_____ РАЗДЕЛЕНИЕ И ПРИМЕНЕНИЕ ИЗОТОПОВ. ____ МАСС-СПЕКТРОМЕТРИЯ

УДК 53.086, 53.087.6

МЕТОДИКА АВТОМАТИЗИРОВАННОГО ПОИСКА РЕДКИХ СОБЫТИЙ РАСПАДА СВЕРХТЯЖЕЛЫХ ЯДЕР С ПОМОЩЬЮ ДЕТЕКТОРОВ ИЗ ФОСФАТНОГО СТЕКЛА

© 2020 г. Л. А. Гончарова^а, Н. С. Коновалова^а, Н. М. Окатьева^{а, *}, Е. Н. Старкова^а

 a Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Ленинский проспект 53, Москва, 119991 Россия

*E-mail: okatevanm@lebedev.ru

Поступила в редакцию 09.06.2020 г. После доработки 30.06.2020 г. Принята к публикации 01.07.2020 г.

Начиная с 1960-х гг, для регистрации осколков деления ядер применяются твердотельные трековые летекторы из стекла [1-3] с высокой эффективностью регистрации, малочувствительные к свету. фону бета- и гамма-излучениям и имеющие низкий собственный фон. В результате прохождения многозарядного иона в стеклах возникает скрытое изображение в форме остаточных дефектов вдоль трека частицы шириной ~10 нм, которые выявляются химическим травлением. Протравленные следы наблюдаются в оптическом микроскопе 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 частности, отсутствием слоистости, препятствующей восстановлению полной длины трека. Особо необходимо отметить спектрометрическое свойство стекол, а именно пропорциональность линейного размера зоны травимых дефектов заряду частицы, замедляющейся в детекторе до остановки. Это свойство позволяет установить зависимость между зарядом частицы и геометрическими параметрами трека. Использованные авторами фосфатные стекла относятся к материалам, в которых основной стеклообразующей компонентой является пятиокись фосфора P_2O_5 . Такие стекла, в частности, ранее были успешно применены в эксперименте по поиску 105 элемента по спонтанному делению в 1969 г. в ЛЯР ОИЯИ [4]. Перед авторами, успешно реализующими автоматизированную обработку трековых детекторов [5], была поставлена задача создания off-line автоматизированной методики поиска редких событий распада сверхтяжелых ядер с целью регистрации многозарядных ионов и определения их характеристик.

Ключевые слова: фосфатные стекла, твердотельные трековые детекторы, химическое травление, поиск распада сверхтяжелых ядер

DOI: 10.1134/S2079562920010030

ВВЕДЕНИЕ

Принцип регистрации и идентификации ионов тяжелых ядер в фосфатных стеклах основан, прежде всего, 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).

Травление — это процесс, при котором материал удаляется из образца химическим способом. Такое удаление осуществляется погружением образца в травящий раствор кислоты или щелочи. В зависимости от морфологии получаемой поверхности, химическое травление может быть выравнивающим (полирующим) или избирательным (селективным). При выравнивающем травлении

происходит сглаживание рельефа поверхности, уменьшение ее шероховатости; при избирательном травлении — увеличение неоднородности поверхности, выявление дефектов ее структуры.

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 визуализовать. 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 поте-

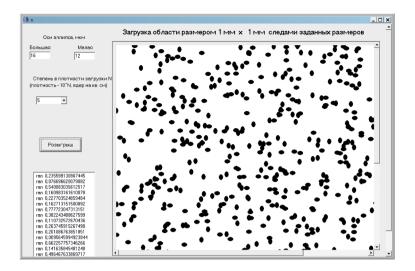


Рис. 1. Диалоговое окно программы для генерации заполнения поверхности стекла протравленными треками тяжелых ионов.

ри заряженных частиц, пропорционально квадрату их заряда и зависит также от скорости частицы.

Процесс травления состоит из пяти стадий: диффузии реагента к поверхности, адсорбции реагента, поверхностной химической реакции, десорбции продуктов реакции, диффузии продуктов реакции от поверхности. Скорость всего процесса определяется скоростью наиболее медленной (контролирующей) стадии. Для селективных травителей контролирующей стадией является химическая реакция, а характерная разница скоростей травления в различных кристаллографических направлениях достигает одного порядка и более. Процесс травления в растворах плавиковой кислоты НF и едкого натра NaOH имеет склонность к селективности.

Образовавшиеся под влиянием тяжелых заряженных частиц радиационные повреждения представляют собой латентные треки. Химический реагент проникает в латентный трек со скоростью, превышающей скорость травления неповрежденного материала. При травлении треков разных ионов, начиная с некоторого времени травления, скорость увеличения диаметра лунок становится различной, в зависимости от заряда. По мере увеличения длительности травления, контрастность треков уменьшается, что затрудняет их идентификацию. На основе проведенных в данной работе тестовых исследований была определена оптимальная концентрация травителя (плавиковой кислоты) для получения максимальной контрастности треков. Определены оптимальные условия травления треков ионов Ar, Kr и Xe различных энергий, при которых возможна их идентификация.

ВИЗУАЛИЗАЦИЯ СЛЕДОВ ЧАСТИЦ С РАЗЛИЧНОЙ ПЛОТНОСТЬЮ ЗАГРУЗКИ

Для выбора оптимальных условий облучения создана программа, позволяющая по заданным размерам следов частиц, образовавшихся в стекле после травления, показать степень заполнения ими исследуемой поверхности при различных плотностях загрузки. В качестве начальных значений размеров протравленных следов на поверхности стекла были взяты средние экспериментальные значения, полученные в первом калибровочном эксперименте.

Размеры следов эллиптической формы, а также плотность их загрузки, задаются в качестве входных параметров в специальных окнах. Положение центров эллипсов разыгрывается случайным образом, с учетом заданной плотности загрузки. Затем выполняется их прорисовка. Количество эллипсов соответствует заданной плотности загрузки. На рис. 1 представлено диалоговое окно программы для генерации заполнения поверхности стекла протравленными треками тяжелых ионов.

С помощью созданной программы была проведена серия расчетов с разными размерами протравленных треков на поверхности стекла и их плотностью. Полученные результаты представлены на рис. 2.

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

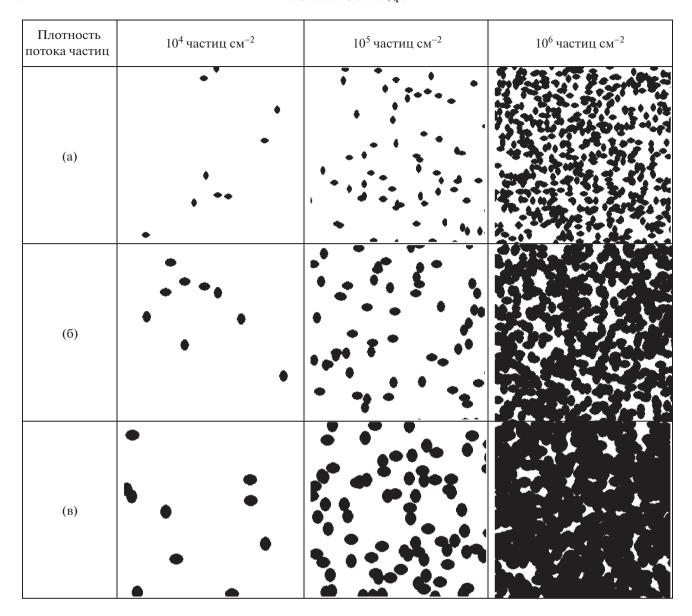


Рис. 2. Протравленные треки частиц на поверхности стекла с различной плотностью потока. Заданные в расчете размеры треков [мкм]: (а) 12×8 ; (б) 16×12 ; (в) 20×16 . Размер изображения 250×250 мкм.

КАЛИБРОВОЧНЫЕ ОБЛУЧЕНИЯ

Следующим этапом подготовки эксперимента по регистрации осколков деления сверхтяжелых ядер является тестовое облучение образцов фосфатного стекла различных марок и выбор оптимального способа их травления. Образцы фосфатных стекол марок ГЛС-22 и КНФС-3 облучались на пучке ионов 132 Хе $^{26+}$ на резонансном циклическом ускорителе ИЦ-100 ЛЯР ОИЯИ. Размеры образцов варьировались в диапазоне от 10×2 мм до 10×10 мм при толщине 4 мм, обеспечивающей оптимальное сочетание необходимой оптической прозрачности и механической прочности. Конеч-

ной задачей калибровочных облучений образцов стекла является получение зависимости геометрических характеристик треков (диаметра D и глубины L) от заряда, энергии, угла падения и температуры в процессе экспозиции.

На первом этапе работ было проведено два калибровочных эксперимента. В первом эксперименте использовалось стекло марки ГЛС-22, во втором — стекло марки КНФС-3 производства Лыткаринского завода оптического стекла. В табл. 1 дан примерный массовый состав использовавшихся неодимовых фосфатных стекол, а в табл. 2 — некоторые их физико-химические характеристики.

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

Химический состав, мас. %	ГЛС-22	КНФС-3 (патент)	КНФС-3 (усредненные данные)
P_2O_5	49–65	60–66	63
Al_2O_3	2–9	4-8.5	6
B_2O_3	1.6-10	0.2-3	1.5
Li ₂ O		_	_
Na ₂ O	0.9-9.5	0.5-3.5	2
K ₂ O		4.5—11.5	8
Nd_2O_3	0.5–7.5	0.5-5	2
CeO ₂		0.1-1	0.5
BaO		0.8-12	5
SiO ₂		0.5–3	1.5
SrO		2—17	9
CaO		0.1-3	1.5

Таблица 2. Некоторые физико-химические параметры фосфатных стекол ГЛС-22 и КНФС-3

Параметр	Значение параметра	
Параметр	ГЛС-22	КНФС-3
Концентрация ионов неодима, 10^{20} ион см $^{-3}$	2	3.5
Плотность, Γ см ⁻³	3.52	2.87 ± 0.03
Температурный коэффициент линейного расширения в интервале температур $20{-}300^{\circ}\mathrm{C}$, $10^{-7}~^{\circ}\mathrm{C}^{-1}$	110	115
Температура трансформации (верхняя температура отжига), $^{\circ}$ С	490	_
Температура деформации, °C	550	_
Термостойкость, °С	38	54 [*]
Модуль упругости (Юнга), 10^{-9} Па	55.8	_
Коэффициент поперечной деформации (коэффициент Пуассона), μ_1	0.28	_
Относительная твердость по сошлифованию (относительно стекла марки К8)	0.32	_
Группа химической активности по воздействию (ГОСТ 13917-82):		
влажной атмосферы	Д	В
— кислоты	3	2
Пузырность		ø до 0.2 мм; до 30 шт кг ⁻¹
ессвильность Свили не до		допускаются

^{*} Расчетная величина

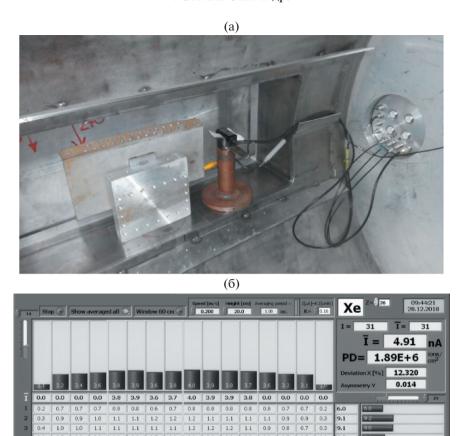


Рис. 3. Облучение образцов фосфатного стекла на пучке ионов ксенона: (а) размещение модуля облучения в патрубке УИО; (б) распределение потока ионов 132 Xe $^{26+}$ перед модулем облучения.

Подготовленные образцы фосфатного стекла были подвержены радиационному воздействию в канале транспорта выведенного пучка ионов 132 Хе $^{26+}$ резонансного циклического ускорителя ИЦ-100 ЛЯР ОИЯИ. Энергия ускоренных ионов ксенона составляла 1.16 МэВ/нуклон. Приблизительный пробег в лавсане 22.5 мкм. Контролируемый по ФЭУ (Нататата Н-10721-110) поток ионов ксенона составил N=1300 частиц с $^{-1}$ см $^{-2}$. Набранная за время экспозиции доза составила $6.2 \cdot 10^4$ частиц см $^{-2}$ при угле 0° относительно нормали к поверхности (первая группа стекол) и $3.1 \cdot 10^4$ частиц см $^{-2}$ при угле 60° (вторая группа стекол) (рис. 3).

Травление образцов первой группы стекол проводилось в 40% p-ре плавиковой кислоты HF при комнатной температуре (~20°С) в несколько этапов. Протравленные образцы после каждого этапа травления были отсканированы на автоматизированном микроскопе измерительного комплекса ПАВИКОМ (ЛЭЧ ФИАН) [6]. Полученные изображения промежуточных результатов травления показаны на рис. 4. Как видно из рис. 4в,

в результате длительного (в течение 7 ч) травления плавиковой кислотой поверхность стекла стравилась на глубину, превышающую глубину треков ионов (треки отсутствуют).

На рис. 5 показаны результаты поэтапного травления образцов второй группы стекол в растворе гидроксида натрия 10N NaOH.

Первые экспериментальные результаты 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.

Второе калибровочное облучение было проведено на ускорителе ИЦ-100 ионами 132 Хе $^{26+}$ с 4 значениями энергий в интервале от 40 до 160 МэВ.

На рис. 6 показаны подготовленные для облучения 15 образцов стекла КНФС-3. Вместе с зафиксированными образцами стекла (образцы 1—11), для контроля количества частиц в пучке обучался кусок лавсановой пленки ПЭТФ толщиной 175 мкм ("свидетель"). Калибровка в двух точках

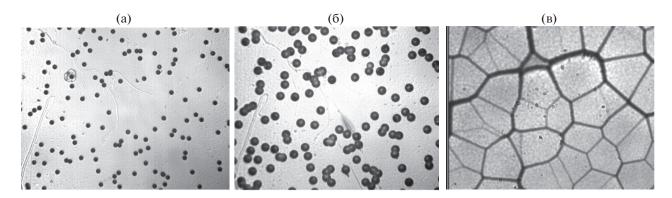


Рис. 4. Изображения поверхности одного из образцов первой группы после травления в плавиковой кислоте в течение: (a) 20 мин, (б) 40 мин, (в) 7 ч при комнатной температуре ($\sim 20^{\circ}$ С). Изображения получены на микроскопе измерительного комплекса ПАВИКОМ с объективом $20 \times$. Размер поля зрения 555×444 мкм.

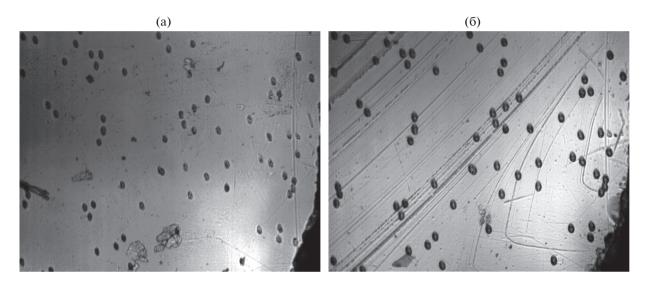


Рис. 5. Изображения поверхности одного из образцов второй группы после травления в гидроксиде натрия в течение: (а) $7 \, \text{ч}$, (б) $9 \, \text{ч}$. Изображения получены на микроскопе измерительного комплекса ПАВИКОМ с объективом $20 \times$. Размер поля зрения $555 \times 444 \, \text{мкм}$.

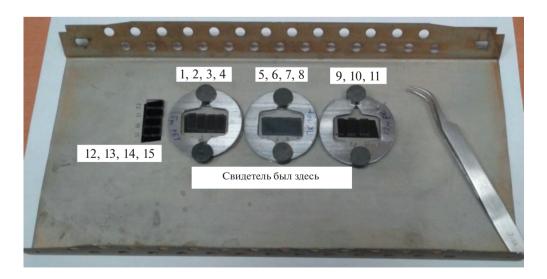


Рис. 6. Подготовленные для облучения 15 образцов стекла КНФС-3.

Энергия, МэВ A^{-1}	Kr	Xe	Rn
0.5	0.0054 ± 0.00015	0.008 ± 0.00012	0.011 ± 0.00016
1	0.0083 ± 0.00017	0.01 ± 0.00017	0.016 ± 0.0004
1.5	0.011 ± 0.00014	0.014 ± 0.00018	0.019 ± 0.00017
2	0.014 ± 0.00015	0.017 ± 0.00013	0.023 ± 0.00013

Таблица 3. Величины пробегов (мм) ядер Kr, Xe и Rn при различных значениях начальной энергии

"свидетеля" показала значение плотности частиц в диапазоне $(5.0-5.1)\cdot 10^4$ частиц см $^{-2}$. Образцы 12-15 облучались отдельно пучками разной интенсивности. Энергии падающих частиц менялись при помощи установки фольги-поглотителя из различных материалов между пучком и облучаемыми стёклами.

Для снижения энергии ионов использовались фольги-поглотители из поликарбоната (O–R–O–CO) и ПЭТФ ($(C_{10}H_8O_4)_n$) разной толщины. Ниже приведены ожидаемые значения энергии ионов (по SRIM — The Stopping and Range of Ions in Solids — комплексная программа, использующая метод Монте-Карло для вычисления взаимодействия ионов с мишенью), соответствующие номерам образцов:

- образцы 1, 2, 3, 4 ПЭТФ 5 мкм (остаточная энергия \sim 100 МэВ);
- образцы 5, 6, 7, 8 поликарбонат 10 мкм (остаточная энергия \sim 65 МэВ);
- образцы 9, 10, 11 ПЭТФ 12 мкм (остаточная энергия \sim 40 МэВ);
- образцы 12, 13, 14, 15 без поглотителя (энергия 160 МэВ).

На всех этапах тестового травления облученных стекол осуществлялась съемка протравленных треков и проводились измерения геометрических размеров и массы образцов стекла и размеров треков (глубины и осей лунок). Результаты измерений представлены на рис. 7. Измерение массы образцов до и после травления проводилось на высокоточных аналитических весах. Для более точного измерения геометрических размеров образцов до и после травления был использован один из микроскопов измерительного комплекса ПАВИКОМ с объективом 8×.

В результате проведенных измерений были получены геометрические размеры лунок треков ионов ¹³²Хе²⁶⁺, протравленных в разных химических растворах при разных интервалах времени травления. В результате последующего запланированного облучения другими ионами будет получена калибровочная кривая зависимости раз-

меров лунок протравленных треков от заряда частицы.

МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОХОЖДЕНИЯ ЧАСТИЦ ЧЕРЕЗ ФОСФАТНЫЕ СТЕКЛА И ОБРАБОТКИ ИЗОБРАЖЕНИЙ ТРЕКОВ ЯДЕР В СТЕКЛЕ ПОСЛЕ ТРАВЛЕНИЯ

На основе программного инструментария GEANT4 сформирован пакет для моделирования прохождения многозарядных частиц через фосфатные стекла. Были получены распределения пробегов ядер Кг, Хе и Rn при различных значениях энергии (табл. 3). Из расчетных данных следует, что величины ширин полученных распределений составляют доли микрон, т.е. они слабо перекрываются, что может способствовать разделению ядер. Однако длина пробега частицы зависит от двух параметров — заряда и энергии частицы. Поэтому для однозначного разделения ядер использование длины пробега должно быть дополнено измерением других характеристик следа, а именно геометрических параметров следа на поверхности стекла.

Для получения ионов различных энергий при облучении образцов использовались фольги-поглотители из поликарбоната (O-R-O-CO) и $\Pi \Im T\Phi$ (($C_{10}H_8O_4$) $_n$) различной толщин. С помощью программного пакета GEANT4 были проведены расчеты энергетических спектров ионов, прошедших через эти поглотители (рис. 8). Полученная средняя энергия будет использована в дальнейшем при моделировании прохождения ионов Xe непосредственно через стекла KH Φ C-3.

Разработана и реализована программа обработки изображений треков заряженных частиц в стекле после травления. С ее помощью выделяются следы треков и определяется их геометрическая форма. 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 облуче-

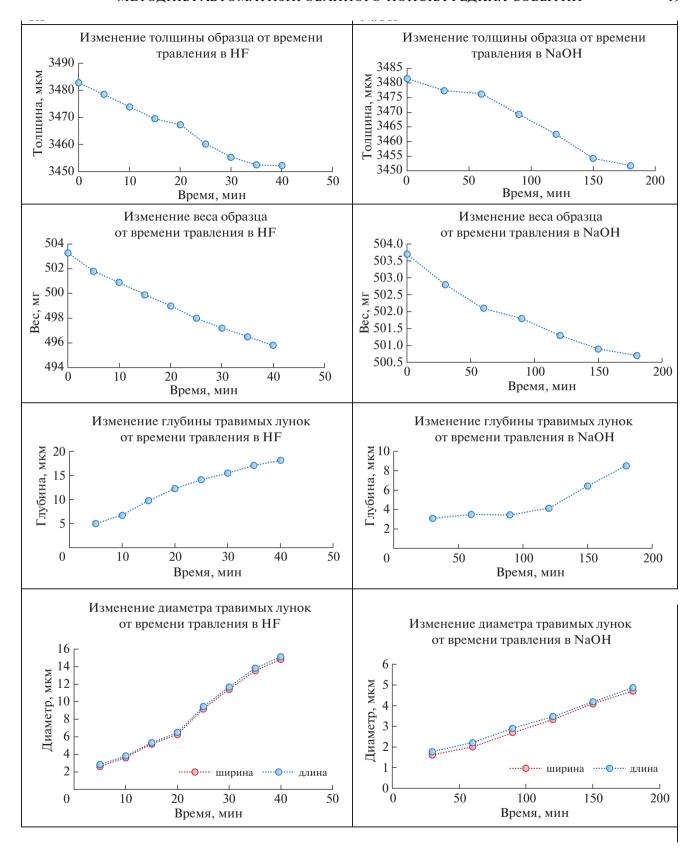
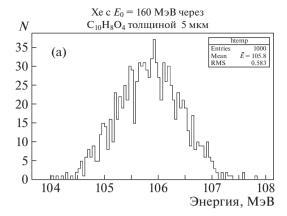
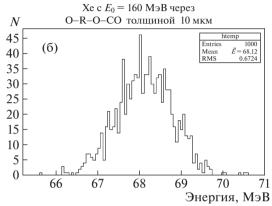


Рис. 7. Данные измерений геометрии и веса образцов стекла и размеров протравленных треков на всех этапах калибровочного травления.





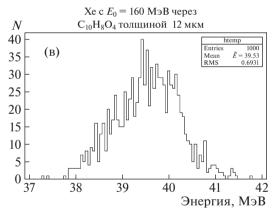


Рис. 8. Расчетные энергетические спектры ядер Xe с начальной энергией 160 МэВ после прохождения (а) ПЭТФ толщиной 5 мкм (образцы № 1—4); (б) поликарбоната толщиной 10 мкм (образцы № 5—8); (в) ПЭТФ толщиной 12 мкм (образцы № 9—11).

нию 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 были обработаны несколько полей зрения в фосфатных стеклах с изображением треков, полученных в результате облучения в ЛЯР ОИЯИ

ионами ксенона с различными энергиями и углами вхождения. Результаты обработки изображений представлены на рис. 9.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведены два тестовых облучения фосфатных стекол марок ГЛС-22 и КНФС-3 ионами ¹³²Хе²⁶⁺ различных энергий на резонансном циклическом ускорителе ИЦ-100 ЛЯР ОИЯИ (всего 21 образец). Осуществлено химическое травление облученных образцов в плавиковой кислоте и гидроксиде натрия при разных режимах. На данном этапе анализа данных, более предпочтительным представляется травление в плавиковой кислоте.

Проведено сканирование и анализ полученных изображений на автоматизированном оптическом микроскопе ПАВИКОМ в ЛЭЧ ФИАН. На основе полученных экспериментальных данных и проведенного анализа установлены предварительные диапазоны оптимальных условий химического травления облученных стекол. Определены геометрические параметры треков ионов, полученных при разных режимах травления. Последующие эксперименты по облучению стекол ионами с другими значениями зарядов и энергий позволят получить калибровочные кривые зависимости размеров лунок треков от этих величин.

Проведено компьютерное моделирование процессов формирования и регистрации треков многозарядных ионов в фосфатных стеклах для разных углов падения частиц, а также анализ обработки изображений треков заряженных частиц в стекле после травления. Создана программа, позволяющая по заданным размерам следов частиц, образовавшихся в стекле в результате травления, показать степень заполнения ими исследуемой поверхности при различных плотностях загрузки. Показано, что наибольшая эффективность регистрации треков тяжелых ионов при сохранении линейности характеристик детектора достигается при плотности облучения не более чем ~10⁵ частиц см⁻².

Основными результатами являются

- заключение о возможности использования фосфатного стекла КНФС-3 для регистрации треков ядер;
- выбранные оптимальные условия химического травления облученного фосфатного стекла;

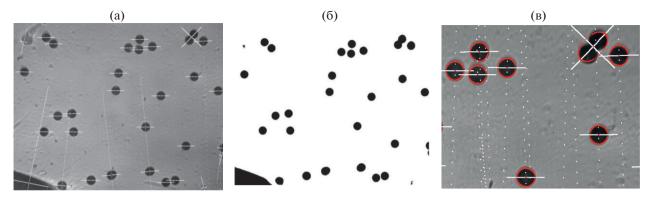


Рис. 9. Результат обработки следов ионов 132 Хе $^{26+}$ с энергией 1 МэВ/А (нормальное падение, стекло ГЛС-22) после травления плавиковой кислотой в течение 20 мин: (а) исходное изображение на микроскопе; (б) результат обработки изображения с помощью разработанной программы; (в) небольшой фрагмент результата обработки. Диаметр следов 12 мкм.

 – пакет программ для автоматизированного измерения размеров протравленных треков ионов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

- Nikolaev V.A. // Tverdotel'nyye trekovyye detektory v radiatsionnykh issledovaniyakh [Solid-State Track Detectors in Radiation Research]. 2012. St. Petersburg: St. Petersb. Politekh. Univ. (in Russian). ISBN 978-5-7422-3530-9.
- 2. *Nikolaev V.A.*, *Perelygin V.P.* // Prib. tekh. eksperim. 1976. V. 19. No. 2. P. 7–17 (in Russian).

- Tret'yakova S.P. // Fiz. elem. chast. atom. yadra. 1992.
 V. 23. No. 2. P. 364–429 (in Russian); Sov. J. Part. Nucl. 1992. V. 23. P. 156.
- Flerov G.N. et al. // Sov. At. Energy. 1970. V. 28. No. 4. P. 390–397. https://doi.org/10.1007/BF01428736
- Aleksandrov A.B. et al. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A. 2004. V. 535. P. 542–545. https://doi.org/10.1016/j.nima.2004.07.280
- 6. *Goncharova L.A. et al.* // Preprint FIAN. 2001. No. 25. P. 1–15 (in Russian).

The Method of an Automated Search for Rare Events of Superheavy Nuclei Decay Using Phosphate Glass Detectors

L. A. Goncharova¹, N. S. Konovalova¹, N. M. Okateva¹, *, and E. N. Starkova¹

¹Lebedev Physical Institute, Russian Academy of Sciences, Leninskiy pr. 53, Moscow, 119991 Russia *e-mail: okatevanm@lebedev.ru

Received June 9, 2020; revised June 30, 2020; accepted July 1, 2020

Abstract—Solid-state track detectors made of glass have been used for detecting fission fragments since the 1960s [1-3]. These detectors are efficient for recording, they are relatively insensitive to light and background beta and gamma radiations, and they have a low own background. The passage of a multicharged ion in a glass creates a hidden image in the form of residual defects along the track of the ion with a width of ~ 10 nm. This hidden image can be detected by chemical etching. In an optical microscope, the etched track is observed as a well of a conical shape with a vertex coinciding with the trajectory of the particle, and with a diameter on the glass surface of the order of 5 to 10 um. Compared to other solid-state detectors of multicharged ions (micas, plastics), glasses have a number of advantages, especially the lack of layering, which prevents the restoration of the full length of the track. We need to note the spectrometric property of glasses, namely, the proportionality of the linear size of the etched defect to the charge of the particle slowing in the detector to a stop. This property allows establishing a relationship between the particle charge and the geometric parameters of the track. In this study we used phosphate glasses as materials for detectors of charged particles. In these glasses, the main glass-forming component is phosphorus pentoxide P_2O_5 . In particular, phosphates were successfully used in 1969 at the LNR JINR in an experiment to search for element 10⁵ by spontaneous fission [4]. Previously we demonstrated a successful implementation of the automated processing of the detected tracks [5]. The aim of this study is to develop an offline method for an automated search for rare events of the decay of superheavy nuclei in order to record multicharged ions and determine their characteristics...

Keywords: phosphate glasses, solid-state track detectors, chemical etching, search for super-heavy nuclei decay