

ОТЗЫВ

официального оппонента, доктора физико-математических наук Чеченина Николая Гавриловича на диссертацию Волкова Александра Евгеньевича «Моделирование структурно-фазовых изменений, инициированных релаксацией экстремального возбуждения электронной подсистемы диэлектриков в треках быстрых тяжёлых ионов», представленную на соискание учёной степени доктора физико-математических наук по специальности 1.3.3. – теоретическая физика

Диссертационная работа А.Е.Волкова представляет результаты моделирования формирования структурно-изменённых треков быстрых тяжёлых ионов (БТИ). Подобные ионы теряют более 95% своей энергии на возбуждение электронной системы диэлектриков. Облучение пучками БТИ применяется для создания пространственно-анизотропных структур. Эффекты облучения тяжёлыми ионами важны для задач радиационная стойкости материалов к облучению быстрыми осколками деления и тяжёлой компонентой космических лучей. БТИ-облучение является основой лучевой терапии раковых опухолей. Травление треков БТИ используется для производства пористых мембран, нанопроволок, нанотрубок и объёмных контактов, а также трековой методики детектирования тяжёлых ядер.

Актуальность и мотивация представленных в диссертации исследований связаны с тем, что привычные макроскопические подходы не применимы к описанию формирования трека БТИ из-за экстремальной интенсивности возбуждения и его фемто- пико- секундных и нанометрических масштабов. До работ А.Е.Волкова не существовало моделей, позволяющих на количественном уровне предсказывать результаты облучения различных материалов различными БТИ, т.к. все макроскопические в своей основе модели образования треков необходимо используют наборы подгоночных параметров. Это не позволяло детально прорабатывать постановку и эффективную методику проведения экспериментов до начала облучений, что приводило к значительному затягиванию экспериментальных исследований в условиях острого дефицита пучкового времени на небольшом количестве ускорителей тяжёлых ионов. Вовлечённым сообществом была остро востребована модель, позволяющая количественно прогнозировать формирование треков для различных мишеней при различных параметрах облучения. Представленная в диссертации модель впервые обеспечивает необходимое количественное описание кинетики формирования треков БТИ в диэлектриках.

Фундаментальная значимость работы связана, прежде всего, с первой успешной реализацией концепции гибридной мультимасштабной модели, описывающей эффекты возникновения и релаксации локализованного

экстремального электронного возбуждения в твёрдом теле. При решении этой задачи получено фундаментальное знание о механизмах, управляющих эволюцией этого возбуждения, и особенностях его взаимодействия с атомной подсистемой. Продемонстрировано возникновение состояний электронной и атомной систем диэлектриков, не наблюдаемых при иных условиях: схлопывание запрещённой зоны, возникновение суперионного состояния. Разработана методика построения аналитических релятивистских сечений, значительно ускоряющих численные расчёты. Построена реалистичная модель жидкостного травления треков (оливин).

Практическая значимость работы состоит в способности количественно предсказывать результаты экспериментов по тяжёлоионному облучению, а также в представляемой возможности выделять интересные для приложений эффекты БТИ-облучения диэлектриков и обосновывать методику их реализации.

Цели диссертации формулируются ясно и чётко: построение, тестирование и применение модели, количественно описывающей формирование треков БТИ в диэлектриках. Сформулированные **задачи** обеспечивают эффективную реализацию этих целей: обоснование концепции мультимасштабной модели формирования трека БТИ, выделение необходимых приближений и их анализ, построение модели, сравнение результатов моделирования с экспериментальными данными, анализ результатов и выделение механизмов, определяющих кинетику формирования треков в диэлектриках.

Использованные **методы** решения поставленных задач определялись спецификой формирования треков БТИ, где кинетика возбуждения и структурных изменений разделены во времени. Это определило построение модели из двух модулей: (1) Монте-Карло кода TREKIS, описывающего кинетику возбуждения материала в окрестности траектории иона, и (2) молекулярно-динамическое описание реакции атомной подсистемы на вносимое возбуждение. Связь между модулями обеспечивается энергией, передаваемой от релаксирующей электронной к атомной подсистеме мишени.

При выполнении работы использовались современные и проверенные методы теоретической физики и компьютерного моделирования: оригинальный Монте-Карло код TREKIS для описания кинетики возбуждения электронной и атомной системы, молекулярно-динамическое моделирование реакции атомного ансамбля на возбуждение, методы теории функционала плотности (*ab-initio*) для моделирование быстрых изменений в электронной и атомной системах мишеней. Модели химической кинетики (теории активированного комплекса и скоростей реакции) были использованы при построении модели жидкостного травления трека.

Экспериментальную поддержку представленных исследований обеспечило научное сотрудничество с группами из ведущих мировых центров, имеющих

ускорители тяжёлых ионов: ОИЯИ, Дубна; GSI, Дармштадт, Германия; IMP, Ланчжоу, Китай.

Научная **новизна** полученных результатов, прежде всего, состоит в разработке и успешном применении модели, впервые способной количественно и без использования подгоночных параметров описывать кинетику формирования структурно-изменённых треков БТИ в диэлектриках и проводить анализ эффективности процессов, вовлечённых в эту кинетику. Это позволило перевести на качественно новый уровень экспериментальные исследования эффектов БТИ-облучения, что подтверждается постановкой и результатами представленных в диссертации экспериментов. Ни одна из групп, работающих с облучением материалов пучками БТИ, не имеет такого инструмента. Этот приоритет закрепляет ведущие позиции созданной А.Е.Волковым научной школы в рассматриваемой области исследований.

В рамках решения поставленных в диссертации задач, новыми фундаментальными результатами диссертации также являются вывод о принципиальной роли нетермического возбуждения атомной подсистемы в треке БТИ; демонстрация возникновения суперионного состояния в оксиде алюминия в условиях экстремального электронного возбуждения; разработка метода построения аналитического вида сечений рассеяния релятивистских частиц в конденсированной среде, способных на два порядка сократить время Монте-Карло вычислений; построение модели жидкостного травления треков БТИ.

Достоверность полученных результатов подтверждается грамотным применением в работе проверенных аналитических и численных методов, согласованностью численных и аналитических результатов, а также их сравнением с экспериментом. Достоверность, научная новизна и высокий уровень полученных в диссертации результатов подтверждается и тем, что все результаты работы были опубликованы в высокорейтинговых международных журналах. Причём, в журналах 1-го и 2-го квартилей списка SJR 2023 года опубликовано 66 статей из 83 составляющих диссертацию. Эти работы активно цитируются.

Наряду с публикациями, экспертная **апробация** работы подтверждается участием автора в многочисленных профильных международных конференциях, где полученные результаты представлялись в виде устных докладов.

Личный вклад автора являлся определяющим в получении и анализе всех представленных в диссертации результатов

Общая характеристика работы. Диссертационная работа А.Е. Волкова изложена на 255 страницах. Она содержит введение, пять глав, заключение, список из 83 публикаций автора по теме диссертации в высокорейтинговых международных журналах и список цитируемой литературы из 400 наименований. Результаты исследований иллюстрируются 11 таблицами и 100 рисунками. В работе последовательно решаются поставленные задачи. Она представляет собой

системный законченный труд, в котором результативно подтверждается продуктивность выбранного автором подхода.

Во введении приводится обзор проблем существующих моделей описания эффектов БТИ-облучения и демонстрируется актуальность работы. Формулируется цель представленной диссертации, задачи и положения, выносимые на защиту. Обосновывается предлагаемая методика исследования. Во введении убедительно представляется научная новизна, фундаментальная и практическая значимость результатов. Указывается на их достоверность и апробацию.

В первой главе на основании подробного анализа сделан вывод о том, что существующие модели формирования треков БТИ основываются на макроскопических подходах, априорно выделяющие какой-то один процесс. Для описания наблюдаемых изменений, этим моделям приходится использовать *a-posteriori* набор подгоночных параметров, что лишает их предсказательной силы.

Учитывая разделение во времени процессов возбуждения атомной системы в треке и её реакции на вносимое возбуждение, приводятся аргументы о возможности построения мультимасштабной микроскопической количественной модели формирования трека БТИ. Построение и тестирование подобной модели для диэлектриков декларируется, как основная цель и результат диссертационной работы. Мотивация выбора методов исследования и формулировка задач, решаемых в представленной работе, обосновываются в конце главы.

Во второй главе приводится описание основанного на Монте-Карло методе индивидуальных соударений модели TREKIS возбуждения электронной и атомной подсистем диэлектрика в треке БТИ. В этом коде, являющимся ключевой составляющей мультимасштабной модели, учитываются основные процессы, управляющие кинетикой электронной подсистемы в треке: ионизация атомов налетающим ионом, кинетика всех возникающих вторичных поколений электронов и дырок и их взаимодействие со средой, Оже-процессы и радиационные распады дырок на глубоких оболочках, образование и распад плазмонов, образование и поглощение фотонов.

Сечения рассеяния иона, электронов и валентных дырок на электронном и ионном ансамблях мишени являются основой TREKIS. Базируясь на формализме функции потерь, эти сечения учитывают коллективную реакцию электронного и атомного ансамблей мишени на возмущение. Аналитический вид сечений строится с использованием экспериментальных оптических данных (алгоритм Ричи-Хауи) и проверяется по рассчитанным длинам пробега и энергетическим потерям различных частиц. Представлен основанный на алгоритме Ричи-Хауи метод построения аналитического вида сечений рассеяния релятивистских частиц, позволяющих на два порядка сократить время Монте-Карло расчётов.

По результатам моделирования кинетики возбуждения электронной подсистемы в треке БТИ проанализированы эффекты различных Оже процессов и

ионизации глубоких атомных оболочек. Определена пространственно-временная эволюция образующихся ансамблей электронов и дырок. Показано, что уже на временах, порядка 1 фс после пролёта иона, формируется бимодальное распределение, состоящее из низкоэнергетичных термализованных электронов с энергией (10-100 эВ) и малого количества баллистических электронов, формирующих фронт возбуждения на периферии трека. Демонстрируется, что к моменту остывания электронной подсистемы (100фс) потенциальная энергия образовавшихся электрон-дырочных пар аккумулирует ~ 60% энергии, выделенной ионом в мишени.

В третьей главе диссертации обсуждаются механизмы обмена энергией между электронной и ионной подсистемами диэлектриков в треках БТИ. Показано, что производство наблюдаемых структурных изменений в условиях быстрого остывания электронной подсистемы (~50-100 фс) требует экстремально высокой скорости передачи энергии атомам. Эта скорость не может быть обеспечена только энергией, переданной в результате рассеяния электронов и валентных дырок.

Показано, что резкое изменение межатомного потенциала в результате экстремального возбуждения электронной подсистемы приводит к ускорению атомов, т.е. конвертации неравновесной потенциальной энергии в кинетическую энергию атомов («нетермический нагрев»). Учёт этого канала передачи энергии в дополнение к рассеянию электронов и валентных дырок обеспечивает необходимую скорость передачи энергии в ионную подсистему, инициирующую структурные изменения вокруг траектории БТИ. Продемонстрирована возможность схлопывания запрещённой зоны диэлектрика в результате нетермического процесса на временах меньших времени остывания электронной подсистемы в треке БТИ.

В четвёртой главе представлены результаты моделирования, анализа и сравнения с экспериментами кинетики структурных изменений в различных диэлектриках (MgO , Al_2O_3 , YAG ($Y_3Al_5O_{12}$), Mg_2SiO_4), облучённых различными ионами. Все результаты моделирования были подтверждены экспериментом..

Для моделирования реакции атомной решётки использовался молекулярно-динамический код LAMMPS. Межатомные потенциалы предварительно верифицировались в тестовых расчётах. Ансамбли постоянной температуры, объёма, давления или энергии использовались в зависимости от поставленной задачи.

Определены пороги электронных потерь энергии ионов для формирования наблюдаемых треков в различных материалах. Определены пространственно-временные распределения плотности материала и возникающих упругих полей, окружающих траекторию иона.

Впервые определены структурные изменения вдоль всей траектории налетающего иона (в Mg_2SiO_4). Оказалось, что положение области максимальных

повреждений не совпадает с положением Бреговского пика электронных потерь энергии на траектории иона, что связано с различием энергетических спектров электронов, генерируемых ионами различных энергий («эффект скорости иона»). С этим эффектом связано и обнаруженное различие в пороговых потерях энергии иона, стимулирующих структурные изменения в начале и конце трека.

Далее, моделировалась согласованная релаксация близко расположенных треков. Наблюдаемое при моделировании формирование дефектной области, соединяющей повреждённые ядра соседних треков, подтвердилось результатами эксперимента.

В пятой главе разработанные методы применяются для решения задач, исходно связанных с экстремальным возбуждением электронной подсистемы.

Построена модель жидкостного травления структурно изменённых и химически активированных треков БТИ. Применение этой модели к метеоритному оливину ($(\text{Mg}_{0.88}\text{Fe}_{0.12})_2\text{SiO}_4$) дало расчётную скорость травления в хорошем согласии с экспериментальными значениями. Это позволило провести взаимную калибровку модели и экспериментальной трековой методики регистрации в метеоритах треков тяжёлых ядер в составе галактических космических лучей.

Впервые показана возможность возникновения не только нетермического плавления в диэлектрике (Al_2O_3), но и нетермического возникновения суперионного состояния в этом материале, когда только подрешётка кислорода характеризуется жидкостным поведением. Охлаждение суперионного состояния при давлениях, больших 400 ГПа, замораживает подрешётку кислорода в аморфном состоянии, тогда, как подрешётка алюминия остаётся кристаллической. Ранее, возникновение такого состояния наблюдалось для воды при давлениях, характерных для центра планет-гигантов. Резкое уменьшение запрещённой зоны Al_2O_3 происходит при более высоких электронных температурах, чем температура возникновения суперионного состояния. Это различие может приводить к появлению суперионных состояний с разной степенью электронной проводимости: диэлектрической, полупроводниковой, металлической.

Время возникновения суперионного состояния больше чем время остывания электронной подсистемы в треке, но меньше, чем время остывания пятна фемтосекундного рентгеновского лазера на свободных электронах, что делает интересным и обоснованным экспериментальный поиск суперионных состояний в диэлектриках с использованием этих лазеров.

В заключении сформулированы основные результаты диссертационной работы.

Диссертация А.Е.Волкова, представляет собой законченную самосогласованную работу, в которой последовательно решаются поставленные задачи. Продуктивность выбранного автором подхода подтверждается полученными результатами. Автором полностью доказаны все защищаемые

положения диссертации. Постановка задачи, расчёты, анализ результатов и их сравнение с экспериментом отличаются системностью и корректностью. Работа читается легко. Иллюстративный материал отличается чёткостью и наглядностью.

Представленный цикл работ развивает новое научное направление, в котором созданная А.Е.Волковым научная группа занимает лидирующие позиции. Продемонстрированная результативность разработанных методов решения и анализа задач, связанных с возникновением локализованных экстремальных состояний, открывает возможности для постановки нового поколения экспериментов и методик создания пространственно-анизотропных наноразмерных структур.

При чтении диссертации возникли следующие **вопросы и замечания**:

1. Автор активно использует термин «суперионное состояние». Необходимо дать достаточно полное описание этого состояния. Описание суперионности, которое даёт автор, может привести к некоторым недоразумениям и является неполным. Например, суперионные состояния наблюдаются в широком ряде материалов: от бинарных галогенидов щелочных металлов (например, CaF_2) до материалов на основе лития (например, Li_3N). Переход из нормального состояния в суперионное обычно индуцируется температурой, а также может происходить под давлением. Неосторожно также говорить, что суперионное состояние представляет собой смесь «жидкого и твёрдого поведения», поскольку диффузия мобильных ионов в указанных выше суперионных состояниях происходит через ряд четко определенных кристаллографических мест. Автору следовало бы более подробно описать суперионное поведение материалов.

2. Автор отмечает наличие трёх фронтов пространственного распространения электронного возбуждения, что является важным результатом. Однако в дополнение было бы полезно сравнить радиальные распределения для различных условий облучения, чтобы понять, как они меняются при изменении типа и энергии иона.

3. Диссертант рассматривает объект как «толстый» образец. Вместе с тем в современных технологиях, например, в микроэлектронике, используются слои гораздо более тонкие, чем пробег иона. Следовало бы, хотя бы кратко, обсудить влияние толщины образца/слоя на описываемые в диссертации эффекты.

4. Каково влияние электростатических полей, действующих, скажем, в подзатворном диэлектрике полевого транзистора, на динамику рассматриваемых в диссертации процессов?

Отмеченные замечания не влияют на качество исследований и результатов диссертационной работы А.Е. Волкова. Диссертация представляет собой законченное научное исследование и выполнена на высоком уровне. Представленные к защите результаты являются новыми. Показано, что они могут быть использованы в теоретических и экспериментальных исследованиях

радиационной физики, материаловедения, физике экстремальных состояний вещества и астрофизике, а также при разработке технологических приложений. Своевременно опубликованные результаты исследований известны научному сообществу и активно цитируются.

Диссертационная работа Волкова Александра Евгеньевича «Моделирование структурно-фазовых изменений, инициированных релаксацией экстремального возбуждения электронной подсистемы диэлектриков в треках быстрых тяжёлых ионов» отвечает всем требованиям, предъявляемым ВАК РФ к диссертациям на соискание учёной степени доктора физико-математических наук, а А.Е. Волков несомненно заслуживает присуждения ему учёной степени доктора физико-математических наук по специальности 1.3.3. – «теоретическая физика» за существенный теоретический вклад в решение проблемы взаимодействия быстрых тяжёлых ионов с веществом.

Доктор физико-математических наук,
заведующий Лабораторией физики
наноструктур и радиационных эффектов,
заведующий Отделом физики атомного ядра
Научно-исследовательского института
ядерной физики им. Д.В. Скобельцына
Московского Государственного
Университета им. М.В. Ломоносова.
профессор

Чеченин Николай Гаврилович

Контактные данные:

тел.: +7-495-939-23-48, e-mail: chechenin@sinp.msu.ru

Специальности, по которым официальным оппонентом
защищена докторская диссертация: 01.04.16 – «Физика ядра и элементарных
частиц», 01.04.04 – «Физическая электроника»

Адрес места работы:

119991, ГСП-1, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2, Федеральное государственное
бюджетное образовательное учреждение высшего образования «Московский
государственный университет имени М.В. Ломоносова», Научно-
исследовательский институт ядерной физики* имени Д.В.Скобельцына (НИИЯФ
МГУ), отдел физики атомного ядра

Подпись сотрудника Н.Г. Чеченина удостоверяю:
Зам. директора НИИЯФ МГУ

Д.О. Еременко

30.08.2024

Ниже приводится список моих основных работ по теме диссертации в рецензируемых научных изданиях за последние 5 лет:

1. Novikov N.V., Chechenin N.G., Shirokova A.A. Electron Distribution Near the Fast-Ion Track in Silicon, *Journal of Surface Investigation: X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques*, 2024, том 18, № 2, с. 255-263 DOI: 10.1134/S1027451024020150
2. Чеченин Н.Г., Новиков Н.В., Широкова А.А. Мультибитовые сбои бортовой электроники космического аппарата от одиночной частицы космического излучения. *Вестник Московского университета. Серия 3: Физика, астрономия*, том 79, № 1, с. 2411001 DOI: 10.55959/MSU0579-9392.79.2411001
3. Novikov N.V., Chechenin N.G., Shirokova A.A. New model of the excess charge generation by nuclear reaction products in electronic components. *Modern Physics Letters B*, том 37, № 15, с. 2350041-14
4. Chechenin N.G., Novikov N.V., Shirokova A.A. Nuclear Reactions Contribution to Spacecraft On-Board Electronics Failures. *Physics of Atomic Nuclei*, 2023 том 86, № 2, с. 188-197 DOI: 10.1134/S1063778823020047
5. Новиков Н.В., Чеченин Н.Г., Широкова А.А. Распределение радиационных дефектов по глубине при ионном облучении кремния. *Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования*, 2023 № 1, с. 50-54 DOI: 10.31857/S1028096023010181