ОТЗЫВ

Официального оппонента на диссертацию КИСЕЛЕВОЙ Марии Сергеевны

«Кинетика пострадиационных процессов в оптических материалах с подвижными дефектами», представленную на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.07 – Физика конденсированного состояния

Диссертационная работа М.С. Киселевой посвящена исследованию широкозонных оптических материалов с подвижными катионами, которые широко применяются в нелинейной и интегральной оптике. В работе детально изучены процессы релаксации радиационных дефектов в кристаллах дигидрофосфатов калия KH_2PO_4 (KDP) и аммония $NH_4H_2PO_4$ (ADP), боратов лития - тетраборат лития $Li_2B_4O_7$ (LTB), трибората лития LiB_3O_5 (LBO) и двойного ортобората лития-гадолиния $Li_6Gd(BO_3)_3$ (LGBO). **Актуальность работы определяется** как высокой практической значимостью выбранных объектов в ряду функциональных радиационно-стойких оптических материалов, пригодных для работы в ультрафиолетовом диапазоне спектра, так и необходимостью развития представлений о процессах дефектообразования и релаксации низкоэнергетических электронных возбуждений в низкосимметричных широкозонных оксидных диэлектриках. Понимание таких процессов необходимо для прогнозирования и управления свойствами оптических материалов в условиях воздействия импульсного ионизирующего излучения, а также оптимизации их радиационно-оптических характеристик. Очевидно, что процессы взаимодействия излучения с веществом в материалах, в структуре которого содержится анионная группа с сильными ковалентными связями внутри, и слабосвязанный щелочной катион, будут существенно отличаться от таковых в простых модельных ионных кристаллах. Протекание процессов в кристаллах со сложной структурой требует в настоящее время более глубоко понимания, развития

экспериментальных и теоретических методов исследования для этого класса материалов.

Основной целью диссертационной работы явилось комплексное исследование кинетики пострадиационных процессов релаксации радиационных дефектов во временном диапазоне от наносекунд до нескольких секунд в широкозонных оптических материалах с подвижными катионами малого радиуса (ADP, KDP, LBO, LTB, LGBO) путем консолидированного применения техники времяразрешенной спектроскопии с наносекундным временным разрешением и методов вычислительной физики. Такое сочетание высокоинформативной методики исследования быстропротекающих процессов и теоретических подходов позволило автору работы решить поставленные задачи, получить новые значимые для физики конденсированного состояния результаты.

Оригинальной части работы автором рассматриваются несколько основных задач. Первая из них – методологическая. Для проведения исследований было необходимо разработать подходы к созданию программного комплекса для моделирования пострадиационных процессов в широкозонных оптических материалах с подвижными катионами малого радиуса, позволяющего в широком диапазоне времени затухания осуществлять расчет важнейших функциональных зависимостей для описания кинетики пострадиационных процессов. Ключевой особенностью разработанного подхода является решение уравнения Смолуховского для нахождения корреляционной функции Y(r, t) разнотипных дефектов, которое учитывает диффузионный процесс в системе подвижных реагентов и туннельный перенос электрона между антиморфными дефектами. Автором разработан и реализован программный комплекс «КМТР-1», защищенный свидетельством о государственной регистрации программы для ЭВМ №2011616814. Комплекс позволяет моделировать кинетику пострадиационных процессов в рамках модели туннельного переноса электрона в условиях подвижности одного из партнеров рекомбинационного процесса. Созданный программный продукт

может быть использован для широкого круга оптических материалов с подобной структурой.

Вторая крупная задача диссертационного исследования заключается в экспериментальном и теоретическом исследовании кинетики пострадиационных процессов релаксации радиационных дефектов катионной подрешетки в легированных и нелегированных оптических материалах с различными типами подвижных катионов малого радиуса. Для каждого объекта исследования установлены основные функциональные зависимости, описывающие кинетику (10 нс -10 с) пострадиационных процессов после импульсного радиационного воздействия наносекундной длительности; проведена параметризация и получены значения параметров наилучшей аппроксимации. На примере кристаллов дигидрофосфатов калия и аммония были изучены процессы в материалах с 3D-подвижными катионами малого радиуса (протоны). Кристаллы тетрабората и трибората лития послужили модельными объектами для изучения процессов в нелегированных оптических материалах с 1D-подвижными катионами малого радиуса (ионы лития). Влияние ионов-активаторов на кинетику релаксации радиационных дефектов и излучательный распад низкоэнергетических электронных возбуждений было изучено на примере кристаллов двойного ортобората лития-гадолиния, «чистого» и легированного ионами церия.

В ходе выполнения диссертационного исследования Киселевой М.С. получен **целый ряд новых и принципиально важных результатов**, среди которых особо хотелось бы отметить следующие:

- разработана математическая модель для описания пострадиационных процессов релаксации радиационных дефектов в широкозонных оптических материалах с подвижными катионами малого радиуса, учитывающего диффузионный процесс в системе подвижных реагентов и туннельный перенос электрона между антиморфными дефектами этой системы;

- установлено что кинетика пострадиационных процессов релаксации 3*D*-подвижных радиационных дефектов катионной подрешетки нелегированных

кристаллов с водородными связями ADP и KDP обусловлена диффузионным процессом в системе подвижных катионов и туннельным переносом электрона между антиморфными дефектами водородной подрешетки;

- установлено что кинетика пострадиационных процессов релаксации 1*D*-подвижных радиационных дефектов катионной подрешетки нелегированных кристаллов боратов лития LTB и LBO в широкой области времен затухания 100 нс -1 с обусловлена диффузионным процессом в системе подвижных катионов лития и туннельным переносом электрона между антиморфными дефектами катионной подрешетки;

- обнаружен и физически обоснован плотностной эффект - зависимость кинетики от плотности энергии импульса возбуждения, «укорочение» кинетики затухания короткоживущего оптического поглощения, наблюдаемое при повышении плотности энергии импульса возбуждения, обусловлено обратной зависимостью постоянной времени затухания кривой $n(t)/n_0$ от плотности энергии импульса возбуждения;

- влияние пострадиационных процессов релаксации радиационных дефектов в кристаллах LGBO:Ce в системе 1*D*-подвижных катионами малого радиуса (ионы лития) на кинетику излучательного распада низкоэнергетических электронных возбуждений обусловлено туннельным переносом электрона между радиационными дефектами и примесными Ce(IV) центрами, приводящим к формированию короткоживущих Ce(III) центров в возбужденном состоянии.

Практическая значимость результатов работы заключается в разработке программного комплекса, позволяющего моделировать кинетику пострадиационных процессов в рамках модели туннельного переноса электрона в условиях подвижности одного из партнеров рекомбинационного процесса, что важно при прогнозировании свойств и разработке функциональных материалов, работающих в поле радиации. Полученные в работе функциональные зависимости и наборы параметров моделирования позволяют для каждого объекта исследования осуществлять расчеты кинетики

пострадиационных процессов релаксации радиационных дефектов в широкой области времен затухания 10 нс -10 с. Применение комплекса может быть расширено на широкий круг объектов.

На основании полученных результатов диссертантом сформулированы пять основных положений, выносимых на защиту. Все защищаемые положения базируются на систематических, тщательно спланированных экспериментах, сопоставлением результатов моделирования анализируемых процессов с экспериментальными данными, подтверждены детальным обсуждением с привлечением независимых литературных данных. **Полученные в работе результаты являются новыми и достоверными,** выводы и **защищаемые положения обоснованы**. Достоверность подтверждается сочетанием теоретических и экспериментальных подходов, набором современных методов исследования спектрально-кинетических характеристик твердого тела, тщательной оценкой погрешности измерения и аппроксимации.

По работе имеются следующие замечания:

1. Наличие примесей в кристаллах, даже номинально чистых, имеет немаловажное значение для исследуемых пострадиационных процессов. В этой связи, автор не в полной мере отразил в работе результаты первичной аттестации образцов. Ссылка на работу [55], датированную 1998 годом, описывающая содержание примесей, не дает полного представления о качестве используемых для исследования образцов.

2. В работе не приводится данных о плотности энергии возбуждающего импульса для каждого исследуемого объекта и эксперимента. Так же автор не уделяет внимания оценке поглощенной дозы излучения, особенно в тех случаях, когда кристалл подвергается многократному воздействию импульсного электронного пучка при регистрации спектров короткоживущего поглощения. В то же время, автором обнаружены «плотностные эффекты» при исследовании кинетики релаксации, что показывает влияние энергетических параметров облучения на пострадиационные процессы. Информация о варьировании мощности возбуждения от 1 до 100% (стр. 81, 99), или измерении

при100% мощности не дает полной картины условий эксперимента, что затрудняет, например, сравнение данных с исследованиями других авторов.

3. Автором, как правило, исследуется наведенное поглощение в одной полосе спектра. Очевидно, что процессы релаксации для различных центров окраски могут различаться. Сравнение кинетики пострадиционной релаксации в нескольких полосах позволит углубить представления о процессах образовании и релаксации дефектов в исследуемых объектах.

4. Образцы, активированные церием, как правило, обладают интенсивной люминесценцией. Учитывалась ли при измерении наведенного поглощения образцов LGBO:Ce, вклад люминесценции ионов церия в регистрируемый оптический сигнал?

5. При анализе кинетики затухания короткоживущего наведенного поглощения кристалла LGBO (рис. 5.3) вызывает вопрос отсутствие экспериментальных данных в диапазоне 10^{-5} -10^{-2} с. На чем основывается приведенная аппроксимация на данном диапазоне?

Перечисленные замечания не снижают общую высокую оценку работы, носят рекомендательный характер для дальнейшего развития тематики исследования.

Полученные в ходе диссертационного исследования результаты **прошли необходимую апробацию**, были представлены на всероссийских и международных научных конференциях. Основное содержание работы опубликовано в 9 статьях в ведущих российских и зарубежных журналах из списка ВАК, индексируемых в Scopus и Web of Science, получено свидетельство о госрегистрации программы для ЭВМ.

Автореферат соответствует содержанию и структуре диссертации, адекватно отражает полученные в работе результаты.

Таким образом, диссертационная работа Киселевой М.С. «Кинетика пострадиационных процессов в оптических материалах с подвижными дефектами», является законченной научно-квалификационной работой,

выполненной в рамках актуального направления физики конденсированного состояния. Полученные результаты характеризуются высоким уровнем новизны, в должной степени обоснованы, имеют важную научную и практическую значимость.

Диссертация соответствует специальности 01.04.07 – Физика конденсированного состояния. **Диссертация удовлетворяет требованиям п. 9 Положения о присуждении ученых степеней,** предъявляемым к кандидатским диссертациям, а ее автор, Киселева Мария Сергеевна, заслуживает присуждения ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.07 – физика конденсированного состояния.

Официальный оппонент – доцент отделения материаловедения
Инженерной школы новых производственных технологий,
ФГАОУ ВО «Национальный исследовательский
Томский политехнический университет»,
доктор физико-математических наук _____ Полисадова Елена Федоровна
28.08.2018

Полисадова Елена Федоровна,
ФГАОУ ВО НИТПУ, ИШНПТ, ОМ
E-mail: elp@tpu.ru,
Тел.: 8(3822)606310
Адрес организации: 634050, Россия, г. Томск, проспект Ленина д. 30

Подпись Полисадовой Елены Федоровны заверяю

Ученый секретарь ТПУ О.А. Ананьева