the particle.