

РАЗДЕЛЕНИЕ И ПРИМЕНЕНИЕ ИЗОТОПОВ.
МАСС-СПЕКТРОМЕТРИЯ

УДК 524.1.539.1.05

ИССЛЕДОВАНИЕ ОСОБЕННОСТЕЙ ПРОТРАВЛЕННЫХ ТРЕКОВ
СВЕРХТЯЖЕЛЫХ ЯДЕР В ОЛИВИНАХ ИЗ МЕТЕОРИТОВ

© 2020 г. Тан Найнг Со^а, *, Н. Г. Полухина^а, Н. И. Старков^а

^аФизический институт им. Лебедева РАН, Ленинский пр., 53, Москва, 119991 Россия

*E-mail: dr.thannaingsoe.lpiras@gmail.com

Поступила в редакцию 03.06.2020 г.

После доработки 04.06.2020 г.

Принята к публикации 25.06.2020 г.

В данной работе исследуются протравленные каналы особой формы, возникшие в процессе поиска сверхтяжелых ядер в оливинах из метеоритов. Рассматривается возможность появления треков такой формы за счет электронов, проникающих в оливин на расстояние несколько микрометров от трека. Приводятся результаты расчетов, связанные с пространственно-временным развитием электронного ливня в процессе прохождения тяжелого иона через оливин. Показано, что объяснить наблюдаемый эффект только наличием δ -электронов не удастся. Кроме того обсуждается соответствие ряда предположений некоторых моделей прохождения ионов через вещество полученным характеристикам δ -электронов.

Ключевые слова: галактические ядра, метеориты, оливин, травление, GEANT4

DOI: 10.1134/S2079562920010169

ВВЕДЕНИЕ

В Физическом институте им. П.Н. Лебедева РАН в рамках проекта ОЛИМПИА методом химического травления проводятся исследования треков тяжелых и сверхтяжелых ядер галактических космических лучей в кристаллах оливина из каменно-железных метеоритов (палласитов), используемых в качестве детекторов ядер [1, 2]. К настоящему времени найдено более 20000 треков ядер с зарядом Z более 50. На рис. 1 показано распределенность галактических ядер, найденных в метеоритах Marjalahti и Eagle Station, в сравнении с результатами экспериментов на спутниках.

Методом изучения треков тяжелых ионов в метеоритах является травление кристаллов оливина $(\text{Mg}_{0.8}\text{Fe}_{0.2})_2\text{SiO}_4$ и определение характеристик получающихся в результате каналов. Главными показателями, отражающими свойства прошедшего ядра, являются геометрические характеристики канала, образовавшегося за определенное время травления, и скорость травления оливина. Среди обнаруженных протравленных каналов около 2% имеют необычную форму. На рис. 2а показан типичный конусообразный протравленный канал, который мы между собой называем “морковь”, а на рис. 2б показан протравленный канал, имеющий необычную форму “шприца”. Ширина “моркови” и узкой части “шприца” составляет 2–4 мкм, а широкая часть “шприца” —

6–10 мкм. Природа такого поведения протравленных каналов, показанных на рис. 2б, не ясна.

Разработка моделей прохождения ядер через вещество и процесса химического травления ведется уже много лет [3–6]. Однако даже одна из самых современных моделей – модель молекулярной динамики [7], основанная на уравнениях химической кинетики, пока не может объяснить это явление [8].

В данной работе детально рассмотрены процессы прохождения тяжелых ионов через оливин и представлена пространственно-временная картина развития электронного каскада с целью объяснить обнаруженную особенность формы протравленных треков взаимодействием вторичных частиц. Расчеты проводились с использованием пакета программ GEANT4 [12], который позволяет имитировать прохождение первичных и вторичных частиц через установку и проследить характеристики каждой из них от места возникновения вплоть до точки останова.

Для выяснения причин возникновения изучаемого эффекта результаты расчетов сопоставлялись с пространственно-временными характеристиками сценария прохождения ионов через вещество, предполагаемыми в различных моделях этого процесса.

Существующие модели по-разному объясняют причины возникновения видимых после травления треков, но все они сходятся в том, что про-

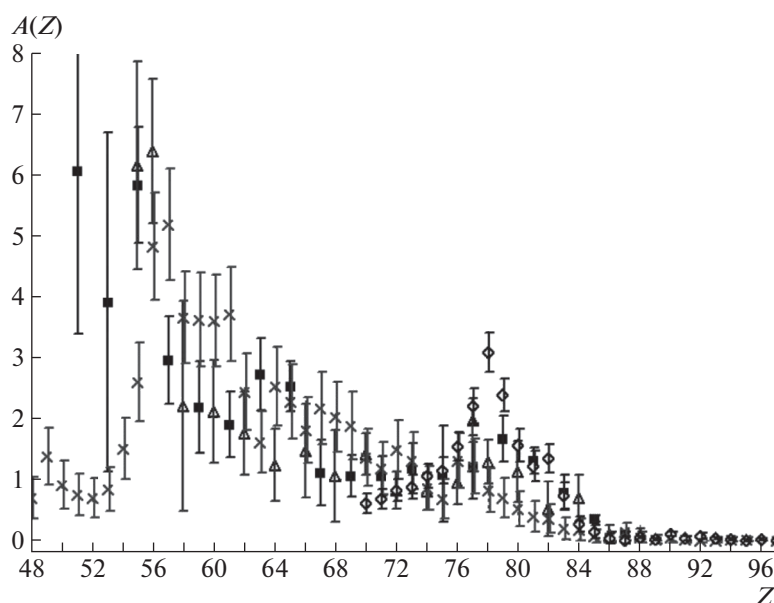


Рис. 1. Распространенность галактических ядер, найденных в метеоритах Marjalahti и Eagle Station (кресты), в сравнении с экспериментами на спутниках (квадраты — HEAO-3 [9], треугольники — Ariel-6 [10], ромб — UHCRE [11]).

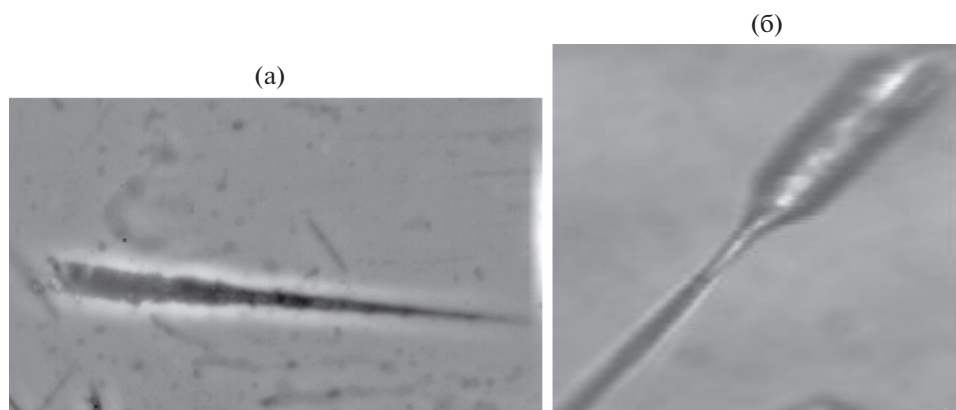


Рис. 2. Типичный протравленный канал ядра с зарядом $Z = 70$, “морковь” в авторском жаргоне (а); протравленный канал ядра $Z = 65$, имеющий необычную форму “шприца” (б).

цесс прохождения ионов через вещество носит сложный динамический характер и протекает в несколько стадий [4, стр. 26]. Начальная стадия включает в себя непосредственное столкновение иона с электронами и ядрами атомов вещества и передачу им некоторого импульса. Это приводит к ионизации и возбуждению атомов, а также к смещению ядер. Дальнейшая картина процесса зависит от модели. Так в некоторых из них решающее значение придается дозе облучения области, примыкающей к треку иона, и даже устанавливается ее нижний порог $D \sim 10^4 - 10^5$ Гр [4, 5, стр. 37]. В других моделях определяющим показателем считается уровень ионизационных потерь [5, стр. 35], которые подразделяются на первич-

ную, создаваемую ионом, и вторичную за счет взаимодействия δ -электронов. Каждая из них по-разному участвует в создании области поврежденного материала. Очень важным обстоятельством в образовании травимого трека является возникновение на начальной стадии процесса (примерно, первые несколько фс) огромного градиента различных характеристик вблизи трека: плотность электронов в запрещенной зоне, степень ионизации, плотность выделенной энергии, плотность кинетической энергии частиц и т.д. На этом эффекте построено несколько моделей, которые учитывают взрывной характер протекающих в веществе процессов: теплового клина, ионно-взрывного клина и др. [4, стр. 36]. Протекающие на этом

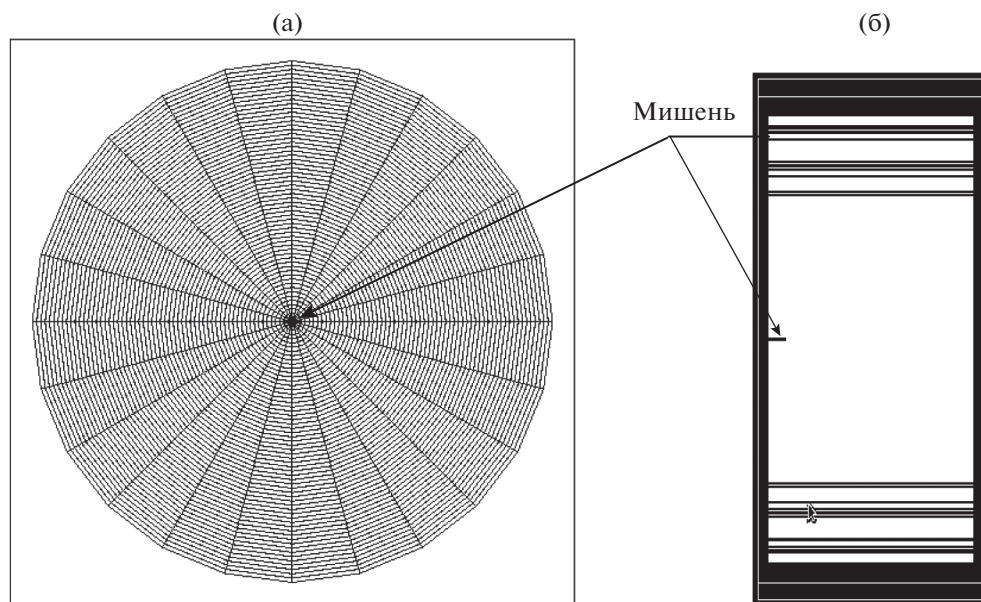


Рис. 3. Конструкция моделируемого детектора: (а) вид спереди (120 концентрических колец), (б) вид сбоку.

этапе процессы являются крайне неустойчивыми, ведут к последующей перестройке структуры вещества в окрестности трека и в конечном итоге к изменению химических свойств в этой области. Это приводит к увеличению во много раз скорости травления вещества в травителе.

В данной работе с помощью моделирования рассматриваются пространственно-временные характеристики начального этапа процесса прохождения иона через вещество, которые помогут понять насколько они велики на расстоянии в несколько микрометров от иона.

МОДЕЛИРОВАНИЕ В ПАКЕТЕ GEANT4

Поперечные размеры протравленного канала достигают нескольких микрометров, в то время как основная зона повреждений химических связей — несколько десятков нанометров. С учетом этого в рамках GEANT4 был разработан проект, который включает детектор, оптимизированный с точки зрения изучения пространственного и временного развития процесса прохождения тяжелого иона через вещество для разных ядер и энергии.

Пакет GEANT4 [9] (GEometry ANd Tracking) является платформой для моделирования прохождения частиц через вещество с использованием методов Монте-Карло. Отличительной особенностью GEANT4 является возможность отслеживать все характеристики частиц, как первичных, так и вторичных, на всем протяжении их траектории от момента появления до точки останова или выхода за пределы установки. В данном случае такая детальная информация важна для понимания меха-

низма повреждения межатомных связей, которые приводят к возможности использовать метод травления и получать сведения о прошедших частицах по характеристикам протравленного канала. На этом основано действие многих твердотельных детекторов. В данной работе использовалась версия 10.01 GEANT4.

РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ

Задачей расчетов является изучение влияния электронов, возникших в результате прохождения ионов через оливин, на расстоянии в несколько микрометров от оси трека. Показателями такого влияния являются количество электронов, плотность выделенной энергии, спектры первичных и вторичных электронов и другие [3–6]. Для получения этих величин и оценке их влияния были проведены расчеты для ядер Ba, Au и U с энергиями от 1 до 100 МэВ/нуклон. В результате были получены различные распределения электронов как функции времени и расстояния от иона, в зависимости от заряда и энергии налетающего ядра. Диапазон исследуемых расстояний составил от 2 нм до 6 мкм, а времени от 0.5 до 60 фс соответственно.

Ввиду многочисленности полученных результатов, наиболее детально они будут представлены для ядра урана. Для остальных ядер они будут представлены в ограниченном объеме, но достаточно, чтобы понять зависимость величин от заряда. Кроме того в основных расчетах данной работы мы ограничимся детальными распределениями только для электронов, имеющих энергию

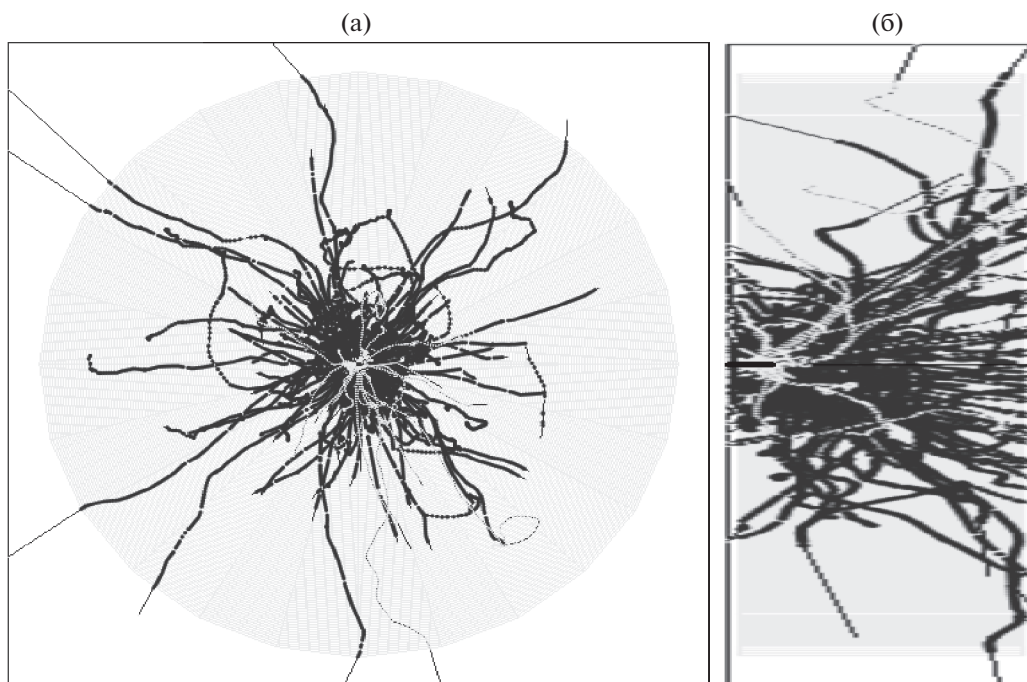


Рис. 4. Пример события прохождения ядра урана с энергией $E = 100$ МэВ/нуклон через детектор: (а) вид спереди; (б) вид сбоку.

$E > E_{\text{cut}} = 500$ эВ, поскольку рассматриваем влияние электронов на микронном расстоянии, где влияние электронов с меньшей энергией ничтожно. С другой стороны с уменьшением E_{cut} резко возрастает количество электронов, что приводит к росту требуемых ресурсов. Что касается энергетических потерь иона, то они учитываются полностью, включая потери и на самые медленные электроны, и на возбуждение атомных уровней, и на взаимодействие с ядрами атомов.

Для каждого ядра и при каждой энергии было разыграно по 10000 событий. Представленные далее результаты соответствуют усредненным по всем событиям величинам, полученным при прохождении каждым из ядер 200 нм оливина. Причем время прохождения мишени (200 нм) ионом составляет от 1 до 6 фс.

На рис. 4 показан пример взаимодействия ядра урана с мишенью при энергии 100 МэВ/нуклон. Видно, что основная масса электронов сосредоточена вблизи центральной части, но некоторые электроны достигают края детектора и выходят за него, т.е. уходят на расстояние 6 мкм и далее.

Среди факторов, влияющих на возможность возникновения травимого трека, присутствует количество электронов, появляющихся при прохождении иона через вещество. В табл. 1 приведены количества первичных электронов с энергией $E > E_{\text{cut}} = 500$ эВ, возникших от столкновения иона с атомами, и вторичных электронов для разных ядер и энергий. Заметим, что GEANT4 при

розыгрыше взаимодействий ионов в веществе учитывает наличие у них не только номинального, но и эффективного заряда, зависящего от энергии и свойств окружающей среды. Как уже говорилось, в наших расчетах мы ограничиваемся учетом детальной информации только для электронов с энергией $E > E_{\text{cut}} = 500$ эВ. Чтобы продемонстрировать влияние этого параметра, на рис. 5 приведена зависимость числа электронов от “порога регистрации” E_{cut} для ядра Ва при энергии 100 МэВ/нуклон. Из-за этого ограничения возникает резкое снижение числа вторичных электронов при энергии $E = 1$ МэВ/нуклон, подавляющая часть которых имеет меньшую энергию.

Более детальная информация – средняя плотность числа электронов в зависимости от расстояния и времени, представлена на рис. 6 для ядра урана при энергии 1, 5, 30 и 100 МэВ/нуклон. Эти значения энергии выбраны не случайно. Энергия $E = 5$ МэВ/нуклон соответствует максимуму ионизационных потерь. Энергии $E = 1$ МэВ/нуклон и $E = 30$ МэВ/нуклон соответствуют ионизационным потерям, равным, примерно, половине максимальных, но расположены по разные стороны от максимума, а энергия $E = 100$ МэВ/нуклон находится вблизи минимума потерь.

Другой важной характеристикой прохождения иона через вещество является плотность выделенной ионом и электронами энергии. На длине 200 нм удельные потери иона практически не ме-

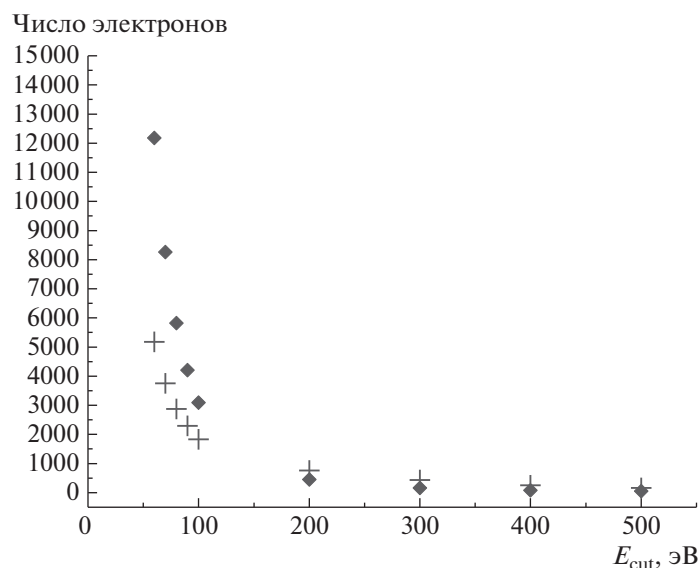
Таблица 1. Количество первичных электронов с энергией $E > E_{\text{cut}} = 500$ эВ, возникших от столкновения иона с атомами, и вторичных электронов для разных ядер и энергий

Энергия ядра, МэВ/нуклон	1	5	10	30	50	100
Первичные электроны						
Ba	1224	728	502	241	163	96
Au	1558	1275	973	549	395	242
U	1591	1572	1267	773	574	364
Вторичные электроны						
Ba	99	209	164	77	52	30
Au	84	307	309	177	126	77
U	59	340	382	250	184	116

няются, а анализ суммарных величин потерь энергии ионом показал, что они соответствуют удельным потерям при соответствующих энергиях. Поэтому ион не представляет для нас интереса, и в дальнейшем мы будем обсуждать только энергетические потери электронов. На рис. 7 представлены распределения плотности выделенной электронами энергии как функции расстояния от трека иона и времени при энергиях урана от 1 до 100 МэВ/нуклон в единицах МэВ/мкм³ (для оли-

вина 20 МэВ/мкм³ ≈ 1 Гр). Учитывая приведенные выше пороговые величины дозы облучения D , получим оценку порога в наших единицах $D > 10^7$ МэВ/мкм³. Из рис. 7 видно, что этому условию удовлетворяют расстояния вплоть до нескольких сотен нм при энергии больше 5 МэВ/нуклон.

Кроме того рис. 7 показывает несостоятельность утверждения об определяющей роли величины ионизационных потерь для формирования видимого после травления трека. Так при энерги-

**Рис. 5.** Зависимость числа электронов от порога обрезания энергии E_{cut} . Ромб — первичные электроны, крест — вторичные электроны.

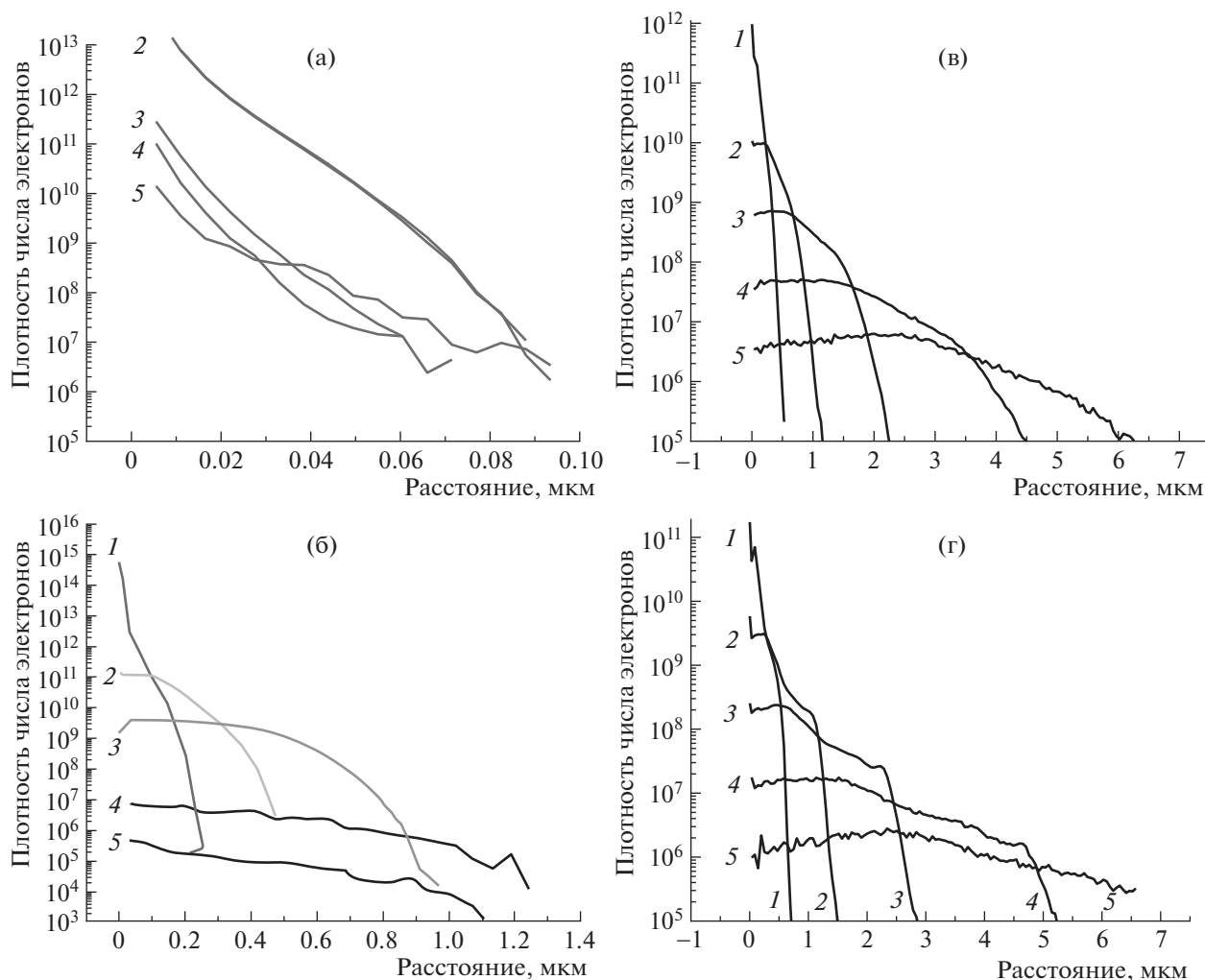


Рис. 6. Плотность числа электронов [мкм^{-3}] как функция расстояния до трека и времени для урана с энергиями 1 (а), 5 (б), 30 (в) и 100 (г) МэВ/нуклон. Время: 1 – 5, 2 – 10, 3 – 20, 4 – 40 и 5 – 60 фс.

ях 1 и 30 МэВ/нуклон ионизационные потери имеют одинаковую величину, но распределения числа электронов и выделенной энергии для этих энергий совершенно различны.

Для демонстрации зависимости распределений от заряда на рис. 8 они показаны для урана, золота и бария при энергии 30 МэВ/нуклон и времени 5 фс. В непосредственной близости к треку соотношение величин приблизительно отвечает отношению квадратов зарядов.

Обсудим теперь полученные результаты. Как видно из представленных рисунков, в область до 6 мкм и более от оси трека, попадает некоторое число электронов. Но электроны, имеющие плотность выделенной энергии достаточную для повреждения межатомных связей, занимают гораздо меньшую область. Кроме того маловероятно, что даже они на расстоянии в несколько сотен нано-

метров, дадут протравленный канал, резко отличающийся по своим свойствам от канала в центральной части. Во-первых, их число невелико, поэтому они не будут образовывать сплошной области повреждений вдоль всего трека, а повреждения будут возникать в виде прерывистой цепочки. Так на рис. 4 видно, что только несколько электронов достигают края детектора. Во-вторых, наличие повреждений не означает со сто процентной вероятностью наличия условий для роста скорости травления. Небольшой дополнительный вклад в этой области могут также давать электроны с $E < 500$ эВ, не включенные в рассмотрение. Для более точной оценки вероятности произвести достаточные повреждения необходимо учесть влияние таких повреждений на химические свойства материала в этой области с использованием моделей из физики твердого тела. Такая

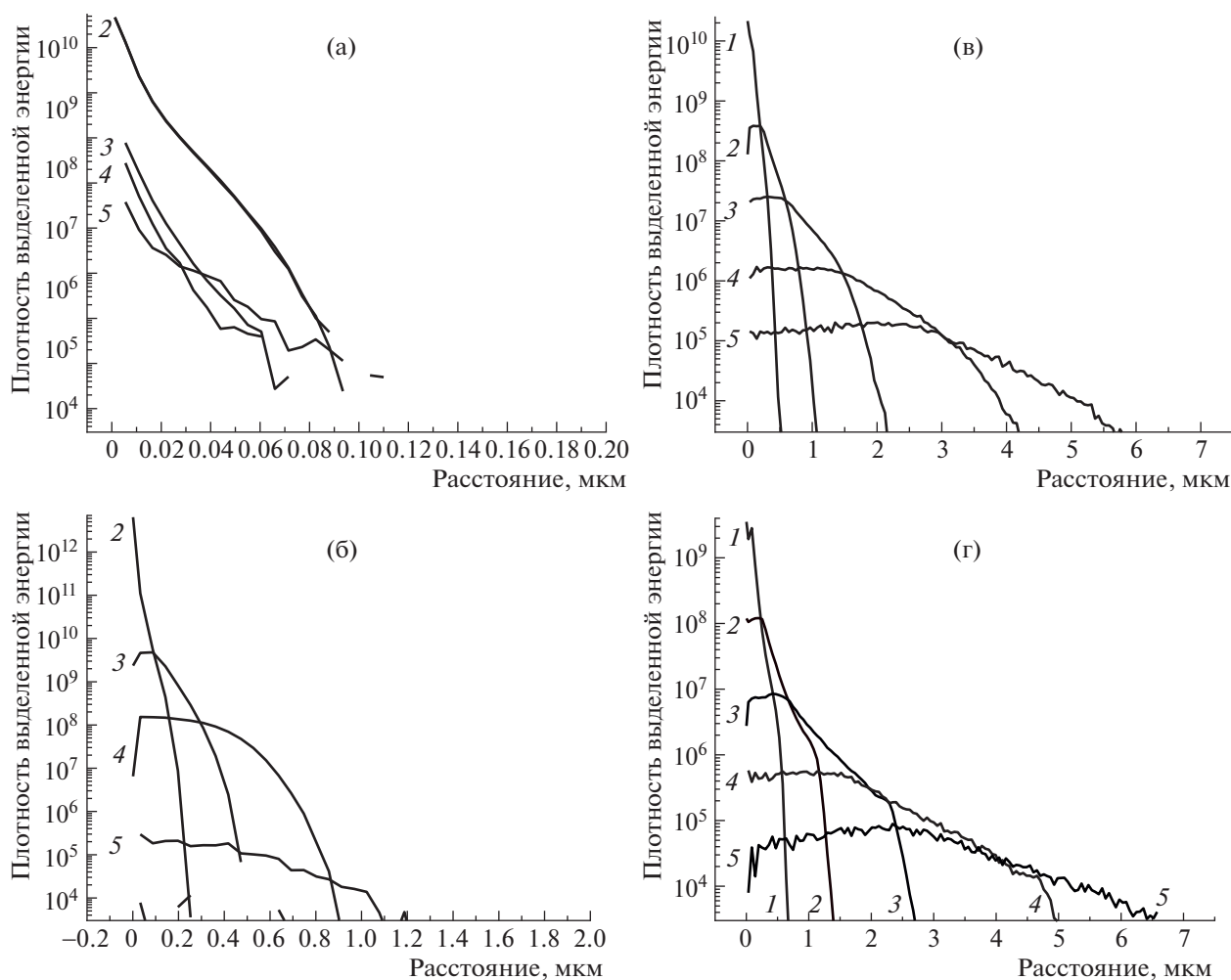


Рис. 7. Плотность энергии [МэВ $\mu\text{м}^{-3}$], выделенной электронами в детекторе, как функция расстояния до трека и времени для урана с энергиями: 1 (а), 5 (б), 30 (в) и 100 (г) МэВ/нуклон. Время: 1 – 5, 2 – 10, 3 – 20, 4 – 40 и 5 – 60 фс.

задача не является предметом данной работы и будет рассмотрена в дальнейших исследованиях, тем более, что GEANT4 позволяет дополнить ядро этого пакета программ дополнительным модулем, включающим модели твердого тела.

Частично такая работа проделана в модели молекулярной динамики [7, 8]. Расчеты, сделанные с помощью программы TREKIS, показывают наличие некоторого расширения области повреждений материала в конце пути ядра, что может приводить к более широкому размеру канала травления здесь. Но это обусловлено наличием брегговского пика, т.е. большей величиной ионизационных потерь вблизи точки останова ядра. Геометрический масштаб этого явления почти на два порядка меньше, чем геометрические характеристики “шприца”, и не может объяснить их происхождение.

По этой причине природа возникновения треков такой формы пока остается не выясненной. Полученные результаты для урана и других ядер показывают, что энергии и числа дельта электронов не достаточно для создания резкого изменения условий травления и образования “шприцов” диаметром в несколько микрометров. Необходимо исследовать роль ядер отдачи и их способность создать условия для возникновения “шприцов”.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной статье мы представили исследование взаимодействия ионов урана, золота и бария в кристалле оливина в метеорите (палласит) с использованием моделирования в рамках пакета GEANT4. Показано, что в настоящее время не существует объяснения природы происхождения протравлен-

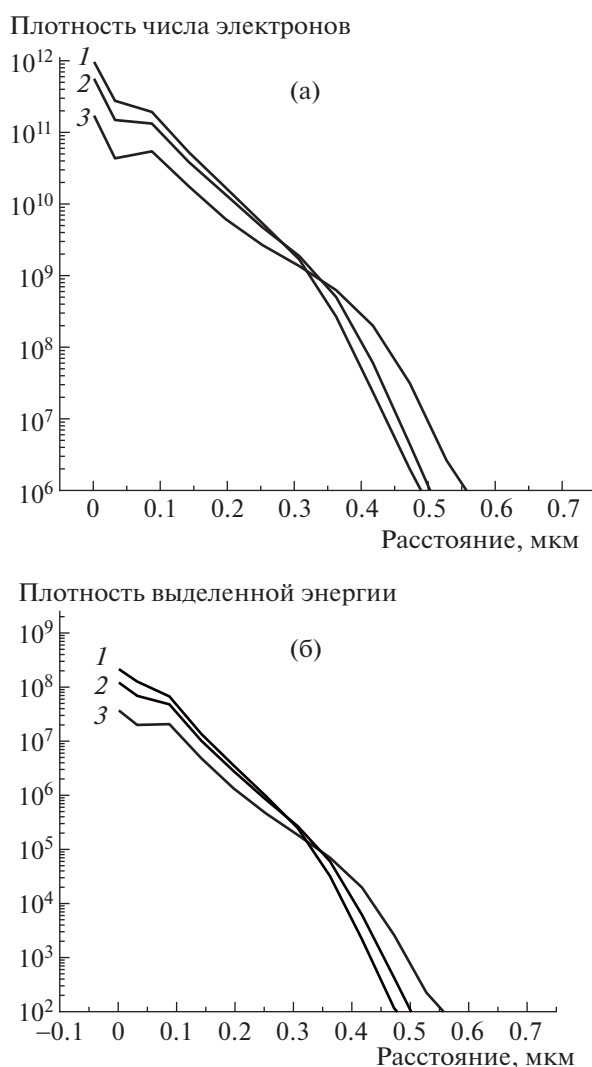


Рис. 8. Зависимость от расстояния до трека и времени для урана (1), золота (2) и бария (3) при энергии 30 МэВ/нуклон и времени 5 фс: (а) плотность числа электронов [мкм^{-3}]; (б) плотность энергии [МэВ мкм^{-3}].

ных каналов в форме “шприца”. Таким образом, для выяснения причин формирования необычных треков в кристалле оливина требуются дополнительные исследования.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Alexeev V., Bagulya A., Chernyavsky M. et al. // *Astrophys. J.* 2016. V. 829. P. 120.
2. Aleksandrov A.B., Alekseev V.A., Bagulia A.V. et al. // *Bull. Lebedev Phys. Inst.* 2019. V. 46. No. 12. P. 383.
3. Fleisher R.L., Price P.B., Walker R.M. *Nuclear Tracks in Solids*. 1975. Berkeley, Los Angeles, London: Univ. California.
4. Marenniyi A.M. *Dielectricheskiye trekovyye detektory* [Dielectric Track Detectors]. 1987. Moscow: Energoatomizdat (in Russian).
5. Durrani S.A., Bull R.K. *Solid State Track Detection Principles*. 1987. Oxford: Pergamon.
6. Nikolaev V.A. // *Tverdotelnyye trekovyye detektory v radiatsionnykh issledovaniyakh* [Solid-State Track Detectors in Radiation Research]. 2012. St. Petersburg: Politekh. Univ. (in Russian).
7. Gorbunov S.A., Malakhov A.I., Rymzhanov R.A., Volkov A.E. // *J. Phys. D.* 2017. V. 50. P. 39.
8. Gorbunov S.A., Rymzhanov R.A., Volkov A.E. // *Sci. Rep.* 2019. V. 9. P. 15325.
9. Binns W.R., Garrard T.L., Gibner P.S. et al. // *Astrophys. J.* 1989. V. 346. P. 997.
10. O'Sullivan D., Thompson A., Domingo C. et al. // *Nucl. Track Rad. Meas.* 1988. V. 15. P. 673.
11. Donnelly J., Thompson A., O'Sullivan D. et al. // *Astrophys. J.* 2012. V. 747 (40). P. 14.
12. Allison J. et al (GEANT4 Collab.) // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*. 2003. V. 506. P. 250.

Investigation of the Features of Etched Tracks of Superheavy Nuclei in Olivines from Meteorites

Than Naing Soe^{1, *}, N. G. Polukhina¹, and N. I. Starkov¹

¹*Lebedev Physical Institute, Russian Academy of Sciences, 53 Leninsky Prosp., Moscow, 119991 Russia*

**e-mail: dr.thannaingsoe.lpiras@gmail.com*

Received June 3, 2020; revised June 4, 2020; accepted June 25, 2020

Abstract—In this study, we investigate etched channels of a special shape that arise during the search for superheavy nuclei in olivines from meteorites. The possibility of the appearance of tracks of this shape due to electrons penetrating olivine at a distance of several microns from the track is considered. The calculation results related to the spatio-temporal development of an electron shower during the passage of a heavy ion through olivine are presented. It has been shown that it is not possible to explain the observed effect only by the presence of δ electrons. In addition, the correspondence of a number of assumptions of some models of ion passage through matter to the obtained characteristics of δ electrons is discussed.

Keywords: galactic nuclei, meteorites, olivine, etching, GEANT4