

510/1-77

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА



СЗЧЧ.1у
Т-666

7 - 10143

С.П.Третьякова, Л.В.Джолос

ДЕТЕКТОРЫ ТЯЖЕЛЫХ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ
НА ОСНОВЕ ФТОРОПЛАСТОВ

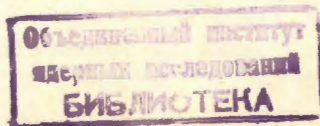
1976

7 - 10143

С.П.Третьякова, Л.В.Джолос

ДЕТЕКТОРЫ ТЯЖЕЛЫХ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ
НА ОСНОВЕ ФТОРОПЛАСТОВ

Направлено в ПТЭ



Третьякова С.П., Джолос Л.В.

7 - 10143

Детекторы тяжелых заряженных частиц на основе фторопластов

Исследована возможность использования фторопластов в качестве детекторов. Показано, что некоторые виды фторопластов могут быть использованы для регистрации тяжелых заряженных частиц, определен порог чувствительности детекторов. Изучалось влияние температуры на детектирующие свойства и определялась химическая стойкость детекторов.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований
Дубна 1976

Полимерные материалы на основе фторорганических соединений представляют большой интерес по своим химическим и физическим (термическим и механическим) свойствам, обусловленным своеобразием строения этих полимеров^{/1/}. Замещение атомов водорода атомами фтора приводит к значительному изменению конфигурации полимерной цепи.

Во-первых, энергия связи углерод-фтор больше энергии связи углерод-водород, при этом в присутствии атомов фтора повышается и энергия связи соседних углеродных атомов. Во-вторых, вандерваальсов радиус атомов фтора значительно больше, чем атомов водорода (1,44 Å у фтора; 1,1-1,2 Å у водорода), в результате этого вандерваальсово отталкивание между несвязанными атомами в перфторалканах, том числе и в высокомолекулярных, оказывается сильнее, чем в углеводородах. Основной углеродный скелет перфторалканов, таким образом, имеет не плоскостной характер, а спиралевидный. В зависимости от температуры повторяющаяся единица политетрафторэтилена состоит из 13-15 CF₂-групп с периодом идентичности 16,8-19,5 Å. На этом расстоянии цепь претерпевает поворот на 180°C. Валентный угол C-C-C составляет примерно 116° при 19°C и несколько увеличивается с ростом температуры. В результате закручивания углерод-углеродной цепи политетрафторэтилена образуется почти идеальный цилиндр с внешней оболочкой из атомов фтора^{/2,3,4/}. Подобные структурные особенности, но с некоторыми

отклонениями, связанными с конкретным строением звена, характерны для всех фторполимеров. Именно они определяют уникальное сочетание свойств этого полимера, в том числе его химическую стойкость. Все это послужило основой выбора данного класса полимеров для использования их в качестве детекторов заряженных частиц.

Представляется интересным определить детектирующие свойства различных фторопластов, отличающихся своим строением и молекулярным весом.

С этой целью в качестве детекторов заряженных частиц были опробованы следующие марки фторопластов: Ф-1, Ф-2, Ф-2М, Ф-42, Ф-40, Ф-23, Ф-26, Ф-3, Ф-30, Ф-4МБ, Ф-10 и Ф-100^{1/}. Образцы фторопластов использовались в виде прессованных пластин размером 100x100x1,2 мм. Изучение проводилось по 2 направлениям:

1. Определялась регистрирующая способность фторопластов по отношению к осколкам деления ядер.

2. Устанавливалась пороговая чувствительность фторопластов к тяжелым заряженным частицам.

В первом случае детекторы облучались осколками деления ядер урана, а во втором - многозарядными ионами кислорода, неона, серы, аргона, кальция, хрома, германия, криптона, ксенона под разными углами на ускорителе Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ. Энергия ионов изменялась от 1 до 6 МэВ/нуклон. Известно, что при прохождении через полимер тяжелой заряженной частицы вдоль ее траектории материал образца сильно разрушается и может быть удален обработкой соответствующими травителями. Для того, чтобы был виден след частицы в полимере, необходимо, чтобы скорость травления самого полимера была значительно ниже скорости травления его разрушенной части. По теоретическим данным, размеры разрушенной области для одного и того же полимера зависят от энергии и заряда частиц и колеблются в районе 50 - 100 ангстрем^{4/}.

В качестве травителей использовались:

- 1) насыщенный раствор перманганата калия;
- 2) 25%-ный раствор перманганата калия в 10%-ном водном едком натре;
- 3) 20%-ный раствор едкого натра;
- 4) 25%-ный раствор перманганата калия в 20%-ной водной серной кислоте.

Кислотный травитель дал отрицательный результат.

Продолжительность травления варьировалась от 7 до 120 ч при температуре 90-110°C. Травление осуществляли в тефлоновом стаканчике с завинчивающейся крышкой, обеспечивающей герметичность. Наблюдение и измерение характеристик трека проводилось с помощью оптического микроскопа МБИ-3 с увеличением от 100 до 1350X. При изучении регистрирующих свойств детекторов определялась эффективность регистрации фторопластов, для этого в качестве мишени использовался точно калиброванный тонкий слой урана (12,5 мкг/см²). Контрольным слоем служила слюда мусковит, эффективность регистрации осколков деления ядер которой хорошо известна и близка к 100%-й. Для определения пороговой чувствительности были построены расчётные кривые зависимости удельных потерь энергии от типа и энергии частиц^{5/} (рис. 1). По изменению вида частиц и их энергии (с помощью алюминиевых поглотителей) определялись минимальные потери энергии частиц, при которых удалось с помощью травления в указанных режимах получить видимое в оптический микроскоп изображение трека частицы.

На рис. 2 приведены микрофотографии треков различных ионов с энергией 1 МэВ/нуклон в фторопластах различных типов. Характеристики детектирующих свойств исследованных видов фторопластов приведены в таблице.

Как видно из приведенных данных, в качестве детекторов заряженных частиц могут быть использованы все марки фторопластов за исключением Ф-4МБ, полностью фторированного полимера, содержащего только атомы углерода и фтора.

Таблица

Свойства фторопластов

Тип фторопласта	Режим травления	Эффективность регистр. осколков деления ядер %	Порог чувств. МэВ/см ² /мг	Кривость, %	Характеристика детектора
1	2	3	4	5	6
Ф-1 п. 62	III, 132 час 100°C	80	7		Очень хороший спектр длин треков, вид треков удовлетворителен
Ф-10 п. 6	I, 100°C, 28 час II, 104°C, 17 час	32,6	12,5	50-70	Спектр длин треков очень широкий, вид трека удовлетворит.
Ф-100 п. 13	I, 100°C, 28 час II, 104°C, 17 час	80	12,5	25-30	То же, что выше (Ф-10)
Ф-2	I, 100°C, 30 час II, 97°C, 18 час III, 97°C, 95 час.	30	20	60-65	Спектр длин треков широкий, вид треков удовлетворительный, поверхность имеет много вclusions, трещин, царапин.
Ф-2М	I, 100°C, 9 час II, 97°C, 8 час III, 99°C, 74 час	80	12,5	35-45	Детектор хороший
Ф-23 п. 58.	I, 100°C, 28 час II, 104°C, 18 час III, 99°C, 74 час	81	7		Спектр длин треков очень хороший, вид треков удовлетворит. Сильно адсорбирует КМnO ₄ .
Ф-26 п. 278	I, 100°C, 7 час II, 97°C, 9 час III, 104°C, 24 час	80	12,5		Плохая поверхность, пластик потрескался, треки "лохматые", труден для просмотра.
Ф-30 п. 301	I, 100°C, 28 час II, 104°C, 17 час	-	12,5	кристаллы	Детектор хороший
Ф-40Б	I, 100°C, 66 час II, 104°C, 26 час	100	12,5	80	Детектор хороший
Ф-40ЛД п. 645	I, 100°C, 28 час II, 104°C, 26 час	100	7	40	Детектор хороший
Ф-40П п. 90	I, 100°C, 21 час II, 104°C, 26 час	100 100	7		" "

1	2	3	4	5	6
Ф-4МБ п. 8396	I, 100°C, 100 час II, 104°C, 100 час III, 100°C, 120 час	-	-	-	Треков нет
Ф-42 п. 264	I, 100°C, 8 час II, 97°C, 28 час	100	12,5	45-60	Детектор хороший, на поверхности встречаются трещины
Ф-42А	I, 100°C, 9 час II, 97°C, 9 час III, 99°C, 74 час	84,4		"	Детектор хороший
Ф-42Б	I, 100°C, 9 час II, 97°C, 9 час III, 99°C, 74 час	100		"	" "
Ф-42В	I, 100°C, 9 час II, 97°C, 9 час III, 99°C, 74 час	93		"	" "
Ф-42Л	I, 100°C, 9 час II, 97°C, 9 час III, 99°C, 74 час	100		"	" "
Ф-42	I, 100°C, 9 час	62,4		"	" "

- X) I - насыщенный раствор КМnO₄,
 II - насыщенный щелочной раствор КМnO₄,
 III - 20% водный раствор NaOH.

Наилучшие значения эффективности регистрации показали образцы фторопластов марок Ф-42, Ф-2М, Ф-40, Ф-23. Порог чувствительности исследованных образцов, как следует из полученных результатов, очевидно, зависит от строения элементарного звена полимера^{16/}. Так, сополимеры одинакового элементного состава, фторопласты Ф-2 и Ф-40, обладают различным порогом чувствительности: наибольшим у Ф-40 и наименьшим у Ф-2. Остальные фторопласты занимают промежуточное положение.

Для изучения влияния молекулярной массы на регистрирующую способность фторопластов были использованы образцы Ф-42, Ф-2М, Ф-2МБА, Ф-2, изготовленные из различных фракций с узким молекулярно-массовым распределением.

Полученные данные свидетельствуют об улучшении детектирующей способности Ф-42, Ф-2, Ф-2М, Ф-2МБА с увеличением молекулярной массы, наблюдается также улучшение качества треков: трек становится менее "лохматым", лучше сохраняет геометрические размеры и форму. Установленная зависимость, очевидно, связана с увеличением разницы в скорости травления высокомолекулярной (сам полимер) и деструктированной вдоль трека части полимера.

С целью изучения влияния кристалличности фторопластов на их детектирующую способность были получены образцы фторопласта-2, различающиеся по содержанию кристаллической фазы в 1,5 - 2 раза. Из полученных данных можно сделать вывод, что увеличение содержания кристаллической фазы влечет за собой только увеличение продолжительности процесса травления. Форма треков опробованных образцов не зависит от их кристалличности. По-видимому, увеличение аморфной фазы благоприятствует проникновению травителя в образец, что и облегчает (ускоряет) процесс травления.

Было проверено влияние термоокислительной деструкции на качество детекторов. С этой целью образцы фторопласта Ф-2М (Ф-2) до облучения были прогреты на воздухе при 125°C в течение 8 часов. Травление облученных после термостарения образцов показало, что вид треков резко меняется: они становятся "лохматыми", искаженной формы. Механизм этого процесса не совсем ясен, но можно предположить, что пиролиз фторопласта Ф-2М (Ф-2) приводит к появлению в полимере большого количества двойных сопряженных связей $-C=C-C=C-$, которые оказываются, очевидно, менее стойкими к действию заряженных частиц и травителя. В результате наблюдается образование размытых, не-

четких треков, а общий фон образца резко темнеет. На рис.3 представлены микрофотографии следов ионов ксенона, зарегистрированных в непрогретых (а) и прогретых (б) образцах фторопласта Ф-2, Ф-2М, Ф-42.

Образцы фторопластов Ф-2, Ф-42, Ф-2М и Ф-40 были испытаны на химическую стойкость к концентрированным кислотам (соляной, серной, фтористоводородной, азотной), щелочам (натриевой и калиевой), органическим растворителям (ацетон, четыреххлористый углерод, циклогексанол, толуол, диоксан, пропиловый спирт). Обработка фторопластов проводилась при комнатной температуре в течение 144 часов, после чего проверялся вес и геометрические размеры образца. Далее образцы подвергались облучению и травлению, как описано выше. Свойства фторополимеров и детекторов на их основе не изменились, за исключением свойств образцов Ф-2, Ф-42 и Ф-2М, обработанных ацетоном (растворились). При использовании исследуемых фторополимеров в качестве детекторов заряженных частиц большое внимание необходимо уделять состоянию поверхности образцов, так как трещины, царапины, включения затрудняют просмотр.

Было отмечено увеличение скорости травления и изменение длины и формы треков, расположенных в царапинах. Последнее, очевидно, связано с изменением структуры образца. На рис.4 представлена микрофотография следов ионов ксенона, зарегистрированных в царапине фторопласта Ф-42. Время травления треков в царапине значительно меньше, чем по остальной площади.

Таким образом, в результате экспериментов была установлена возможность использования фторопластов в качестве детекторов заряженных частиц. Разработанные режимы травления облученных фторопластов позволяют выявлять треки заряженных частиц и усиливать их до размеров, видимых в оптическом микроскопе. Повышение молекулярной массы полимеров улучшает качество детекторов, а снижение кристалличности фторопласта облегчает процесс травления. Порог чувствительности фторопластов Ф-1, Ф-2, Ф-2М, Ф-42, Ф-23,

Ф-26, Ф-30, Ф-40, Ф-10, Ф-100 к заряженным частицам лежит в интервале от 7 до 20 МэВ·см²/мг в зависимости от типа полимера, что позволяет проводить дискриминацию заряженных частиц, подбирая определенный тип фторопласта.

Разработанный класс детекторов имеет низкий собственный фон делящихся ядер, поэтому их можно использовать в условиях высокого нейтронного фона, чем они выгодно отличаются от детекторов из кварца, слюды и стекла, у которых собственный фон на несколько порядков выше.

Высокая химическая стойкость фторопласта позволяет регистрировать события деления в сильно агрессивных средах с высокой эффективностью.

Фторопластовые детекторы могут быть использованы в космических экспериментах по изучению тяжелой компоненты космических лучей, радиобиологии, физических экспериментах, проводимых на ускорителях и ядерных реакторах.

В заключение авторы выражают глубокую признательность Ю.А.Паншину, Н.Н.Логиновой, Л.Я.Мадорской за изготовление и представление в наше распоряжение большого числа образцов фторопластов, а также за полезные советы и обсуждения.

Авторы благодарят Г.Н.Флерова и Ю.Ц.Оганесяна за постоянное внимание к работе, а также коллектив циклотрона У-300 за помощь в проведении экспериментов по облучению детекторов заряженными частицами.

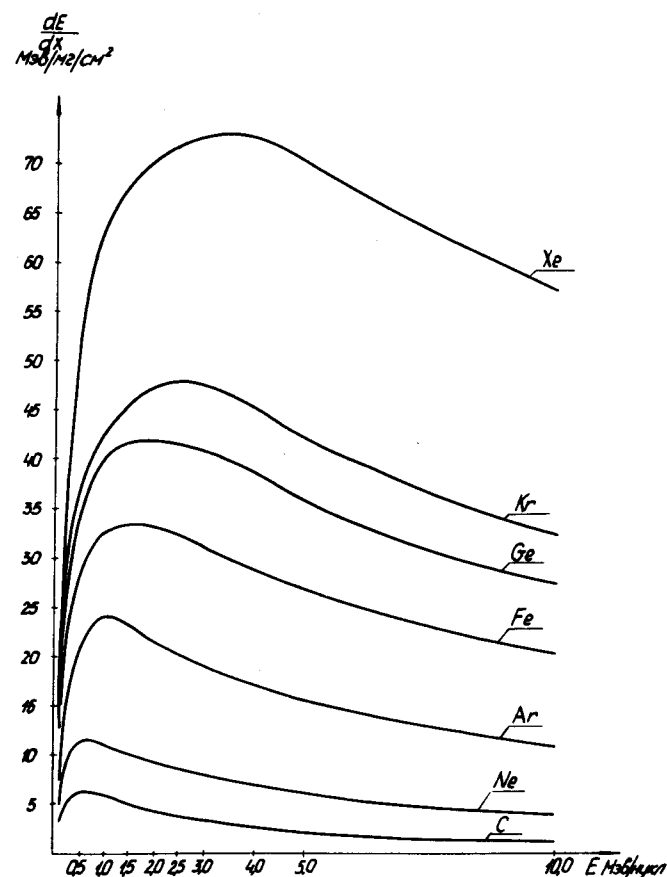


Рис. 1. Зависимости удельной потери энергии от энергии ионов.

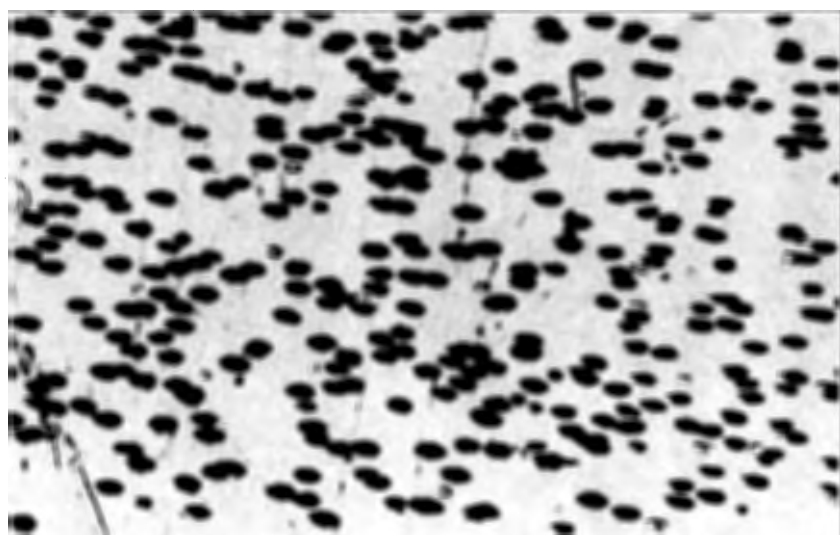
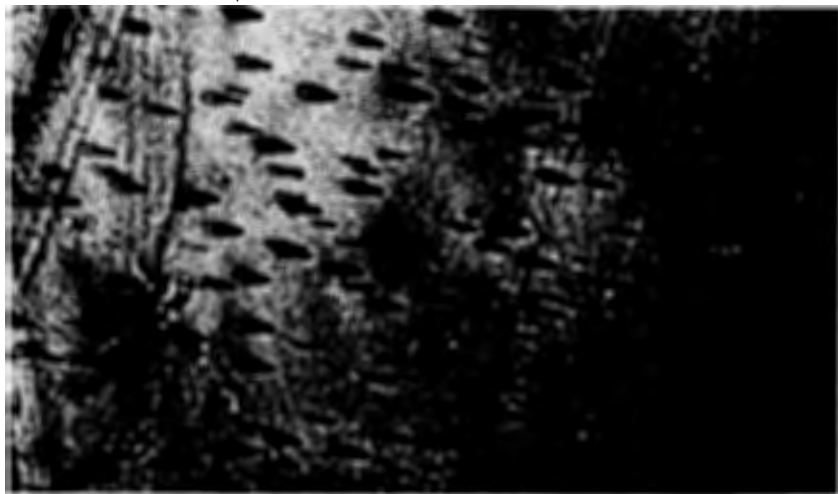


Рис. 2а. Микрофотографии следов ионов с энергией ~ 1 МэВ/нуклон в фторопластах Ф-2М (угол входа в пластик ионов ксенона - 45°) и Ф-42 (угол входа в пластик ионов ксенона - 45°). Увеличение 1800X.

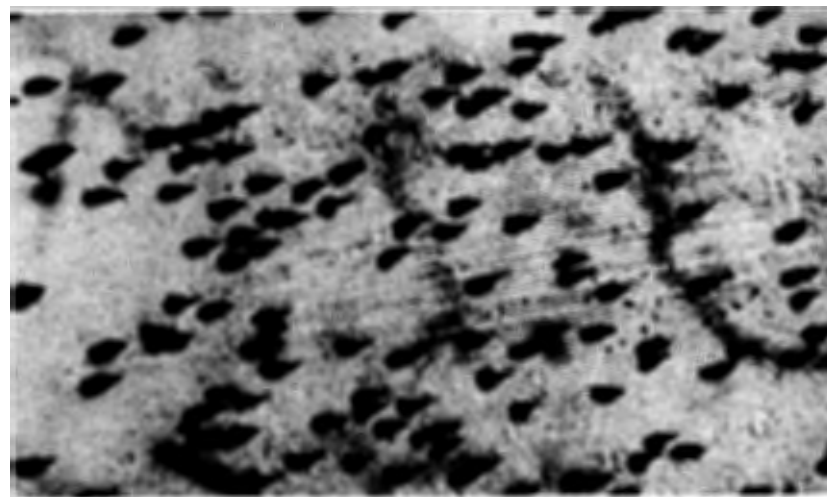


Рис. 2б. Микрофотографии следов ионов с энергией ~ 1 МэВ/нуклон в фторопластах Ф-40П (угол входа в пластик ионов криптона - 60°) и Ф-30 (угол входа в пластик ионов ксенона - 90°). Увеличение 1800X.



Рис. 2в. Микрофотографии следов ионов с энергией ~ 1 МэВ/нуклон в фторопластах Ф-23 (угол входа в пластик ионов хрома - 45°) и Ф-23 (угол входа в пластик ионов криптона - 30°). Увеличение 1800X.

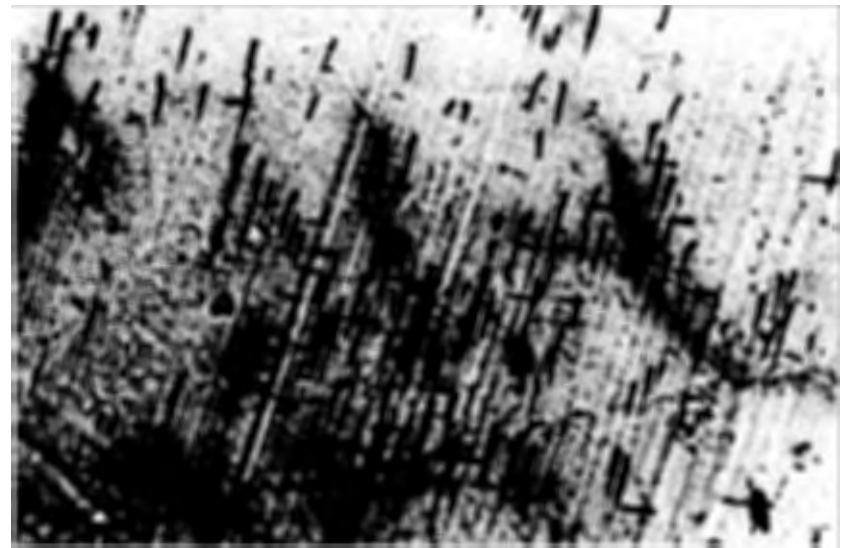
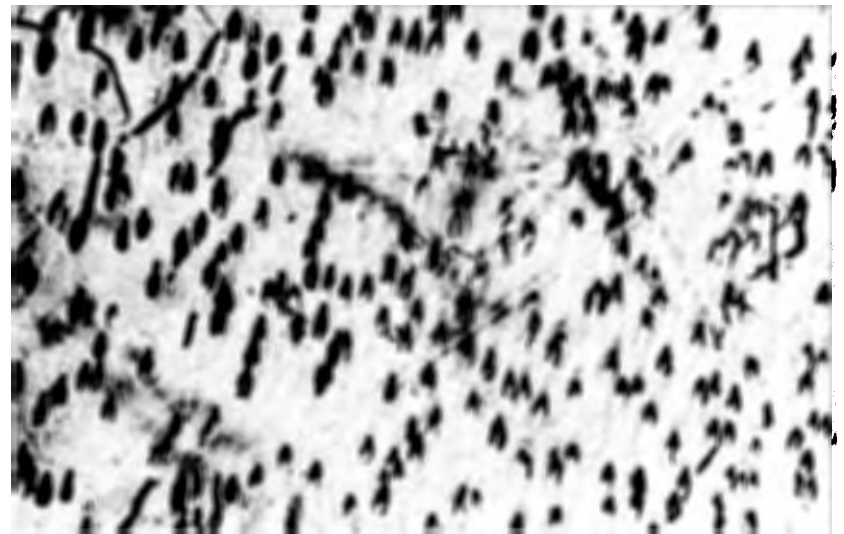


Рис. 2г. Микрофотографии следов ионов с энергией ~ 1 МэВ/нуклон в фторопластах Ф-1 (угол входа в пластик ионов криптона - 30°) и Ф-10 (угол входа в пластик ионов хрома - 45°). Увеличение 1800X.

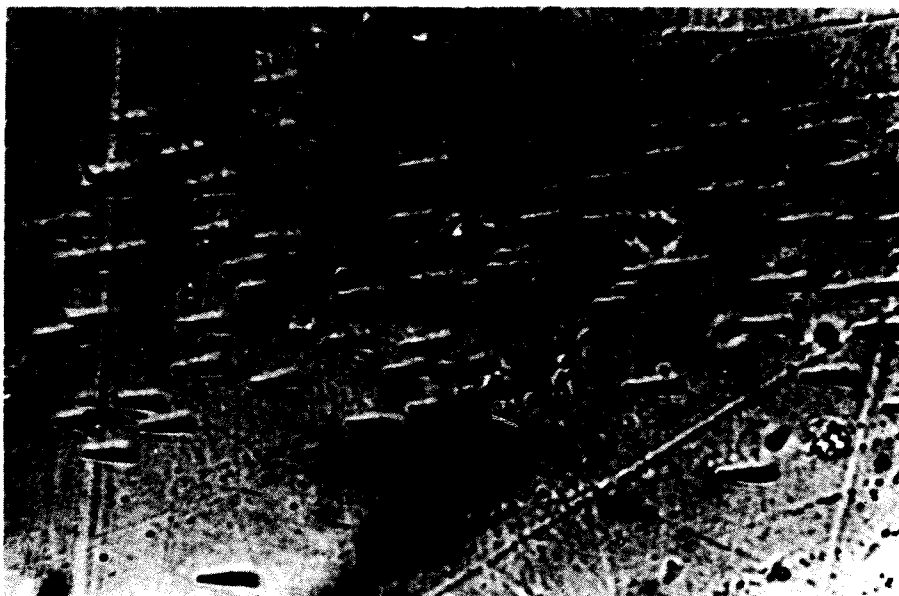


Рис. 2д. Микрофотография следов ионов с энергией ~ 1 МэВ/нуклон в фторопласте Ф-100 (угол входа в пластик ионов ксенона - 45°). Увеличение 1800X.

Рис. 3а. Микрофотографии следов ионов ксенона с энергией ~ 1 МэВ/нуклон, зарегистрированных в непрогретых (I) и прогретых (II) в течение 8 часов при 125°C образцах фторопластов Ф-2 (угол входа иона в пластик - 45°). Увеличение 1800X.



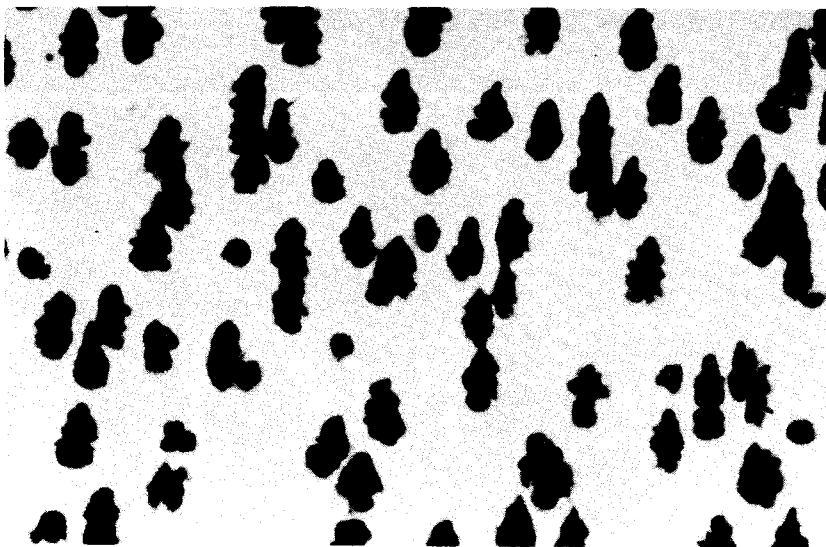
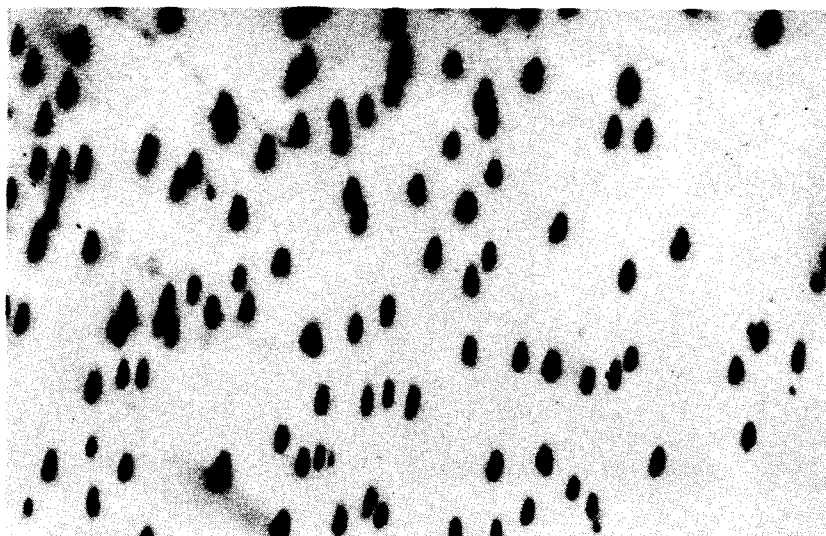


Рис. 36. Микрофотографии следов ионов ксенона с энергией ~ 1 МэВ/нуклон, зарегистрированных в непрогретых (I) и прогретых (II) в течение 8 часов при 125°C образцах фторопластов Ф-2 (угол входа иона в пластик -45°). Увеличение 1800X.

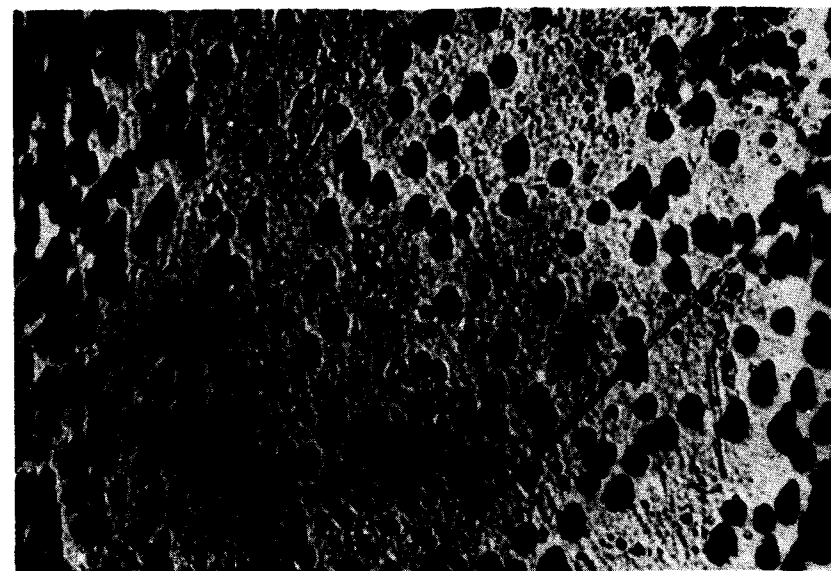
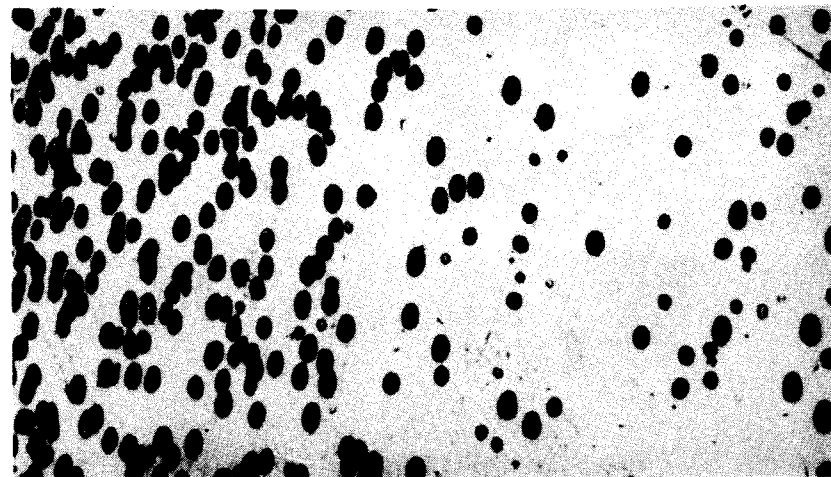


Рис. 3в. Микрофотографии следов ионов ксенона с энергией ~ 1 МэВ/нуклон, зарегистрированных в непрогретых (I) и прогретых (II) в течение 8 часов при 125°C образцах фторопластов Ф-42А (угол входа иона в пластик -60°). Увеличение 1800X.

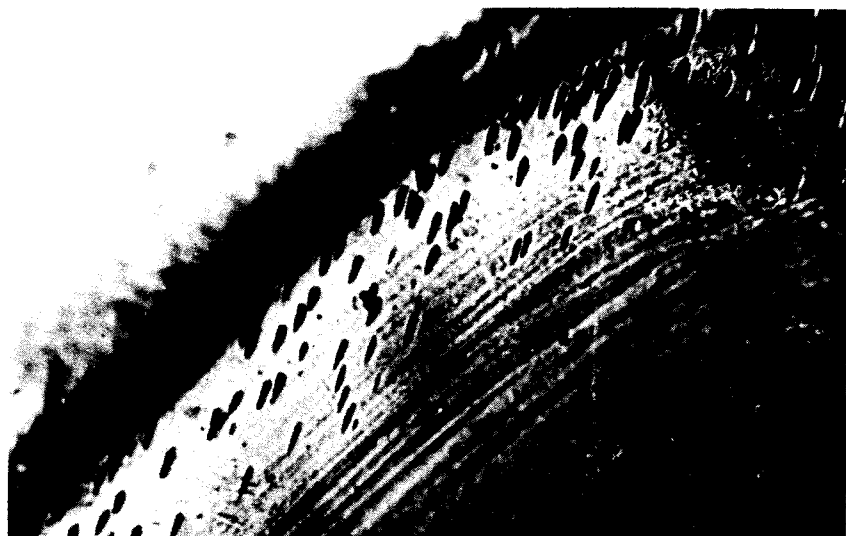


Рис. 4. Микрофотография следов ионов ксенона с энергией ~ 1 МэВ/нуклон, зарегистрированных в царепине фторопласта Ф-42, угол входа иона в пластик - 30° . Увеличение 1800X.

Литература

1. О.А.Реутов. Теоретические проблемы органической химии. Изд. МГУ, 1956; Справочник по пластическим массам, т. 1, Изд. "Химия", М., 1975.
2. D.Peters. J.Chem. Phys., 38, 561 (1963).
3. L.A.Errede. J.Org.Chem., 27, 3425 (1962).
4. J.Fain, M.Monin, M.Montret. Radiation Research, 57, 379-389 (1974).
5. L.C.Northcliffe and R.F.Schilling. Nuclear Data Tables, sec. A, v. 7, nos. 3-4 (1970).
6. С.П.Третякова, Ю.А.Паншин, С.Г.Малкевич, Л.М.Веприк. Авторское свидетельство № 448411, Бюллетень ОИПОТЗ, №40, 1974.

Рукопись поступила в издательский отдел
30 сентября 1976 года.