

A-763

4473 / 2-78

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ  
ДУБНА



13 - 11611

П.Ю.Апель, С.П.Третьякова

ИЗУЧЕНИЕ ПРОЦЕССА ТРАВЛЕНИЯ  
СЛЕДОВ ТЯЖЕЛЫХ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ  
КОНДУКТОМЕТРИЧЕСКИМ МЕТОДОМ

**1978**

13 - 11611

П.Ю.Апель, С.П.Третьякова

ИЗУЧЕНИЕ ПРОЦЕССА ТРАВЛЕНИЯ  
СЛЕДОВ ТЯЖЕЛЫХ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ  
КОНДУКТОМЕТРИЧЕСКИМ МЕТОДОМ

*Направлено в ПТЭ*



Апель П.Ю., Третьякова С.П.

13 - 11611

Изучение процесса травления следов тяжелых заряженных частиц кондуктометрическим методом

Предложена кондуктометрическая методика исследования процесса травления следов тяжелых заряженных частиц в полимерном пленочном детекторе, основанная на измерении электрического сопротивления детектора при травлении. Приводятся формулы, описывающие зависимость электропроводности детектора от времени его химической обработки для случаев, когда в детекторе имеется один сквозной трек или произвольное их число. Показано, что при известной скорости травления материала детектора можно по результатам кондуктометрических измерений оценить число сквозных отверстий, разброс во времени их образования и продольную скорость травления следов заряженных частиц. Даны результаты применения данной методики в исследовании кинетики химического травления следов высокоэнергетичных ионов  $^{16}\text{O}$ ,  $^{40}\text{Ar}$ ,  $^{132}\text{Xe}$  в полиэтилентерефталатной (лавсановой) пленке толщиной 6-12 мкм.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Преприят Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1978

Apel P.Yu., Tretyakova S.P.

13 - 11611

Investigation of Track Etching Process by the Conductometric Method

The conductometric method of the investigation of track etching process in plastic filmy detectors, based on measurement of electrical resistance of detector during etching is proposed. Equations are given which express the dependence of electric conductance of the detector on etching time for the cases when there is one penetrating track in the detector or any of them. It is shown that for the known bulk etching rate of detector material a number of penetrating holes, unsimultaneity of breakthrough of pores and the etching rate along the tracks of heavy charged particles can be estimated from the conductometric measurement data. The results obtained by applying this method to the investigation of chemical etching kinetics of tracks of high energy  $^{16}\text{O}$ ,  $^{40}\text{Ar}$ ,  $^{132}\text{Xe}$  ions in 6-12  $\mu\text{m}$  polyethyleneterephthalate (lavsan) film are given.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1978

## ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время большой интерес вызывают исследования закономерностей процесса травления треков тяжелых заряженных частиц в диэлектрических материалах. С этим связаны проблемы идентификации компонентов космических лучей, получения массового и энергетического распределений осколков тяжелых ядер, создания микрофильтров при помощи пучков тяжелых ионов.

Традиционным методом исследования при изучении кинетики травления треков и подсчете их числа является наблюдение детектора с помощью оптического или электронного микроскопа. В<sup>1/5</sup> был предложен кондуктометрический способ определения времени образования сквозных пор в облученной осколками деления калифорния поликарбонатной пленке по уменьшению ее электрического сопротивления при травлении.

Цель настоящего эксперимента состояла в разработке и апробации данной методики для изучения процесса травления лавсановой пленки.

## 1. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Травление детекторов проводилось в кондуктометрической ячейке, конструкция которой представлена на рис. 1. Исследуемый образец полимерной пленки 1, облученной тяжелыми ионами, являлся изолирующей перегородкой между левой 2 и правой 3 частями камеры травления, в которых находились платиновые или никелевые электроды 4 и 9.

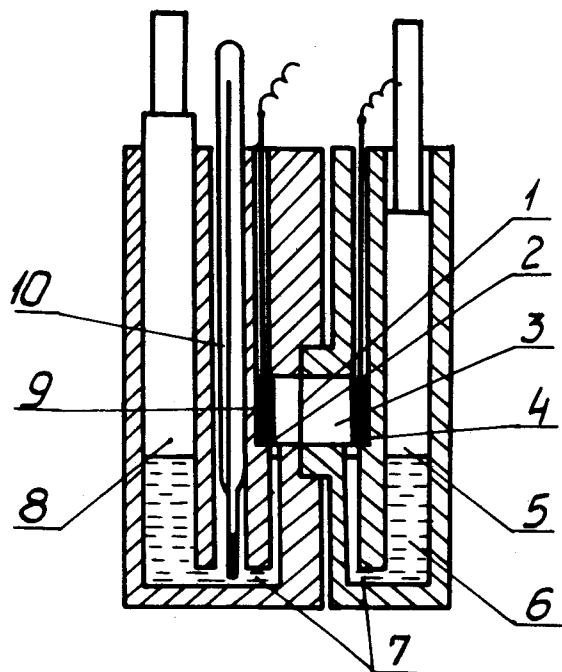


Рис. 1. Схема кондуктометрической ячейки. 1 - пленочный детектор; 2,3 - левая и правая половины камеры травления; 4,9 - электроды; 5,8 - поршни; 6 - раствор для травления; 7 - каналы для подачи раствора в камеру травления; 10 - термометр.

Ячейка помещалась в термостат, и раствор 6 по достижении необходимой температуры переводился в камеру травления с помощью поршней 5 и 8 через каналы 7. Объем камеры достаточен для того, чтобы расход щелочи на химическую реакцию с детектором практически не менял исходной концентрации травителя.

Все детали ячейки, за исключением электродов, выполнены из тефлона. Применение специальных вкладышей позволяло менять площадь травления образца от  $0,3 \text{ см}^2$  до  $4,8 \text{ см}^2$ .

Электрическая схема установки для измерения сопротивления ячейки в процессе травления представлена на рис. 2а. Измерительная цепь питается от источника переменного напряжения /звукового генератора/. По па-

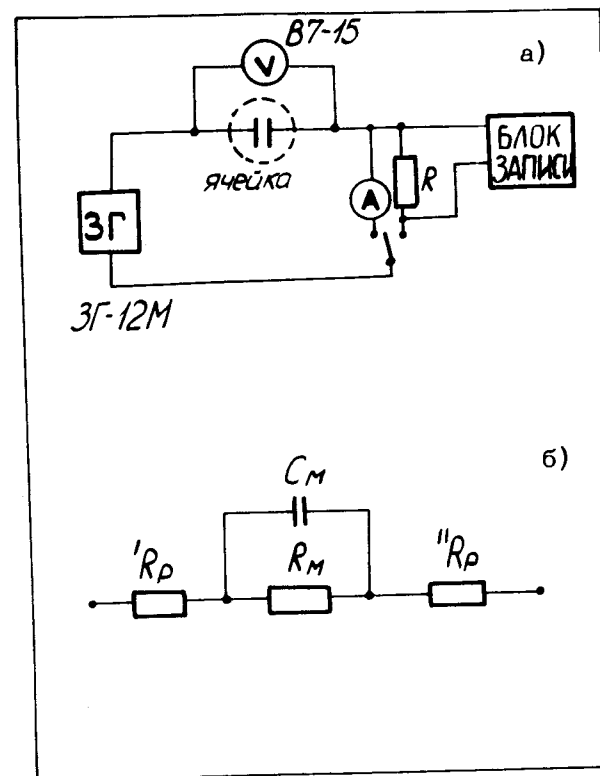


Рис. 2а а/ Схема измерения сопротивления кондуктометрической ячейки при травлении.

б/ Электрическая эквивалентная схема ячейки с мембраной.

дению напряжения на ячейке и величине тока в цепи можно регистрировать меняющееся сопротивление в интервале  $10 - 10^7 \text{ Ом}$ . Блок записи представляет собой самописец с согласующим устройством.

Эквивалентная схема участка электрической цепи электрод - раствор - образец - раствор - электрод изображена на рис. 2б. В начальный момент травления - активное сопротивление лавсановой пленки  $R_M > 10^{12} \text{ Ом}$ , а сопротивление раствора  $R'_p + R''_p$  имеет величину  $3 - 10 \text{ Ом}$ , и во многих случаях им можно пренебречь.

Травление пленки с поверхности и образование в ней ямок травления в принципе должно приводить к увеличению емкости участка раствор - образец - раствор. Однако измерение постоянной времени цепи в процессе травления показало, что емкостная составляющая сопротивления остается практически неизменной, а наблюдаемое уменьшение сопротивления происходит за счет активной составляющей  $R_M$ , что можно связать с образованием сквозных пор.

На ячейку подавалось напряжение  $2 V$ , что не приводило к нагреванию раствора в порах <sup>/2/</sup>.

## 2. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ И ОБСУЖДЕНИЕ

### а/ Травление одного трека

Рассмотрим сквозной трек в полимерной пленке, перпендикулярный к ее поверхности. После травления он представляет собой фигуру, состоящую из двух конусов, входные диаметры которой при условии  $V_T \gg V_{пл}$  к моменту времени  $t$  определяются по формуле <sup>/3/</sup>

$$D_{вх} = 2V_{пл} \cdot t, \quad /1/$$

а диаметр в наиболее узкой части

$$D_{вн} = 2V_{пл} (t - t_1), \quad /2/$$

где  $V_T$  - продольная скорость травления трека,  $V_{пл}$  - скорость травления полимера,  $t_1$  - время сквозного травления трека.

Электрическое сопротивление раствора, заполняющего объем трека, определяется следующим выражением:

$$R = \int_0^{\ell} \frac{1}{\kappa} \cdot \frac{dx}{S(x)}. \quad /3/$$

Здесь  $\kappa$  - удельная электропроводность раствора,  $\ell$  - толщина пленки,  $S(x)$  - площадь поперечного сечения трека на расстоянии  $x$  от поверхности пленки.

Вычисляя интеграл <sup>/3/</sup> с учетом <sup>/1/</sup> и <sup>/2/</sup>, получаем выражение для проводимости раствора в треке в момент времени  $t$ :

$$g_i(t) = \begin{cases} \pi \kappa V_{пл}^2 t(t-t_1)/\ell, & t \geq t_1 \\ 0, & t < t_1 \end{cases}$$

или, что то же самое,

$$g_i(t) = \pi \kappa V_{пл}^2 t(t-t_1)\theta(t-t_1)/\ell, \quad /5/$$

где

$$\theta(t-t_1) = \begin{cases} 1, & t \geq t_1 \\ 0, & t < t_1 \end{cases}. \quad /6/$$

Справедливость формулы <sup>/5/</sup> проверялась непосредственными измерениями. В лавсановой пленке, толщиной 6 мкм, облученной осколками спонтанного деления ядер <sup>244</sup>Cm, для травления выделялся участок с одним перпендикулярным к поверхности треком по методике, описанной в работе <sup>/4/</sup>. После ультрафиолетового облучения детектор помещался в ячейку, сопротивление которой в процессе травления измерялось прибором В7-15. Большая величина сопротивления одной поры  $/10^6 - 10^9 \text{ Ом}/$  позволила использовать в данном опыте постоянный ток.

На *рис. 3* представлены кривые зависимости рассчитанного и измеренного в процессе травления электросопротивления раствора в треке от времени травления. Первая точка измерения сопротивления мембраны соответствует 0,2 мин с начала падения сопротивления. За  $t_1$  при расчете принимается время, измеренное с начала травления до начала падения сопротивления. Использованное при расчете значение  $V_{пл}$  в 6н растворе NaOH при 23°C находилось по уменьшению толщины пленки при длительном травлении. Удовлетворительное совпадение экспериментальной и расчетной кривых подтверждает предположение, на котором основывался вывод формулы <sup>/5/</sup>: диаметр трека растет во времени линейно, начиная примерно от 20Å в его наиболее узкой части, и скорость травления стенок канала трека равна скорости травления пленки с поверхности. Более низкое по сравнению с расчетным значение сопротивления в на-

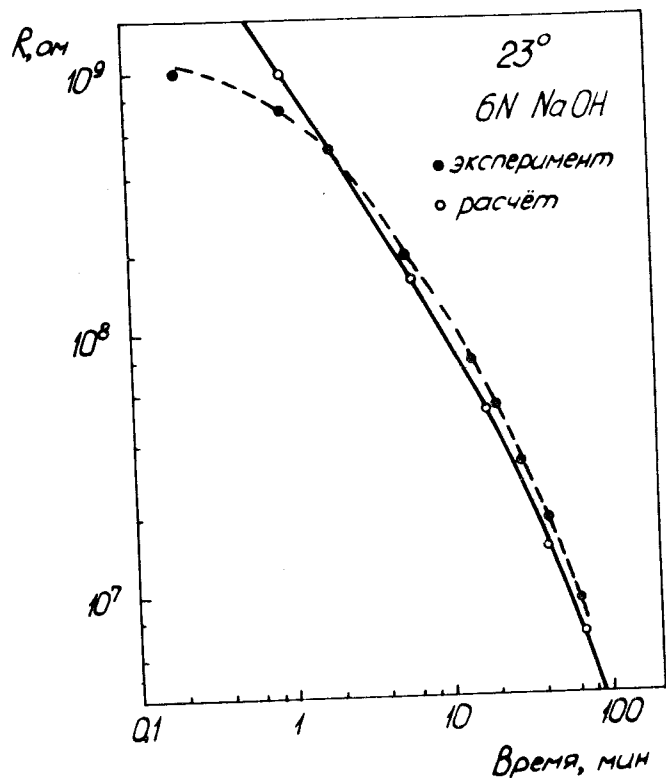


Рис. 3. Изменение сопротивления детектора с одним треком осколка деления ядра  $^{244}\text{Cm}$  при травлении.

чальный момент образования сквозного канала, по-видимому, связано с более быстрым растворением сердцевины трека, состоящей из сильно разрушенного материала.

#### б/ Травление набора треков

Рассмотрим случай, когда в мембране имеется  $N$  треков тяжелых заряженных частиц одного вида. Проводимость мембраны при травлении в момент  $t$  складывается

ся из проводимостей  $n$  сквозных пор, образовавшихся к данному моменту времени:

$$g(t) = \sum_{i=1}^{i=n} g_i(t). \quad /7/$$

Подставляя в /7/ выражение /5/ для  $g_i(t)$ , получаем

$$g(t) = \sum_{i=1}^{i=n} \pi \kappa V_{\text{пл}}^2 t (t - t_i) \theta(t - t_i) / \ell. \quad /8/$$

Дифференцируя дважды по времени и учитывая, что

при  $t_n < t < t_{n+1}$  имеет место соотношение  $\sum_{i=1}^{i=n} \theta(t - t_i) = n$ ,

приходим к формуле, позволяющей находить число пор в любой момент травления:

$$n = (\ell / 2 \pi \kappa V_{\text{пл}}^2) \frac{d^2 [1/R(t)]}{dt}. \quad /9/$$

На рис. 4 представлены результаты измерения в процессе травления сопротивления пленок, облученных различными ионами, и результаты обработки кривых  $R(t)$  с помощью формулы /9/. При рассмотрении зависимостей  $n(t)$  виден разброс во времени сквозного травления треков заряженных частиц в полимерной мембране, который можно объяснить рядом причин: немоноэнергетичностью пучка частиц, флуктуациями потерь энергии в полимере, неоднородностью свойств и толщины пленки.

#### в/ Определение скорости травления вдоль трека

Для нахождения  $V_T$  используется среднее значение времени сквозного травления  $t_c$ , которое определяется как время, необходимое для открывания половины общего числа пор:

$$V_T = \ell / 2 t_c. \quad /10/$$

$V_T$  представляет собой величину, усредненную по  $N$  треков и по толщине пленки;  $V_T$  тем ближе к истинной скорости травления для данной частицы с определенной

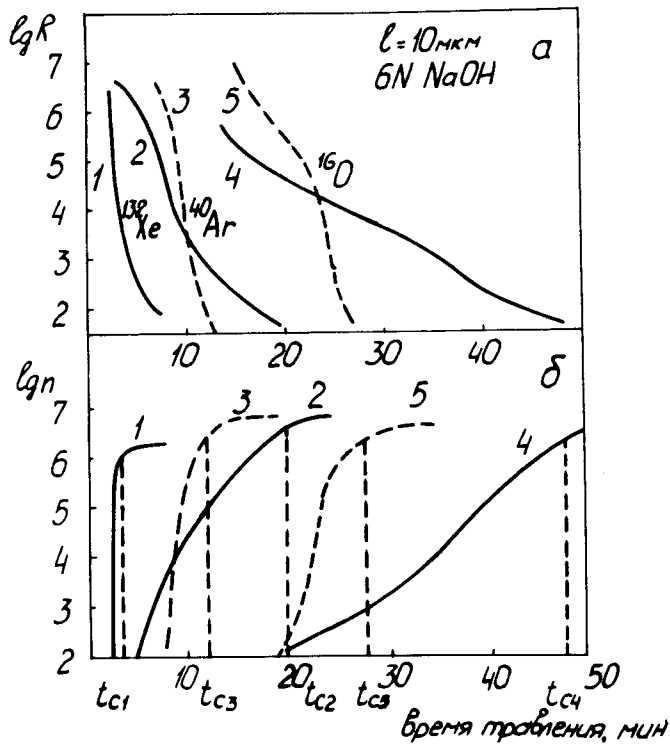


Рис. 4. а/ Зависимости сопротивления детекторов, облученных ионами  $^{132}\text{Xe}$ ,  $^{40}\text{Ar}$  и  $^{16}\text{O}$ , от времени травления. Плотность облучения  $10^6 - 10^7$  треков/ $\text{см}^2$ . 1 -  $^{132}\text{Xe}$  /  $E = 1$  МэВ/нукл./, 2 -  $^{40}\text{Ar}$  /  $E = 5,5$  МэВ/нукл./, 3 -  $^{40}\text{Ar}$  /  $E = 2,0$  МэВ/нукл./, 4 -  $^{16}\text{O}$  /  $E = 3,0$  МэВ/нукл./, 5 -  $^{16}\text{O}$  /  $E = 1,0$  МэВ/нукл./. Условия травления: детекторы, облученные  $^{132}\text{Xe}$  и  $^{40}\text{Ar}$ , обрабатывались в 6N растворе  $\text{NaOH}$  при  $50^\circ\text{C}$ , а облученные  $^{16}\text{O}$  - при  $55^\circ\text{C}$ . б/ Рассчитанные кривые нарастания числа сквозных треков при травлении.

энергней, чем тоньше используемый детектор, т.е. меньше изменение  $dE/dx$  вдоль зафиксированного в детекторе участка трека. Скорость травления  $V_T$  определяется с точностью  $\pm 10\%$ ; погрешность определения числа сквозных пор не превышает  $20\%$ .

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Представлена кондуктометрическая методика измерения продольной скорости травления треков тяжелых заряженных частиц в пленочных детекторах в пределах от 0 до 5  $\mu\text{мкм}/\text{мин}$  с точностью  $10\%$ , и плотности треков на единице площади детектора непосредственно в процессе травления, что важно в случае, когда невозможен подсчет треков с помощью оптического микроскопа /при  $N > 10^6 \text{ см}^{-2}$ /. Метод позволяет находить разброс во времени образования сквозных пор, что представляет интерес в связи с проблемой создания микрофильтров с диаметрами пор на уровне  $100\text{Å}$ . Метод удобен для изучения влияния различных факторов на скорость травления треков заряженных частиц в пленочных детекторах.

В заключение авторы выражают благодарность академику Г.Н.Флерову, В.А.Щеголеву за постановку задачи и внимание к работе, Ю.С.Замятину за ценные советы и полезные обсуждения.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Crawford W.T., De Sorbo W., Humphrey J.S. Nature. 1968, 220, p.1313.
2. DeBlois R.W., Bean C.P. Rev.Sci.Instr., 1970, 41, p.909.
3. Hasegan D. Proc. 8th Int. Conf. Nuclear Photography and Solid State Track Detectors, 1972, Bucharest, v.1, p.213.
4. Перельгин В.П. и др. ОИЯИ, P7-9551, Дубна, 1976.

Рукопись поступила в издательский отдел  
29 мая 1978 года.