



Разработка методики
идентификации ядер с помощью
детекторов из фосфатного стекла

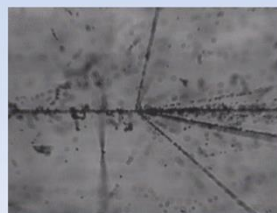
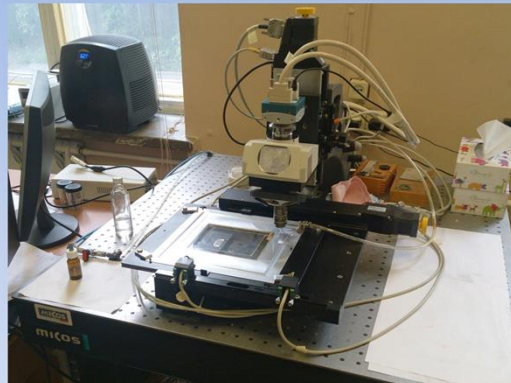
ФИАН ОИЯИ

Н.М. Окатьева

2020 г.

Полностью АВтоматизированный Измерительный КОМПлекс

ПАВИКОМ ЛЭЧ ФИАН



2

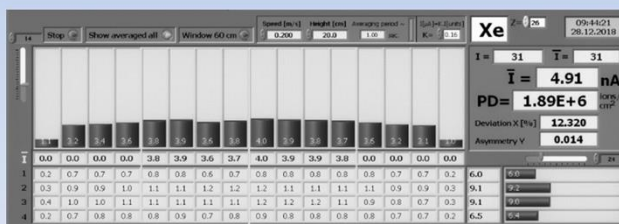
В ФИАНе сотрудники ЛЭЧ давно работают со всеми типами трековых детекторов (оливины, эмульсии, рентгенные пленки) с использованием автоматизированных микроскопов измерительного комплекса ПАВИКОМ. Но задача с фосфатными стеклами стала для нас новой и интересной.

ГЛС-22 (марка фосфатного стекла)



Толщины образцов : 2, 3, 4 мм
Углы облучения : 0° , 60° к нормали

Облучение ГЛС-22 в ИЦ-100 ЛЯР ОИЯИ



Поэтому для пробного эксперимента мы попросили образец фосфатного стекла(ФС) у коллег из отделения квантовой радиофизики. Разных толщин ФС марки ГЛС-22 были облучены пучком ионов $^{132}\text{Xe}^{26+}$ резонансного циклического ускорителя ИЦ-100. Для первого приближения реализованы два значения угла падения пучка (0 и 60° к нормали) с энергией 153 МэВ (примерно $1,16$ МэВ/нуклон).

Химическое травление ГЛС-22

Объектив 40x

ООО «Система Текс»
Высокоточные измерительные средства
e-mail: systema@rambler.ru (495) 575-34-19

141182, г. Химки, Вузовский проезд д. 7
www.systema.ru

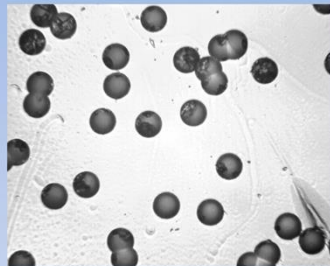
Паспорт - сертификат
На кислоту фтористоводородную сверхчистую
ГОСТ 10444-78
Дата изготовления: октябрь 2018г. Партия №: 49

№ п/п	Наименование показателя	Виды по	
		ГОСТ 10444-78	Фактически
		ОКМ 241233 0023 07	показатели
1.	Массовая доля кислоты фтористоводородной (HF), % не менее	45,0	45,52
2.	Массовая доля остатка после прореагирования с водой сульфата, % не более	0,0005	0,0005
3.	Массовая доля сульфата (SO ₄), % не более	0,0003	0,0003
4.	Массовая доля ифидина (SiO ₂), % не более	0,0004	0,0004
5.	Массовая доля фторидов (F ₂), % не более	0,0001	0,0001
6.	Массовая доля хлоридов (Cl), % не более	0,0001	0,0001
7.	Массовая доля азидов (N ₃), % не более	0,00005	0,00003
8.	Массовая доля перманганата (Mn), % не более	0,0002	0,0002
9.	Массовая доля тяжелых металлов (Pb), % не более	0,00005	0,00002
10.	Массовая доля аммония, восстановленного (NH ₄), % не более	0,0004	0,0004

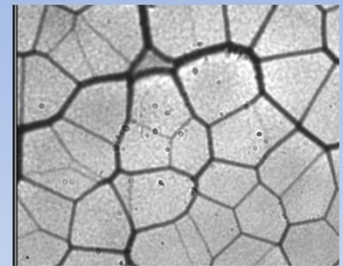
Методы анализа: ИР - спектрометрия, эмпирические методы.
Оптимальные условия травления: температура - 10°C, продолжительность - 3 часа.
Гарантийный срок хранения - 3 года.
КАТЕГОРИИ: Соответствует ГОСТ 10444-78



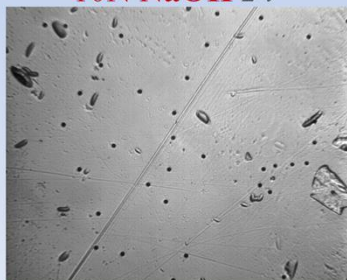
40% HF 40мин



40% HF 7ч



10N NaOH 2ч



10N NaOH 7ч



«ФИЗИКА ЭЛЕМЕНТАРНЫХ ЧАСТИЦ И АТОМНОГО ЯДРА»
1992, ТОМ 23, ВЫП. 2

УДК 539.1.07

**ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ ДЕТЕКТОРЫ
И ИХ ИСПОЛЬЗОВАНИЕ
В ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
ЯДЕРНОЙ ФИЗИКЕ**

С.П.Третьякова

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

Дальше перед нами встал вопрос о травление образцов. Из литературы известно, что для травления ФС обычно применяется либо плавиковая кислота HF, либо раствор гидроксида натрия NaOH. В частности мы много использовали данные полученные С.П. Третьяковой. И в первом же эксперименте увидели треки ядер и наместили диапазоны времени травления облученных образцов в применяемых кислотах.

Переход от ГЛС-22 к КНФС-3

Химический состав фосфатных стекол

% массы	Из работы ТретьяковойСП	ГЛС-22	КНФС-3 Данные патента	КНФС-3 ЛЗОС~
P ₂ O ₅	68	49-65	60-66	63
Al ₂ O ₃	4,5	2-9	4-8,5	6
B ₂ O ₃		1,6-10	0,2-3	1,5
Li ₂ O				
Na ₂ O	2,5	0,9-9,5	0,5-3,5	2
K ₂ O			4,5-11,5	8
ZnO	25			
Nd ₂ O ₃		0,5-7,5	0,5-5	2
CeO ₂			0,1-1	0,5
BaO			0,8-12	5
SiO ₂			0,5-3	1,5
SrO			2-17	9
CaO			0,1-3	1,5
ИТОГО	100 %			100 %
Конц. Nd ³⁺ , см ³		2x10 ²⁰	3,5x10 ²⁰	3,5x10 ²⁰
Плотность г/см ³	2,9	3,52	2,83	2,87±0,03

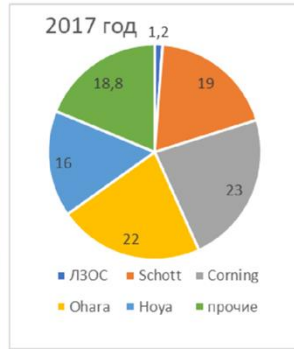


5

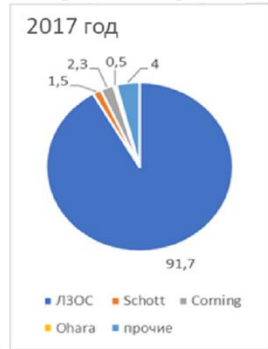
Эксперимент также показал необходимость более точного измерения размеров и масс образцов ФС и для продолжения работы необходимо было приобрести не только ФС, но и приборы для измерения геометрии и массы. Из работ С.П.Третьяковой образцы ФС закупались в ГОИ, но там идет процесс реорганизации предприятия и мы выбрали завод в Лыткарино.

Лыткаринский завод оптического стекла ЛЗОС

• на внешнем рынке



• на российском рынке



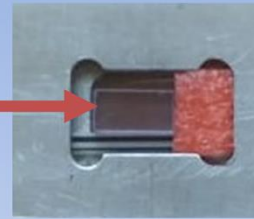
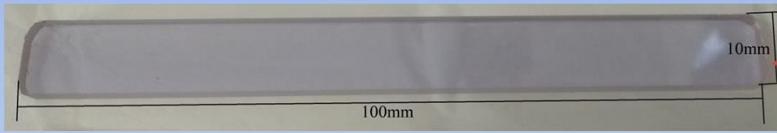
Основные конкуренты АО ЛЗОС :
 Schott Group (Германия),
 Ohara Group (Япония),
 Hoya Corporation (Япония),
 Corning Inc. (США),
 «Оптик» (Беларусь)



Р
С
П
О
Б
С

Этот подмосковный завод является единственным производителем и патентообладателем, который имеет монопольное положение в производстве оптического стекла в России и доминирующее на российском рынке.

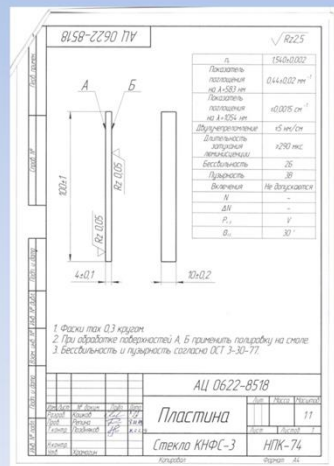
КНФС-3 (марка фосфатного стекла)



Характеристики параметров стекла КНФС-3

№	Параметр	Значение
1.	Концентрация ионов неодима (10^{19} ион/см ³)	3,5
2.	Сечение стимулированного излучения σ (10^{-20} см ²)	3,6
3.	Длительность затухания люминесценции τ (мкс)	300±10
4.	Показатель поглощения на $\lambda=583$ нм K_{583} (мм ⁻¹)	0,44±0,02
5.	Показатель поглощения на $\lambda=1054$ нм K_{1054} (см ⁻¹)	±0,001
6.	Показатель преломления n_d	1,540±0,002
7.	Нелинейный коэффициент показателя преломления n_2 (10^{-11} , ед. СТ С 3)	1,15*
8.	Температурный коэффициент линейного расширения в интервале температур 20-300°С α (10^{-6} К ⁻¹)	115
9.	Термостойкость (°С)	54*
10.	Плотность (ρ /см ³)	2,87±0,03
11.	Лучевая прочность объемная при $t=40$ нс (Дж/см ³)	≥20
12.	Двулучепреломление (нм/см)	≤5
13.	Пузырность	Ф до 0,2мм; до 30 шт./кг
14.	Бесцветность	Свечи не допускаются

* расчетные величины

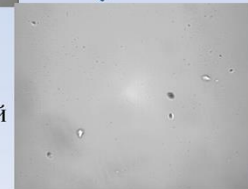


Поверхность фосфатного стекла

при полировке V класса



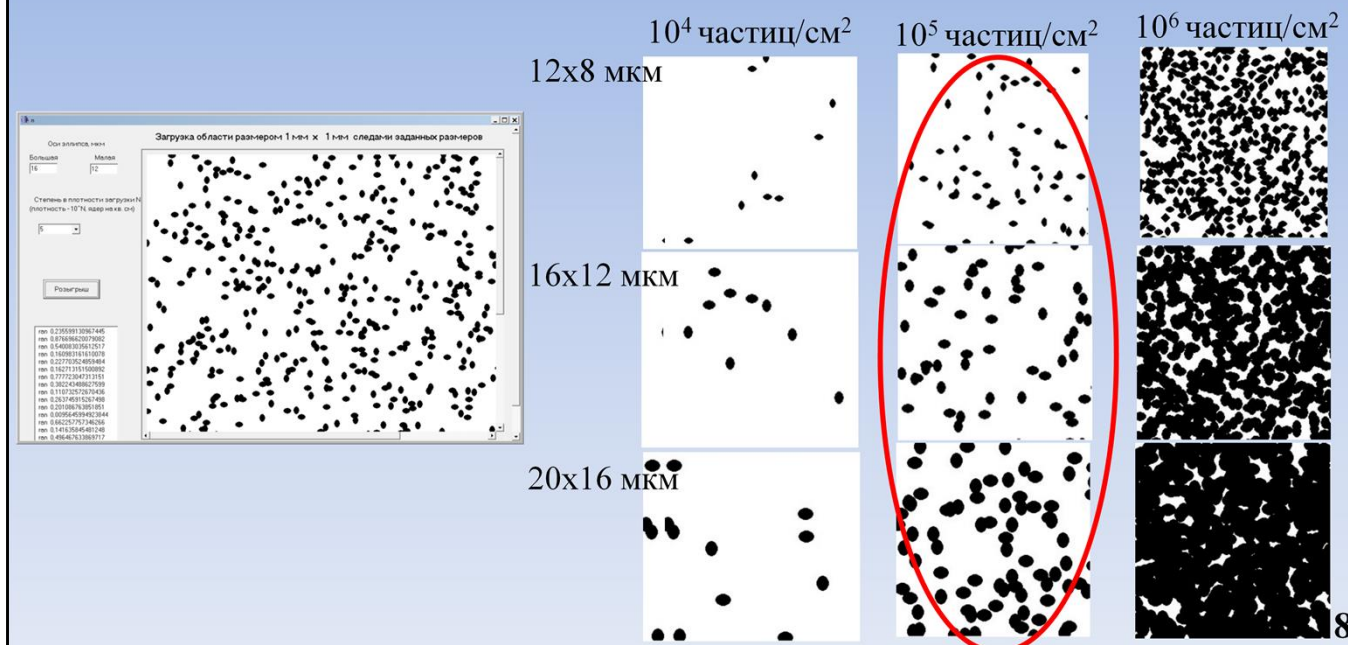
после дополнительной полировки



7

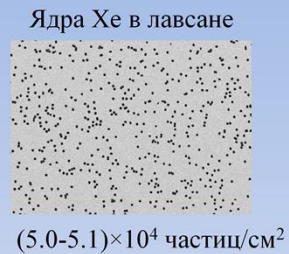
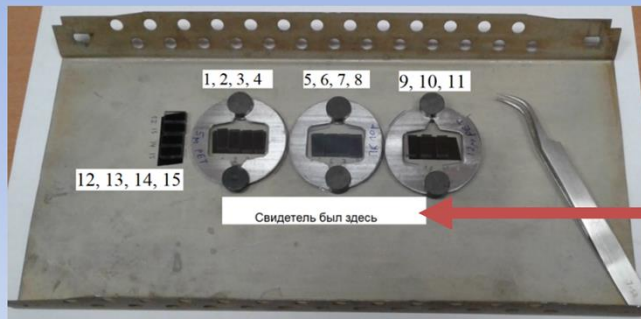
Перед нами стоит задача работать с ФС длиной 40см, понятно что сразу мы не можем работать с такой длиной, поэтому мы заказали стекла длиной по 10 см имея ввиду, что на нем мы отработаем методику работы на большой длине. Но прежде чем начинать работу даже на этой длине у нас была масса методических вопросов, для чего мы это стекло и распилили на маленькие образцы. С Лыткарино было согласовано техническое задание на изготовление стекла, но это военный завод со своей спецификой и своими требованиями. Производство не дешевое и изначально мы согласились со всеми предлагаемыми характеристиками. Сейчас мы точно знаем, что для настоящего эксперимента-для работы в пучке сверхтяжелых элементов-5 класс полировки не годится. Но в данном случае мы были вынуждены покупать это стекло, поскольку нам надо большое количество для отработки методических вопросов и вы видите, что в оптической мастерской приходилось не только нарезать, но и полировать.

Программа для выбора оптимальных условий облучения



Прежде, чем начать облучение необходимо было оценить оптимальную плотность ядер. Для этого создана программа, позволяющая по заданным размерам следов частиц, образовавшихся в стекле после травления, показать степень заполнения ими исследуемой поверхности при различных плотностях загрузки. Стало известно, что наибольшая эффективность распознавания треков тяжелых ионов при сохранении линейности характеристик детектора достигается при плотности облучения не более чем 10^5 частиц·см⁻²

Облучение ① КНФС-3 ядрами Хе под углом 0^0 с энергиями:



Образцы 12,13,14,15

$E \sim 160$ МэВ (без поглотителя)

Образцы 1,2,3,4

$E \sim ?$ МэВ (ПЭТФ 5мкм)

Образцы 5,6,7,8

$E \sim ?$ МэВ (поликарбонат 10мкм)

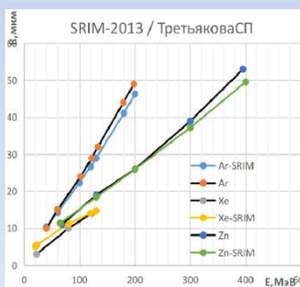
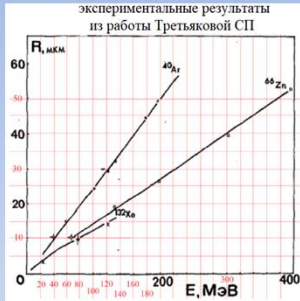
Образцы 9,10,11

$E \sim ?$ МэВ (ПЭТФ 12мкм)

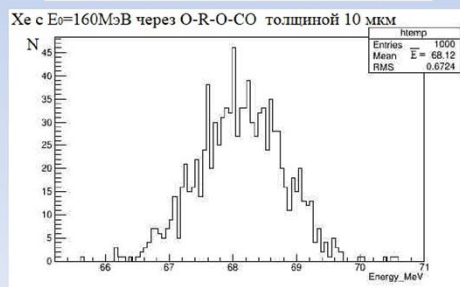
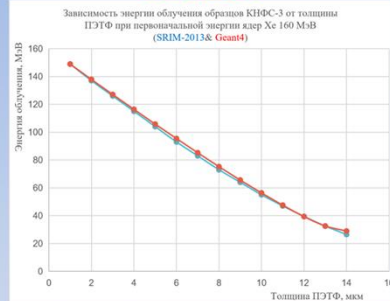
В следующем же калибровочном облучение был проведен контроль количества частиц в пучке, образцом лавсановой пленки. В этом облучение была поставлена задача сравнить треки ядер с разными энергиями, поэтому при проведение облучения ионами $^{132}\text{Xe}^{26+}$ с первичной энергией 160 МэВ, группы образцов были накрыты поглотителями различной толщины. А Для того, чтобы оценить энергию падающих частиц после поглотителей потребовались модельные расчеты.

Модельные расчеты

SRIM-2013



Geant4



SRIM-13 & GEANT4

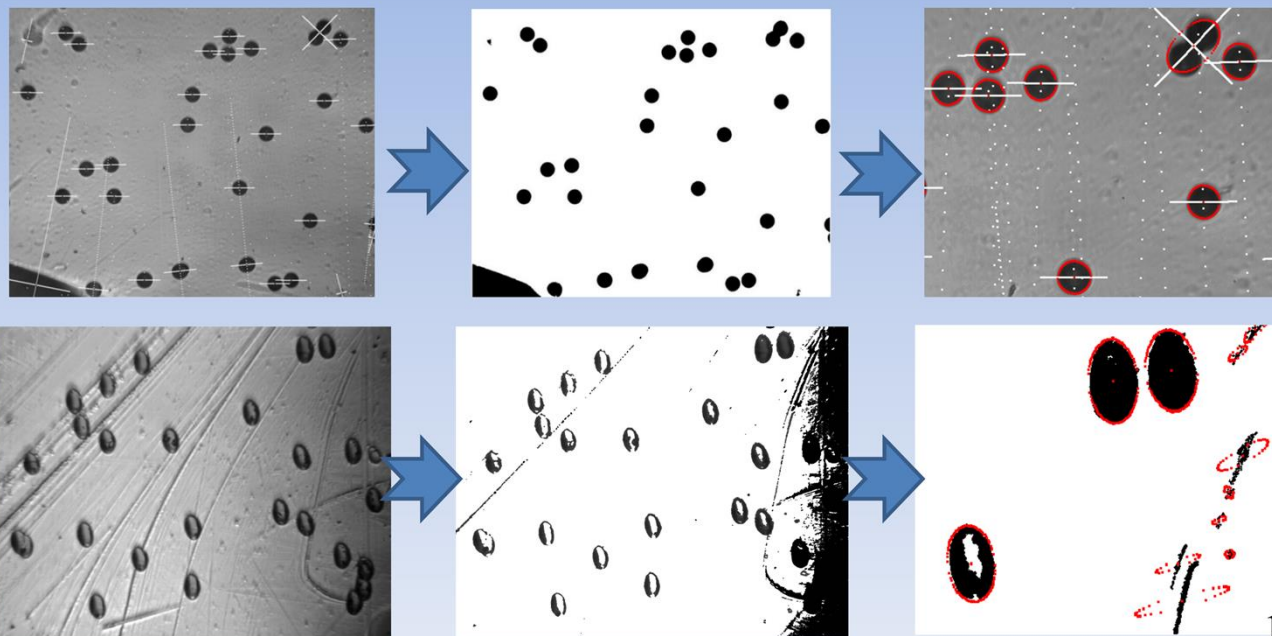
Образцы 1,2,3,4 $E \sim 104 \div 105,8$ МэВ
(ПЭТФ 5мкм)

Образцы 9,10,11 $E \sim 39,5 \div 39,35$ МэВ
(ПЭТФ 12мкм)

Образцы 5,6,7,8 $E \sim 65 \div 68,12$ МэВ
(поликарбонат 10мкм)

Широко используемыми пакетами для моделирования физических процессов прохождения ядер через вещество являются SRIM Geant4. Для начала мы сравнили расчеты по программе SRIM с экспериментальными данными полученными в работе по ФС. Видно что они хорошо согласуется. Затем на основе программного инструментария GEANT4 сформирован пакет для моделирования прохождения многозарядных частиц через ФС и поглотители. Правильность расчетов этих программ дает согласие по расчету энергии ядер Хе после поглотителей. Но в отличие от SRIM Geant4 обладает открытым исходным кодом и дает распределение с оценкой погрешности.

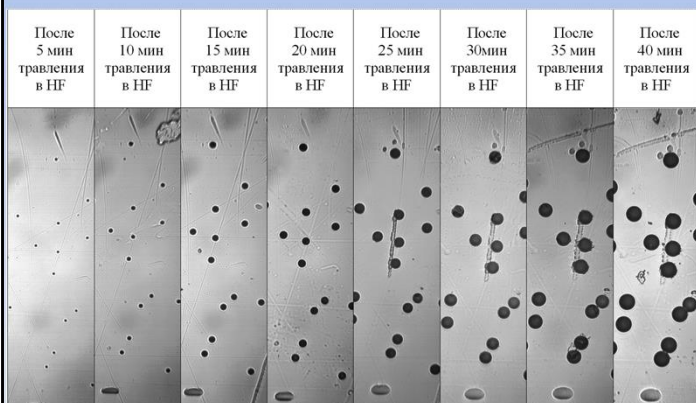
Программа обработки изображения



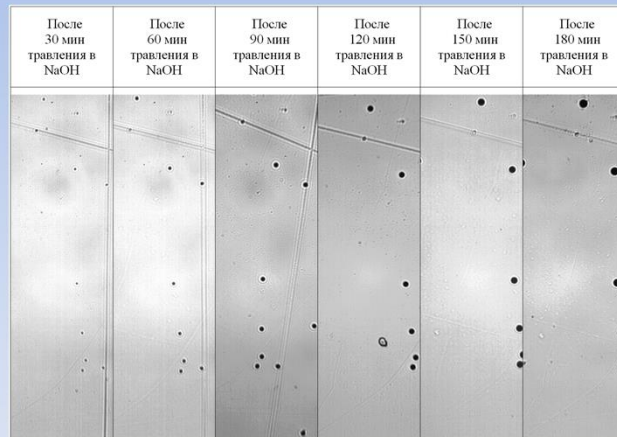
Принцип регистрации и идентификации ионов тяжелых ядер в ФС основан, прежде всего, на анализе геометрических параметров каналов, проявившихся в результате травления. Объем получаемой информации возрос, поэтому была разработана и реализована программа обработки изображений, с помощью которой выделяются оси входных лунок каналов и определяется их геометрическая форма и размер.

Химическое травление КНФС-3

40% HF



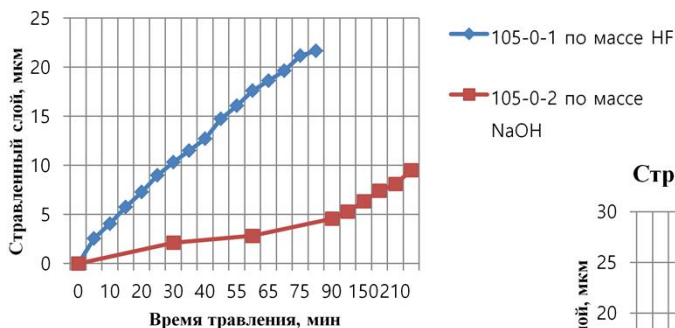
10N NaOH



Для ФС марки КНФС-3 предстояло также исследовать оптимальные режимы травления. Проведены серии тестовых травлений образцов в плавиковой кислоте и в гидроксиде натрия.

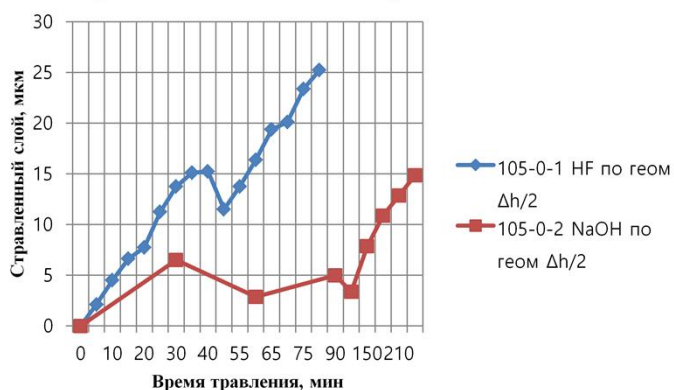
HF или NaOH?

Стравленный слой по массе в HF и в NaOH



➔ 40%HF

Стравленный слой по геометрии в HF и в NaOH



При травлении в щелочи были замечаны скачки при измерении геометрических размеров образцов, в отличие от метода определения по массе. Это объясняется тем, что щелочь при взаимодействии с компонентами стекла дает соли, которые могут оседать на образце. Время травления в NaOH значительно превышает время травления в HF. И в дальнейшем мы отдали предпочтение травлению в плавиковой кислоте. Да и изображения треков ионов, протравленных в плавиковой кислоте, обладают большей контрастностью, что повышает точность измерений при автоматической обработке.

Определение толщины стравленного слоя

1 прямое измерение h

$$2 \Delta = \frac{L_1 D_1 h_1 - L_2 D_2 h_2}{2(L_1 D_1 + D_1 h_1 + L_1 h_1)}$$

где L_1, D_1, h_1 - длина, ширина и толщина бруска до травления
 L_2, D_2, h_2 - длина, ширина и толщина бруска после травления

$$3 \Delta = \frac{m_{\Delta}}{2\rho(L_1 D_1 + L_1 h_1 + D_1 h_1)}$$

где L_1, D_1, h_1 - длина, ширина и толщина бруска до травления

m_1 - масса бруска до травления,

m_2 - масса бруска после травления,

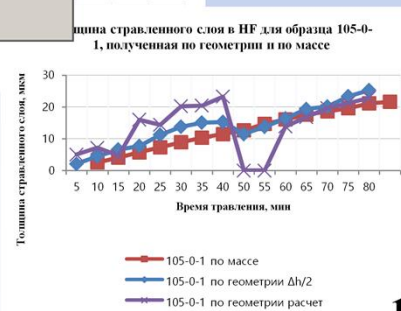
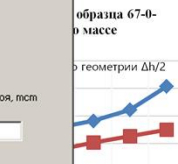
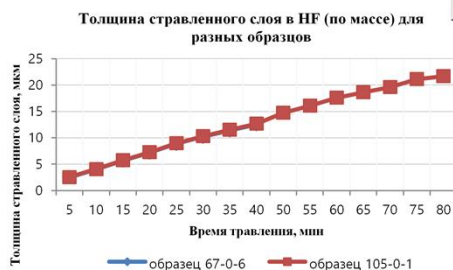
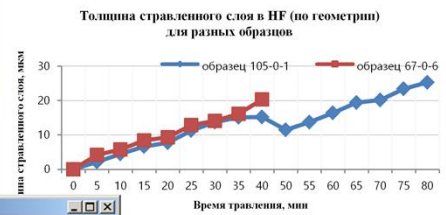
$m_{\Delta} = m_1 - m_2$ - стравленная масса,

$\rho = 2.7 \text{ г/см}^3 = 2.7 \cdot 10^{-12} \text{ г/мкм}^3 = 2.7 \cdot 10^{-9} \text{ мг/мкм}^3$.

Вычисление толщины стравленного слоя

Начальная длина, мсм	10000
Начальная ширина, мсм	5000
Начальная толщина, мсм	3000
Изменение веса, мг	5
Плотность, г/см ³	2.87
Толщина стравленного слоя, мсм	9.16926

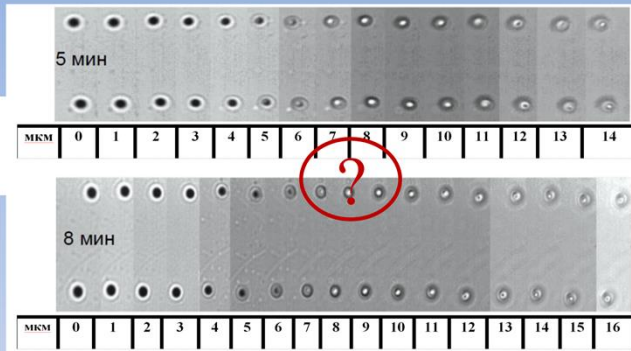
Результат



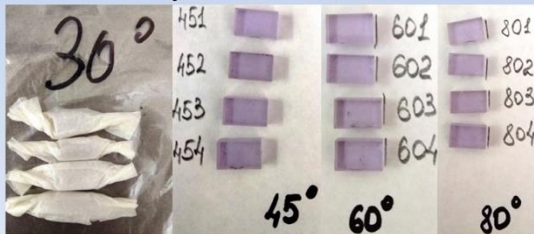
Важным параметром при идентификации ядер является длина трека, а при ее оценке необходимо знать толщину стравленного слоя. Эта величина должна быть добавлена к видимой в микроскоп глубине канала. Мы сравнили несколько методов определения стравленного слоя. Сначала мы использовали обычный микрометр, но это не дало достаточной точности (~1 мкм). Измерения геометрических размеров образца до и после травления, демонстрируют существенный разброс. Это объясняется неравномерностью травления вдоль поверхности образца и недостаточной точностью нарезки стекол. Однако видно, что метод определения по массе до и после травления при одинаковом времени травления для различных образцов практически совпадают. Это свидетельствует о высокой точности такого метода, на котором мы и остановились, а также дополнили расчеты в ПО.

Глубина канала

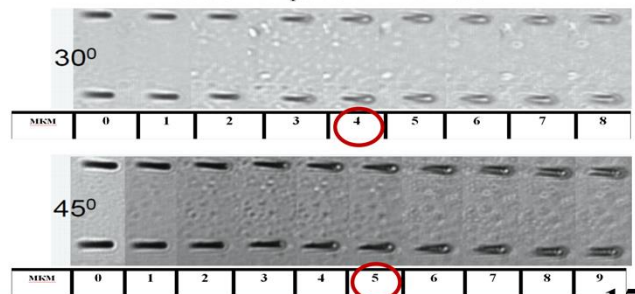
Форма каналов при вертикальном падении ядер Хе с $E=65-68\text{МэВ}$ образец №7 при разных временах травления в HF 40%



Облучение ② КНФС-3 ядрами Хе, Ar, Kr с различными углами падения:

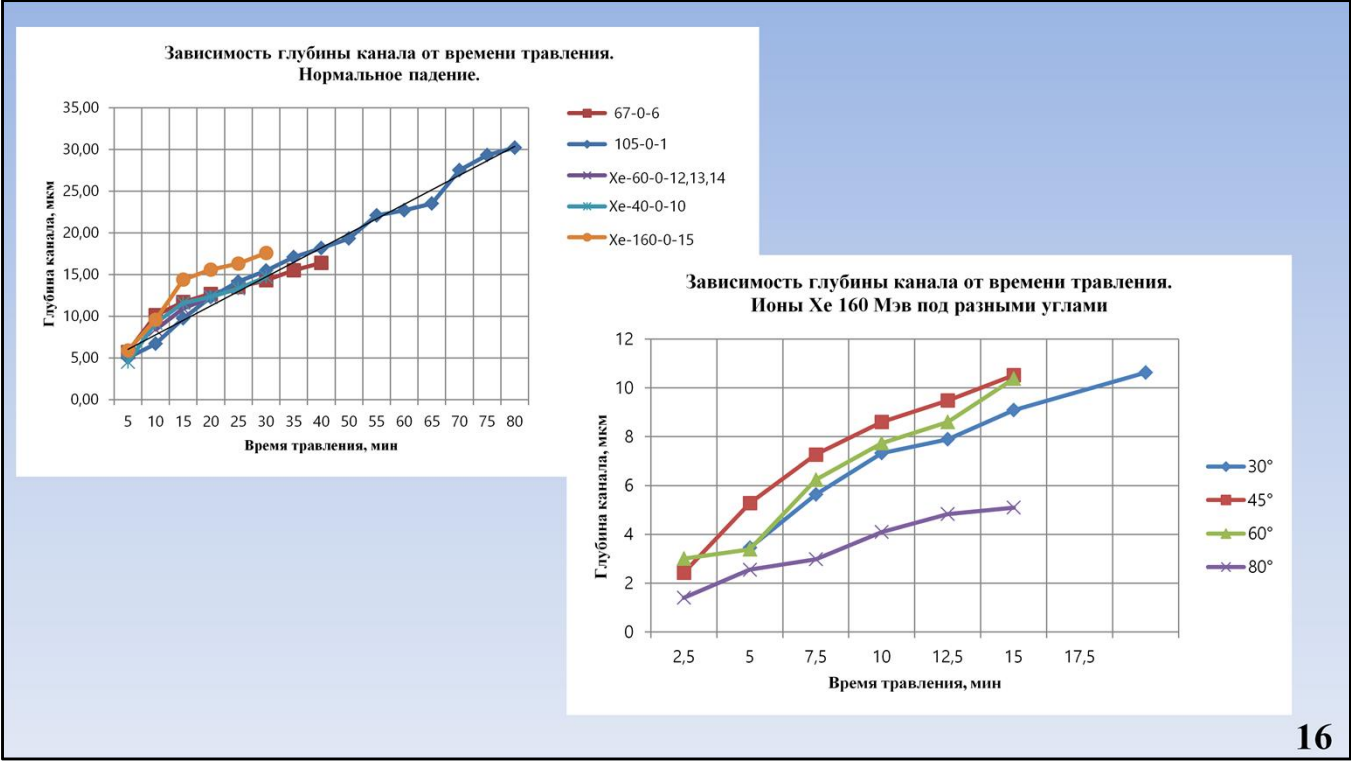


Форма каналов Хе с $E=160\text{МэВ}$ образцы №301 и 451 после 5мин травления в HF 40%



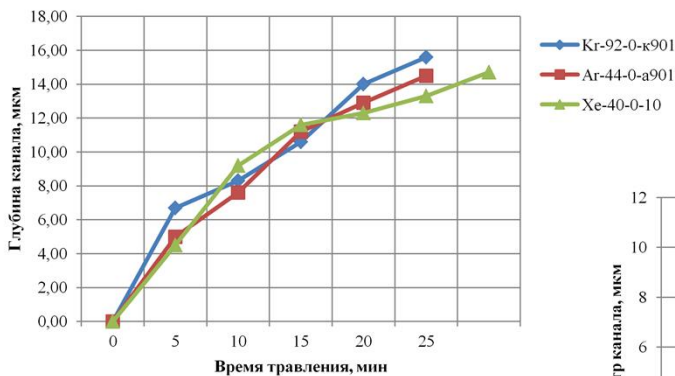
15

До сих пор все образцы КНФС-3 облучались ядрами Хе перпендикулярно поверхности образцов и мы пытались измерять видимую в микроскоп глубину канала, но столкнулись с вопросом фокусировки дна. Применяемый критерий определения конца канала - появление четкой белой или черной точки на изображении под микроскопом - можно считать достаточно условным. А вот из следующего облучения набором ядер под различными углами мы смогли выработать критерий дна канала по расфокусировке.

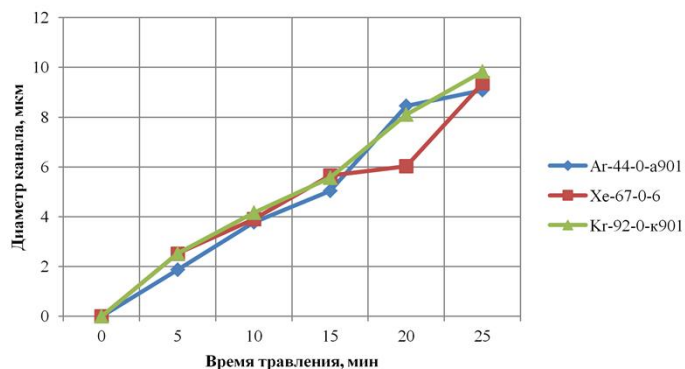


Анализ экспериментальных зависимостей травимой глубины канала ионов Хе для разных энергий и углов падения показывает, что глубина канала как параметр не позволяет определять характеристики иона.

Зависимость глубины канала разных ионов от времени травления



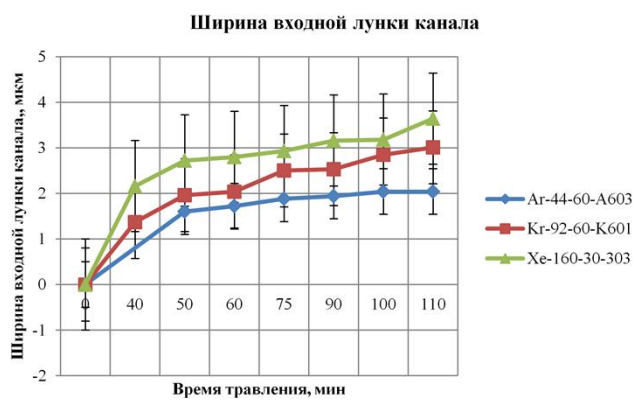
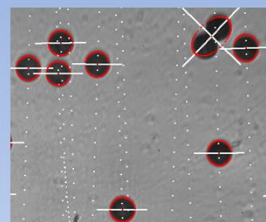
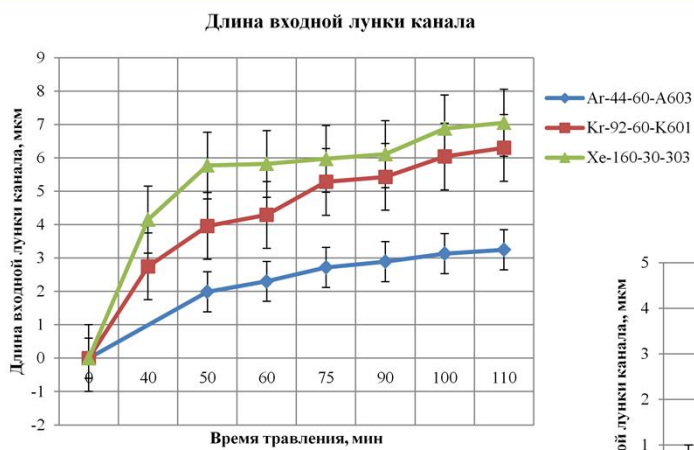
Зависимость диаметра канала от времени травления в 40%HF.



ПЕРЕХОД в травлении 40% HF → 20% HF

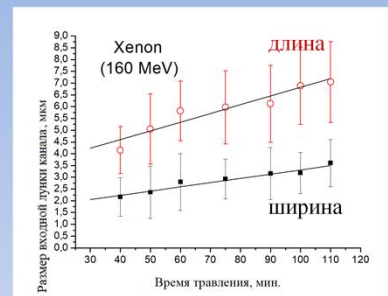
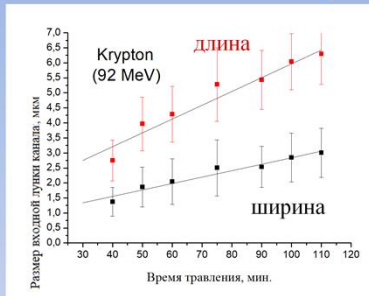
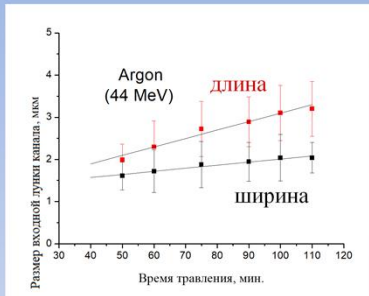
А результаты измерений глубины канала для ионов Ar (44 МэВ), Kr (92 МэВ) и Xe (40 МэВ) при нормальном падении не демонстрируют различий для этих ионов в применявшихся условиях травления. Вследствие чего было сделано предположение, что при высокой концентрации травящего раствора при выбранных интервалах травления мы пропускаем фазу оптимальной растравленности канала, поэтому мы сначала резко уменьшили концентрацию кислоты и пробовали при 3%, потом 20% и обнаружили, что оптимально работать с 20% раствором HF.

Размер входной лунки канала

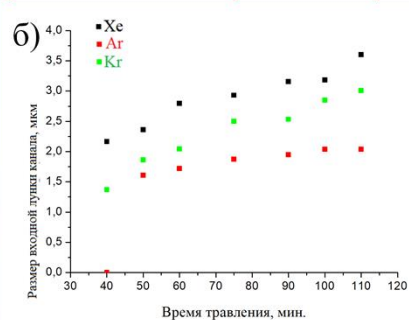
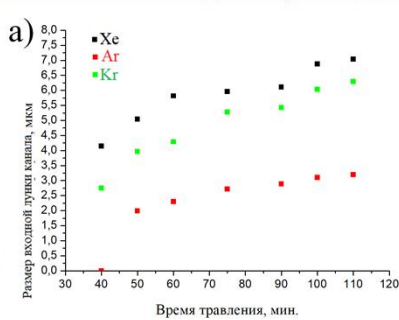


Благодаря этому шагу нам удалось "разделить" травимые каналы в ФС от различных ионов.

Зависимость длины и ширины входной лунки канала на поверхности от времени травления.
Угол падения частиц 30° к нормали.

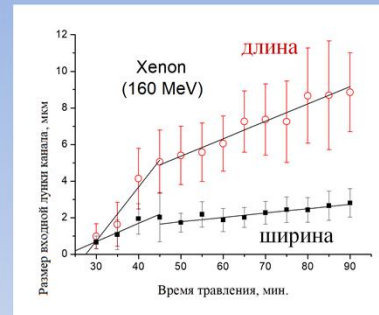
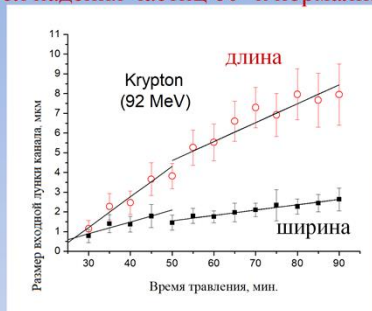
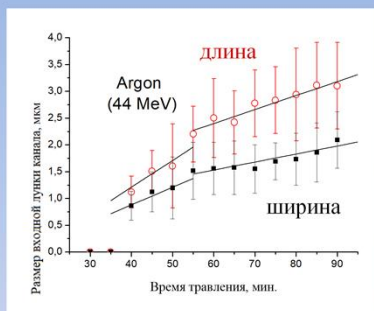


Сравнение зависимости длины (а) и ширины (б) входной лунки канала на поверхности от времени травления.

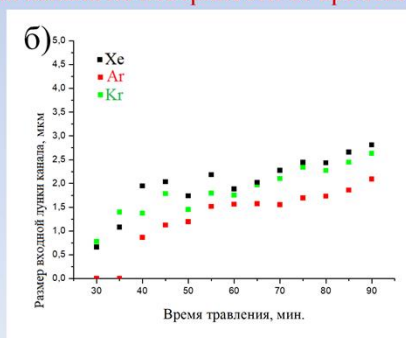
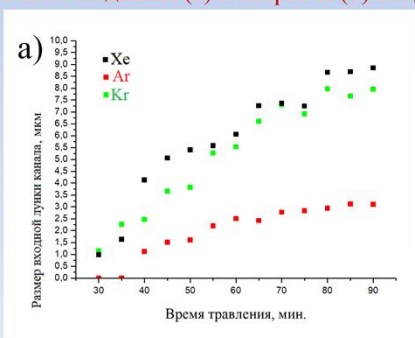


Мы продолжили анализ полученных экспериментальных данных. Результаты травления образцов в 20% растворе HF для угла падения ядер 30° к нормали, могут быть аппроксимированы прямыми линиями, параметр наклона которых характеризует скорость изменения размера входных лунок в зависимости от времени травления. И это свидетельствуют о том, что при времени травления более 30 минут происходит травление материала образцов, когда точка останова ядра уже пройдена. Поэтому для получения информации о характеристиках канала ядра необходимо начинать обработку следов на более ранней стадии.

Зависимость длины и ширины входной лунки канала на поверхности от времени травления.
Угол падения частиц 60° к нормали.

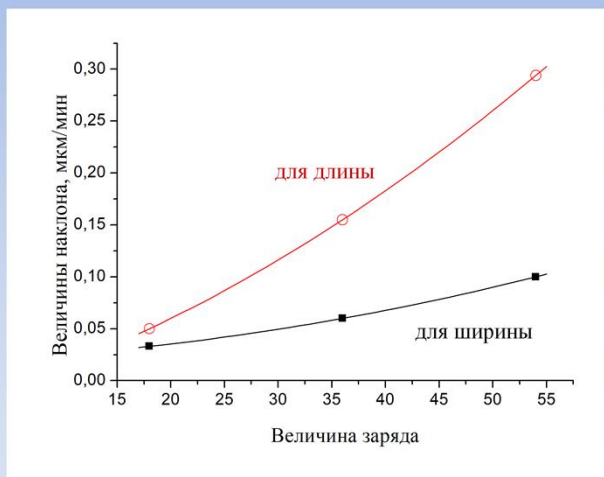


Сравнение зависимости длины (а) и ширины (б) входной лунки канала на поверхности от времени травления.

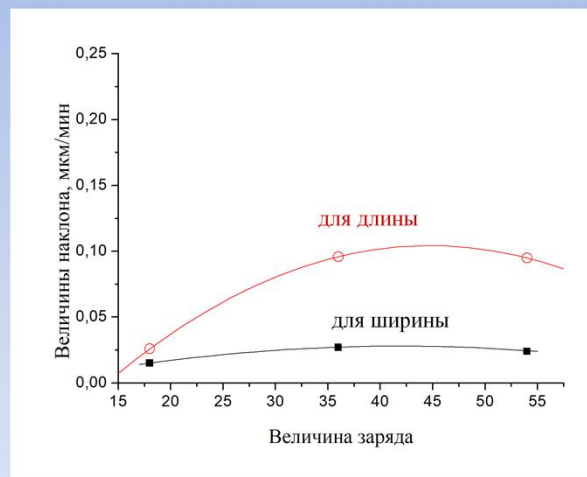


Так для угла падения ядер 60° к нормали при травлении измерения начали с 30 мин. При этом мы увидели, что процесс травления распадается на две части. Одна из них (левая на рисунках) соответствует травлению зоны повреждения материала стекла до точки останова ядра. Вторая связана с простым растравливанием материала. Коэффициенты наклонов отрезков прямых в зависимостях размеров лунок от времени травления отражают скорость травления на данном участке.

Зависимость размеров входной лунки канала от времени травления как функции заряда.



время травления $30 \text{ мин} \leq T \leq 45 \text{ мин}$

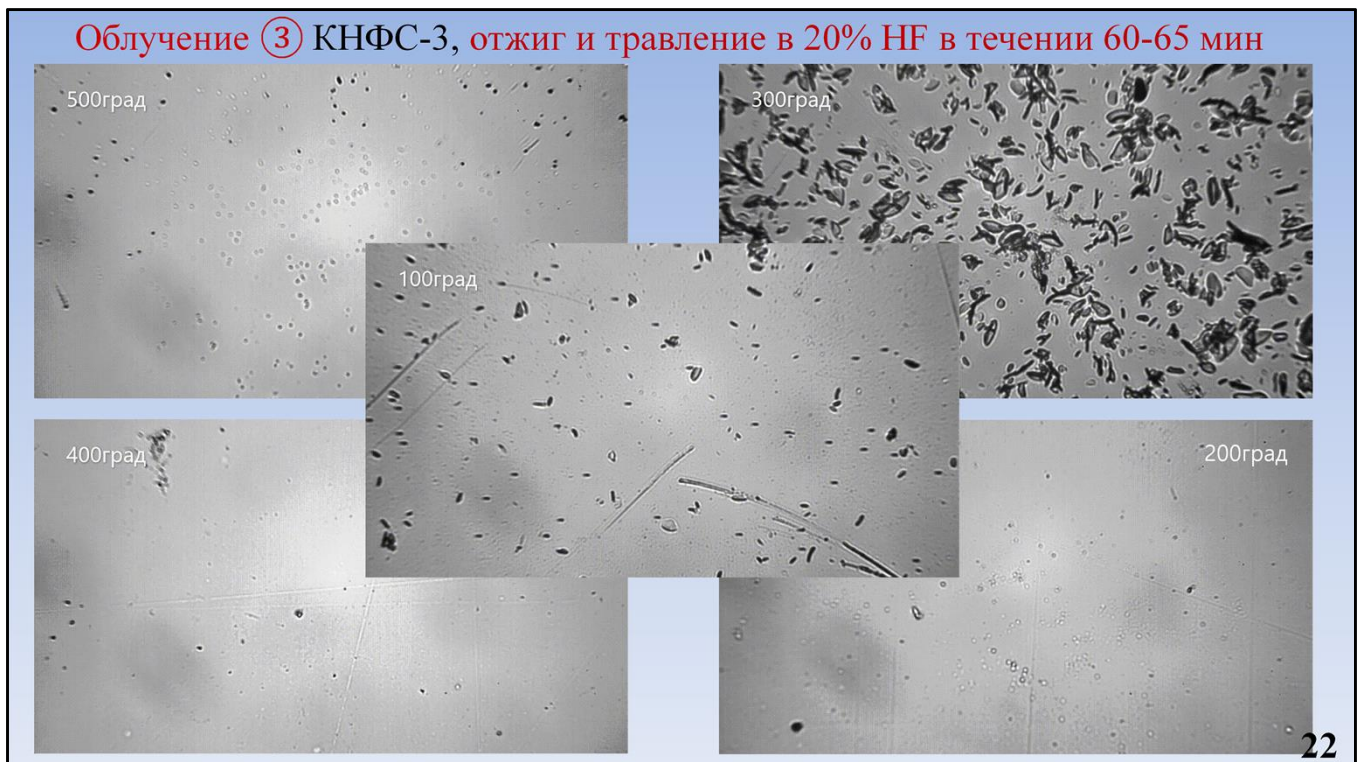


время травления $T \geq 50 \text{ мин}$

21

Используя полученные коэффициенты как функцию заряда, получаем, что коэффициенты, а, следовательно, и скорости изменения размеров лунок, существенно зависят от заряда на начальном этапе травления. Второй этап в этом отношении менее чувствителен к заряду. По этим кривым, производится оценка заряда ядра методом интерполяции обратной функции. Представленные калибровочные кривые получены только для случая ядер при фиксированной энергии около 1,1 МэВ/нуклон. Поведение этих кривых может зависеть не только от заряда, но также от энергии и угла падения ядра. Тогда функция для определения характеристик ядра будет задаваться не кривыми на плоскости, а поверхностью. В этом случае для определения заряда можно использовать двойную интерполяцию.

Облучение ③ КНФС-3, отжиг и травление в 20% HF в течении 60-65 мин



В реальном эксперименте по синтезу ядер трековые детекторы находятся в температурном режиме. И наш следующий шаг направлен на исследование проявления треков в ФС после отжига при разных температурах. Последнее образцы облучены ядрами Хе и отожжены от 100 до 500 градусов. На данный момент они протравлены в том же 20% растворе HF и после 65 мин травления каналы от ядер наблюдаются только в образце отожженном при 100 град. И мы с нетерпением ждем продолжения травления, для того чтобы выяснить влияние температуры на проявление треков ядер в фосфатном стекле.

Основными результатами работ являются:

- заключение о возможности использования фосфатного стекла КНФС-3 для регистрации треков ядер;
- выбраны оптимальные условия химического травления облученного фосфатного стекла (состав травящего химического раствора, концентрация, время травления) для эффективной идентификации зарядов ионов;
- разработан пакет программ для автоматизированного измерения размеров протравленных каналов ионов;
- получены результаты обработки изображений каналов в фосфатном стекле на измерительном комплексе ПАВИКОМ;
- характеристики каналов ионов Ag, Kг и Хе, протравленных в фосфатном стекле, и их зависимость от заряда для энергии 1,1 МэВ/нуклон при угле падения 60° ;
- параметрическая зависимость заряда ионов по измеряемым геометрическим характеристикам каналов.



1876-1940

*"Без оптического стекла нет
ни познания природы,
ни власти над ней"*

Д.С. РОЖДЕСТВЕНСКИЙ

с 1918 по 1932 год - директор и научный руководитель
Государственного оптического института (ГОИ),
созданного по его инициативе в 1918 году.

1919 год - организовал при ГОИ так называемую «Атомную комиссию»
для исследования строения атомов и атомных спектров.

1919-1927 год занимался организацией производства оптического стекла

В 1922 году - организовал Русское оптическое общество.

Начиная с 1924 года активно участвовал в создании отечественной

Благодарю за внимание!