

## ИССЛЕДОВАНИЕ ОСОБЕННОСТЕЙ ТРАВЛЕНИЯ КВАРЦЕВОГО СТЕКЛА, ОБЛУЧЁННОГО ИОНАМИ КСЕНОНА

П. Ю. Апель<sup>1,2</sup>, М. М. Чернявский<sup>1</sup>, А. А. Гиппиус<sup>1</sup>, Г. В. Калинина<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>1,3</sup>,  
Т. В. Щедрина<sup>1</sup>, Н. И. Старков<sup>1</sup>, Е. Н. Старкова<sup>1</sup>, И. И. Засавицкий<sup>1</sup>

*Приводятся первые результаты тестирования оптического кварцевого стекла марки КУ-2 в качестве детектора ускоренных тяжёлых ионов. Результаты травления облучённых стёкол в плавиковой кислоте свидетельствуют о возможности их применения для регистрации сверхтяжёлых ядер и продуктов их распада.*

**Ключевые слова:** оптическое кварцевое стекло, условия регистрации тяжёлых ионов, режимы травления.

*Введение.* В экспериментах по синтезу сверхтяжёлых ядер важнейшее место занимает вопрос об их регистрации и идентификации. Для этих целей могут применяться диэлектрические твердотельные детекторы, в которых под воздействием ускоренных тяжёлых ионов возникают латентные треки в виде остаточных дефектов материала детектора. Для образования видимого трека необходимо, чтобы скорость проникновения травящего раствора в зону радиационных повреждений, т. е. скорость травления вдоль трека, превышала скорость травления неповрежденного материала. В этом случае в результате химического травления на месте латентного трека формируется трек травления, размер которого превышает размеры латентного трека на несколько порядков, и трек становится видимым на оптическом микроскопе.

При такой методике необходимыми свойствами материала детектора являются его прозрачность (для возможности наблюдения треков в проходящем свете на микроскопе) и пропорциональность линейного размера зоны травимых дефектов заряду частицы,

<sup>1</sup> ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: ninakonovalova@yandex.ru.

<sup>2</sup> ОИЯИ, 141980 Россия, Московская обл., г. Дубна, ул. Жолио-Кюри, 6.

<sup>3</sup> НИТУ «МИСиС», 119049 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 4.

замедляющейся в детекторе до остановки. В качестве материала детектора могут использоваться, в частности, различные стёкла и слюды. Авторами статьи была проведена серия исследований, посвящённая вопросу применимости фосфатного стекла марки КНФС-3 для регистрации ускоренных тяжёлых ионов в различных условиях облучения и обработки. Основными направлениями работ были изучение режимов травления [1–3] и возможных фоновых явлений в детекторах вследствие возникновения протравленных треков альфа-частиц с энергиями, характерными для альфа-распада тяжёлых ядер [4]. Однако, поскольку изучаемые фосфатные стекла продемонстрировали изменение характеристик при температурах выше 500 °С, в качестве альтернативы было рассмотрено оптическое кварцевое стекло марки КУ-2.

Кварцевое стекло КУ (оптический плавленый кварц, или fused silica) – это однокомпонентное стекло, состоящее из почти чистого кремнезема (диоксида кремния  $\text{SiO}_2$ ) в аморфной форме. Оптическое кварцевое стекло обладает целым рядом уникальных свойств, отличающих его от других видов стекол. В частности, оно характеризуется высокой механической прочностью, заметно превосходящей прочность других оптических материалов, высокой однородностью и термической стойкостью, а также низким коэффициентом линейного термического расширения. Температура отжига и температура деформации кварцевого стекла превышает 1000 °С, а значения коэффициента термического расширения разных типов кварцевого стекла в области положительных температур варьируются в диапазоне от  $4 \cdot 10^{-7}$  до  $6 \cdot 10^{-7} \text{ K}^{-1}$ . Низкий коэффициент термического расширения объясняет способность кварцевого стекла подвергаться значительным и быстрым перепадам температур без образования трещин.

По сравнению с многокомпонентными силикатными стеклами, оптическое кварцевое стекло имеет более широкую спектральную область прозрачности, в том числе в ультрафиолетовой части спектра, что обусловлено низким содержанием металлических примесей. Кварцевое стекло негигроскопично, устойчиво к действию кислот (кроме фосфорной и плавиковой) и относится к числу материалов с высокой радиационно-оптической устойчивостью. Благодаря этим свойствам кварцевое стекло находит широкое применение в технике и используется для исследований в области радиационной физики, физики твердого тела и спектроскопии.

Аббревиатуры марок кварцевого стекла обозначают зависимость его свойств от способа производства и содержания примесей, и таким образом указывают на различие оптических характеристик, соответствующих пропусканию на разных длинах волн.

Стекло марки КУ пропускает излучение в ультрафиолетовом и видимом диапазонах спектра.

*Некоторые химические свойства кварцевого стекла КУ-2.* Обладая высокой устойчивостью к воздействию подавляющего числа кислот и солей, значительно превосходящей устойчивостью к этим реагентам других известных оксидных стекол, оптическое кварцевое стекло имеет примерно тот же уровень щелочеустойчивости, что и многие другие химико-лабораторные стекла, особенно в высококонцентрированных щелочных растворах. Существенное влияние на разрушение кварцевых стекол щелочными растворами оказывают примеси посторонних веществ в этих растворах (таких, как хлориды бериллия и кальция). Поиме щелочных растворов, кварцевое стекло относительно быстро разрушается в горячей фосфорной кислоте и особенно легко – в растворах плавиковой (фторводородной) кислоты HF.

На рис. 1 показана зависимость толщины слоя кварцевого стекла, удаленного с поверхности кварцевого стекла, от времени травления в растворах HF разной концентрации [5]. (Для сравнения, при 92.5 °С за 3 часа глубина разрушения кварцевого стекла в 5 н NaOH составляет 3 мкм.)

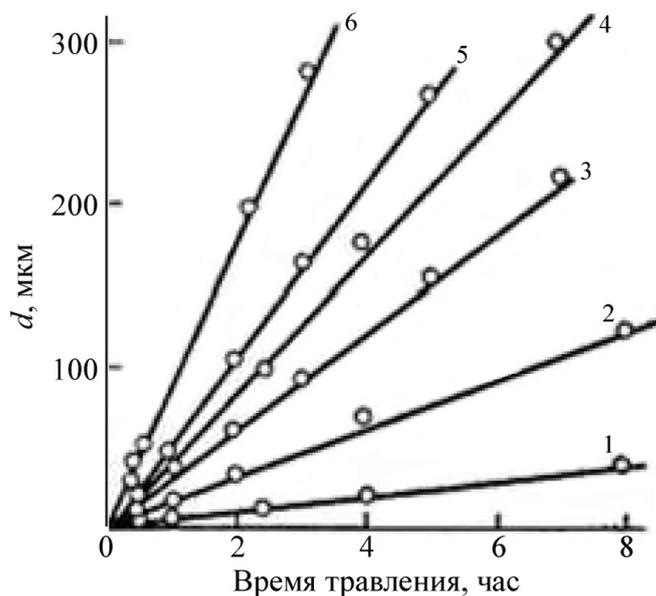


Рис. 1: Толщина  $d$  стравленного слоя кварцевого стекла в зависимости от концентрации раствора и времени травления в плавиковой кислоте при комнатной температуре [5]. Концентрация травящего раствора HF: 1 – 10%, 2 – 20%, 3 – 32.5%, 4 – 35%, 5 – 38%, 6 – 45%.

*Проведённые исследования и их результаты.* Задачей представленных исследований была проверка возможности использования оптического кварцевого стекла в качестве детектора ускоренных тяжёлых ионов. При прохождении заряженных частиц через вещество они создают локальные повреждения структуры материала. В результате химического травления эти повреждения образуют полый канал, характеристики которого зависят от заряда прошедшей частицы и её энергии. Одновременно с травлением материала в зоне канала травливается некоторый слой с поверхности стекла, толщину которого необходимо учитывать при определении длины протравленного трека.

Для тестовых испытаний было подготовлено 14 образцов кварцевого стекла марки КУ-2, произведенного на Гусевском стекольном заводе им. Дзержинского. Плотность стекла  $2.2 \text{ г/см}^3$ , коэффициент линейного термического расширения  $5.7 \cdot 10^{-7} \text{ К}^{-1}$ . Каждый образец размером  $10 \times 5 \times 4 \text{ мм}^3$  был отполирован с двух сторон с помощью окиси церия с абразивностью 50 нм (рис. 2).



Рис. 2: Образец кварцевого стекла КУ-2 размером  $10 \times 5 \times 4 \text{ мм}^3$ , подготовленный для облучения.

На первом этапе исследований тестировалась устойчивость стекла к травлению в плавиковой кислоте с использованием 10 необлучённых образцов. Для сравнения с результатами других экспериментов были проведены сеансы травления необлучённых образцов растворами с концентрацией 2.5%, 10%, 20% и 40%. Сравнение результатов данного исследования (точки с ошибками) с результатами других экспериментов (см. [5]) демонстрирует хорошее согласие (рис. 3), что подтверждает правильность выбранной процедуры травления.

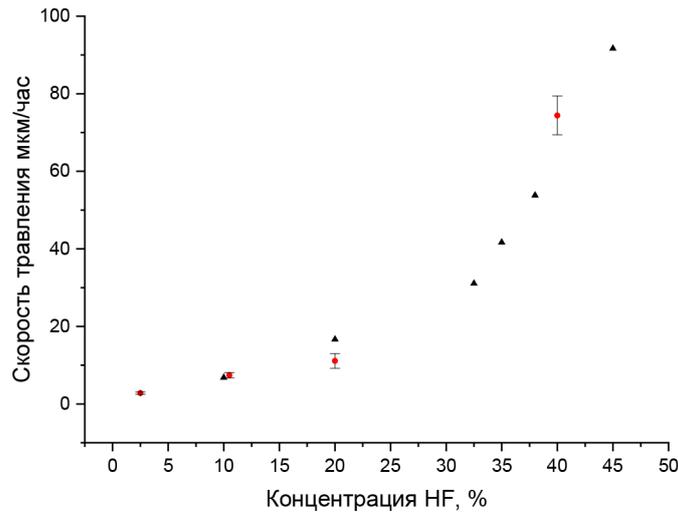


Рис. 3: Зависимость скорости травления кварцевого стекла от концентрации раствора плавиковой кислоты HF. Точки с ошибками – результат данного исследования; точки без ошибок взяты из [5].

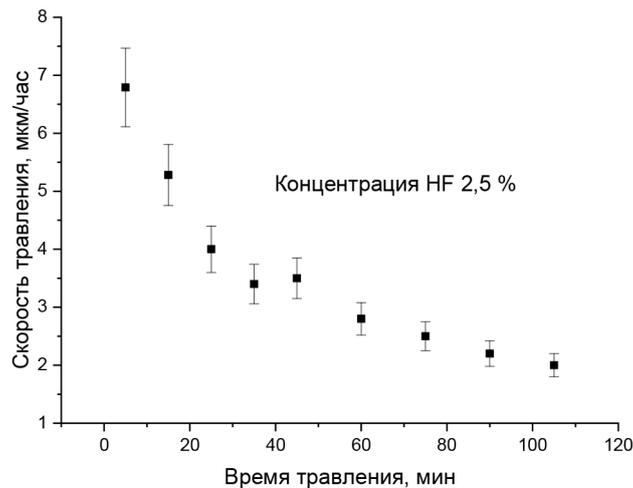


Рис. 4: Скорость травления необлучённых образцов оптического кварцевого стекла КУ-2 в 2.5% растворе плавиковой кислоты HF при разных интервалах травления.

На рис. 4 показаны измеренные значения скорости травления в 2.5% растворе HF, определённой при разных интервалах времени травления. Представленная зависимость демонстрирует нерегулярное поведение скорости травления. На начальных этапах травления измеренная скорость достаточно высокая, 6–8 мкм/час (обычно такая скорость достигается при концентрации 10%), однако затем она выходит на насыщение, дости-

гая величины 2.5–3 мкм/час после 1 часа травления (рис. 4). Этот результат позволяет оценить оптимальное время травления при данной концентрации травящего раствора.

*Определение скорости травления в области треков.* Для исследования протравленных треков образцы кварцевого стекла были облучены под углом  $45^\circ$  пучком ионов  $^{132}_{26+}\text{Xe}$  с энергией  $E_{\text{Xe}} = 160$  МэВ, полученном на резонансном циклическом ускорителе ИЦ-100 Лаборатории ядерных реакций им. Г. Н. Флерова Объединённого института ядерных исследований (ЛЯР ОИЯИ). Травление облучённых образцов осуществлялось в растворе плавиковой кислоты с концентрацией 2.5% в общей сложности в течение трёх часов. Первые шаги по времени травления составляли 5 минут, а после 35 минут они были увеличены до 10 минут и более. Следы частиц не наблюдались вплоть до 20 минут травления, а начиная с этого времени стали видны под микроскопом и увеличивались в размерах вплоть до конца травления. То есть после 20 минут скорость травления трека иона, падающего под углом  $45^\circ$ , превысила скорость травления неповреждённого материала.

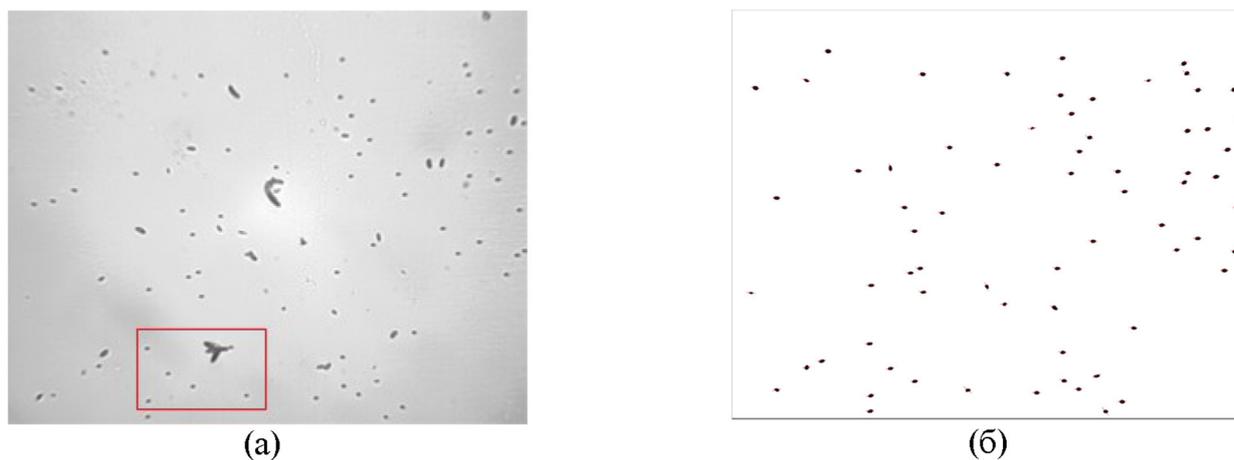


Рис. 5: (а) изображение треков ионов Хе с энергией 160 МэВ и углом падения  $45^\circ$  на поверхности стекла при увеличении  $40\times$ . Размер поля зрения  $1280 \text{ мкм} \times 1024 \text{ мкм}$ . Прямоугольником обозначена область изображения, обсуждаемая далее, см. рис. 8; (б) результаты кластеризации изображения, приведённого на рисунке (а); 1 мкм соответствует 4.6 пикселей.

На рис. 5(а) представлено изображение одного поля зрения поверхности образца, облучённого ионами Хе с энергией 160 МэВ, после травления в течение 30 минут. Для вычисления длины протравленного канала на каждом этапе травления измерялась длина проекции трека на изображении в микроскопе и определялась величина стравленного

слоя стекла. Величина стравленного слоя вычислялась на основе изменения массы образца на каждом шаге травления [2]; длина проекции трека определялась с помощью программных средств, разработанных в ЛЭЧ ФИАН для обработки изображений [6]. На рис. 5(б) приведены результаты компьютерной обработки изображения, приведённого на рис. 5(а), на этапе кластеризации.

Полная длина протравленного трека на данном шаге травления, отсчитываемая от непротравленной поверхности образца, включает видимую в микроскоп часть трека  $L$  и его проекцию на поверхность стекла  $l$ , а также часть, которая содержалась в стравленном к этому моменту слое стекла  $l'$  толщиной  $dZ$  (рис. 6). Эта величина может быть получена по формуле

$$L_{tot} = l' + L = \frac{dZ}{\cos(\theta)} + \frac{l}{\sin(\vartheta)}, \quad (1)$$

где  $dZ = V_{\text{трав}} \cdot t$  – величина стравленного слоя стекла,  $\vartheta$  – угол падения частицы,  $V_{\text{трав}}$  – скорость травления стекла. Геометрический смысл величин  $l'L$  и  $l$  пояснён на рис. 6.

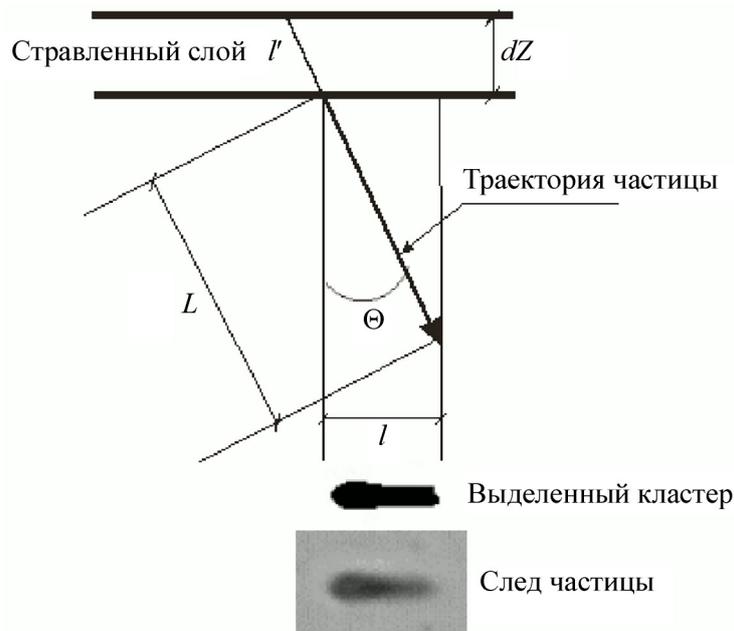


Рис. 6: Схема вычисления полной длины трека на определённом шаге травления.

На рис. 7 приведена зависимость длин проекций треков от времени травления. Каждая точка получена в результате обработки от 100 до 150 треков. Излом в области времени травления 105 мин может объясняться тем, что достигнута точка остановки иона.

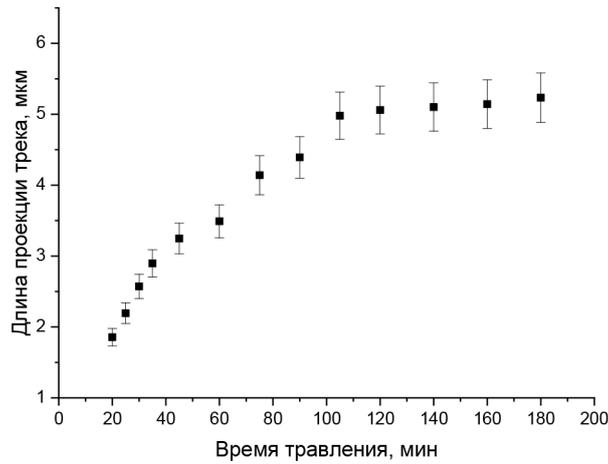


Рис. 7: Зависимость длин проекций треков от времени травления для ионов Хе с энергией  $E_{\text{Хе}} = 160$  МэВ.

В табл. 1 показаны значения полной длины трека  $L_{\text{tot}}$  и скорости его травления  $V_{\text{трав}}$ , полученные на основе измеренных величин с использованием формулы (1) для травления в течение 45 и 105 минут в 2.5% растворе плавиковой кислоты. Изменение длины проекции трека при временах более 105 минут показано на рис. 7.

Т а б л и ц а 1

Некоторые геометрические и динамические параметры треков ионов Хе, протравленных в 2.5% плавиковой кислоте в течение 45 и 105 мин

Время, мин	$l$ , мкм	$dZ$ , мкм	$L_{\text{tot}}$ , мкм	$V_{\text{трав}}$ , мкм/ч
45	$3.1 \pm 0.3$	$3.4 \pm 0.3$	$9.1 \pm 0.9$	$12.1 \pm 1.2$
105	$5.3 \pm 0.5$	$3.9 \pm 0.4$	$10.46 \pm 1.4$	$10.5 \pm 1$

В результате измерений была получена оценка средней скорости травления треков ионов Хе с энергией 160 МэВ в оптическом кварцевом стекле при использовании 2.5% раствора плавиковой кислоты, составившая  $V_{\text{трав}} = 11.2 \pm 0.6$  мкм/час. Эта оценка очевидно превышает скорость травления основного материала в травителе той же концентрации (принимая значения от 3 до 8 мкм/час), что является необходимым условием для формирования видимого трека в материале детектора. Полученный результат свидетельствует о возможности использования кварцевого стекла представленной марки в качестве детектора тяжёлых ионов, однако требует дальнейших исследований при облучении образцов под различными углами и набора большей статистики.

Предложен ещё один алгоритм вычисления скорости травления трека, основанный на измерении скорости движения проекции конца трека по отношению к объекту, неподвижному на изображении. На рис. 8 представлен фрагмент изображения протравленных треков ионов ксенона с энергией 160 МэВ. На фрагменте имеется постороннее включение, присутствующее на изображении на протяжении всего сеанса травления. Согласно измерениям после 20 минут травления расстояние между правым краем верхнего кластера (метка В на рис. 8) и левым краем пятна (метка А) составляет 143 пикселя, а при 60 минутах – 119 пикселей. В результате измеренная скорость движения конца трека относительно неподвижного фрагмента составляет 24 пикселя за 40 минут травления или 36 пикселей за час, что соответствует скорости  $7.8 \pm 0.4$  мкм/час. С учетом угла падения ионов  $45^\circ$  измеренная таким образом скорость травления составляет  $V = 11.1 \pm 0.5$  мкм/час, что согласуется с величиной, полученной предыдущим методом (см. табл. 1). По результатам обоих методов, средняя скорость травления трека в оптическом кварцевом стекле оценивается как  $V = 11.2 \pm 0.6$  мкм/час.

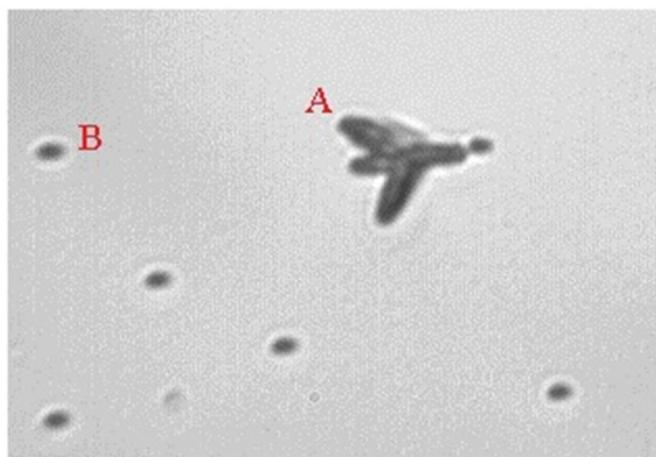


Рис. 8: Фрагмент изображения, использованный для вычисления скорости травления трека.

*Заключение.* Представленные результаты тестирования оптического кварцевого стекла для регистрации ускоренных тяжёлых ионов (в данном исследовании ионов  $^{132}_{26+}\text{Xe}$  с энергией  $E_{\text{Xe}} = 160$  МэВ) показывают, что это стекло обладает основным свойством, необходимым для формирования видимого трека, а именно: превышением скорости травления в области трека над скоростью травления основного материала ( $11.2 \pm 0.6$  мкм/час против 8 мкм/час). Результаты, полученные при травлении в 2.5% растворе плавиковой кислоты, дают основания для дальнейшего тестирования

оптического кварцевого стекла как возможного детектора в экспериментах по синтезу сверхтяжёлых ядер на ускорителе.

Работа поддержана Российским научным фондом по программе “Проведение фундаментальных научных исследований и поисковых научных исследований отдельными научными группами” (проект № 23-12-00054).

#### Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] N. Burtabayev, M. Chernyavskiy, A. Gippius, et al., *Universe* **8**(9), 474 (2022). DOI: 10.3390/universe8090474.
- [2] Н. Буртебаев, К. Аргынова, М. М. Чернявский и др., *Краткие сообщения по физике ФИАН* **49**(10), 69 (2022). DOI: 10.3103/S1068335622100062.
- [3] Н. Буртебаев, К. Аргынова, М. М. Чернявский и др., *Краткие сообщения по физике ФИАН* **50**(4), 20 (2023). DOI: 10.3103/S106833562304005X.
- [4] М. М. Чернявский, А. А. Гишпиус, Г. В. Калинина и др., *Краткие сообщения по физике ФИАН* **50**(6), 13 (2023). DOI: 10.3103/S1068335623060027.
- [5] В. К. Лeko, О. В. Мазурин, *Свойства кварцевого стекла* (Л., Наука, 1985).
- [6] Н. Г. Полухина, *УФН* **182**, 656 (2012). DOI: 10.3367/UFNе.0182.201206g.0656.

Поступила в редакцию 22 января 2024 г.

После доработки 10 марта 2024 г.

Принята к публикации 11 марта 2024 г.