

## МЕТОДИКА ОПРЕДЕЛЕНИЯ СКОРОСТИ ТРАВЛЕНИЯ В ДЕТЕКТОРАХ ИЗ ФОСФАТНОГО СТЕКЛА

Н. Буртебаев<sup>1,2</sup>, К. Аргынова<sup>1,3</sup>, М. М. Чернявский<sup>4</sup>, А. А. Гиппиус<sup>4</sup>,  
Г. В. Калинина<sup>4</sup>, Н. С. Коновалова<sup>4</sup>, Т. Н. Квочкина<sup>1</sup>, М. Насурлла<sup>1,2</sup>,  
Н. М. Окатьева<sup>1,4</sup>, А. Н. Пан<sup>1</sup>, Н. Г. Полухина<sup>1,4</sup>, Ж. Т. Садыков<sup>1,4,5</sup>,  
Т. В. Щедрина<sup>4</sup>, Н. И. Старков<sup>4</sup>, Е. Н. Старкова<sup>1,4</sup>, И. И. Засавицкий<sup>4</sup>

*Представлена методика определения скорости травления фосфатного стекла, облучённого тяжёлыми ионами. Получены количественные оценки скорости травления в области трека и в области неповреждённого материала. Исследования проводятся с целью изучения возможности определения зарядов синтезированных сверхтяжёлых ионов в детекторах из фосфатного стекла для применения на Фабрике сверхтяжёлых элементов Объединённого института ядерных исследований.*

**Ключевые слова:** ускоренные тяжёлые ионы, детекторы из фосфатного стекла, скорость травления.

*Введение.* В Лаборатории элементарных частиц ФИАН, совместно с Лабораторией ядерных реакций ОИЯИ и Институтом ядерной физики Министерства энергетики Республики Казахстан (ИЯФ РК), проводится тестовый эксперимент по использованию фосфатного стекла марки КНФС-3 для регистрации ускоренных тяжёлых ионов [1, 2]. Образцы стекла облучались в транспортном канале ионного пучка резонансного циклического ускорителя ИЦ-100 ЛЯР ОИЯИ и на ускорителе ионов ДЦ-60 ИЯФ РК. При исследовании использовались пучки ионов  $^{40}\text{Ar}^{8+}$ ,  $^{84}\text{Kr}^{17+}$ ,  $^{132}\text{Xe}^{26+}$  различных энергий

<sup>1</sup> Институт ядерной физики, 050032 Казахстан, Алматы, ул. Ибрагимова, 1.

<sup>2</sup> Казахский национальный университет им. аль-Фараби, 050040 Казахстан, Алматы, Проспект аль-Фараби, 71.

<sup>3</sup> Университет им. К.И. Сатбаева, Физико-технический институт, 050032 Казахстан, Алматы, ул. Ибрагимова, 11.

<sup>4</sup> ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: ninakonovalova@yandex.ru.

<sup>5</sup> НИТУ «МИСиС», 119049 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 4.

в интервале от 1 до 2 МэВ/нуклон, приходящие под разными углами к поверхности. Условия облучения в ОИЯИ описаны в [3, 4].

Целью исследований является изучение регистрирующих свойств фосфатного стекла марки КНФС-3 при различных условиях облучения и обработки и возможности идентификации ионов по зарядам. Использование детекторов на основе КНФС-3 планируется в экспериментах по получению синтезированных тяжелых ядер на Фабрике сверхтяжелых элементов ОИЯИ (циклотроне DC-280).

Выбор марки стекла для тестового эксперимента обусловлен двумя причинами. Во-первых, стекло марки КНФС-3 демонстрирует 100% эффективность регистрации ионов с зарядами  $Z > 20$  и с энергиями выше 20 МэВ, т.е. представляющими интерес для указанных экспериментов. Вторым немаловажным фактором является наличие технологической линии для его производства на отечественном предприятии “Лыткаринский завод оптического стекла”. Обработка облучённых образцов проводится в ФИАН. Протравленные образцы исследуются с помощью автоматизированного измерительного комплекса ПАВИКОМ [5], на котором регистрируются треки ионов и определяются их геометрические параметры, связанные с зарядом и энергией частицы.

В статье обсуждаются некоторые методические вопросы эксперимента. Особое внимание уделено процедуре определения скорости травления стекла в области трека  $V_T$  и в области неповреждённого материала  $V_M$ ; приводятся полученные результаты. Эти величины имеют ключевое значение для исследований, поскольку, наряду с геометрическими параметрами треков, используются для оценки заряда падающего иона.

*Выбор режима травления.* Для выбора оптимального режима травления облучённых стёкол были проведены специальные исследования. В качестве травителей тестировались 40% плавиковая кислота HF и 6N раствор гидроксида натрия NaOH. Было установлено, что скорость травления стекла КНФС-3 HF составляет  $20 \pm 2$  мкм/час, что слишком много, учитывая, что пробег ионов не превышает 10 мкм (а если треки идут под углом, то конец трека располагается на ещё меньшей глубине). Скорость травления в 6N NaOH от 1 до 1.5 мкм/час, наоборот, слишком мала и приводит к очень продолжительному травлению. Кроме того, щёлочь в процессе травления оставляет осадок, который может повлиять на результат травления. В результате по таким параметрам, как продолжительность травления (1 час в HF против 5–10 часов в NaOH), стабильность травящего раствора и динамика изменений геометрических параметров треков, для дальнейшей работы был выбран 20% раствор плавиковой кислоты, оптимально соответствующий задачам эксперимента.

*Формирование видимого трека.* При прохождении заряженного иона через диэлектрический детектор возникает радиационное повреждение вещества детектора с нарушением электронных связей, в результате чего формируется латентный трек. Условия образования трека связаны с величиной первичной удельной ионизации или числом электронов на единицу пути, выбитых с оболочек атомов при прохождении иона, и следовательно, зависят от заряда и энергии проникающей частицы. На рис. 1 показаны величины ионизационных потерь ядер Ar, Kr и Xe в фосфатном стекле в зависимости от энергии, полученные с помощью программного комплекса SRIM10 [6]. Красным точкам соответствует энергия 1.25 МэВ/нуклон.

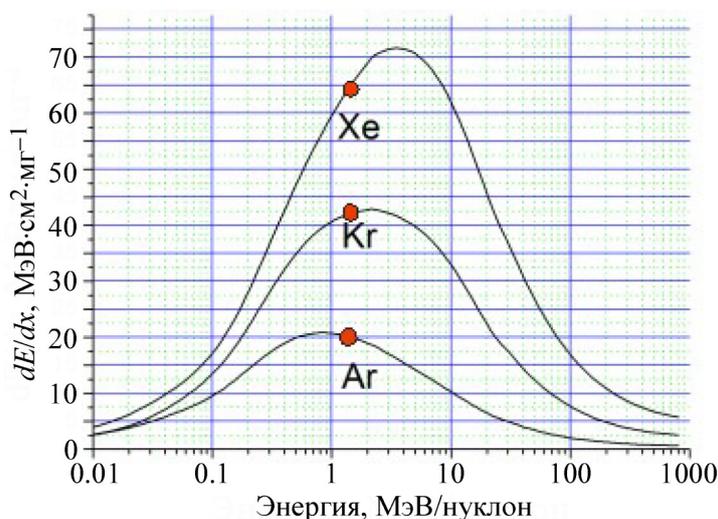


Рис. 1: Ионизационные потери ядер в фосфатном стекле как функция энергии в МэВ на нуклон. Красным точкам соответствует энергия 1.25 МэВ/нуклон.

Радиус области существенных повреждений материала составляет несколько десятков нанометров от траектории частицы. В процессе травления скорость растворения вещества вдоль траектории иона  $V_T$  в этой области в несколько раз превышает скорость растворения неповреждённого материала детектора  $V_M$ .

В результате избирательного травления в области латентного трека образуется протравленный канал в форме конуса с размером основания порядка нескольких микрон, видимый под оптическим микроскопом. До точки остановки иона в стекле травление вдоль канала происходит со скоростью  $V_T$ ; при достижении этой точки дальнейшее травление происходит уже со скоростью  $V_M$ . Угол при вершине конуса зависит от соотношения между скоростями  $V_T$  и  $V_M$ . В случае, когда частица падает перпендикулярно к поверхности стекла, по мере движения фокальной плоскости в глубь образца возника-

ет целый ряд оптических трансформаций, не позволяющих определить, в какой именно момент достигается дно канала. Входное отверстие канала выглядит как тёмный круг, размер которого по мере травления меняется со скоростью, близкой к скорости растворения вещества. По мере смещения фокальной плоскости тёмный круг светлеет, становится ярким, затем в его центре появляется тёмная точка, которая светлеет и размывается.

При падении частицы под углом к поверхности стекла проекция конуса протравленного канала на фокальную плоскость (лунка) имеет форму капли с сужением на конце трека (рис. 2).

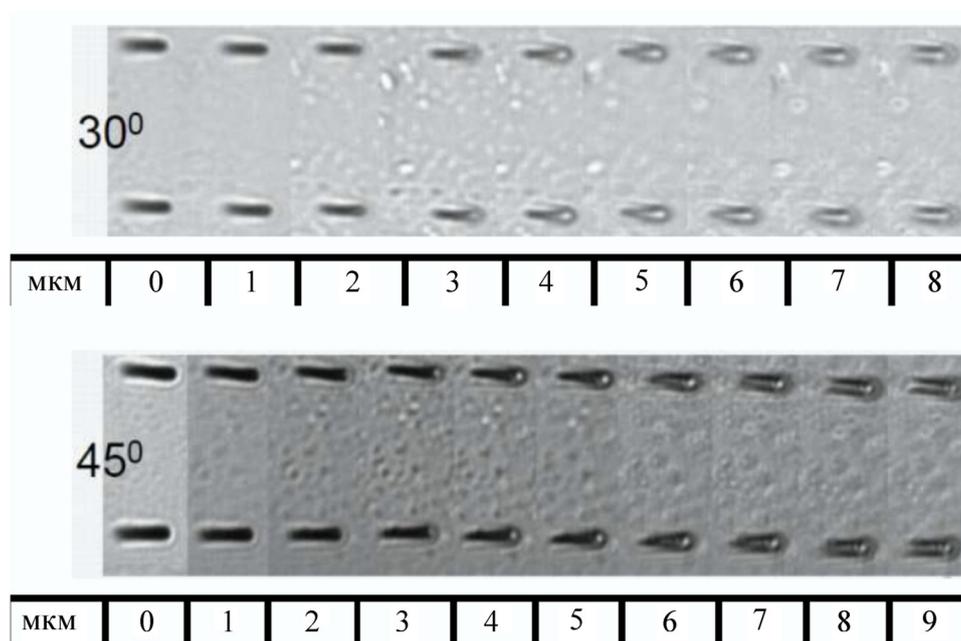


Рис. 2: Изменение формы лунок ионов Хе по мере перемещения фокальной плоскости в глубь стекла. Цифры под изображениями указывают расстояние от поверхности стекла в микронах. Углы падения пучка  $30^\circ$  и  $45^\circ$  к вертикали, энергия пучка  $E = 160$  МэВ.

Длина протравленного канала до точки остановки иона в стекле, определяемая по измеренной длине его проекции на фокальную плоскость с учётом стравленного слоя, соответствует его пробегу в веществе, зависящему от заряда и энергии частицы. Зависимость пробега от энергии в фосфатном стекле для ядер аргона, криптона и ксенона, рассчитанная с помощью программы SRIM10 [6], показана на рис. 3. Красным точкам соответствует энергия 1.25 МэВ/нуклон.

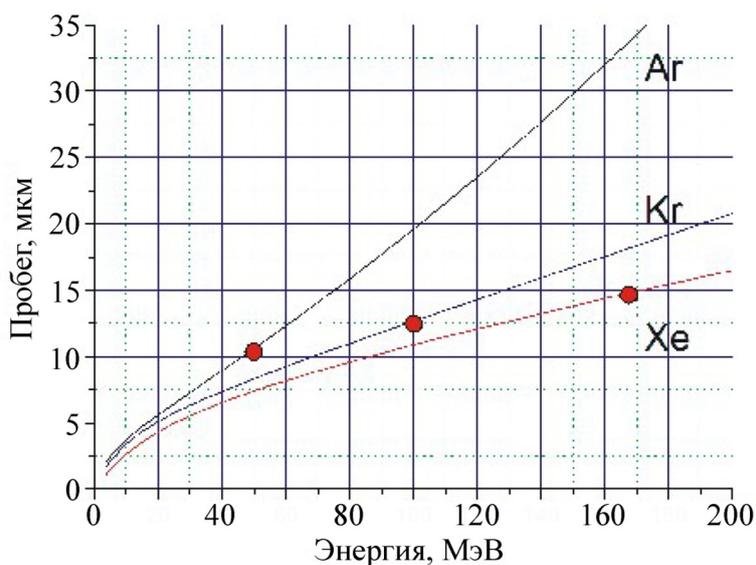


Рис. 3: Пробег ядер в фосфатном стекле как функция энергии. Красные точки соответствуют энергии 1.25 МэВ/нуклон.

Оценка величины стравленного слоя. Для получения полной величины пробега иона в стекле необходимо учесть толщину стравленного слоя. Как показали проведённые исследования, измерение геометрических размеров образца до и после травления при помощи микрометра не даёт достаточной точности, поэтому для получения толщины стравленного слоя  $\Delta H$  определяется изменение массы образца в результате травления  $\Delta M$ . Зависимость  $\Delta H$  от  $\Delta M$  была получена в приближении, что образец представляет собой идеальный прямоугольный параллелепипед, а материал детектора растворяется с одинаковой скоростью со всех граней:

$$\Delta H = \Delta M / [2\rho \cdot (L \cdot D + L \cdot H + D \cdot H)],$$

где  $\rho$  – плотность стекла, а  $L$ ,  $D$  и  $H$  – длина, ширина и высота образца. Измерения массы производились на высокоточных аналитических электронных весах марки AND HG-100AZG с точностью 0.1 мг.

Поскольку толщина стравленного слоя зависит от условий травления, при восстановлении длины трека используется другой параметр, а именно, скорость травления, определяемая как отношение толщины стравленного слоя ко времени травления. В этих исследованиях травление стекла осуществлялось в течение 90–100 мин с шагами по 5 и 10 мин. Было обработано 29 образцов стекла размером  $10 \times 5 \times 3$  мм<sup>3</sup>, облучённых в ЛЯР ОИЯИ и ИЯФ РК.

*Скорость травления материала детектора.* Скорость травления, полученная из разности между массой на текущем шаге травления и исходной массой образца до травления, является усреднённым значением по суммарному времени на текущем шаге.

Результаты измерений показали, что при малых интервалах травления имеют место флуктуации скорости травления, которые в результате усреднения за время 30–40 минут сглаживаются, и среднее значение составляет от 2 до 3 мкм/час. На рис. 4 показаны скорости травления материала для некоторых образцов, полученные в разные моменты травления.

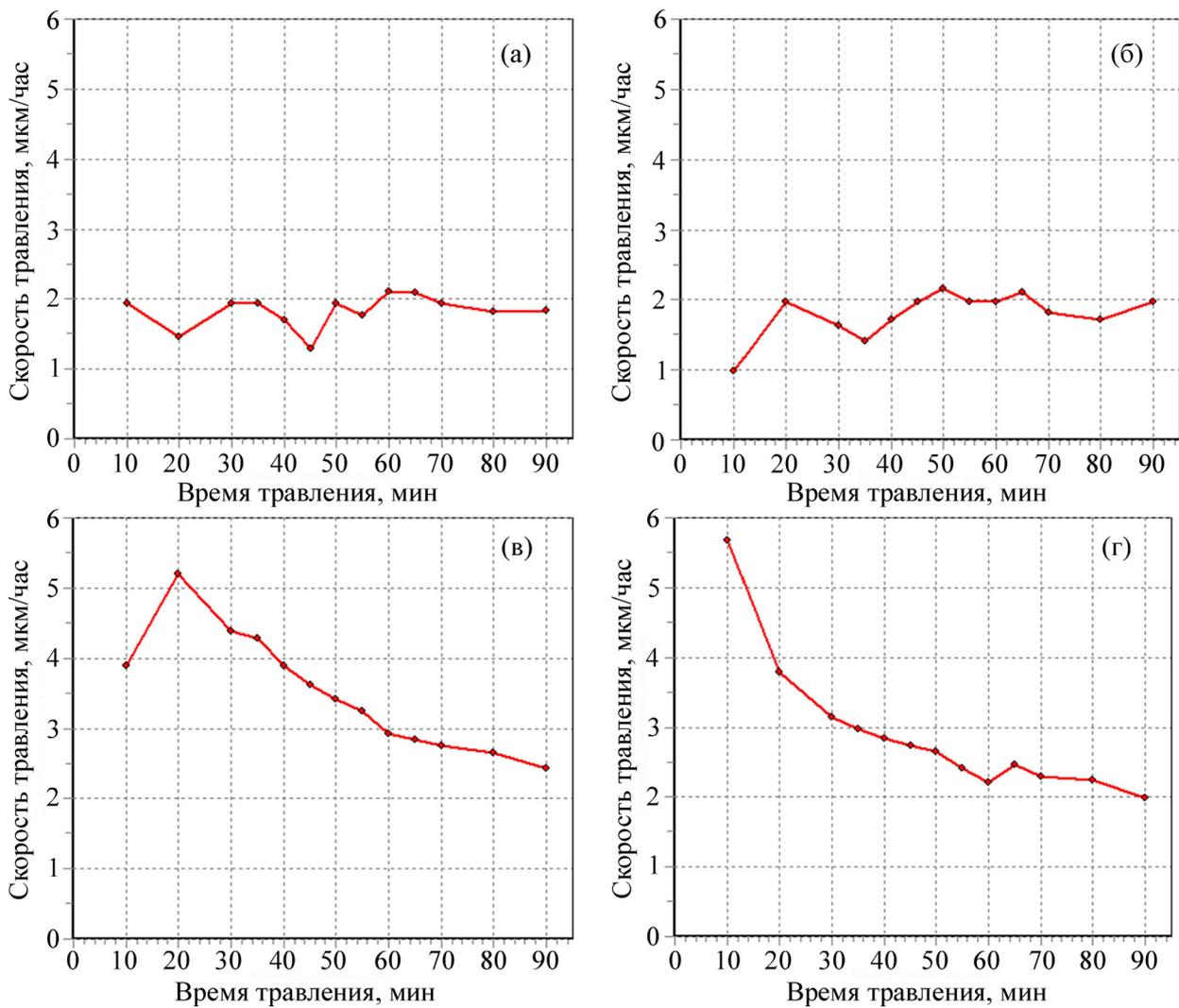


Рис. 4: Скорость травления материала в некоторых образцах в разные моменты травления.

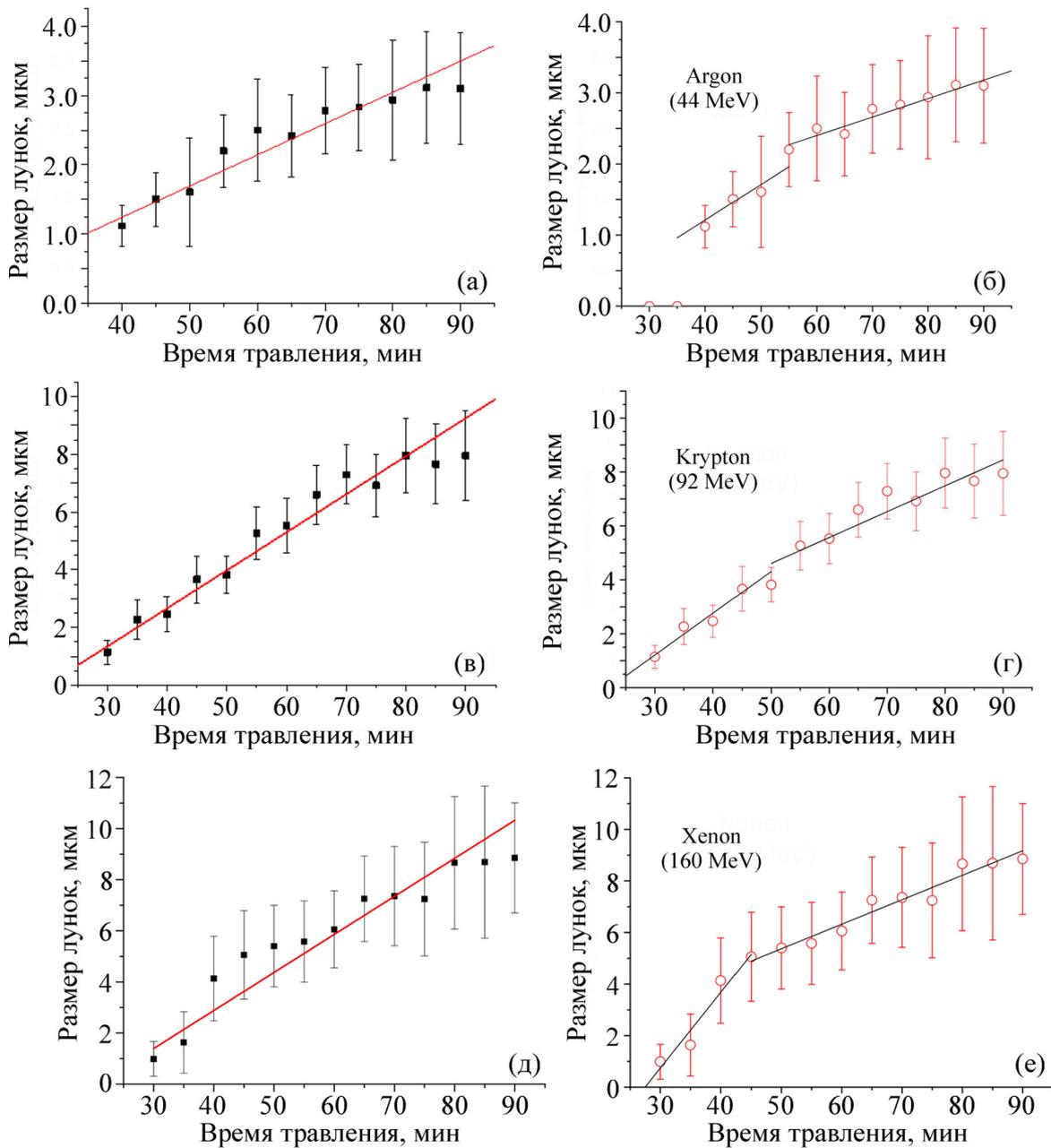


Рис. 5: Зависимости длин проекций каналов (размеров лунок) на фокальную плоскость от времени травления для ионов аргона ((а),(б)), криптона ((в),(г)) и ксенона ((д),(е)). Угол падения ионов  $60^\circ$  к нормали.

Как видно из рис. 4, в ряде случаев эти флуктуации довольно значительные (рис. 4(в),(г)). Причина больших флуктуаций заключается в том, что за время травле-

ния 5–10 мин изменение массы таблетки не превышает 0.1 мг, т. е. находится за пределами точности электронных весов. В результате усреднение имеет смысл на большем интервале времени  $\sim 40$ –50 минут, где у всех обработанных образцов скорость травления плавно стремится к значениям в интервале 2–2.5 мкм/час. Таким образом, можно считать, что величина скорости травления фосфатного стекла КНФС-3 находится в указанном диапазоне, причём результаты травления сходны для таблеток, облучённых в ИЯФ РК (рис. 4(а),(в)) и в ЛЯР ОИЯИ (рис. 4(б),(г)). Для последующих расчётов скорость травления принимается равной 2 мкм/час.

*Оценка скорости травления в области трека.* На рис. 5 показаны зависимости длин проекций каналов на фокальную плоскость от времени травления для трёх разных ионов при полном времени травления 90 мин. Представлены результаты по стёклам, облучённым в ЛЯР ОИЯИ. Зависимости длин проекций каналов (размеров лунок) от времени травления аппроксимированы отрезками прямых, наклон которых соответствует скорости изменения длин проекций и составляет 2.3 мкм/час для аргона, 5.1 мкм/час для криптона и 6.2 мкм/час для ксенона (рис. 5(а),(в),(д)). С учётом величины стравленного за 90 минут слоя 3 мкм и угла падения  $60^\circ$  к нормали, полная протравленная длина каналов составляет 9.4 мкм для аргона, 13.6 мкм криптона и 15.3 мкм для ксенона.

Ход точек на рис. 5 позволяет разбить их на две группы, одна из которых (в области времени травления менее 40–50 мин) имеет более крутой наклон. Наблюдаемый излом, однако, не может быть связан с достижением точки остановки иона, т. к. измеренная длина протравленных каналов существенно меньше пробегов ядер аргона, криптона и ксенона в стекле при рассматриваемых энергиях (10 мкм, 12 мкм и 15 мкм, соответственно). Он может быть связан с повышенной скоростью травления на начальной стадии травления трека.

Аналогичные результаты были получены в результате облучений образцов КНФС-3 ядрами криптона и ксенона с энергиями 1.25 и 1.75 МэВ/нуклон в ИЯФ РК. Скорость изменения длины проекции канала на фокальную плоскость составила 5.3 мкм/час для криптона и 6.2 мкм/час для ксенона.

*Заключение.* Разработана методика определения скорости травления фосфатных стёкол марки КНФС-3, облучённых ускоренными тяжёлыми ионами. Получены количественные оценки скорости травления неповреждённого материала и скорости травления материала в области трека. Результаты, полученные в различных лабораториях по представленному алгоритму, носят аналогичный характер.

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.

## Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] Н. Буртебаев, К. Аргынова, М. М. Чернявский и др., ЖЭТФ **161**(4), 616 (2022). DOI: 10.31857/S0044451022040162.
- [2] K. Argynova, N. Burtebayev, M. M. Chernyavsky, et al., Universe **8**(9), 474 (2022). DOI: <https://doi.org/10.3390/universe8090474>.
- [3] Л. А. Гончарова, Н. С. Коновалова, Н. М. Окатьева, Е. Н. Старкова, Ядерная физика и инжиниринг **11**(1), 12 (2020). DOI: 10.1134/S2079562920010030.
- [4] K. Argynova, N. Burtebayev, M. M. Chernyavsky, et al., Phys. At. Nucl. **84**(6), 866 (2021). DOI: 10.1134/S1063778821060065.
- [5] A. Alexandrov, N. Konovalova, N. Okateva, et al., Measurement **187**, 110244 (2022). DOI: 10.1016/j.measurement.2021.110244.
- [6] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, J. P. Biersack, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **268**, 1818 (2010). DOI: 10.1016/j.nimb.2010.02.091.

Поступила в редакцию 26 августа 2022 г.

После доработки 5 сентября 2022 г.

Принята к публикации 6 сентября 2022 г.