

«УТВЕРЖДАЮ»

Ректор НИЯУ МИФИ

д.ф.-м.н.

/ Шевченко В.И./

12 » 09 2024 г.

ОТЗЫВ ВЕДУЩЕЙ ОРГАНИЗАЦИИ

федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ» (НИЯУ МИФИ) на диссертационную работу **Волкова Александра Евгеньевича** «Моделирование структурно-фазовых изменений, инициированных релаксацией экстремального возбуждения электронной подсистемы диэлектриков в треках быстрых тяжелых ионов», представленную на соискание ученой степени доктора физико-математических наук по специальности 1.3.3. – теоретическая физика.

Диссертация А.Е. Волкова представляет результаты теоретических исследований и численного моделирования физических процессов в атомной и электронной структуре диэлектриков в нанометрической окрестности траекторий (треков) быстрых тяжелых ионов (БТИ), тормозящихся в режиме электронных потерь энергии.

Экстремальное отношение пространственных размеров (диаметр-длина) структурно-изменённых треков делает облучение пучками БТИ уникальным инструментом создания и модифицирования пространственно-анизотропных структур в объёме и на поверхности материалов. Эффекты БТИ-облучения представляют интерес для задач радиационной стойкости компонент ядерных установок к облучению быстрыми осколками деления. Модификация генетического материала и повреждение оборудования галактическими космическими лучами интересны для предполагаемых миссий дальнего космоса. Облучение быстрыми ионами, например, углеродом, является основой лучевой терапии раковых опухолей. Химическая активация материалов и избирательное травление треков БТИ служит основой для производства пористых мембран и 3D шаблонов для производства нанопроволок, нанотрубок и контактов.

Из-за сверхмалых пространственно-временных масштабов (фемто- пико- секунды, нанометры) и экстремального возбуждения формирование трека БТИ не может быть описано привычными макроскопическими моделями и концепциями. До последнего времени все рабочие модели принципиально использовали наборы подгоночных параметров. С другой стороны, экспериментальным исследованиям и приложениям остро необходима модель, позволяющая на количественном уровне предсказывать результаты облучения различных материалов пучками БТИ. Это позволит обоснованно формулировать цели и программу проведения очень дорогостоящих экспериментов с использованием дефицитного пучкового времени ускорителей тяжёлых ионов. Эта проблема формирует фундаментальную и прикладную **мотивации** представленных и диссертации исследований, и **актуальность** их тематики.

В диссертации представлена подобная модель, построенная на наиболее общих физических принципах. Модель впервые обеспечивает на микроскопическом уровне количественное описание кинетики формирования треков БТИ в диэлектриках. Подробно описывается методика модели, аргументируются используемые приближения, проводится её тестирование, приводятся результативные примеры применения модели к исследованию эффектов облучения диэлектриков пучками БТИ. Анализируется вклад различных механизмов, вовлечённых в кинетику формирования структурно изменённых треков БТИ. Кроме этого, показывается, как полученное фундаментальное знание, может применяться в задачах, связанных с экстремальным возбуждением электронной подсистемы (облучение фемто-секундными лазерными импульсами большой интенсивности), и задачах пострадиационной обработки мишеней, облучённых БТИ (жидкостное травление треков).

Детальная проработка и анализ механизмов релаксации сильно локализованного электронного возбуждения в твёрдом теле и особенностей его взаимодействия с атомной подсистемой, дополненная успешной реализацией концепции гибридной мультимасштабной модели, составляет **фундаментальную значимость** работы.

Наряду со способностью количественно предсказывать результаты экспериментов по тяжёлоионному облучению, **практическая значимость** работы состоит в появившейся возможности выделять и анализировать наиболее интересные для приложений эффекты облучения диэлектриков пучками БТИ и обосновывать эффективную методику их реализации.

Ясно сформулированы **цели** диссертации – построение, тестирование и применение количественной модели формирования треков БТИ в диэлектриках. Решаемые **задачи** соответствуют реализации наиболее эффективных путей достижения этих целей: обоснование гибридной мультимасштабной концепции модели, анализ необходимых приближений, построение модели, сравнение результатов моделиро-

вания с экспериментальными данными, анализ результатов и выделение механизмов, определяющих кинетику формирования треков в диэлектриках.

Специфика формирования треков БТИ определила **методы**, использованные для решения поставленных в диссертации задач. Кинетика возбуждения и структурных изменений в треках БТИ разделены во времени. Это позволило составить модель из двух модулей: (1) Монте-Карло и ab-initio кодов, описывающих кинетику возбуждения и релаксации электронной подсистемы и её обмена энергией с ионной подсистемой мишени и (2) молекулярно-динамическое описание последующей реакции атомной подсистемы на вносимое возбуждение. Эти модули построены, обоснованы и протестированы.

В работе использовались современные методы теоретической физики и математического моделирования: ab-initio моделирование в рамках теории функционала плотности, метод Монте-Карло для описания кинетики электронной системы и молекулярная динамика реакции атомного ансамбля, а также модели химической кинетики: теория активированного комплекса и скоростей реакции, модель жидкостного травления.

Общим моментом работы с этими методами являлась их адаптация к экстремальным уровням возбуждения и пространственно-временным масштабам в треке БТИ. Ключевым примером этой адаптации является разработанная Монте-Карло модель TREKIS, описывающая возмущение и релаксацию электронной подсистемы мишени в окрестности траектории налетающего БТИ и её взаимодействие с ионной подсистемой материала.

Научное сотрудничество обеспечило экспериментальную поддержку исследований группами из ведущих мировых центров, имеющих ускорители тяжёлых ионов: ОИЯИ, Дубна; GSI, Дармштадт, Германия; IMP, Ланчжоу, Китай. В экспериментальных исследованиях использовались методики и уникальное оборудование этих институтов, а также групп из ФИАН, Москва, и NMU, Порт Элизабет, Южная Африка. При выполнении численного моделирования использовались высокопроизводительные вычислительные кластеры НИЦ «Курчатовский Институт», ОИЯИ и GSI.

Научная **новизна** полученных результатов, в первую очередь, состоит в том, что впервые разработана и реализована модель, способная количественно и без использования подгоночных параметров описывать кинетику формирования структурно-изменённых треков БТИ в диэлектриках. Это впервые позволило без проведения предварительных чрезвычайно дорогих экспериментальных работок начать исследования, нацеленные на поиск новых эффектов БТИ-облучения, интересных для приложений. В настоящее время подобного инструмента нет ни у одной из групп, работающих по тематике облучения материалов пучками БТИ.

Следует отметить и другие новые фундаментальные результаты, которые были получены в рамках решения поставленных в диссертации задач: демонстрация принципиального значения нетермического возбуждения атомной подсистемы в треке БТИ и описание этого эффекта; возникновения суперионного состояния в оксиде алюминия; построение аналитического вида сечения рассеяния релятивистских частиц в конденсированной среде; построение модели жидкостного травления треков БТИ в оливине и тестирование на её основе экспериментальной методики детектирования тяжёлой компоненты галактических космических лучей в метеоритном оливине.

Мировой приоритет полученных в диссертации результатов закрепляет ведущие позиции за созданной А.Е.Волковым научной школой в рассматриваемой области исследований. Научная новизна и высокий уровень полученных в диссертации результатов подтверждается тем, что все результаты работы представлены в ведущих международных журналах списка Web of Science. Причём, 66 статей из 83 представленных в диссертации статей автора опубликованы в журналах 1-го и 2-го квартилей списка SJR 2022 года. Эти работы активно цитируются.

Наряду с публикациями и экспертной **апробацией** результатов на многочисленных профильных международных конференциях, **достоверность** полученных результатов подтверждается непротиворечивостью и самосогласованностью численных и аналитических результатов и их сравнением с экспериментом, а также использованием в работе проверенных аналитических и численных методов. **Личный вклад** автора являлся определяющим в получении и анализе представленных результатов

Общая характеристика работы. Диссертация А.Е. Волкова изложена на 255 страницах и содержит Введение, пять глав, заключение, список из 83 публикаций автора по теме диссертации из перечня ВАК и списка цитируемой литературы из 400 наименований. Она содержит 11 таблиц и 100 рисунков.

Работа представляет собой системный законченный труд, в котором последовательно решаются поставленные задачи и результативно подтверждается продуктивность выбранного автором подхода.

Во введении приводится обзор наблюдаемых эффектов облучения материалов пучками БТИ и анализируются проблемы существующих моделей описания этих эффектов. Обосновывается актуальность работы, и формулируется её цель, задачи и положения, выносимые на защиту, которые последовательно раскрываются в главах 1-5. Обсуждается и обосновывается предлагаемая методика исследования.

В первой главе обсуждаются параметры облучения конденсированных тел быстрыми тяжёлыми ионами, а также фундаментальное и прикладное значение изучения процессов и эффектов, инициированных этим облучением. На основании

подробного анализа сделан вывод о том, что существующие модели формирования треков БТИ основываются на макроскопических подходах, которые не применимы на сверхмалых пространственно-временных масштабах кинетики трека. Это вынуждает строить подобные модели на априорном выделении какого-то одного процесса и, следовательно, неизбежно использовать набор подгоночных параметров.

На основании мультимасштабного характера кинетики возбуждения и структурных изменений в треках БТИ приводятся аргументы о возможности построения микроскопической количественной модели, которая без использования подгоночных процедур поможет выделить механизмы, управляющие формированием треков БТИ.

Построение и тестирование подобной модели формирования структурно-изменённых треков БТИ в диэлектриках декларируется, как основная цель и результат диссертационной работы. В конце главы обосновывается мотивация выбора методов исследования и формулируются задачи, решаемые в представленной работе.

Во второй главе приводится описание ключевой части разработанной мультимасштабной модели - основанного на Монте-Карло методе индивидуальных соударений коде TREKIS возбуждения электронной подсистемы материала, распространения этого возбуждения и передачи части избыточной электронной энергии в атомную подсистему. В коде учитываются все основные процессы, управляющие кинетикой электронной подсистемы: ионизация атомов мишени налетающим БТИ, разлёт образовавшихся первичных электронов и валентных дырок и их упругое и неупругое взаимодействие со средой, кинетику всех возникающих вторичных поколений электронов и дырок, Оже-процессы и радиационные распады дырок на глубоких оболочках, образование и поглощение фотонов.

Основу Монте-Карло модели составляют сечения рассеяния налетающего иона, электронов и валентных дырок на электронном и ионном ансамблях мишени. Использование формализма динамического структурного фактора – функции потерь позволяет учесть при описании рассеяния влияние пространственно-временных корреляций в динамике и структуре электронного и атомного ансамблей мишени. Для построения аналитического вида сечений рассеяния применяется алгоритм Ричи и Хауи аппроксимации функции потерь в виде суммы осцилляторных функций с использованием экспериментальных оптических данных. Построенные сечения проверялись по длинам пробега и энергетическим потерям различных частиц для всех исследуемых материалов с использованием экспериментальных данных и результатов применения широко используемых программ SRIM, CasP и базы данных NIST.

В главе представлены результаты моделирования кинетики возбуждения электронной подсистемы в треке БТИ. Выделены и проанализированы эффекты раз-

личных Оже процессов и различных механизмов ионизации глубоких атомных оболочек на кинетику возбуждённого электронного ансамбля в треке. Продемонстрирована пространственно-временная эволюция образующихся ансамблей электронов и дырок.

В третьей главе диссертации моделируется и анализируется кинетика обмена энергией между релаксирующей электронной и ионной подсистемами диэлектриков. Указывается, что быстрое остывание электронной подсистемы (~50-100 фс) требует для производства наблюдаемых структурных изменений экстремально высокой скорости передачи энергии в решётку, которая не может быть обеспечена энергией, переданной в результате рассеяния электронов и валентных дырок.

Демонстрируется существование дополнительного к рассеянию механизма обмена энергией между электронной и ионной подсистемами мишени, который связан с ускорением атомов, инициированным резким изменением межатомного потенциала в результате экстремального возбуждения электронной подсистемы мишени («нетермическое ускорение»). Показано, что синергия этого механизма с рассеянием электронов и валентных дырок обеспечивает скорость передачи энергии в ионную подсистему, необходимую для инициирования наблюдаемых в эксперименте структурных изменений в треках БТИ. Кроме этого, показана возможность схлопывания запрещённой зоны оксида алюминия в результате нетермического процесса на временах сравнимых со временем остывания электронной подсистемы в треке БТИ (~100 фс). Это позволило учитывать в модели возбуждения ионной подсистемы ковалентных диэлектриков энергию, переданную атомам в результате нетермического механизма, как трансформацию накопленной к моменту остывания электронной подсистемы потенциальной энергии электрон-дырочных пар в кинетическую энергию атомов.

В четвёртой главе представлены результаты моделирования и анализа кинетики структурных изменений в треках БТИ в различных диэлектриках (MgO , Al_2O_3 , YAG ($Y_3Al_5O_{12}$), Mg_2SiO_4) и сравнение этих результатов с экспериментальными данными.

При моделировании реакции атомной решётки на вносимое возбуждение использовался открытый молекулярно-динамический (МД) код LAMMPS и прошедшие многократную проверку на различных задачах межатомные потенциалы, которые предварительно верифицировались в тестовых расчётах. В зависимости от поставленной задачи использовались ансамбли постоянной температуры, объёма, давления или энергии.

Сначала была исследована эволюция изолированного трека в различных диэлектриках: определены параметры и морфология начального, обычно аморфизированного состояния, повреждённой решётки. Впервые выделено влияние процес-

сов релаксации (рекристаллизации) этого повреждения на окончательную структуру трека БТИ. Показано, что в зависимости от сложности атомной структуры решетки и параметров подвижности атомов возможна полная рекристаллизация первичного повреждения (MgO), формирование прерывистой цепочки сильно повреждённых областей вдоль траектории иона (Al_2O_3) или замораживание полностью аморфизированной цилиндрической области (YAG).

Определены пороговые значения электронных (ионизационных) потерь энергии ионов, необходимых для формирования треков в различных материалах. Исследована эволюция пространственно-временного распределения плотности материала и возникающих упругих полей вокруг траектории БТИ. Все результаты моделирования были подтверждены экспериментом.

На примере оливина (Mg_2SiO_4) впервые проиллюстрирована возможность определения структурных изменений вдоль всей траектории налетающего иона (10-100 мкм в зависимости от массы и энергии иона). Показано, что положение области максимальных повреждений на траектории иона не совпадает с положением Брегговского пика электронных потерь энергии, что является проявлением эффекта скорости – различия формы спектра электронов, энергия которых лежит по разные стороны этого пика. С эффектом скорости связано и различие в пороговых значениях высвобожденной энергии, стимулирующей начало структурных изменений в начале и конце траектории, т.е. для высоких и низких энергий налетающего иона. Количественный прогноз структурных изменений вдоль всей траектории налетающего БТИ открывает дополнительные возможности для разработки методов объёмного наноструктурирования материалов.

В пятой главе представлены результаты применения разработанных в диссертации методов для решения задач, связанных с экстремальным возбуждением электронной подсистемы конденсированных тел.

В частности, построена модель жидкостного травления структурно изменённых и химически активированных треков БТИ в метеоритном оливине ($(Mg_{0.88}Fe_{0.12})_2SiO_4$) – естественном детекторе тяжёлой компоненты галактических космических лучей. Расчётная скорость травления оказалась в хорошем согласии с экспериментальными значениями, что позволило провести взаимную калибровку модели и экспериментальной методики, регистрации частиц, разработанной в ФИАН.

В дополнение к результатам по влиянию нетермического механизма на обмен энергией между электронной и ионной подсистемами, с помощью *ab-initio* молекулярной динамики, использующей методы теории функционала плотности (ТФП-МД) (программа Quantum Espresso), впервые показана не только возможность не-

термического плавления окиси алюминия, но и возникновения суперионного состояния в этом материале, характеризуемого жидкостным поведением только подрешётки кислорода. Ранее, возникновение такого состояния наблюдалось для воды при давлениях, характерных для центра планет-гигантов. Показано, что охлаждение суперионного состояния, производимое при высоких давлениях, больших 400 ГПа стабилизирует структурные изменения: подрешётка кислорода остаётся в аморфном состоянии, тогда, как подрешётка алюминия сохраняет кристаллическую структуру. Показано, что характерные электронные температуры, стимулирующие резкое уменьшение запрещённой зоны, выше чем температуры возникновения суперионного состояния в Al_2O_3 . Это может вызывать появление суперионных состояний с разной степенью проводимости – диэлектрической, полупроводниковой и металлической.

Время возникновения суперионного состояния 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 суммированы основные результаты диссертационной работы и сформулированы перспективы развития рассматриваемого направления.

Оценивая работу в целом, можно сказать, что она представляет собой системный законченный труд, в котором последовательно решаются поставленные задачи и результативно подтверждается продуктивность выбранного автором подхода. Все защищаемые положения диссертации полностью доказаны автором. Особо следует отметить системность и корректность постановки задачи, расчётов, моделирования, анализа результатов и их сравнения с экспериментом. Работа написана хорошим языком, а иллюстративный материал отличается чёткостью и наглядностью.

Диссертантом получены важные, интересные и уникальные результаты, которые, с одной стороны, существенно расширяет на область локализованных экстремальных состояний уже укоренившиеся в физике твёрдого тела представления и представляют новые методы решения и анализа задач, связанных с этими состояниями, а, с другой стороны, открывают новые возможности для постановки экспериментов и разработки методик создания пространственно-анизотропных наноразмерных структур. Фактически, цикл выполненных работ развивает новое научное направление. Из представленных работ видно, что создана научная школа мирового уровня занимающая лидирующие позиции в теории эффектов взаимодействия быстрых тяжелых ионов с конденсированной средой.

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

1. Было бы полезно привести более подробное обоснование использования в коде ТРЕКИС первого порядка теории возмущений при построении сечений рассеяния частиц.

2. При определении сечений используется динамический структурный фактор (ДСФ) – функция потерь начальной равновесной мишени. Однако в трековой области возникает сильно неравновесное состояние материала. В работе недостаточно обсуждается, почему ДСФ, рассчитанный для равновесной мишени, применяется к описанию свойств возбуждённого материала в треке БТИ.

3. Автор утверждает, что модель не использует подгоночных параметров в рамках используемых приближений. Действительно, в модели не используется типичная для макроскопических моделей подгонка параметра электрон-фононного взаимодействия, теплопроводности, температуры плавления и т.д.. Но, следовало бы отметить, что и при микроскопическом подходе возникает необходимость использования подгоночных процедур.

Несмотря на отмеченные замечания, диссертационная работа Волкова А.Е. выполнена на высоком уровне и представляет собой законченное научное исследование. Основные представленные к защите результаты являются новыми и могут быть использованы в теоретических и экспериментальных исследованиях по радиационной физике, материаловедению, физике экстремальных состояний вещества и астрофизике, разработке технологических приложений, выполняемых в ФИАН, НИЦ КИ, НИИЯФ МГУ, физическом и химическом факультетах МГУ, МИФИ, МИСИС и других научных центрах. Результаты диссертации своевременно опубликованы и известны научному сообществу.

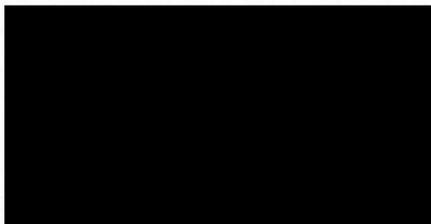
Работа «Моделирование структурно-фазовых изменений, инициированных релаксацией экстремального возбуждения электронной подсистемы диэлектриков в треках быстрых тяжелых ионов» отвечает всем требованиям, предъявляемым ВАК РФ к диссертациям на соискание ученой степени доктора физико-математических наук, в частности пунктам 9, 10, 11, 13 и 14 Положения о присуждении ученых степеней, утвержденного постановлением Правительства Российской Федерации № 842 от 24 сентября 2013г. Считаю, что Волков А.Е. заслуживает присуждения ему ученой степени доктора физико-математических наук по специальности 1.3.3. – «теоретическая физика» за существенный вклад в теорию взаимодействия быстрых тяжёлых ионов с веществом.

Диссертация Волкова Александра Евгеньевича и отзыв на нее заслушаны и одобрены на совместном семинаре кафедры теоретической ядерной физики и Института лазерных и плазменных технологий НИЯУ МИФИ. На заседании присутствовали 14 чел., результаты голосования: «за» - 14 чел., «против» - 0 чел., «воздержались» - 0 чел., протокол №09/01 от 5 сентября 2024г.

Заведующий кафедрой

теоретической ядерной физики

НИЯУ МИФИ, д.ф-м.н.



Попруженко С.В.

Директор института

лазерных и плазменных технологий

НИЯУ МИФИ, д.ф-м.н.



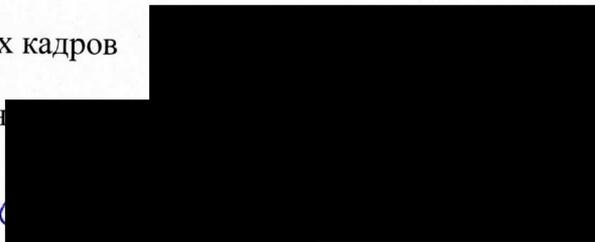
Кузнецов А.П.

Председатель совета

по аттестации и подготовке

научно-педагогических кадров

НИЯУ МИФИ, д.ф-м.н.



Кудряшов Н.А.