

Система для численного определения ядерных явлений в кристаллах

(UDC) 523.681;524.1-353

ИЗУЧЕНИЕ ЗАРЯДОВОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ГАЛАКТИЧЕСКИХ КОСМИЧЕСКИХ ЛУЧЕЙ И ПОИСК СЛЕДОВ СВЕРХТЯЖЕЛЫХ ЯДЕР В КРИСТАЛЛАХ ОЛИВИНА ИЗ МЕТЕОРИТОВ

А. Б. Александров, А. В. Багуля, М. С. Владимиров, Л. А. Гончарова,

А. И. Ивлиев¹, Г. В. Калинина¹, Л. Л. Кашкаров¹, Н. С. Коновалова,

Н. М. Окатьева, Н. Г. Полухина, А. С. Русецкий, Н. И. Старков, В. А. Царев

Поиск и идентификация высокозэнергичных ядер сверхтяжелых элементов космических лучей в кристаллах оливина из метеоритов, проводимые в настоящее время в рамках проекта ОЛИМПИЯ [1], основаны на измерении с помощью полностью автоматизированного измерительного комплекса ПАВИКОМ [2] динамических и геометрических параметров треков – химически травимых участков следов торможения этих ядер перед их остановкой.

Потери энергии быстрых ионов, проходящих сквозь среду, обусловлены, главным образом, процессом ионизации атомов мишени [3], а величина ионизационных потерь частиц, в свою очередь, влияет на геометрические размеры травимых треков. По своей кристаллографической структуре минерал оливин ($Mg_{0.88}Fe_{0.12}$)₂SiO₄ относится к силикатам с изолированным, островным (в отличие от цепочечных, слоистых и каркасных силикатов) расположением кремнекислородных тетраэдров (SiO₄), соединенных между собой с помощью катионов Mg или Fe [13, 14]. При этом отдельные кремнекислородные радикалы изолированы друг от друга. Можно ожидать, что благодаря такой структуре эффективность химического травления вещества из зоны нарушения кристаллической решетки вдоль следа торможения тяжелых ядер не должна сильно зависеть от ориентации треков относительно осей симметрии кристаллической решетки оливина. Кроме

¹Институт геохимии и аналитической химии им. В.И. Вернадского РАН.

того, важно отметить, что размеры области радиационного разупорядочения кристаллической решетки вдоль траектории торможения ядер в десятки раз превышают размеры элементарных ячеек кристалла: (60–100) Å по сравнению с (2–3) Å, соответственно. Заметим, что диаметр травимого трека может быть много больше области радиационного разупорядочения и достигать нескольких микрон.

В предыдущей работе [4] нами были приведены результаты изучения геометрических характеристик треков, полученных в калибровочных экспериментах. К сожалению, пока в нашем распоряжении имеются откалиброванные образцы только для двух ядер, Xe и U, при одной энергии 11.4 МэВ/нуклон, что явно недостаточно для идентификации всего спектра космических ядер. По этой причине определение зарядов частиц, оставивших следы в оливинах из метеоритов, производилось по расчетным данным, полученным с помощью программ SRIM и GEANT4. В данной работе приводятся результаты вычисления ионизационных потерь тяжелых ионов в кристаллах оливина, полученные с помощью модельных расчетов, и результаты оценок химически травимой длины треков тяжелых ядер ($Z > 30$) космических лучей в кристаллах оливина из палласитов.

Программы для вычисления тормозных способностей тяжелых ионов. В настоящее время существует несколько программ, которые позволяют вычислять тормозные способности тяжелых ионов в веществе, а также ряд таблиц, где собраны данные по тормозным способностям. Эти данные являются или результатом обобщения имеющихся экспериментальных данных, или результатом расчетов по теоретическим моделям.

В работе [5] был проведен сравнительный анализ с точки зрения достоверности получаемых результатов для большого набора существующих в настоящее время программ и таблиц, предназначенных для вычисления тормозных способностей тяжелых ионов. Авторы, используя накопленные за много лет данные для ионов от ^3Li до ^{36}Kr в диапазоне энергий от 0.001 до 1000 МэВ/нуклон, сравнили результаты разных модельных расчетов с результатами экспериментов. Это сравнение нескольких программных пакетов показало, что для вычисления тормозных способностей в выбранном энергетическом диапазоне можно рекомендовать SRIM (The Stopping and Range of Ions in Matter).

Для более тяжелых ионов, которые представляют интерес в контексте настоящей работы, экспериментальных данных по потерям энергии или очень мало, или они вообще отсутствуют. В рамках данной работы планируется проведение полномасштабной калибровки кристаллов оливина на ускорителе тяжелых ионов и сравнение результатов калибровки с результатами расчетов.

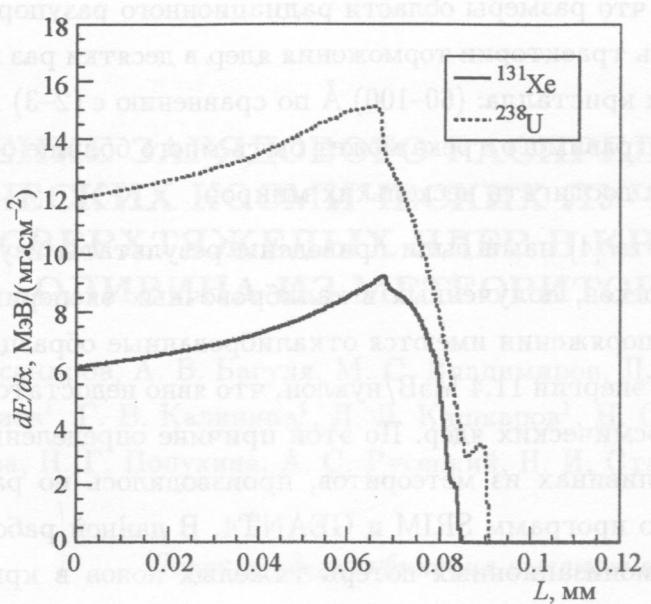


Рис. 1. Профиль потерь энергии при прохождении пучков ионов ^{131}Xe и ^{238}U с начальной энергией 11.4 МэВ/нуклон через оливин $(\text{Mg}_{0.88}\text{Fe}_{0.12})_2\text{SiO}_4$.

При проведении модельных расчетов в данной работе использовался программный пакет SRIM и более полный и поздний по времени создания программный комплекс GEANT4. Совместное использование программ SRIM и GEANT4 позволяет проводить сравнение получаемых результатов, и тем самым повышает их надежность.

SRIM (Ziegler J.F. и др.) включает в себя набор программ для вычисления различных параметров процесса взаимодействия ионов с веществом. Полное описание физических моделей для расчета потерь энергии, используемых в программе SRIM, приведено в книге [3]. Там же приведены тексты первых версий SRIM, написанных на языке программирования FORTRAN.

В SRIM содержится также обширный фактический материал по тормозным способностям и пробегам ионов в веществе со ссылками на литературные источники, включающий в общей сложности более 500 рисунков и около 20000 экспериментальных точек.

Объектно-ориентированный пакет GEANT4 [6] позволяет проводить полномасштабное моделирование современных экспериментов по физике высоких энергий и астрофизике. В рамках GEANT4 используются методы объектно-ориентированного программирования, моделирующие прохождение релятивистских частиц через детекторные системы со сложной геометрией. Гибкая организация программного пакета GEANT4 позволяет

тестировать детекторы любой конструкции с использованием произвольного набора материалов.

В пакете GEANT4 для вычисления потерь энергии ионов в веществе предусмотрен учет всех возможных механизмов потерь энергии ионов в веществе мишени, в частности, осуществляется расчет тормозных способностей по формулам Бете–Блоха или интерполяция данных из таблиц ICRU (the International Comission on Radiological Units and Measurements).

Результаты расчетов ионизационных потерь энергии ионами ^{131}Xe и ^{238}U . Образцы оливина $(\text{Mg}_{0.88}\text{Fe}_{0.12})_2\text{SiO}_4$ калибровались пучками ионов ^{131}Xe и ^{238}U с энергией 11.4 МэВ/нуклон (В.П. Перелыгин, 2000 г.). С использованием GEANT4 (версия 4.9.0) было проведено моделирование прохождения этих ионов через оливин. На рис. 1 представлен профиль потерь энергии при прохождении пучков ионов ^{131}Xe и ^{238}U с энергией 11.4 МэВ/нуклон через оливин, т.е. величина ионизационных потерь в каждой точке вдоль мишени.

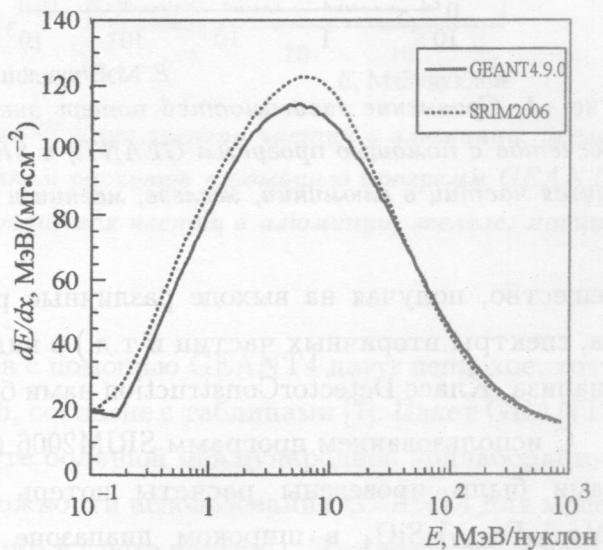
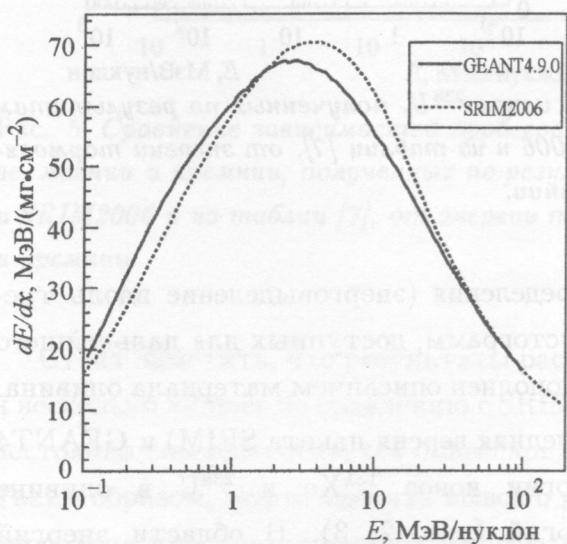


Рис. 2. Зависимость потерь энергии иона ^{131}Xe в оливине $(\text{Mg}_{0.88}\text{Fe}_{0.12})_2\text{SiO}_4$ от энергии.

Рис. 3. Зависимость потерь энергии иона ^{238}U в оливине $(\text{Mg}_{0.88}\text{Fe}_{0.12})_2\text{SiO}_4$ от энергии.

Для моделирования использовался созданный при участии сотрудников нашей группы пакет Hadro01, входящий в состав GEANT4 в качестве официального примера его применения. Он позволяет моделировать прохождение пучков протонов и ионов через

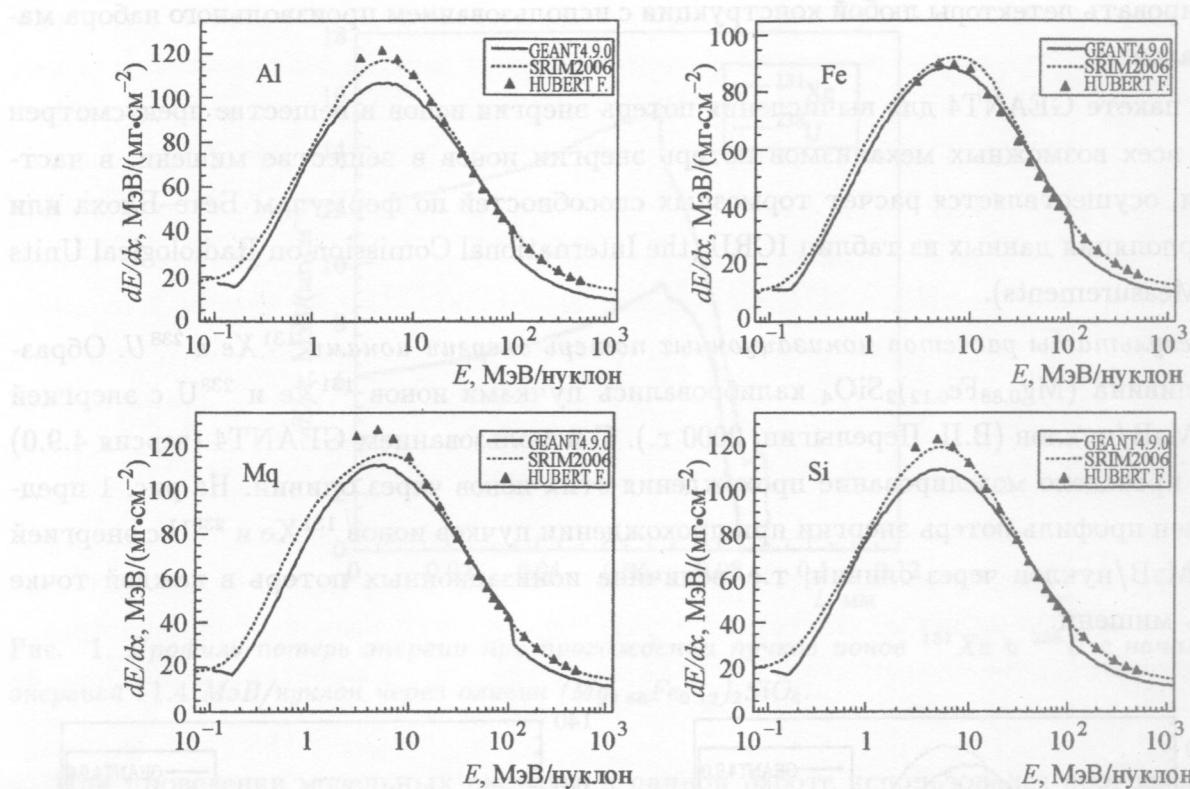


Рис. 4. Сравнение зависимостей потерь энергии ионов ^{238}U , полученных по результатам расчетов с помощью программ GEANT4 и SRIM2006 и из таблиц [7], от энергии тормозящихся частиц в алюминии, железе, магнии и кремнии.

вещество, получая на выходе различные распределения (энерговыделение вдоль трека, спектры вторичных частиц и т.д.) в виде гистограмм, доступных для дальнейшего анализа. Класс DetectorConstruction нами был дополнен описанием материала оливина.

С использованием программ SRIM2006 (последняя версия пакета SRIM) и GEANT4 нами были проведены расчеты потерь энергии ионов ^{131}Xe и ^{238}U в оливине $(\text{Mg}_{0.88}\text{Fe}_{0.12})_2\text{SiO}_4$ в широком диапазоне энергий (рис. 2, 3). В области энергий ~ 10 МэВ/нуклон результаты расчетов пробегов ионов в оливине по программе GEANT4 хорошо согласуются с расчетами пробегов по программе SRIM2006.

Были проведены тестовые расчеты прохождения ядер ^{131}Xe , ^{207}Pb , ^{238}U через вещество в широком спектре энергий и материалов (рис. 4, 5). Результаты модельных расчетов сравнивались с таблицами [7], в которых представлены тормозные способности и пробеги ионов с зарядами $2 \leq Z \leq 103$ для диапазона энергий от 2.5 до 500 МэВ/нуклон в различных материалах.

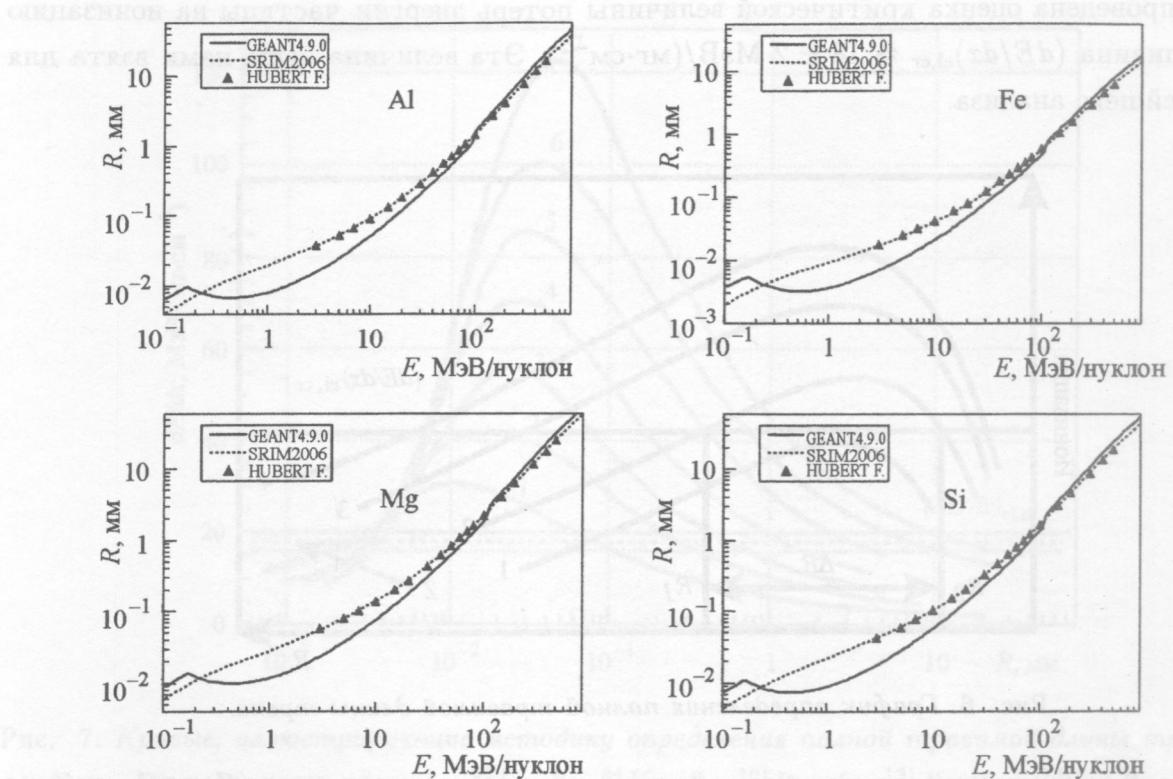


Рис. 5. Сравнение зависимостей пробегов ионов ^{238}U от энергии частиц в алюминии, железе, магнии и кремнии, полученных по результатам расчетов с помощью программ GEANT4 и SRIM2006 и из таблиц [7], от энергии тормозящихся частиц в алюминии, железе, магнии и кремнии.

Стоит заметить, что результаты расчетов с помощью GEANT4 дают неплохое, хотя и несколько худшее по сравнению с SRIM2006, согласие с таблицами [7]. Пакет GEANT4 постоянно совершенствуется благодаря работе большой международной коллаборации. Таким образом, можно сделать вывод о возможности использования GEANT4 для моделирования пространственного энерговыделения в треке частицы. Это позволит в дальнейшем связать информацию о диаметрах протравленных треков с энерговыделением в поперечном сечении пучка и даст дополнительную информацию для определения заряда ядер.

Оценка химически травимой длины трека. Одна из методик идентификации треков частиц в кристаллах метеоритных минералов типа оливина основывается на концепции полной травимой длины трека L [7–10]. Согласно этой концепции, каждый трековый детектор имеет порог ионизации, ниже которого треки не регистрируются. В работе [13]

была проведена оценка критической величины потерь энергии частицы на ионизацию для оливина $(dE/dx)_{el,cr} \approx 18 \pm 2 \text{ МэВ}/(\text{мг}\cdot\text{см}^{-2})$. Эта величина была нами взята для дальнейшего анализа.

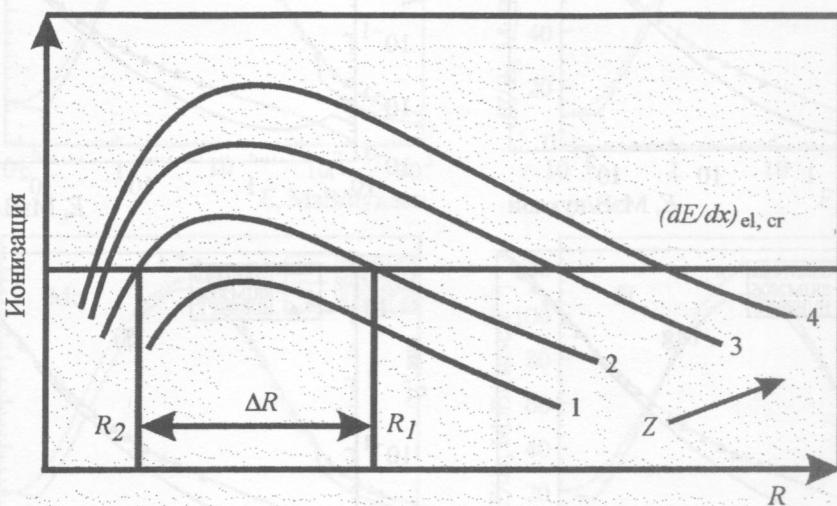


Рис. 6. График определения полной травимой длины трека.

Рис. 6 иллюстрирует данную методику на примере четырех ядер ($Z_1 < Z_2 < Z_3 < Z_4$). Как видно из рис. 6, где приведены кривые ионизационных потерь, частица, производящая ионизацию ниже пороговой ($(dE/dx)_{el} < (dE/dx)_{el,cr}$), не образует травимого трека и, следовательно, не регистрируется (кривая 1). Частица, ионизационные потери которой описываются кривой 2, не образует трека большой протяженности; при ее замедлении скорость ионизации $(dE/dx)_{el}$ превосходит $(dE/dx)_{el,cr}$ при некотором значении остаточного пробега R_1 , и затем спадает ниже $(dE/dx)_{el,cr}$ при значении R_2 . Разность $R = R_1 - R_2$ и определяет “полную травимую длину”, которая, как видно из рисунка, увеличивается с ростом Z (кривые 3, 4).

При помощи SRIM2006 были проведены расчеты зависимости потерь энергии $(dE/dx)_{el}$ и длин пробега от энергии тормозящихся частиц для большого набора ядер, максимум тормозной способности которых лежит выше $16 \text{ МэВ}/(\text{мг}\cdot\text{см}^{-2})$. Результаты расчетов представлены в виде зависимости потерь энергии $(dE/dx)_{el}$ от пробега (рис. 7). С помощью этих кривых была проведена оценка величин ожидаемых длин травимых треков.

Результаты расчетов сведены в табл. 1. В таблице приняты следующие обозначения: L_{\min} , $L_{\text{ср}}$, L_{\max} – полные травимые длины треков для пороговых значений потерь энергии 20 , 18 и $16 \text{ МэВ}/(\text{мг}\cdot\text{см}^{-2})$ соответственно (см. рис. 7).

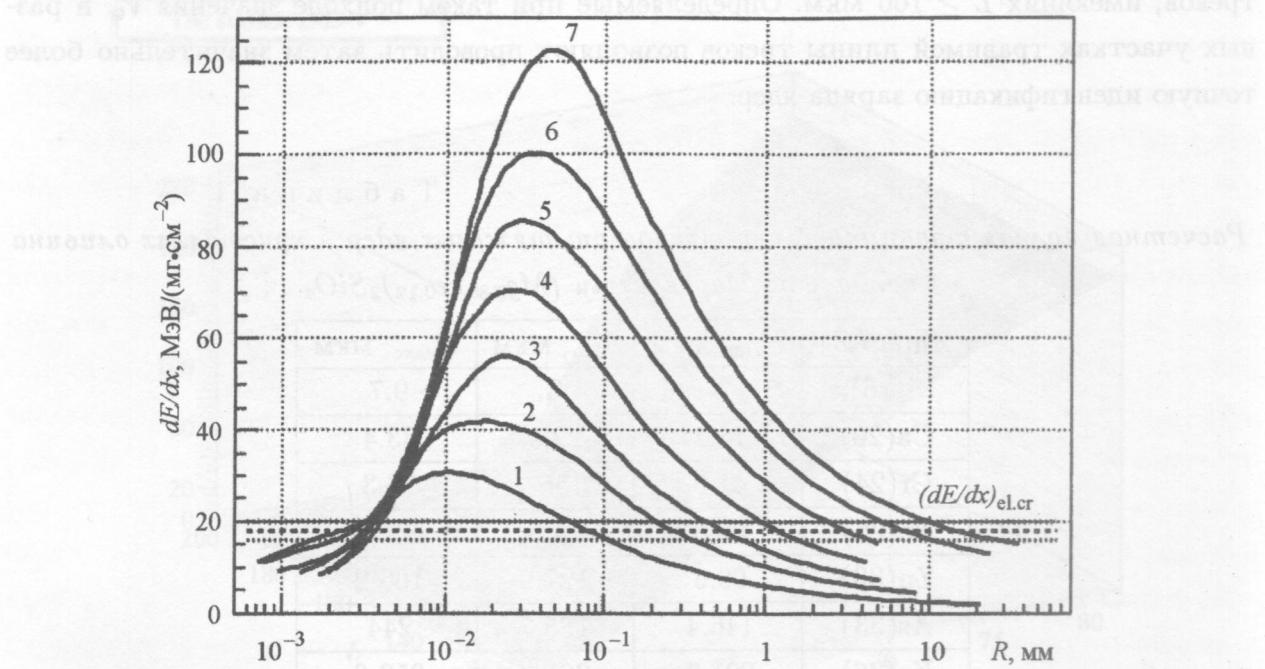


Рис. 7. Кривые, иллюстрирующие методику определения полной травимой длины трека в оливине, для нескольких ядер: 1 – $^{56}_{26}Fe$, 2 – $^{84}_{36}Kr$, 3 – $^{101}_{44}Ru$, 4 – $^{131}_{54}Xe$, 5 – $^{173}_{70}Yb$, 6 – $^{207}_{82}Pb$, 7 – $^{238}_{92}U$.

На основе измеренных длин треков могут быть сделаны только грубые оценки минимальных величин зарядов ядер, прошедших через оливин. Причина заключается в том, что в кристаллах оливина размером 1–2 мм в большинстве случаев длина треков, фиксируемая с помощью оптического микроскопа и регистрируемая на ПАВИКОМ, является лишь некоторой частью полной травимой длины, отвечающей следу торможения ядер с определенным Z . Т.о., для каждого ядра может быть сделана оценка только некоторого нижнего порогового значения Z' , порой существенно заниженного. В связи с этим для получения более точного значения Z ядер, образующих треки, одновременно с параметром L нами была использована скорость травления оливина вдоль следа ядра V_{tr} .

Как показали результаты калибровочных экспериментов, выполненных в работе [8], а также полученные нами данные для ускоренных до энергии 11.4 МэВ/нуклон ядер ^{131}Xe и ^{238}U , соотношение величин V_{tr} и травимой длины треков зависит как от заряда образующих треки ядер, так и от величины остаточного пробега тормозящихся в конце пути ядер. В связи с этим, в ряде случаев нами проводились промежуточные (через 6, 12 или 24 часа травления) измерения длин и скорости травления отдельных

треков, имеющих $L \geq 100$ мкм. Определяемые при таком подходе значения V_{tr} в разных участках травимой длины треков позволяют проводить затем значительно более точную идентификацию заряда ядер.

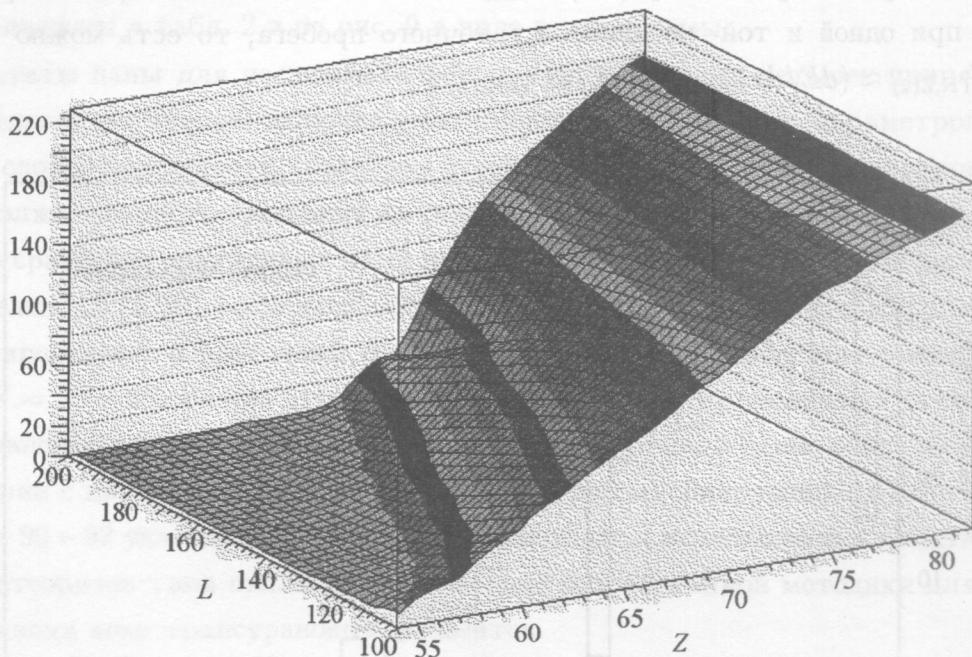
Таблица 1

Расчетная полная травимая длина треков от тяжелых ядер в кристаллах оливина из палласита Марьялахти $(Mg_{0.88}Fe_{0.12})_2SiO_4$

Ядра (Z)	L_{\min} , мкм	$L_{\text{ср}}$, мкм	L_{\max} , мкм
S(16)	-	3	9.7
Ca(20)	14.2	22.9	33.4
Cr(24)	41.6	56	76.3
Fe(26)	56.3	74.6	99.9
Zn(30)	99.6	127.9	166.2
As(33)	146.4	185.7	244
Kr(36)	201.9	261.3	352.6
Zr(40)	295.1	372.5	496.8
Mo(42)	353.4	453.7	594
Ru(44)	417.3	529.6	706.9
Ag(47)	536	685.3	905.6
Sn(50)	687.9	883.3	1167.6
Te(52)	834.7	1063	1411.4
Xe(54)	941.4	1210.7	1613.1
La(57)	1152.5	1484	1982.4
Nd(60)	1391.6	1794.2	2419.7
Tb(65)	1777	2322.4	3144.9
Yb(70)	2409.4	3153.8	4377.2
W(74)	3206.7	4295	6059.5
Ir(77)	3963.9	5283.3	7651.8
Au(79)	4475.2	6126.8	8890.3
Pb(82)	5173.7	7089.2	10465.9
U(92)	9723.7	14486.6	25504.4

Таким образом, для определения заряда ядер VVH-группы ($Z > 50$) космических лучей использовались два основных параметра треков, химически травимых в кристаллах

The surface Z-L-V

Рис. 8. Поверхность $Z'(54 - 84) - L(100 - 200 \text{ мкм}) - V_{\text{TR}}(0 - 220 \text{ мкм/час})$ для определения Z' .

оливина из палласита Марьялахти: геометрического – измеренной длины (L) и динамического – скорости травления $V_{\text{TR}} = \delta L/t$, где t – время травления трека на данном отрезке δL .

Так как геометрическая форма полностью протравленного трека состоит из двух частей – основной цилиндрической длиной R_{main} с диаметром D , и конусообразной с диаметром d , при этом $D \gg d$, то скорость травления трека в этих участках также различна: $(V_{\text{TR}})_D \approx 10 \times (V_{\text{TR}})_d$.

Зависимости V_{TR} от R_{main} для ядер с $Z = (50 - 92)$ рассчитывались, исходя из следующего:

- (а) Полная травимая длина треков ядер взята из табл. 1;
- (б) Использовалось значение $(R_{\text{main}})_U \approx 1200 \text{ мкм}$ (из экспериментальных зависимостей V_{TR} от остаточного пробега для ядер урана с энергией 150 МэВ/нуклон, П. Пеллас и др., [11]);
- (в) При травлении кристаллов оливина было получено [4], что основная зона треков ядер железа ($Z = 26$) равна $(R_{\text{main}})_{26} \sim 0.2 \times R_{26}$. Исходя из предположения, что это соотношение справедливо для всех ядер с $Z > 26$, были рассчитаны $(R_{\text{main}})_Z$;

(г) Величины скорости травления треков ядер с разным зарядом пропорциональны удельным потерям энергии ядер $(dE/dx)_{\text{nuc}}$ на взаимодействие с ядрами тормозящего вещества при одной и той же длине остаточного пробега, то есть можно записать: $V_{\text{TR},Z(1)}/V_{\text{TR},Z(2)} \approx (dE/dx)_{\text{nuc}Z(1)}/(dE/dx)_{\text{nuc}Z(2)}$.

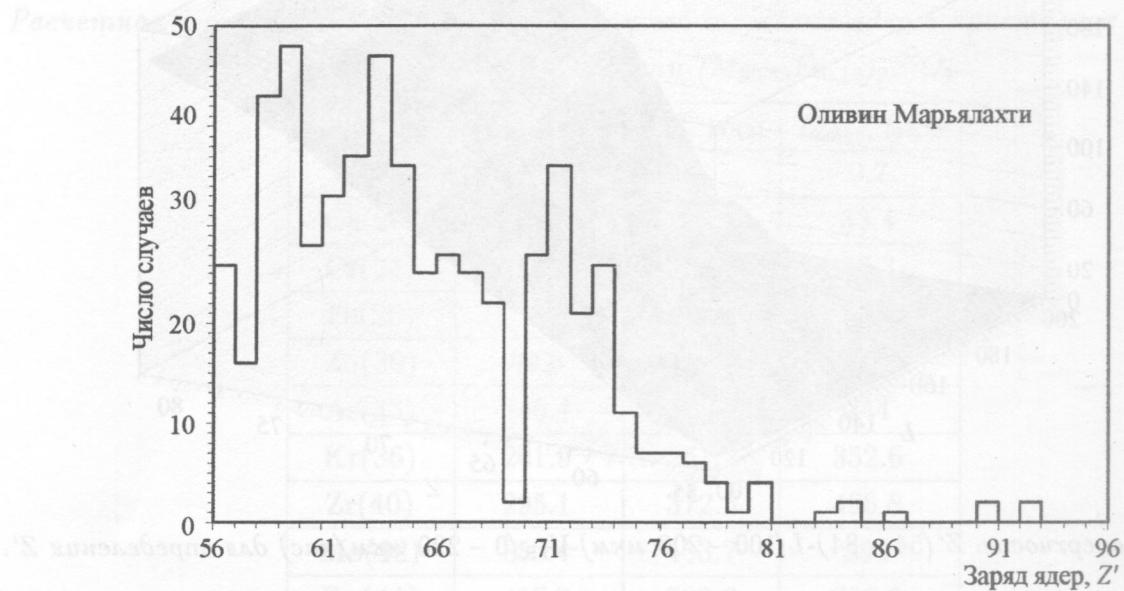


Рис. 9. Распределение зарядов космических ядер в обработанных кристаллах оливина.

Таким образом была построена зависимость между тремя параметрами, характеризующими протравленную часть трека: заряд Z , протравленная длина трека L и средняя скорость травления на данном участке травления V_{TR} . Эта зависимость использовалась нами в дальнейшем при оценке нижней границы заряда. На рис. 8 она представлена в виде поверхности $Z-L-V$.

Еще раз отметим, что используемый нами подход позволяет на данном этапе, до проведения точных калибровочных экспериментов, определять лишь нижнюю границу Z' оценки точного значения заряда Z , т.е. $Z' \leq Z$.

Результаты и обсуждение. К настоящему времени в 27 исследуемых кристаллах из палласита Марьялахти нами зарегистрировано около 3000 треков ядер VH-группы галактических космических лучей (ГКЛ) с зарядом в диапазоне $23 < Z < 28$. Их протравленная длина колеблется от 3 до 14 мкм, а оцененная плотность составляет около $4 \cdot 10^9 \text{ см}^{-3}$. По величине плотности треков была определена глубина залегания кристаллов от доатмосферной поверхности метеорита Марьялахти, которая изменяется в пределах от ~ 8 до ~ 12 см.

Полученные к настоящему времени результаты определения заряда ядер с $Z' > 50$ для 853 зарегистрированных в 27-ми кристаллах оливина из палласита Марьялахти треков приведены в табл. 2 и на рис. 9 в виде гистограммы.

Результаты даны для последовательно проведенных трех-четырех принятых в наших исследованиях этапов, включающих: травление – измерение параметров треков – удаление слоя с поверхности травления толщиной до ~ 50 мкм и последующее травление. Продолжительность травления на каждом из этапов составляла 48 часов. На рис. 10 приведено сравнение полученных нами результатов с относительным содержанием ядер сверхтяжелых ($Z > 50$) элементов, входящих в состав ГКЛ [15]. Нормирование числа зарегистрированных в настоящей работе ядер (см. рис. 9) проведено с помощью данных для $Z = 50 - 55$. Важно отметить, что общий характер изменения относительной распространенности ядер с различным зарядом, полученной нами, совпадает в первом приближении с данными работ [16, 17]. Таким образом, обнаружение и идентификация ядер с $Z = 90 - 92$ указывает на реальную возможность использования кристаллов оливина из метеоритов типа палласиты с помощью разработанной методики для поиска и идентификации ядер трансурановых элементов.

Таблица 2

Относительная величина потока ядер VVH-групп с зарядом от 50 до 92, определенная по трекам в кристаллах оливина из палласита Марьялахти

Зарядовая группа	Число треков N_Z (*)	Длина треков L , мкм (**)	Плотность треков, см $^{-3}$	Относительная величина потока ядер (***)
$50 \leq Z' \leq 59$	399	100–150	1.8×10^5	4.5×10^{-5}
$60 \leq Z' \leq 69$	283	150–300	1.1×10^5	2.8×10^{-5}
$70 \leq Z' \leq 79$	159	300–500	7.2×10^4	1.85×10^{-5}
$80 \leq Z' \leq 89$	8	500–700	3.6×10^3	0.9×10^{-6}
$90 \leq Z' \leq 92$	4	>700	1.8×10^3	4.6×10^{-7}

(*) Число треков, зарегистрированных в общем объеме ~ 2.2 мм 3 27-ми исследуемых кристаллов оливина.

(**) Средние значения травимой длины треков L , измеренные последовательно за (3-4)-кратный 48-ми часовой период последовательного, поэтапного травления.

(***) Поток ядер в диапазоне $23 < Z < 28$ принят за 1.

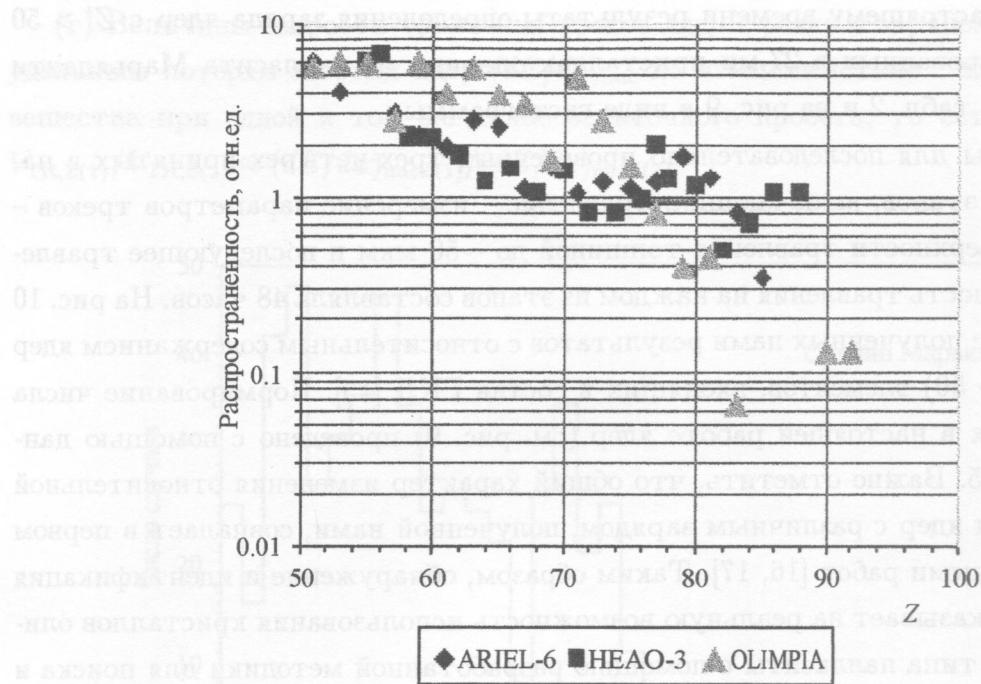


Рис. 10. Относительное содержание ядер с энергией 1 – 10 ГэВ/н.

Заключение. С помощью разработанной методики выявления и измерения параметров треков в предварительно не отожженных кристаллах оливина из палласита Марьялахти получены результаты идентификации заряда ядер для 853 треков, относящихся к ядрам VVH-группы ГКЛ с зарядом $Z > 50$, среди которых четыре ядра относятся к группе актинидов с $Z = 90 - 92$.

В дополнение к указанным в работах [2, 4, 12] особенностям используемой нами методологии поиска и измерения параметров треков от ядер тяжелых элементов ГКЛ необходимо отметить, что одновременное использование прецизионно измеренных для каждого трека величин L и V_{tr} позволило получить более достоверные результаты при определении заряда ядер.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ, грант N 06-02-16835.

ЛИТЕРАТУРА

- [1] V. L. Ginzburg, N. G. Polukhina, E. L. Feinberg, et al., Doklady Physics 50(6), 283 (2005).

- [2] E. L. Feinberg, K. A. Kotelnikov, N. G. Polukhina, Physics of Particles and Nuclei **35**(3), 409 (2004).
- [3] J. F. Ziegler, J. P. Biersack, U. Littmark, *The Stopping and Range of Ions in Solids* (Pergamon Press, NY, Oxford, 1985).
- [4] А. Б. Александров, А. В. Багуля, Л. А. Гончарова, и др., Калибровочные измерения динамических и геометрических параметров треков в кристаллах оливина, образованных ускоренными ядрами Хе и У. в: "Вестник Отделения наук о Земле РАН" электронный научно-информационный журнал N 1(25) 2007 URL: http://www.scgis.ru/russian/cp1251/h_dgggms/1-2007/informbul-1_2007/planet-9.pdf
- [5] H. Paul, A. Schinner, Nucl. Instr. and Meth. **B209**, 252 (2003).
- [6] GEANT4 Collaboration (S. Agostinelli et al.), Nucl. Instr. and Meth. **A506**, 250 (2003).
- [7] F. Hubert, R. Bimbot, H. Gauvin, Atomic Data and Nuclear Data Tables **46**, 1 (1990).
- [8] D. J. Gore et al., Phys. Med. Biol. **23**, 149 (1978).
- [9] I. D. Hutcheon et al., Proc. Fifth Lunar Sci. Conf. (Pergamon, New York, 1974), p. 2561.
- [10] G. E. Blanford et al., Proc. Sixth Lunar Sci. Conf. (Pergamon, New York, 1974), p. 3557.
- [11] P. Pellas and C. Perron, Nuclear Instrument & Methods in Physics Research B1, 387 (1984).
- [12] A. B. Aleksandrov, A. V. Bagulya, L. A. Goncharova, et al.,
http://www.scgis.ru/russian/cp1251/h_dgggms/1-2007/informbul-1_2007/planet-10e.pdf
- [13] P. Horn et al., Zeitschrift fur Naturforschung **22a**, 1793 (1967).
- [14] J. D. Birle et al., Amer. Min. **53**, 807 (1968).
- [15] В. Л. Гinzбург, *Астрофизика космических лучей* (М., Наука, 1984).
- [16] M. M. Shapiro, R. Silberberg, Phil. Trans. Roy. Soc., **A277**, 319 (1975).
- [17] M. H. Israel, 17 ICRC **12**, 53 (1981).

Поступила в редакцию 24 июля 2008 г.