

УТВЕРЖДАЮ

И.о. декана геологического
факультета МГУ, чл.-корр РАН,
И.Н. Еремин



г. Москва

2022г.

Отзыв официального оппонента

на диссертационную работу Томаса Виктора Габриэлевича «Свободный рост несингулярных поверхностей кристаллов из растворов», представленную диссертационному совету Д 003.067.02 на соискание ученой степени доктора геолого-минералогических наук по специальности 25.00.05 – минералогия, кристаллография.

Диссертационная работа В.Г. Томаса направлена на решение фундаментальной проблемы – построения теории роста несингулярных поверхностей кристаллов. Основной задачей представленной работы являлось построение физической модели процессов роста таких поверхностей, количественно описывающей их реальный рост. В работе излагаются результаты оригинальных экспериментальных исследований по сформулированной теме. Из их сопоставления с результатами других исследователей выделяются на качественном уровне явления, сопровождающие рост несингулярных поверхностей, которые обязательно должны объясняться построенной соискателем моделью. Из органического совмещения экспериментальных исследований с численным моделированием изучаемых процессов автору удалось очертить рамки количественного соответствия модели реальному росту таких поверхностей. В завершение работы демонстрируется применимость предлагаемой физической модели к описанию других явлений, связанных с регенерацией кристаллов в растворах.

Актуальность темы. Не смотря на более чем вековую историю изучения роста несингулярных поверхностей кристаллов, его количественное описание, объясняющее весь комплекс явлений, сопровождающих эти процессы, осуществить не удалось. Особенно насущным было бы появление модели, подобной предложенной В.Г. Томасом, во второй половине XX века, когда проводились интенсивные работы по разработке крупнотоннажных методов гидротермального выращивания кристаллов кварца, в основе

которых лежит рост кристаллов на несингулярно ориентированные затравки. Однако работа в этом направлении не потеряла своей актуальности и в настоящее время, поскольку, во-первых, до сегодняшнего дня физической модели роста несингулярных поверхностей кристаллов так и не было построено. Во-вторых, и поныне продолжается разработка методов выращивания кристалловых соединений, использующих в своей процедуре несингулярно ориентированные затравки (например, кристаллы различных разновидностей берилла и корунда).

Научная новизна исследований и полученных результатов. На основе исследования эволюции несингулярных поверхностей кристаллов, растущих из низкотемпературных водных (алюмокалиевые квасцы) и гидротермальных (берилл и корунд) растворов автором получен ряд пионерских результатов, среди которых следует отдельно отметить:

- фиксацию случаев наличия сингулярных максимумов на несингулярных участках диаграмм скоростей роста кристалла и объяснение причин их появления;
- демонстрацию того, что известное правило Шафрановского, описывающее эволюцию наборов простых форм, участвующих в построении фронта роста несингулярной поверхности, является не общим правилом, а лишь описанием одного из распространенных случаев;
- демонстрацию взаимосвязи шероховатости несингулярно ориентированных затравочных пластин к моменту начала роста и пути эволюции их поверхности в процессе роста.

Предложена физическая модель роста несингулярных поверхностей кристаллов, впервые на качественном уровне объясняющая все наблюдаемые явления эволюции таких объектов. Путем гармоничного сочетания численного моделирования и реальных ростовых экспериментов автору удалось показать количественное согласие модели и процессов реального роста для случаев близкой геометрии выступов на модельной поверхности и поверхности реальных затравок.

Практическая значимость работы базируется на приведенных в работе результатах фундаментальных исследований. По мнению Оппонента очень интересными и, как следует из работы, уже нашедшими практическое применение результатами следует признать:

- выращивание кристаллов на затравки, ориентированные параллельно наиболее быстрорастущим граням, никогда не проявляющимся на регенерирующих шарах, но участвующих в ограничении субиндивидов на фронте роста несингулярной поверхности; использование таких затравок позволяет выращивать материал, пригодный к

изготовлению из него оптических элементов; для кристаллов гидротермально выращенного берилла и корунда приведены конкретные ориентировки затравок;

- демонстрация возможности сращивания в один монокристалл нескольких затравок, что решает проблему исходной затравки надлежащего размера.

Общая характеристика работы. В целом, диссертация В.Г. Томаса представляет собой труд объемом 300 страниц, состоящий из Введения, шести глав и Заключения. Она содержит 17 таблиц, 107 рисунков и список литературы из 259 наименований. Работа написана хорошим языком; Оппонент рекомендует автору в дальнейшем опубликовать несколько видоизмененную диссертацию в виде монографии.

Во **Введении** автор обосновывает актуальность работы, ее цели и задачи, рассматривает научную и практическую значимость полученных результатов. Здесь же формулируются четыре защищаемых положения, которые последовательно доказываются в главах 3 – 5. Из Введения следует, что работа достаточно апробирована на разноплановых отечественных и международных конференциях. Основные результаты работы опубликованы в 23 статьях (в том числе, 18 из них опубликованы в ведущих международных и отечественных высокорейтинговых журналах), что значительно превосходит требования, предъявляемые к докторским диссертациям. Во всех перечисленных работах вклад автора был основным. Полученный автором патент РФ подтверждает практическую значимость работы.

Глава 1 (Рост кристаллов несингулярными поверхностями: ретроспективный анализ проблемы) начинается с рассмотрения понятия поверхностной энергии кристалла и ее локальной анизотропии, поскольку именно с этим понятием связаны термины «сингулярная грань» и «несингулярная поверхность». Приводится определенная критика этим терминов, демонстрирующая их условность и, в какой-то мере, неоднозначность. В центральном параграфе главы, §1.4, проводится анализ накопленных литературных данных о росте несингулярных поверхностей, в том числе по морфологическим элементам их фронтов роста и эволюции этих элементов; природе микрограней, ограничивающих субиндивиды на фронте роста; взглядам на механизмы роста несингулярных поверхностей и внутреннее строение пирамиды их роста. Изложенные в этом параграфе данные позволили обосновать перечисленные во Введении задачи исследования. Глава 1 завершается формулировкой используемых в работе терминов и дается их пояснение.

В целом глава 1 читается на одном дыхании, литературный обзор является оригинальным и не дублирует таковой из других обзорных публикаций. Оппонент рекомендует в сокращенном виде использовать материал главы в методических пособиях по курсам, связанным с кристаллогенезисом, читаемых на геологических факультетах.

Главу 2 (Методы роста и исследований выращенных кристаллов) автор начинает с описания объектов исследования и обосновывает их выбор. Далее следует описание методик проведения экспериментов по росту кристаллов (и мониторингу скоростей их роста) из низкотемпературных водных и высокотемпературных гидротермальных растворов. Ряд методик являются оригинальными; Оппоненту особенно понравился метод мониторинга скорости роста ориентированных затравок алюмокалиевых квасцов гидростатическим взвешиванием.

Говоря о методах исследования выращенных кристаллов, следует отметить, что соискатель органично совмещает традиционные, давно разработанные, методы (например, гониометрию) с самыми современными (просвечивающая электронная микроскопия высокого разрешения, FTIR-спектроскопия, точечные химико-аналитические исследования методом ICP MS LA). По мнению Оппонента, именно разнообразие использованных методов, совмещенных с применением численного моделирования, и привело к получению весьма значимых результатов, изложенных в оппонируемой работе.

Глава 3 (Эволюция фронтов несингулярных поверхностей, растущих из растворов) начинает исследовательский блок работы. В этой главе автор намечает моменты, которые обязательно должна объяснять разрабатываемая физическая модель. В частности он показывает, что описанное многими исследователями укрупнение субиндивидов при эволюции фронтов роста несингулярных поверхностей кристаллов, растущих из водных растворов, наблюдается и при росте таких поверхностей принципиально иных условиях (гидротермальный рост), т.е. является общим явлением. Очень интересными представляются результаты, демонстрирующие зависимость пути эволюции фронтов роста от шероховатости несингулярно ориентированной затравки к моменту начала роста. Так же им показано, что общим феноменом является и изменение набора простых форм, участвующих в построении субиндивидов, причем этот набор для стационарной огранки субиндивида не зависит от пути эволюции фронта роста несингулярной поверхности.

Очень важным результатом с фундаментальной и практической точки зрения является доказанное в этой главе первое защищаемое положение, согласно которому *«грани наиболее быстрорастущих, возможных для данных ростовых условий, простых форм, не проявляющиеся в виде плоских участков на регенерирующих шарах, но фиксирующиеся в огранке субиндивидов, могут расти плоским фронтом при условии точной ориентировки протяженной затравочной пластины в положение, параллельное этим граням...»*.

В **Главе 4** рассматривается внутреннее строение пирамид роста несингулярных поверхностей и неоднородности их состава. Основная задача главы, по мнению Оппонента, заключается в выяснении причин и масштабного несоответствия скоростей продвижения фронтов роста несингулярных поверхностей, рассчитанных из измеренных скоростей роста граней простых форм, ограничивающих субиндивиды, реально измеренным в эксперименте скоростям роста кристаллов. Последнее окажется существенным для проведения численного моделирования (см. главу 5).

Автору удалось показать, что материал пирамиды роста несингулярной поверхности можно рассматривать, как параллельный сросток кристаллов, сложенный мелкими пирамидами роста микрограней, границы между которыми являются концентраторами напряжений, обусловленными некогерентной стыковкой ростовых слоев по этим границам. Такие напряжения вызывают локальное повышение внутреннего давления в области границ срастания параллельного сростка, что приводит к стабилизации эпитаксиальных вростков метастабильных фаз (корунд) и появлению локальных нарушений стехиометрии (берилл). Изложенный в главе материал в достаточной мере обосновывает второе защищаемое положение.

Отвечая на вопрос о несоответствии реальной и расчетной скоростей продвижения фронтов роста несингулярных поверхностей, автор усматривает определенную аналогию между повышающим скорость роста влиянием двойниковых границ и границ параллельных сростков. В главе 6 он вернется к этому вопросу и предложит объяснение этому.

В целом, материал главы нов и весьма интересен. Особенно хотелось бы отметить обнаруженный автором факт образования в корунде по границам секторов роста микрограней эпитаксиальных вростков метастабильного диаспора. Этот результат не только вскрывает природу ОН-центров в корунде, давно зафиксированных, но на сегодняшний день необъясненных, но и представляет возможный вариант объяснения природы воды в номинально безводных минералах. Последнее может быть интересно широкому кругу специалистов-минералогов.

Глава 5 является центральной в оппонируемой работе. В ней автор предлагает физическую модель процессов роста несингулярных поверхностей кристаллов, поясняет ее работу и убедительно демонстрирует полное качественное соответствие модели реальному росту таких поверхностей в отношении явлений, описанных в главе 3. Основные усилия автора сосредоточены на демонстрации количественного соответствия модели реальному росту для определенных значений входных параметров и очерчивании круга значений этих параметров, при которых такое соответствие наблюдается. Взяв за

объект исследования кристаллы алюмокалиевых квасцов, соискатель рассматривает 2 принципиально различных примера эволюции растущих несингулярных поверхностей – рост плоской затравки с индексами Миллера {30.30.19} и эволюции взаимоотношений «макрогрань / окружающая ее растущая несингулярная поверхность» на регенерирующем монокристаллическом шаре. Во всех случаях при близости геометрии шероховатостей на реальной поверхности затравки таковой для модельной поверхности (соприкасающиеся дуги случайно различающихся радиусов) автор демонстрирует приличное количественное описание моделью реального роста несингулярных поверхностей.

Материалы главы убедительно доказывают 3-е и 4-е защищаемые положения, первое из которых является исходным постулатом предлагаемой физической модели и принимается ввиду доказанного количественного соответствия последней реальному эксперименту, а второе – следует из анализа модельных построений. Глава читается «на одном дыхании», а ее содержание является принципиально новым и по содержанию, и по использованным подходам.

В **Главе 6** автор демонстрирует применимость подходов, использованных при построении модели роста несингулярных поверхностей, к изучению различных вопросов кристаллогенеза, связанных с регенерацией кристаллов. Предложенный механизм образования антискелетных кристаллов (§6.1) является одновременно и демонстрацией такой применимости и научным результатом, обладающим самостоятельной ценностью. Материал следующего параграфа (О сращивании двух кристаллов берилла в один монокристалл), напротив, к заявленной демонстрации применимости подходов не имеет прямого отношения, не смотря на новизну и убедительность изложенного в нем материала, его научную и практическую значимость. На месте автора Оппонент перенес бы этот параграф в конец главы 4, где он выглядел бы более уместным.

В **Заключении** автор в реферативной форме подводит итог выполненной им работы.

Вопросы и замечания.

По Главе 1. Рассматривая эволюцию фронтов роста несингулярных поверхностей и строение пирамид их роста, соискатель почти не уделит внимание работам уральской школы ростовиков (Г.В. Клещёв, А.Н. Брызгалов и др.), большой объем внимания которых уделялся особенностям гидротермального роста кристаллов кварца на несингулярно ориентированные затравки. Тем более что автор, судя по списку литературы, знаком с их работами. Почему?

По Главе 2. Методика гидротермального роста кристаллов берилла и корунда описана слишком схематично. Тем более что значительный объем подготовительных

исследований в этой области, как следует из содержания Главы, был направлен на повышение воспроизводимости гидротермальных экспериментов. Ознакомление с конкретными рекомендациями по стабилизации ростовых процессов было бы очень интересно специалистам в области гидротермального роста.

По Главе 4. Материал главы можно было бы усилить, используя анализ полей напряжений в пирамиде роста несингулярной поверхности, аналогичный подходам, использованным ленинградской школой исследователей (Ю.О. Пунин, А.Г. Штукенберг и др.). Тем более соискатель знаком с их работами. Также в этой главе нет конкретных рекомендаций по снижению свилеватости в кристаллах, выращенных на несингулярно ориентированные затравки. Их наличие существенно повысило бы практическую важность работы.

По Главе 5. Говоря о случаях количественных различий между результатами численного моделирования и реального роста, автор объясняет эти различиями геометрий выступов на модельной (соприкасающиеся дуги) и реальной (чередующиеся выступы и углубления) поверхностях. Почему автор не оцифровал шероховатость реальных поверхностей и не использовал полученные данные для построения модельной поверхности?

Из незначительных замечаний следует отметить отдельные орфографические опiski и стилистические шероховатости, которые, впрочем, не портят общего впечатления от оппонируемой работы. Так же вызывает нарекания Оппонента использование в тексте русскоязычной работы (диссертации) рисунков, содержащих подписи на английском языке (например, рис. 6.7).

Заключение Оппонента

В целом, диссертация В.Г. Томаса представляет собой законченное научное исследование. Автореферат отвечает содержанию диссертации. Результаты работы являются новыми, оригинальными, не имеют аналогов и своевременно опубликованы в ведущих отечественных и международных журналах. Тема исследования В.Г. Томаса является высоко актуальной, а научные положения и выводы – обоснованными. Научная значимость основных результатов подтверждается фактом их публикации в высокорейтинговых журналах (квартили Q1 и Q2), а практическая полезность – фактом получения патентом РФ.

Тема и содержание диссертации полностью соответствует коду специальности 25.00.05 – «минералогия, кристаллография» по геолого-минералогическим наукам. По актуальности и новизне полученных результатов, уровню их обсуждения и практической

значимости диссертация В.Г. Томаса полностью соответствует критериям, предъявляемым к докторским диссертациям, установленным в п.9 Постановления Правительства РФ № 842 (ред. от 20.03.2021) "О порядке присуждения ученых степеней", а ее автор заслуживает присуждения искомой степени доктора геолого-минералогических наук по специальности 25.00.05 – минералогия, кристаллография.

9 февраля 2022 года

Официальный оппонент:

Ведущий научный сотрудник кафедры кристаллографии и кристаллохимии геологического факультета Федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего образования «Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова»

Димитрова Ольга Владимировна

9 февраля 2022 года

Контактные данные:

тел.: 7(495)9395575, e-mail: dimitrova@list.ru

Специальность, по которой официальным оппонентом защищена диссертация:

25.00.05 – минералогия, кристаллография

Адрес места работы:

119991, Россия, Москва, Ленинские горы, ГСП - 1, Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования «Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова» геологический факультет.

Тел.: +7 (495) 939-2970; e-mail: dean@geol.msu.ru

Подпись ведущего научного сотрудника кафедры кристаллографии и кристаллохимии геологического факультета Димитровой О.В. заверяю

Зав. канцелярией



подпись, печать

М.Г.Вебер