



СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

96-116

P13-96-116

С.П.Третьякова, Т.Гюзель*, В.А.Пономаренко

ТРЕКОВЫЕ ДЕТЕКТОРЫ ИЗ ФОСФАТНОГО СТЕКЛА

*Стамбульский университет, Турция

В В Е Д Е Н И Е

В настоящее время в распоряжении экспериментаторов имеется широкий набор диэлектрических детекторов с различной пороговой чувствительностью к заряженным частицам: от полимерных детекторов до неорганических (стекла, кристаллы) [1,2]. Исследовано большое количество образцов стекла [3,4]. Оказалось, что все они значительно различаются по скорости травления, эффективности регистрации, термической стабильности, и, особенно значительно, по концентрации примесей урана. Представляло интерес изготовление материалов из фосфатов, где примесный фон мог быть значительно снижен, что имеет большое значение при использовании детекторов в ядерно-физических экспериментах, где фон нейтронов достаточно велик [2].

Целью настоящей работы является подробное исследование регистрационных свойств детекторов из фосфатного стекла и рассмотрение возможностей использования их в ядерно-физических экспериментах для регистрации и идентификации тяжелых частиц. В данной работе исследовалось фосфатное стекло, разработанное и изготовленное в Государственном оптическом институте (Санкт-Петербург), состав которого следующий:

P_2O_5 - 68%(мол),	Na_2O - 2,5%,
Al_2O_3 - 4,5%,	ZnO - 25%.

Плотность стекла составляет 2.9 г/см^3 .

Э к с п е р и м е н т а л ь н а я ч а с т ь

Образцы детекторов из фосфатного стекла (ФС) представляли собой полированные пластины толщиной ≈ 2 мм. Облучение проводилось многозарядными ионами с $Z=8-56$ в интервале энергий от 0,1 до 8 МэВ/а.е.м. на внешних пучках ускорителей ЛЯР ОИЯИ. Стекла облучались под углами 10, 30, 45 и 90^0 к поверхности. При измерении эффективности регистрации угол вхождения бомбардирующих частиц в детектор плавно менялся от 90^0 до нуля. Для травления использовались растворы HF и NaOH при комнатной температуре. После травления измерялись плотность треков и их основные параметры (диаметр, длина, угол входа) с использованием оптического микроскопа, полуавтоматического оптического анализатора МОР (Австрия) и телевизионного автоматического сканирующего устройства. Исследовалась возможность термической регрессии следов ионов и осколков деления при температурах 100, 150, 200, 250 и 300^0C в течение 1, 5 и 15 ч. Измерялось изменение длины треков и их количество в зависимости от температуры и продолжительности.

Объединенный институт
ядерных исследований

Результаты

Избирательность травления, чувствительность детектора и эффективность регистрации

Известно, что трек при травлении проходит три стадии, при которых имеет различную форму [5]. На первой стадии травления полностью выявляется латентный трек (зона дефектов); вторая стадия охватывает процесс травления конуса, образованного ионом, до его полного вытравливания; третья - связана с растравливанием сферической поверхности при выравнивании скоростей травления в зоне трека. Если на первых двух стадиях существует зависимость диаметра трека иона от dE/dx , то на третьей - диаметр трека зависит от длины латентного трека иона, т.е. от его энергии [5]. Фактически величиной, характеризующей чувствительность, является скорость травления вдоль трека V_t или избирательность травления V , т.е. отношение V_t/V_M , где V_M - скорость травления материала. На рис. 1 представлены зависимости скорости травления фосфатного стекла в 40% растворе HF и 10N NaOH от температуры. В растворах щелочи травление материала происходит более интенсивно, что значительно снижает избирательность травления. Это наглядно иллюстрируют микрофотографии (рис. 2). На рис. 3 представлены результаты различной длительности травления (40% HF при 20°C) треков ионов Ag, перпендикулярно входящих в детектор, с различной энергией. С увеличением времени травления диаметры треков ионов с различной энергией сильнее различаются.

Для идентификации заряженных частиц с помощью ФС необходимо иметь не только достаточную чувствительность, но и крутую зависимость V от dE/dx . На рис. 4 представлена зависимость избирательности травления тяжелых ускоренных ионов от удельных потерь энергии для данного стекла. Удельные потери энергии ионов рассчитаны согласно программе работы [6] в соответствии с их энергией. Можно видеть, что порог чувствительности ФС при $V \sim 1$ находится в районе $9-10 \text{ МэВ} \cdot \text{мг}^{-1} \cdot \text{см}^2$. В исследуемом стекле дефекты структуры, создаваемые ионами кислорода, не приводят к выявлению треков в области максимальных потерь энергии этих ионов в веществе [7]. Как видно из рис. 4, представленная зависимость вблизи порога имеет асимптотический характер. В этом районе эффективность регистрации может быть меньше, чем для более высоких значений V . Так, ионы неона, входящие перпендикулярно в детектор с энергией $0,1 - 0,5 \text{ МэВ}$ на нуклон, наблюдаются в виде мелких углублений, но с 25-

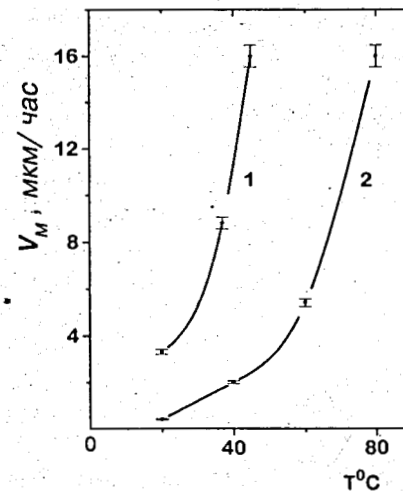


Рис. 1. Скорость травления ФС в 40% HF (кривая 1) и 10N NaOH (кривая 2) в зависимости от температуры раствора

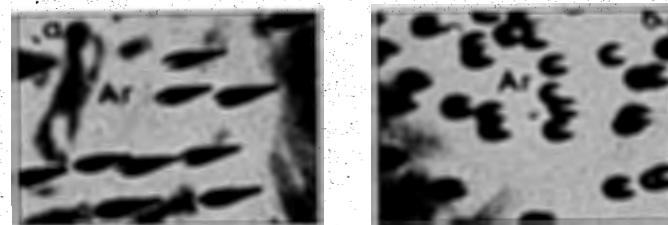


Рис. 2. Микрофотографии треков ионов ^{40}Ar с энергией 104 МэВ, входящих в детектор под углом 30° и протравленных в 40% HF (а) и 10N NaOH (б)

50% эффективностью регистрации. Для осколков деления в ФС при травлении 3 ч в концентрированной плавиковой кислоте эффективность регистрации составляет $(92 \pm 4)\%$, при этом диаметр следа достигает около 1,5 мкм. Если травление проводить в 20% растворе NaOH до того же диаметра треков, эффективность осколков снижается до $(75 \pm 5)\%$. Ионы, входящие в детектор под углом 90° и имеющие ионизационные потери выше пороговых значений, регистрируются со 100% эффективностью. Известно, что при уменьшении угла входа иона в детектор уменьшается избирательность травления и, следовательно, для них увеличивается порог регистрации. Для иллюстрации на микрофотографии (рис. 5а) представлены треки ионов аргона, входящие под углами 15° и 90° в детектор с одинаковыми потерями энергии и протравленные в 10N растворе NaOH. Треки ионов

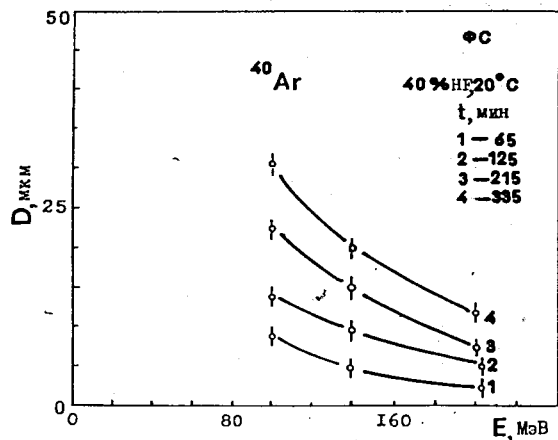


Рис.3. Зависимость диаметра D протравленных различное время в 40% HF при 20°C треков ионов Ar, перпендикулярно входящих в детектор с энергией 100, 140 и 203 МэВ

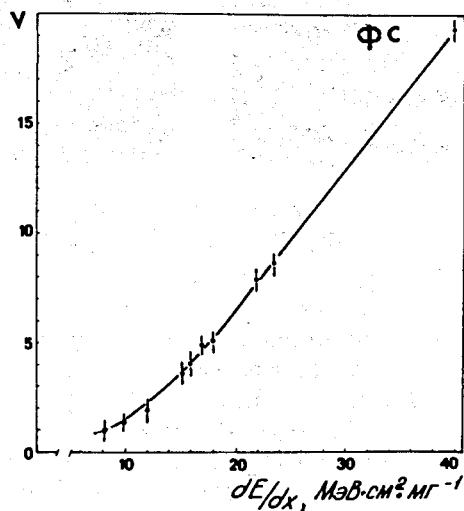


Рис.4. Зависимость избирательности травления треков ускоренных ионов от их удельных потерь dE/dx в ФС. Удельные потери ионов для данного состава ФС посчитаны по программе [6] согласно их энергии

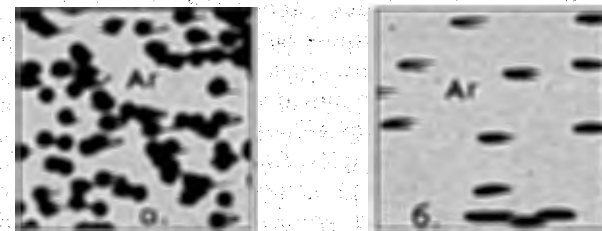


Рис.5. Микрофотографии треков Ar, входящих в ФС под углом 90° (черные кружки на рис. 5а) и под углом 15° (светлые треки на рис. 5а и 5б). Травление проводилось при температуре 20° в 10N NaOH (рис. 5а) и в 40% HF (рис. 5б).

с углом входа 90° были протравлены прямо с поверхности ФС и имели вид темных кружков, в то время как треки ионов под углом 15° травились только на такой глубине слоя (остроконечные светлые треки), где перпендикулярно направленные ионы пересекали пологие и их ионизационные потери достигали пороговой величины. Необходимо заметить, что при травлении детектора в концентрированной HF треки под углом 15° травились непосредственно с поверхности стекла (рис. 5б). Это свидетельствует о зависимости порога выявления трека не только от угла входа иона в детектор, но и от выбранного раствора для травления. Энергетический порог регистрации осколков деления в ФС определялся по поглощению их в Al-фольге, толщина которой

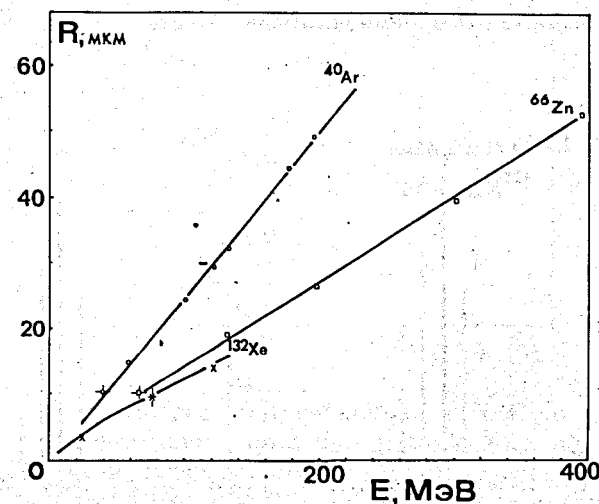


Рис.6. Зависимость пробег-энергия для ионов ^{40}Ar , ^{66}Zn , ^{132}Xe в ФС. Точки - экспериментальные данные, линии - расчетные значения

менялась. Осколки от деления ядер ^{244}Cm входили в детектор под углом $\approx 90^\circ$. Облучение проводилось в вакууме. Из экспериментального соотношения пробег-энергия для осколков в Al [8] пороговые значения энергии регистрации осколков находились в районе 7-10 МэВ. В дальнейшем это значение было подтверждено облучением ФС ускоренными ионами Ge и Xe. Возвращаясь к рис. 4, можно видеть, что при увеличении удельной ионизации избирательность травления возрастает и для ионов с удельной ионизацией $\sim 35 \text{ МэВ} \cdot \text{Мг}^{-1} \cdot \text{см}^2$ величина V_i/V_m достигает значения $\sim 17-18$.

Ввиду того, что порог чувствительности ФС достаточно высок, в последних микронах пробега не создаются травимые дефекты, относящиеся к ядерной составляющей удельных потерь энергии, и трек после травления получается несколько короче, чем истинный пробег иона в этих детекторах [1]. Для учета этого эффекта проведены калибровочные измерения на лучках ионов с разным Z. Для легких ионов дефицит пробега составляет 2-3 мкм, а для ионов $Z \geq 40$ - порядка 1 мкм. Этот эффект необходимо учитывать при определении энергии ионов путем измерения их пробега в ФС. На рис. 6 для примера представлены экспериментально полученные зависимости пробег-энергия для ионов ^{40}Ar , ^{66}Zn и ^{132}Xe , а на рис. 7 показаны распределения длин ионов Xe и Ti с энергией 124 и 190 МэВ. Полученные длины ионов хорошо согласуются с расчетными данными. Точность измерения энергии по длине зависит от пробега иона в ФС и составляет порядка 5% в области $E \sim 1 \text{ МэВ/а.е.м.}$ Для пробега ионов $\geq 100 \text{ мкм}$ точность измерения достигает $\sim 1-2\%$.

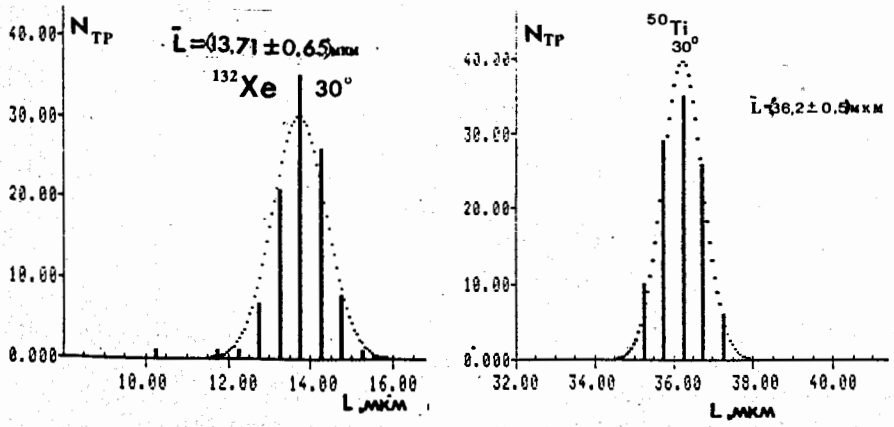


Рис.7. Распределение длин треков ионов Xe и Ti, входящих в детектор под углом 45° с энергией 124 и 190 МэВ, соответственно

Зависимость диаметров треков, протравленных в 48% HF и 10N NaOH, от энергии ионов представлена на рис.8. Полученные в данной работе результаты находятся в хорошем согласии с результатами работы [9], выполненной на ФС другого состава и с использованием NaOH в качестве травителя. Можно видеть, что при больших энергиях наступает насыщение, поэтому целесообразно при идентификации ионов с помощью диаметров работать в области пропорциональности, где энергетическое разрешение составляет 2-3%. Начиная с энергии более 60 МэВ при диаметрах порядка 80 мкм, зависимость диаметра от энергии становится более слабой и энергетическое разрешение ухудшается.

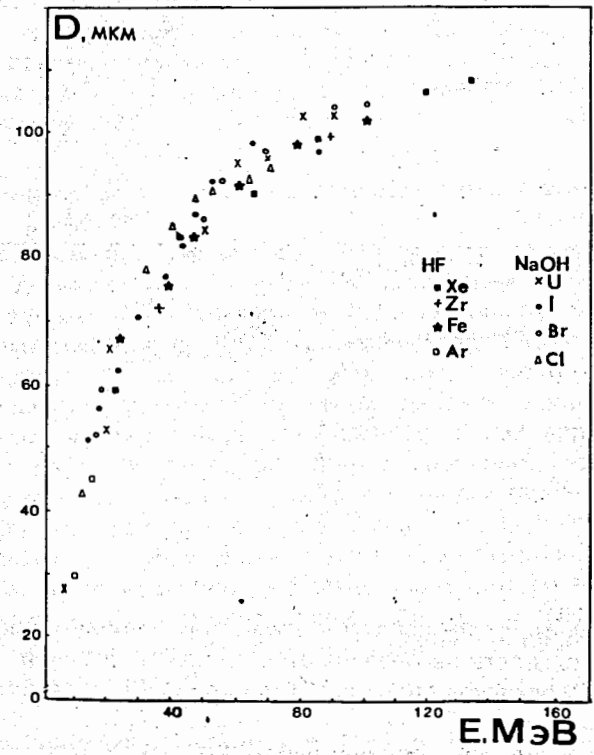


Рис.8. Зависимость диаметров протравленных в 48% HF и 10N NaOH треков различных ионов, входящих нормально к поверхности ФС, изучаемого в данной работе и в [9], от их энергии. Первое травилось в 48% HF при 20°C в течение 8 суток, а второе - 17 часов в 10N NaOH при 55°C

Термическая устойчивость латентных треков в ФС

Важным свойством диэлектрических детекторов является термическая устойчивость радиационных нарушений структуры заряженными частицами. Термическая стойкость латентных треков осколков деления ядер ^{244}Cm в ФС представлена на рис.9 (а,б,в). Можно видеть, что нагревание при температуре 100°C в течение более 5 ч вызывает укорочение треков осколков деления и уменьшение их количества.

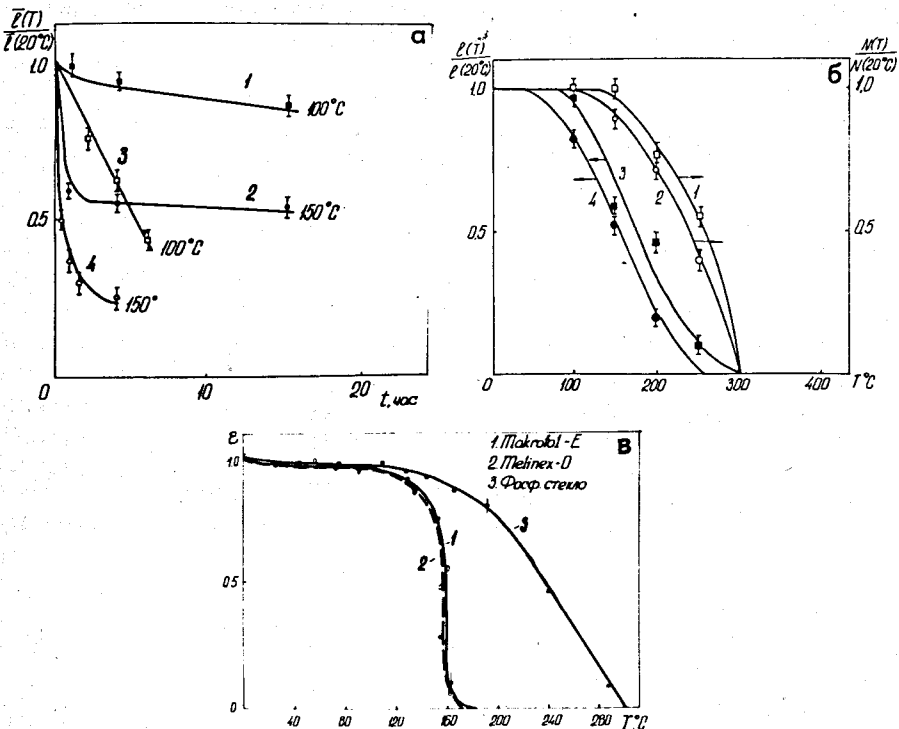


Рис.9. Зависимость от температуры отжига (после облучения):
 а) длительности нагревания относительной средней длины $l(t)/l(20^\circ\text{C})$ осколков деления ^{244}Cm (кривые 1, 2) и ионов ^{40}Ar (кривые 3, 4);
 б) относительной средней длины $l(t)/l(20^\circ\text{C})$ треков осколков ^{244}Cm и их количества $N(t)/N(20^\circ\text{C})$ для 1 ч (кривые 1, 3) и 15 ч (кривые 2, 4) нагревания;
 в) эффективности регистрации ϵ осколков деления ^{244}Cm поликарбоната Makrofol E (кривая 1), полиэтиленгликольтерефталата Melipex-E (кривая 2) и фосфатного стекла (кривая 3)

Треки аргона (220 МэВ) укорачиваются быстрее осколков деления (рис. 9а). Наибольшая разница между ними наблюдается после 100° и длительного травления с практически полным сохранением эффективности регистрации осколков деления. Необходимо отметить, что в первые часы отжига при 150°C длина как осколков деления, так и ионов уменьшаются быстрее, чем в последующие (рис. 9а). Это обстоятельство свидетельствует о весьма сложном характере восстановления зоны дефектов, образуемых тяжелыми ионами в ФС, приводящем к постепенному уменьшению скорости травления вдоль следа. Результаты рис. 9б свидетельствуют, что при 200°C остается всего лишь $\sim 70\%$ треков осколков деления от первоначального количества, причем их длина уменьшается более, чем на 50%. Это необходимо учитывать при использовании ФС в качестве детектора в физическом эксперименте. Для сравнения на рис. 9в показано изменение эффективности регистрации осколков деления в трех наиболее используемых детекторах при их нагревании после облучения до 300°C .

Собственный фон детектора фосфатного стекла

При проведении экспериментов по поиску и регистрации редких событий деления ядер весьма существенным является наличие фоновых эффектов в детекторе. В ФС имитировать искомый эффект могут треки осколков спонтанного деления ядер тяжелых элементов, содержащихся в материале детектора; треки осколков от индуцированного другим излучением деления ядер или тяжелых фрагментов, генерируемых в детекторе фоновыми частицами; фигуры травления дефектов структуры: трещин, царапин, пузырьков. В ФС треки от спонтанного деления примесных ядер устраняются с помощью отжига при температуре более 350°C (см. рис. 9). В исследуемом ФС концентрация делящихся элементов в пучках нейтронов не превышала 10^{-8} , что допустимо для использования в физическом эксперименте на интенсивных пучках тяжелых ионов. Фигуры травления различных дефектов ФС после предварительного травления надежно отличаются от искомого треков ионов.

Идентификация заряженных частиц и фрагментов

Как было показано ранее, для идентификации заряженных частиц и измерения их энергии можно использовать их пробег в ФС. В этом случае используют экспериментально полученные калибровочные кривые (см. рис. 6, 7) либо расчетные данные, если состав материала известен [6].

Для спектроскопии осколков деления были апробированы два метода

идентификации. В первом была использована тонкая мишень ^{235}U и 5-мкм алюминиевый поглотитель для получения существенного различия в удельной ионизации двух групп осколков [10]. При кратковременном травлении в 48% HF треков осколков деления (до диаметра примерно 20 мкм), перпендикулярно входящих в ФС, по распределению диаметров треков были определены средние энергии легкой и тяжелой групп осколков с точностью 5-8% [11]. В другом случае в основу метода была положена зависимость диаметра сильно растравленных треков осколков деления D, перпендикулярно входящих в детектор, от их энергии E: $D^2 = CE^{1/2}$, где C - константа, зависящая от

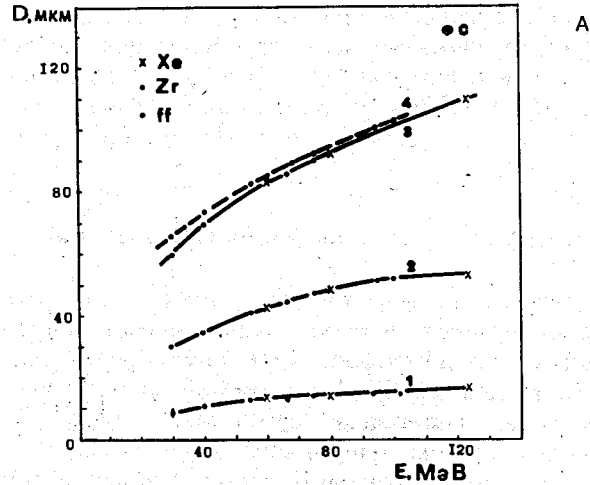


Рис.10. А. Калибровочная кривая $D(E)$, построенная по измерениям диаметров сепарированных осколков вынужденного деления ^{235}U (обозначены как "ff") на масс- сепараторе ИЯФ УзАН и ускоренных ионов Xe и Zr различной энергии. Травление проводилось 48% HF в течение 3 ч (кривая 1), 24 ч (кривая 2) и 6 суток (кривая 3 - для тяжелых фрагментов и 4 - для легкой группы фрагментов).

Б. Распределение диаметров треков осколков вынужденного деления ^{235}U (а) и спонтанного деления ^{256}Fm (б), перпендикулярно входящих в ФС (точки), и распределение осколков деления тех же самых ядер, полученное с помощью полупроводниковых детекторов (линия). Значения энергии на оси абсцисс соответствуют диаметрам треков из калибровочных экспериментов рис. 11А. Соотношения количества треков в разных точках спектра следующие:

$$\begin{aligned} \text{для } ^{235}\text{U} \quad N_L/N_H &= 1,3; \quad N_L/N_V = 3,9; \quad N_H/N_V = 2,9 \\ \text{для } ^{256}\text{Fm} \quad N_L/N_H &= 1,33; \quad N_L/N_V = 2,0; \quad N_H/N_V = 1,5 \end{aligned}$$

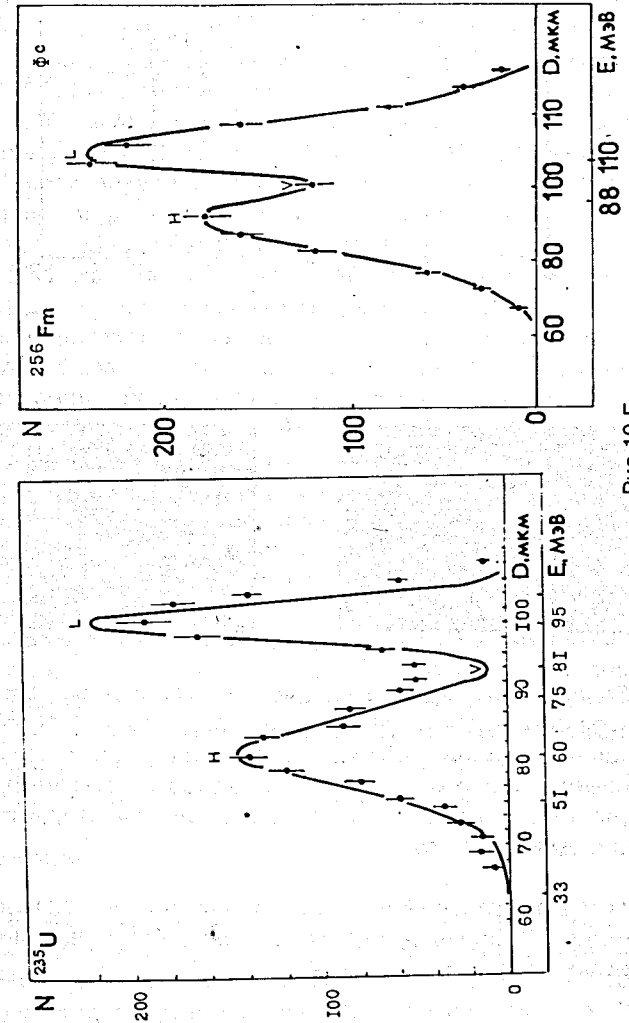


Рис.10.Б

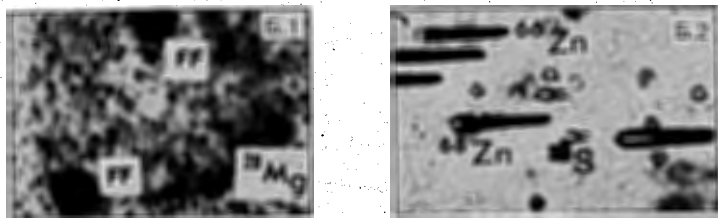
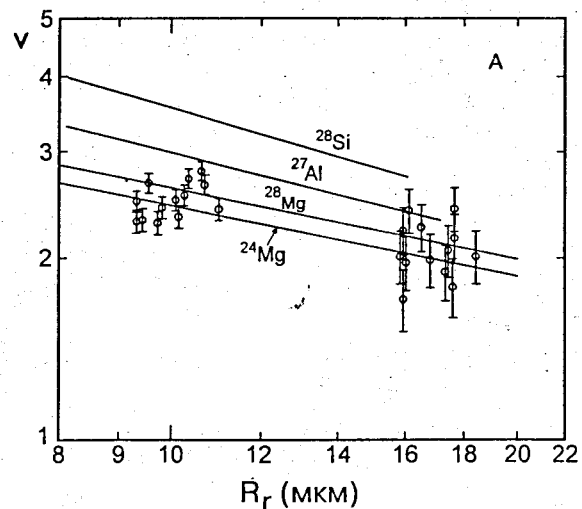


Рис.11. А. Зависимость избирательности травления $V=V_t/V_m$ от остаточного пробега для ионов ^{24}Mg , ^{28}Mg , ^{27}Al , ^{28}Si в ФС. Сплошные линии - результаты калибровки ускоренными тяжелыми ионами. Точки - экспериментальные данные, полученные в работе [17] по изучению кластерного распада ^{236}Pu с вылетом ^{28}Mg .

Б. 1). Микрофотографии треков осколков деления ядер плутония (2 большие кружка) и иона ^{28}Mg (маленький круг), вылетающих при распаде этих ядер.

2). Микрофотографии треков ионов ^{66}Zn (длинные) и ^{33}S (короткие), входящие в ФС под углом 30° к поверхности с энергией 5,0 МэВ/а.е.м.

материала детектора и времени травления. Этот метод был предложен и апробирован в работах [12, 13] для измерения энергии осколков и спонтанного деления ^{252}Cf , индуцированного деления ядер ^{232}Th и ^{239}Pu с разрешением порядка 1 - 2 МэВ. В данной работе исследовалось энергетическое распределение осколков деления тепловыми нейтронами ядер ^{235}U и спонтанного деления ядер ^{256}Fm , полученного в реакции $^{249}\text{Bk} + ^{22}\text{Ne}$, где он является практически единственной долгоживущей активностью (2,63 ч), образующейся при распаде ^{256}Md . В этом случае ядра отдачи вылетали из мишени берклия (0.3 мг/см^2) и тормозились в стопке из 10 алюминиевых фольг толщиной 0.22 мг/см^2 . Облучение ФС осколками деления ядер урана (использовалась тонкая мишень $\sim 50 \text{ мкг/см}^2$ на 2.5-мкм лавсановой подложке) и фермия проводилось в вакууме через коллиматор, обеспечивающий попадание осколков в детектор под углом $\sim 90^\circ$. На рис. 10 приведены полученные экспериментальные результаты и для сравнения данные, полученные с помощью полупроводниковых детекторов [14]. Калибровочная кривая D(E) (рис. 10А) была построена по измерениям диаметров треков сепарированных осколков деления урана тепловыми нейтронами на установке ИЯФ Узбекской АН (г.Ташкент). Из полученных данных видно, что изучаемое стекло имеет разрешение не хуже, чем используемое в работе [12] фосфатное стекло, по составу отличающееся от изучаемого в данной работе. Подобные результаты с источником калифорния и использованием изучаемого здесь стекла были получены группой В.А.Николаева [15].

Спектроскопию кластеров, эмиссия которых является чрезвычайно редким процессом и наблюдается, как правило, в условиях высокого фона α -частиц ($\geq 10^{14} \text{ см}^2$), проводят с помощью ФС, используя метод реплик [16]. На рис.11 показаны кривые для идентификации кластеров ^{28}Mg , вылетающих из ^{236}Pu [17]. Разрешение детектора по заряду составляет $\Delta Z = \pm 0,2$ и атомному весу - $\Delta A = \pm 2$.

Применение

На основе вышесказанного детекторы из ФС могут быть использованы для определения энергии ионов, спектроскопии осколков деления, идентификации тяжелых заряженных частиц, в том числе и остановившихся в объеме стекла, используя геометрию "трек в треке", при бомбардировке детектора перпендикулярно направленными к поверхности ускоренными тяжелыми ионами (см.рис. 5). ФС позволяет вводить термическим способом в поверхностный слой и объем детектора значительные количества исследуемых элементов (до нескольких % по весу [18]) без существенного изменения

регистрирующих свойств, что является существенным преимуществом перед другими диэлектрическими детекторами. Это используется при измерениях характеристик многочучевых событий в объеме стекла [19], возникающих при распаде ядер.

ФС, характеристики которого представлены здесь, были использованы в экспериментах по определению периода полураспада спонтанного деления тяжелых ядер, кластерного распада, по исследованию углового рассеяния ионов [3].

Авторы выражают благодарность профессору Ю.Ц.Оганесяну за внимание к работе, полезные обсуждения и поддержку, В.П.Перельгину за помощь при проведении облучений ионами, К.И.Меркиной, Т.И.Рыбаковой за помощь в получении достоверных результатов измерения, А.Д.Беляеву за осуществление облучения детекторов сепарированными осколками деления, О.В.Тимофеевой за помощь при оформлении работы.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ N96-02.17975.

Л и т е р а т у р а

1. Fleischer R.I. et al., Nuclear Tracks in Solids: Principles and Applications (University of California, Berkeley, 1975); Phys. Rev/188 (1969), 563.
2. Перельгин В.П. и др., ПТЭ,4, (1964) 64, ПТЭ, 1 (1968), 43-46.
3. Третьякова С.П. Диссертация на степень доктора физ.-мат. наук "Диэлектрические детекторы, их применение в экспериментальной ядерной физике".
4. Price P.V. et al., Nucl. Instr. Meth. B21 (1987), 60-67.
5. Николаев В.А. и др., ПТЭ, 2 (1976), 8-17.
6. Ziegler I.F. et al., The Stopping and Range of Ions in Solids, Pergamon Press, New York (1985).
7. Отгансурен О. и др., Proc. 8th Intern. Cont. of Nucl. Photograph and SSNTD, 1972, Bucharest, IFA, 231-241.
8. Fulmer C.V., Phys. Rev. 108 (1957), 1115-1120.
9. Fiedler G. et al., Nucl. Instr. Meth, 147 (1977), 36-39.
10. Nicolaev V.A. Nucl. Instrum. Meth, 147 (1977), 283-285.
11. Nicolaev V.A. Instrum. Exper. Techniques,4 (1976), 88-89.
12. Aschenbach et al., Nucl. Instr. Meth. 116 (1974), 389-395.
13. Siegert G., et al., Z. Naturforsch 28a (1973), 544-552.
14. Schmitt H.W. et al., Phys. Rev. 137B (1965), 837-845.
15. Korchenov V.E. et al., Nucl. Tracks Radiat.Meas. 11 (1986), N4/5,221-227.

16. Wang S. et al., Phys. Rev. c39 (1989), 1647-1655.
17. Юссонья М. и др., Письма в ЖЭТФ, 62 (1955), 685-689.
18. Perelygin V.P. et al., Proc. of the Internat. Conf. on Nucl. Track Registr. in Insulating Solids, Clermont-Ferrand, 1969, v.1, 28-36.
19. Fiedler G. et al., Nucl. Instr. Meth. 173 (1980), 85-92.

Рукопись поступила в издательский отдел
3 апреля 1996 года.