

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  
БЕЗКРОВНИЙ Ользі Миколаївні

## **РЕЦЕНЗІЯ**

доктора технічних наук, професора, заступника директора з наукової роботи  
Інституту монокристалів НАН України

**Романа Павловича ЯВЕЦЬКОГО**

на дисертаційну роботу **Юрія Вікторовича СІРИКА**

«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»

### **Актуальність теми дисертаційного дослідження**

Фотоніка є вкрай важливою наукоємною галуззю, що активно розвивається останнім часом. Ринок матеріалів для фотоніки, що включає світлодіоди, лазери, люмінофори, конвертори світла та інше, прогнозується на рівні 1 трильйона доларів США у 2025 році та демонструє щорічне зростання. Це стало можливим, в тому числі, завдяки винайденню синіх світлодіодів (Нобелівська премія з фізики 2014 року), що здійснило революцію в технологіях освітлення. Серед оптичних матеріалів особливу увагу привертають світлоконвертори твердотільних джерел білого світла на основі світлодіодів та лазерних діодів. Суттєве підвищення ефективності конверторів можливо при застосуванні евтектичних композитів на основі оксиду алюмінію та алюмо-ітрієвого гранату, активованого іонами церію ( $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$ ). На відміну від традиційних монофазних матеріалів подібні гетерофазні системи характеризуються поєднанням властивостей складових компонентів, а також появою принципово нових якостей, які напряму впливають з їх композитної

структури – це висока термічна стабільність, механічна міцність, ефективні процеси випромінювальної релаксації електронних збуджень, а також покращена здатність для збирання світла. Тому визначення умов отримання та закономірностей формування структурно-фазового стану евтектичних композитів  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$ , їх механічних, оптичних, люмінесцентних властивостей, а також світлотехнічних параметрів конвертерів на їх основі, чому присвячена дисертаційна робота Ю.В. СІРИКА, є вкрай актуальною задачею сучасного матеріалознавства.

### **Наукова новизна дисертаційного дослідження**

Дисертаційна робота визначається високим науковим рівнем, значущістю основних сформульованих положень, використанням сучасної технологічної та дослідницької бази. На мою думку, варто відзначити наступні найбільш вагомні здобутки дисертаційного дослідження:

- 1) Встановлено оптимальні температурно-кінетичні умови отримання методом горизонтальної спрямованої кристалізації в відновній атмосфері ( $\text{Ar}+(\text{CO}, \text{H}_2)$ ) евтектичного композиту  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}$ , що допований іонами церію ( $\text{Ce}^{3+}$ ) в діапазоні концентрації до 4 ат. % церію у вихідній сировині, з керованою мікроструктурою типу «китайське письмо» (евтектична відстань  $\lambda_{eut}$  від  $8,6\pm 0,8$  до  $72,4\pm 0,6$  мкм) без виділення додаткових церійвмісних фаз.
- 2) Визначено вплив умов відпалу на механічні властивості евтектичного композиту  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$ . Встановлено, що найбільш ефективним є відпал у вакуумі при  $T=1700^\circ\text{C}$ , який призводить до збільшення коефіцієнта тріщиностійкості на 72% та мікротвердості на 40% порівняно з невідпаленими зразками. Одержано евтектичний композит (0,25 ат.% Ce в шихті) з мікротвердістю  $16,7\pm 0,3$  ГПа, та тріщиностійкістю  $3,37\pm 0,2$  МПа $\cdot\text{м}^{1/2}$ .
- 3) Показано, що евтектичний композит  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$  є оптичним середовищем, яке характеризується лінійною залежністю оптичного пропускання від  $\lambda_{eut}$  (в діапазоні довжин хвиль 400-1100 нм) та індикатрисою пружного розсіяння світла, що наближена до ламбертовського розподілу. Встановлено, що завдяки мікроструктурі евтектики абсолютна ефективність фотоконвертерів на її основі  $\sim 2$  рази більше в порівнянні з монокристалічним  $\text{YAG}:\text{Ce}$  конвертером.

## **Практичне значення отриманих результатів**

На мою думку, найвищу практичну цінність представляють наступні положення:

- 1) Оптимізовано умови отримання методом ГСК в відновному вуглецевмісному середовищі евтектичних композитів  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$ , перспективних матеріалів для використання в якості люмінесцентних фотоконвертерів LED/LD джерел білого світла.
- 2) Встановлені в роботі закономірності та розроблені методи інтегровані в програму підготовки докторів філософії в Інституті монокристалів НАН України за освітньо-науковою програмою «Монокристалічні, керамічні та наноструктурні матеріали», навчальна дисципліна «Наукові основи технологій вирощування монокристалів».

## **Оцінка змісту дисертації, її завершеності**

Дисертаційна робота містить 213 сторінок машинописного тексту та складається з анотацій, вступу, п'яти розділів, загальних висновків та 3 додатків. Матеріали дисертаційної роботи викладено у 17 наукових роботах, серед яких 6 статей у провідних наукових журналах. 3 статті опубліковано в журналах з квантилем Q1-Q2, що індексуються базами даних WoS та Scopus.

**У першому розділі** здійснено аналіз наукової літератури щодо сучасних люмінесцентних матеріалів для конвертерів потужного лазерного та світлодіодного випромінювання. Сформульовано вимоги, які висуваються до матеріалів фотоконвертерів та їх властивостей. Обґрунтовано доцільність досліджень гетерофазних евтектичних композитів  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$  в якості люмінесцентного матеріалу для створення фотоконвертерів для LED/LD джерел білого світла. Визначено метод горизонтальної спрямованої кристалізації (ГСК) в якості перспективного засобу вирощування евтектичних композитів.

**У другому розділі** наведено експериментальні методики, обладнання та матеріали, які були використані для отримання евтектичних композитів  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}$ . Наведено методи аналізу та дослідження структурно-фазового стану евтектичних композитів, а також їх механічних, оптичних, люмінесцентних властивостей та світлотехнічних характеристик. Розділ

містить опис умов отримання шихти та зливків евтектик  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}$ , процесу виготовлення експериментальних зразків.

**У третьому розділі** дисертаційної роботи розглянуто вплив умов кристалізації на формування фазового складу та морфології евтектик  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$  з різним вмістом іонів церію. Встановлено, що при кристалізації розплаву складу 81,5 мол.%  $\text{Al}_2\text{O}_3$  та 18,5 мол. %  $\text{Y}_2\text{O}_3$  при перегріві розплаву не вище  $100^\circ\text{C}$  від евтектичної температури можливо одержання евтектики  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}$  з мікроструктурою типу “китайське письмо”. Отримано залежність евтектичного інтервалу ( $\lambda_{\text{eut}}$ ) від швидкості кристалізації для недопованої евтектики  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}$ , отриманої методом ГСК, яка відхиляється від теоретичної моделі Джексона-Ханта. Встановлено, що параметри мікроструктури евтектики  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}^{3+}$  немонотонно залежать від швидкості кристалізації.

**У четвертому розділі** дисертації проаналізовано фізико-механічні властивості евтектичних композитів  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$ . Встановлено, що зменшення евтектичного інтервалу в 4 рази супроводжується покращенням мікротвердості композитів на 16% та тріщиностійкості на 13%. Показано, що підвищення концентрації іонів церію до 0,5 ат.% в  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$  призводить до суттєвого зниження значень мікротвердості на 27 % та коефіцієнта тріщиностійкості на майже 42%. В той час високотемпературний відпал у вакуумі призводить до значного покращення механічних властивостей евтектичних композитів за рахунок покращення якості поверхні внаслідок рекристалізації дефектного приповерхневого шару, релаксації залишкових напружень та зменшення концентрації точкових дефектів.

**У п'ятому розділі** представлено результати теоретичних та експериментальних досліджень оптичних і люмінесцентних властивостей евтектик  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$  та світлотехнічних характеристик фотоконвертерів на їх основі для LED/LD джерел білого світла. Отримана теоретична оцінка абсолютної ефективності конвертера на базі евтектичного композита  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$  та кристалу  $\text{YAG}:\text{Ce}$ . Встановлено вплив мікроструктури, вмісту церію, орієнтації зразка та відпалу на оптичні та люмінесцентні характеристики евтектичних композитів  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$ , визначено світлотехнічні властивості фотоконвертерів на їх основі.

### Дискусійні положення та зауваження до дисертації:

- 1) Стаття здобувача **Yu. Siryk**, O. Vovk, L. Gryn, A. Romanenko, V. Baranov, S. Nizhankovskyi. Eutectic Composites in  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3$  System Solidified by Horizontal Directed Crystallization Method. Acta Physica Polonica A. 2022; 141(4): 268. <http://doi.org/10.12693/APhysPolA.141.268> Q4 є статтею за матеріалами конференції (Proceedings of the International Conference on Oxide Materials for Electronic Engineering (OMEE 2021)), тобто належить до робіт, які додатково відображають наукові результати дисертації.
- 2) Представлення фазової діаграми системи  $\text{Y}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$  на рис. 2.1, на мою думку, є не досить вдалим, тому що пунктирна лінія, що відповідає лінії ліквідусу метастабільної евтектики, повинна закінчуватися в точці плавлення сполуки  $\text{AlYO}_3$ .
- 3) Вплив технологічних умов вирощування на особливості мікроструктури евтектичних композитів майже не описано в літературному огляді, що ускладнює аналіз отриманих здобувачем даних, викладених у Розділі 3.
- 4) На рис. 3.15 наведено мікроструктуру евтектики  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG:Ce}$ , одержаної з різною концентрацією Ce і різними швидкостями витягування. На мою думку, вплив кожного із чинників на мікроструктуру треба розглядати окремо.
- 5) З тексту дисертації незрозуміло, яке значення має коефіцієнт розподілу іонів церію між рідкою та твердою фазою евтектичного композиту  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG:Ce}$ ?
- 6) На рис. 3.21 відсутні експериментальні точки.
- 7) Який фізичний механізм підвищення концентрації мікропор в присутності Ce-вмісної домішкової фази в евтектиці  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG:Ce}$ ?
- 8) Наведіть механізм, за яким утворюються рівноважна евтектика  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}$  в процесі термообробки метастабільної евтектики  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAP}$ .
- 9) В таблиці 4.3 мікротвердість досліджуваних матеріалів помилково вказана в МПа.
- 10) На мою думку, здобувачеві варто було б порівняти фізико-механічні властивості евтектичних композитів  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}$ , отриманих методом кристалізації рівноважної та метастабільної евтектики.

- 11) Для аналізу впливу відпалу на оптичні властивості евтектичних композитів бажано було б дослідити диференційні спектри оптичного поглинання.
- 12) Наявність смуг люмінесценції іонів  $\text{Ce}^{3+}$  в фазі  $\text{Al}_2\text{O}_3$  є дискусійним питанням і потребує додаткових досліджень (рис. 5.13).
- 13) Дисертація написана гарною науковою українською мовою, але в тексті зустрічаються граматичні помилки: «Рентген-фазовий аналіз було проведе...» (с. 29); «...складає 150 сторінку» (с.30); « $\text{Y}_2\text{Al}_5\text{O}_{12}$  (YAG)...» (с. 57); «відпоаідно» (с. 62); «ФЕУ Hamamatsu R2658P» (с. 67); «Встановленоя, що...» (с. 87); «В роботі [119] було отримано високощільну наноу...» (с. 112); «Встановлено, що зменшення розміру характерного евтектичного інтервалу з  $3,9 \pm 0,9$  мкм до  $11,4 \pm 0,9$  мкм...» (с. 123); «5.3.1 Розподіл люмінесцентних характеристик в вздовж злитку» (с. 144).

Вказані недоліки не зменшують загального позитивного враження від дисертаційної роботи та не знижують її наукову та практичну значимість.

#### **Відсутність порушення академічної доброчесності**

За результатами аналізу дисертації та публікацій здобувача Юрія Вікторовича СІРИКА порушень академічної доброчесності не виявлено.

#### **Загальний висновок**

Дисертація Юрія Вікторовича СІРИКА «Отримання люмінесцентних евтектичних композитів  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$  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 завершеною науковою роботою. Вона виконана на високому рівні з використанням сучасних методів дослідження та містить великій і надійний об'єм експериментальних результатів.

З огляду оригінальність отриманих результатів, науковий рівень проведених досліджень, актуальність теми, наукову та практичну цінність дисертаційної роботи вважаю, що дисертація «Отримання люмінесцентних евтектичних композитів  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$  методом ГСК для LED/LD джерел білого світла» 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 Юрій Вікторович СІРИК заслуговує присудження йому ступеня доктора філософії за спеціальністю 132 «Матеріалознавство».

**Рецензент:**

доктор технічних наук, професор,  
заступник директора з наукової роботи  
Інституту монокристалів НАН України



Роман ЯВЕЦЬКИЙ

07

2025 р.