

Голові Разової спеціалізованої вченої ради
Інституту монокристалів НАН України,
докторці технічних наук, старшій дослідниці,
старшій науковій співробітниці
відділу нелінійно-оптичних кристалів
Інституту монокристалів НАН України
БЕЗКРОВНІЙ Ользі Миколаївні

РЕЦЕНЗІЯ

кандидатки технічних наук,
Крижановської Олександри Сергіївни
на дисертацію **СІРИКА Юрія Вікторовича**
«Отримання люмінесцентних евтектичних композитів
 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$ методом ГСК для LED/LD джерел білого світла»,
представлену на здобуття наукового ступеня доктора філософії
за спеціальністю 132 Матеріалознавство,
галузь знань 13 Механічна інженерія

1. Актуальність теми дисертації

Сучасні конвертери в джерелах білого світла не забезпечують необхідної радіаційної стійкості та термічної стабільності для потужного LED і LD випромінювання, що обмежує їх розвиток і зумовлює потребу в розробці нових фотоконвертерних матеріалів.

Евтектичні композити на основі оксиду алюмінію і ітрій-алюмінієвого гранату, що активовані церієм $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$, поєднують високу термічну стабільність, хімічну інертність, механічну міцність та ефективну жовту люмінесценцію, що робить їх незамінними для створення фотоконвертерів у потужних LED - і лазерних діодах білого світла. Фазовий склад, морфологія мікроструктури та розподіл іонів Ce^{3+} , які формуються під час направленої кристалізації, безпосередньо визначають світлотехнічні характеристики — кольорові координати, світлову ефективність, корельовану колірну температуру та індекс передачі кольору. Попри наявність багатьох розрізнених даних про вплив режимів кристалізації на окремі властивості $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$, досі бракувало комплексного аналізу їхнього взаємозв'язку. Саме цим питанням присвячена дисертація здобувача. Актуальності теми дисертації підкреслює її зв'язок із науково-дослідними роботами Міністерства освіти і науки України, зокрема: «Фізико-технологічні основи створення люмінесцентних кристалічних композитів для потужних LED/LD джерел білого світла» (№ держреєстрації 0120U101754); «Забезпечення розробки та дослідження властивостей евтектичних композитів з тугоплавких оксидів» (№ держреєстрації 0123U102743 та «Розроблення високоефективних люмінесцентних матеріалів для енергозберігаючих джерел білого світла та сцинтиляційної техніки» 2017-2018 рр. (№ держреєстрації 0117U007370) у виконанні яких здобувач брав активну участь. Це підтверджує значущість досліджуваної проблеми та її практичне значення для розвитку відповідних галузей науки та техніки.

2. Найважливіші наукові результати дисертації та їх новизна

У дисертації, яка присвячена всебічному вирішенню науково-прикладної задачі визначення умов формування структурно-фазового стану евтектичних композитів $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$ та їхнього впливу на механічні, оптичні й люмінесцентні властивості матеріалу й світлотехнічні параметри на його основі, одержано такі ключові результати. По-перше, оптимізовано температурно-кінетичні умови горизонтальної спрямованої кристалізації в відновлювальній атмосфері ($\text{Ar} + \text{CO}$, H_2) із шихтою, що містить до 4 ат. % Ce, що забезпечило формування однорідної мікроструктури типу „chinese script“ з керованим інтервалом евтектичної відстані λ_{eut} від 8,6 до 72,4 мкм без появи додаткових церійовмісних фаз. По-друге, експериментально встановлено відхилення залежності евтектичного інтервалу від швидкості кристалізації $\lambda_{\text{eut}}(V)$ від класичної моделі Джексона–Ханта ($\lambda_{\text{eut}}^n \cdot V = \text{const}$ при $n = 2$): у діапазоні швидкостей кристалізації $V = 5\text{--}50$ мм/год показник ступеня дорівнює $n \approx 1,75$. По-третє, уперше виявлено немонотонну залежність мікроструктурних параметрів від V : при концентрації Ce^{3+} у шихті 0,25 ат. % та $V = 30$ мм/год досягається максимальна однорідність, коли різниця розмірів грубої й тонкої фази становить лише ≈ 25 %, що критично для стабільних оптичних і механічних властивостей. По-четверте, показано, що відпал у вакуумі $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$ (0,5 ат. % Ce) за 1700°C підвищує тріщиностійкість на 72 % та мікротвердість на 40 % порівняно з невідпаленими зразками, в результаті чого досягаються значення $3,37 \pm 0,2$ МПа $\cdot\text{м}^{1/2}$ і $16,7 \pm 0,3$ ГПа відповідно. По-п'яте, уперше продемонстровано, що оптичне пропускання евтектичного композиту лінійно залежить від λ_{eut} у діапазоні 400–1100 нм, а індикатриса пружного розсіяння відповідає ламбертовському закону. І нарешті, встановлено, що абсолютна ефективність фотоконверсії в конвертерах на основі евтектики $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$ приблизно вдвічі перевищує відповідний показник монокристалічних YAG:Ce-конвертерів.

3. Практичне значення та практична цінність одержаних результатів

У дисертації наведено оптимізовані умови отримання евтектичних композитів $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$ методом горизонтальної спрямованої кристалізації в відновному вуглецевмісному середовищі, що відкриває перспективу використання методу ГСК для виготовлення люмінесцентних фотоконвертерів в LED- та LD-джерелах білого світла. Важливим результатом роботи є розроблення оригінального програмного забезпечення з аналізу зображень для визначення параметрів мікроструктури евтектичних композитів $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}$ та $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$, яке в подальшому може бути використано для характеристики інших композитних матеріалів зі складною морфологією і нерегулярним розташуванням елементів структури.

Встановлено оптимальні режими відпалу, що забезпечують значне зростання механічної міцності, підвищують оптичну прозорість і інтенсивність люмінесценції евтектичного композиту.

На основі отриманого матеріалу виготовлено фотоконвертери, які при опроміненні лазерним світлом ($\lambda = 455$ нм) забезпечують світловий потік із хроматичними координатами в центрі діаграми CIE 1931, корельованою колірною температурою 4200–6500 К, індексом передачі кольору 60–72 % і світловіддачею до 234 лм/Вт. Розроблені в роботі методи та одержані результати інтегровані в навчальний курс «Наукові основи технологій вирощування монокристалів» для підготовки докторів

філософії в Інституті монокристалів НАН України.

4. Оцінка змісту дисертації, її завершеності

Дисертаційна робота Сірика Ю.В. представляє завершену наукову працю, яка складається з анотацій українською та англійською мовами, вступу, п'яти розділів, загальних висновків, списку використаних джерел та додатків. Загальний обсяг основного тексту становить 150 сторінок, 85 рисунків, 22 таблиці, списку використаних літературних джерел із 167 найменувань та 3 додатків.

Анотація дисертаційної роботи подана українською та англійською мовами і готує читача до подальшого викладу матеріалу. У вступі обґрунтовано актуальність теми, показано її значущість для науки та практики, визначено основну мету, предмет і об'єкт дослідження, а також сформульовано завдання й напрями їх вирішення. Вказано зв'язок роботи з науковими програмами, описано особистий внесок здобувача й апробацію результатів, а також наведено детальну структуру дисертації.

Перший розділ присвячений огляду літератури з люмінесцентних матеріалів для потужного лазерного і світлодіодного випромінювання, описує вимоги до фізико-механічних і теплофізичних властивостей фотоконвертерів та обґрунтовує вибір гетерофазних евтектичних композитів $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$ і методу горизонтальної спрямованої кристалізації в відновному середовищі як перспективного напрямку.

У другому розділі детально описані експериментальні методики, обладнання і матеріали для отримання та вивчення евтектичних зразків $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}$ та $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$. Наведено умови підготовки шихти, параметри кристалізації (швидкість росту, температурний градієнт, перегрів та охолодження) і технологію виготовлення дослідних зразків.

Третій розділ аналізує вплив умов кристалізації на фазовий склад і морфологію композитів із різним вмістом церію. Показано, що при складі 81,5 мол.% Al_2O_3 і 18,5 мол.% Y_2O_3 , перегріві до 100 °C і швидкості до 50 мм/год утворюється мікроструктура «китайське письмо», а залежність евтектичного інтервалу від швидкості росту відхиляється від моделі Джексона–Ханта. Виявлено немонотонні зміни розмірів фаз у композитах $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}^{3+}$ залежно від швидкості кристалізації.

У четвертому розділі досліджено механічні властивості евтектичних композитів. Встановлено, що зменшення інтервалу λ_{eut} у чотири рази підвищує мікротвердість на 16,5 % і тріщиностійкість на 13,5 %, а збільшення концентрації Ce^{3+} до 0,5 ат.% знижує ці показники на 27 % і майже 42 відповідно. Показано, що вакуумний відпал за 1700 °C підвищує мікротвердість на 40 % і тріщиностійкість на 72 %.

П'ятий розділ присвячений оптичним і люмінесцентним властивостям композитів та світлотехнічним характеристикам фотоконвертерів. Наведено теоретичну оцінку абсолютної ефективності конвертерів з $\text{YAG}:\text{Ce}$ і евтектики $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$, досліджено вплив мікроструктури, вмісту церію, орієнтації зразків та відпалу на їхні оптичні та люмінесцентні параметри.

Висновки до розділів і підсумкові висновки докладно відображають результати досліджень, підкреслюють наукову новизну і практичне значення роботи.

5. Оформлення, мова та стиль дисертації

Дисертацію написано на хорошому стилістичному рівні. Застосована у роботі наукова термінологія є загальноновизнаною, стиль викладення результатів досліджень, наукових положень, висновків і рекомендацій забезпечує доступність їх використання. Оформлення дисертації відповідає усім необхідним вимогам.

6. Повнота викладення результатів дисертації в наукових виданнях

Основні результати дисертаційної роботи опубліковано в 17 наукових роботах. З них – 4 публікації у закордонних фахових виданнях (3 публікації в міжнародних фахових наукових журналах Q1 та Q2) та 2 у вітчизняних фахових наукових журналах, 11 тез доповідей у збірниках праць українських та міжнародних наукових конференцій.

7. Відсутність (наявність) порушення академічної доброчесності

За результатами аналізу дисертації та публікацій здобувача СІРИКА Юрія Вікторовича порушень академічної доброчесності не виявлено. Елементи фальсифікації тексту у роботі відсутні.

8. Дискусійні положення та зауваження до дисертації:

1. В Розділі 3.2 (стор. 76) для параметра λ_{eut} автор пропонує використовувати назву «характерна евтектична відстань», яку вважає найбільш коректною. Але надалі в більшості випадків використовує вираз «розмір мікроструктури», який іноді означає λ_{eut} , а іноді узагальнені параметри мікроструктури. Також зустрічаються вирази «середній розмір мікроструктури», «середня міжфазна відстань», «розмір характерного евтектичного інтервалу» і т.ін., які також відносяться до λ_{eut} . Зважаючи на складний ієрархічний характер морфології, що описується, брак уніфікації ускладнює сприйняття тексту.

2. В Розділі 3.5 (стор. 90-92) процес утворення комірчастої структури евтектичного композиту $Al_2O_3/YAG:Ce$ 0.25 at.% описується як двостадійний, що видається не дуже коректним, оскільки „стадії” зміни структури в даному експерименті є не відображенням еволюції системи, а фактично є відгуком на примусову зміну швидкості росту (витягування) в рамках одного ростового процесу. Також, оскільки в даній системі концентрація церію змінюється вздовж напрямку кристалізації, що теж має призводити до змін у структурі ЕК, описувати залежності структури від двох параметрів, що змінюються одночасно, слід дуже обережно.

3. В Розділі 3.7 (стор. 105) наводиться посилання на літературне джерело, в якому описується отримання рівноважної евтектичної структури Al_2O_3/YAG шляхом плавлення метастабільної евтектичної структури Al_2O_3/YAP . Автор використовує даний підхід для отримання свого матеріалу методом ГСК. У Висновку 13 до Розд. 3 (стор. 110) вказано, що евтектичний композит Al_2O_3/YAG отримується шляхом твердофазного перетворення YAP в YAG , тобто не шляхом плавлення, однак в тексті відсутні пояснення механізмів фазового переходу YAP в YAG .

4. Також, згідно фазової діаграми (Рис. 2.1, стор. 57), метастабільній евтектиці відповідає інший склад компонентів, ніж стабільній (23.5 і 18.5 mol.% Y_2O_3 відповідно). Для отримання метастабільної евтектики автор обрав склад, що відповідає стабільній, не пояснюючи свій вибір.

5. В тексті, на жаль, відсутнє пряме чисельне порівняння світлотехнічних властивостей отриманих в роботі матеріалів з комерційними зразками, лише зазначено, що вони є порівняними.

6. Емітування світла в відбувається в одній з двох фаз евтектичного

композиту, проте в тексті не вказане об'ємне співвідношення фази, що емітує, і фази, що розсіює.

7. На Рис 2.31 (стор. 98) відсутні точки, за якими були побудовані залежності.

Вказані недоліки мають рекомендаційний характер і не впливають на загальну позитивну оцінку виконаної дисертаційної роботи. Загалом, високий науковий рівень дисертації, її новизна, достовірність і значущість отриманих результатів не викликають сумнівів.

9. Загальний висновок

Дисертація СІРИКА Юрія Вікторовича «Отримання люмінесцентних евтектичних композитів $Al_2O_3/YAG:Ce$ методом ГСК для LED/LD джерел білого світла» представлена на здобуття наукового ступеня доктора філософії за спеціальністю 132 – Матеріалознавство, галузь знань 13 – Механічна інженерія, є завершеним та цілісним самостійним науковим дослідженням, містить достатню наукову новизну та практичну цінність одержаних результатів. Зміст дисертації відповідає обраній темі, забезпечує досягнення поставленої мети і вирішення завдання дослідження. Вказані зауваження щодо представленого дослідження не знижують вагомості одержаних у роботі наукових та практичних результатів і не змінюють позитивної оцінки.

З огляду на актуальність проблеми, вкладу автора у вирішення поставленого завдання, відсутності порушень академічної доброчесності вважаю, що дисертація цілком відповідає вимогам постанови Кабінету Міністрів України № 44 від 12 січня 2022 року «Про затвердження порядку присудження ступеня доктора філософії та скасування рішень разової спеціалізованої ради закладу вищої освіти, наукової установи про присудження ступеня доктора філософії», а здобувач СІРИК Юрій Вікторович заслуговує присудження йому ступеня доктора філософії за спеціальністю 132 – Матеріалознавство.

Офіційний рецензент:

кандидатка технічних наук, старша наукова співробітниця відділу кристалічних матеріалів складних сполук Інституту монокристалів НАН України

О. С. КРИЖАНОВСЬКА

31 листопада 2025 р.

Підпис КРИЖАНОВСЬКОЇ О.С.

засвідчую

В.о. вченого секретаря

Інституту монокристалів

Національної академії наук України



О.К. КАПУСТНИК