

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

Диссертация В.Г. Томаса посвящена решению фундаментальной проблемы – разработке теории роста несингулярных поверхностей кристаллов. Работа представляет собой законченный труд, в которой последовательно излагается взгляд автора на процессы роста кристаллов несингулярными поверхностями. Основная задача рецензируемой работы состояла в создании физической модели процессов эволюции несингулярных поверхностей, количественно описывающей их реальный рост. Для решения ее автору пришлось органически совмещать самые разнообразные подходы, как традиционные для геолого-минералогической области знания (например, кристалло-морфологические исследования), так и подходы, присущие другим областям (например, численное моделирование процессов роста). По мнению оппонента, соискатель успешно справился с решением основной задачи. Более того, в завершающей части работы автор демонстрирует применимость своих построений к описанию других явлений, связанных с регенерацией кристаллов в растворах.

Актуальность темы обусловлена тем, что на протяжении длительного периода исследований в области свободного роста кристаллов из растворов основное внимание специалистов концентрировалось на росте кристаллов плоскими (сингулярными) гранями. Факты роста несингулярных поверхностей были хорошо известны, но они, как правило, оставались вне пристального внимания большинства исследователей, по-видимому, в силу относительной кратковременности существования такого рода поверхностей на растущих кристаллах. Это, вероятно, и объясняет отсутствие на сегодняшний день теории, способной не только объяснить весь комплекс явлений, сопровождающих такие процессы, но и описывать их количественно. Вместе с тем, промышленное выращивание кристаллов зачастую предполагает использование несингулярно ориентированных затравок, поэтому появление модели, предложенной В.Г. Томасом, является весьма актуальным. Еще более актуальной настоящую работу делает тот факт, что наличие такого рода теории позволило бы увязать весь комплекс явлений роста сингулярных граней и несингулярных поверхностей в некую общую картину.

Научная новизна исследований и полученных результатов. Экспериментальные исследования роста несингулярных поверхностей кристаллов из

низкотемпературных водных (алюмокалиевые квасцы) и гидротермальных (берилл и корунд) растворов позволили соискателю установить ряд принципиально новых результатов. Принципиально новой и важной является вскрытая В.Г. Томасом взаимосвязь шероховатости несингулярно ориентированных затравочных пластин к моменту начала роста и пути эволюции их поверхности в ростовом процессе. Впервые экспериментально доказан факт возможного появления на растущих несингулярных изогнутых поверхностях неких сингулярных осложнений (автор называет их «ребрами») и дано объяснение причин их появления. Предложенная соискателем физическая модель роста несингулярных поверхностей кристаллов, впервые на качественном, а во многих случаях и количественном, уровне объясняет все наблюдаемые в ходе их роста явления.

Научная новизна и высокий уровень представленных в диссертации результатов подтверждается тем фактом, что все основные результаты работы представлены в ведущих журналах из списка Scopus и Web of Science, причем 7 статей опубликованы в журналах 1-го квартиля.

Практическая значимость работы подтверждается фактом получения патента РФ. Ряд приведенных в работе результатов уже внедрены в технологические процессы выращивания кристаллов различных разновидностей берилла и корунда. Из таковых наиболее интересным следует признать выращивание кристаллов на затравки, ориентированные параллельно наиболее быстрорастущим граням, никогда не проявляющимся на регенерирующих шарах, но участвующих в формировании субиндивидов на фронте роста несингулярной поверхности. Использование таких затравок позволяет с экономически приемлемыми скоростями выращивать материал, пригодный к изготовлению из него оптических элементов. Не менее интересным результатом является демонстрация возможности сращивания в один монокристалл нескольких затравок, что решает проблему исходной затравки надлежащего размера.

Общая характеристика работы. Диссертационная работа В.Г. Томаса представляет собой труд объемом 300 страниц, состоящий из Введения, шести глав и Заключения. Она содержит 17 таблиц, 107 рисунков и список из 259 цитируемых литературных источников. По мнению оппонента, рецензируемую работу, после соответствующей переработки, следует опубликовать в виде монографии.

Во **Введении** обосновывается актуальность темы, формулируются цели и задачи исследования, отражены научная новизна и практическая значимость полученных результатов. Здесь же излагаются четыре защищаемых положения, которые последовательно доказываются в главах 3 – 5. Из Введения следует, что работа достаточно апробирована на представительных 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). Во всех перечисленных работах вклад автора был основным.

Глава 1 (Рост кристаллов несингулярными поверхностями: ретроспективный анализ проблемы) начинается с формулировки ряда используемых в работе терминов и дается их пояснение. В §1.3 проводится анализ топологии полярных диаграмм поверхностной энергии, из которого следует, что для реально растущих кристаллов такие диаграммы для различных моментов роста претерпевают изменения. Основным параграфом главы, §1.4, посвящен анализу существующих представлений о росте несингулярных поверхностей. На базе этого анализа формулируются и обосновываются задачи собственного исследования.

В целом глава 1 выходит за рамки традиционного обзора литературы. Обсуждая литературные данные, автор сразу же проводит анализ рассматриваемых вопросов, получая, фактически, новые результаты и делая из них выводы. В связи с этим, материалы главы представляют не только описание суммы известных знаний, но и оригинальные результаты автора.

В **Главе 2** (Методы роста и исследований выращенных кристаллов) обосновывается выбор объектов исследования и дается их характеристика, приводится информация о методах выращивания кристаллов, мониторинга положения их фронтов роста в различные моменты времени, характеризуются методы исследования выращенных кристаллов. Описание методики численного моделирования вынесено в главу 5.

Характеризуя всю совокупность используемых соискателем методов, следует отметить их разнообразие и корректность применения. Ряд методик являются оригинальными. оппоненту особенно понравился метод фиксации скоростей роста быстрорастущих направлений кристаллов с использованием выпукло-вогнутых затравок. Факт ограничения «отрицательных» кристаллов быстрорастущими гранями давно известен, однако для измерения скоростей роста таких граней он ранее не использовался.

Глава 3 (Эволюция фронтов несингулярных поверхностей, растущих из растворов) посвящена проверке существующих данных об эволюции фронтов роста несингулярных поверхностей (рассмотренных в главе 1) на общность и выделение моментов, которые должны будут учитываться при разработке автором физической модели. Демонстрируя, что исходно плоский фронт несингулярно ориентированной затравки становится шероховатым к моменту начала ее роста в результате протравливания поверхности в первые моменты процесса, В.Г. Томас исследует влияние параметров шероховатости такой поверхности на пути эволюции фронтов роста. На примере

гидротермально растущего берилла автор показывает, что путь эволюции фронтов роста несингулярно ориентированной затравки является функцией параметров шероховатости ее поверхности к моменту начала роста. Однако набор граничных форм для стационарной огранки субиндивида определяется исключительно природой кристалла, ориентировкой поверхности и условиями роста, не завися от исходной шероховатости затравки. Данный факт является совершенно новым.

На примере гидротермально растущих кристаллов берилла и корунда соискатель впервые показывает, что грани наиболее быстрорастущих 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. Полученный результат является очень важным с точки зрения промышленного выращивания кристаллов.

Очень важным представляется результат фиксации на растущих несингулярных поверхностях корунда сингулярных осложнений («ребер») в положении быстрорастущих граней. На кончике пера этот факт был предсказан ранее (описано в главе 1 диссертации), но его доказательство получено впервые.

В **Главе 4** рассматривается внутреннее строение пирамид роста несингулярных поверхностей и неоднородности их состава. Основная задача главы состоит в выяснении причин несоответствия рассчитанных скоростей несингулярных поверхностей реально измеренным в эксперименте скоростям роста кристаллов.

Соискатель показывает, 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. Возникающие при этом локальное повышение внутреннего давления в области границ срастания параллельного сростка обуславливает появление эпитаксиальных вростков метастабильных фаз в корунде и возникновение локальных нарушений стехиометрии в кристаллах берилла.

Автор усматривает аналогию между границами параллельных сростков в пирамиде роста несингулярной поверхности и двойниковыми границами, объясняя тем самым повышение скоростей роста граней простых форм, реализованных на субиндивидах, в сравнении со скоростями роста этих же простых форм на протяженных затравках. Однако масштаб этих различий не велик, что позволяет использовать

экспериментально измеренные на протяженных затравках скорости роста, как первое приближение для последующего численного моделирования.

Помимо решения основной задачи автором получены новые и интересные сопутствующие результаты. Так, например, обнаружение в гидротермально выращенных корундах ростков диаспора, локализованных на границах секторов роста микрограней, позволяет вскрыть природу давно зафиксированных в кристаллах корунда ОН-центров.

В основной, **5-й Главе** соискатель, основываясь на материале предыдущих глав, предлагает физическую модель процессов роста несингулярных поверхностей кристаллов и объясняет ее работу. Предложенная модель является полностью оригинальной. Входными параметрами, оказывающими влияние на эволюцию модельной несингулярной поверхности, являются скорости роста граней различных простых форм и предельные размеры (r_{\min} , r_{\max}) радиусов конкретных выступов на поверхности.

Большая часть этой главы посвящена проверке количественного соответствия предлагаемой физической модели реальному росту таких поверхностей в растворах. На примере кристаллов алюмокалиевых квасцов, соискатель рассматривает 2 различных процесса эволюции растущих несингулярных поверхностей: а) рост плоской затравки с индексами Миллера {30.30.19} и б) эволюции взаимоотношений «макрогрань – окружающая ее растущая несингулярная поверхность» на регенерирующем монокристаллическом шаре. Для обоих рассмотренных процессов наблюдается хорошее количественное соответствие модели реальному росту в случае близости геометрии шероховатостей на реальной поверхности затравки таковой и поверхности, построенной для численного эксперимента.

Глава 6, демонстрирует применимость подходов, развитых при построении физической модели роста несингулярных поверхностей, к изучению различных вопросов кристаллогенеза, связанных с регенерацией кристаллов. На базе рассмотренных ранее построений соискатель предлагает оригинальный механизм образования антискелетных кристаллов и проводит дополнительный анализ внутреннего строения пирамид роста несингулярных поверхностей, дополняя материал главы 4.

В **Заключении** автор подводит краткий итог выполненной им работы.

Оценивая работу в целом, следует подчеркнуть, что все защищаемые положения диссертации полностью доказаны автором. Особо следует отметить корректность выполненных экспериментов, расчетов и их анализа. Работа написана хорошим языком, а иллюстративный материал отличается четкостью и наглядностью.

Результаты работы вносят большой фундаментальный вклад в области роста кристаллов, рассматриваемой как часть кристаллографии. Изучая под новым углом зрения

давно и основательно исследованную проблему роста несингулярных поверхностей кристаллов, автор принципиально разрешил имевшиеся противоречия между теорией и экспериментальными наблюдениями, создав законченную физическую модель данного процесса. Результаты работы достойны того, чтобы быть включенными в учебники.

Помимо этого, как уже было отмечено выше, работа имеет и очевидную практическую значимость, поскольку развитые модельные представления позволили определить условия выращивания кристаллов на поверхностях, параллельных наиболее быстрорастущим граням, а также демонстрация возможности получения длинных затравок путем сращивания нескольких более коротких.

Имеющиеся замечания касаются используемой (а также неиспользуемой) терминологии.

1) Автор использует термин «анизотропия энергии присоединения частиц» для обозначения различного энергетического состояния частиц, занимающих разные положения на поверхности F-границы. С учетом того, что слово «анизотропия» происходит от греческого *anisos* — неравный и *trpos* — направление, нельзя признать такой термин удачным, так как в этом вопросе речь о направлениях вообще не идет, а лишь о различных структурных конфигурациях в размещении частиц.

2) На стр. 33 написано: «Рассмотрим кубический кристалл ... размером в одну кубическую ячейку. Он может быть огранен гранями двух простых форм $\{001\}$ и $\{011\}$ ». Трудно представить себе кубическую ячейку, ограненную гранями двух простых форм.

3) Выражение «искривленная грань» не очень хорошо вяжется с понятием грани.

4) На стр. 42: «... дефекты упаковки типа краевых, винтовых и частичных дислокаций». Дефекты упаковки и дислокации — это разные дефекты различной размерности: дефекты упаковки — двумерные, дислокации — линейные дефекты. Действительно, частичные дислокации привязаны к дефектам упаковки, но нельзя же их отождествлять! Или же ввиду имелось что-то другое?

5) Наконец, в главе 1 автор объясняет, почему ему не нравятся термины «сингулярная» грань и «несингулярная» поверхность и вводит вместо них термины «гладкая грань» и «регенерационная поверхность». Однако суть понятий от этого не меняется, что подтверждается тем, что новыми терминами автор почти не пользуется, а традиционные («сингулярная» и «несингулярная») звучат повсеместно. Спрашивается, зачем создавать путаницу?

Однако высказанные замечания ни в коей мере не снижают ценности работы. Диссертационная работа В. Г. Томаса на тему «Свободный рост несингулярных

поверхностей кристаллов из растворов» является законченной научно-квалификационной работой, вносит большой фундаментальный вклад в области кристаллографии и роста кристаллов, имеет очевидную новизну и практическую значимость, соответствует паспорту специальности 25.00.05 «Минералогия, кристаллография» и отвечает критериям и требованиям раздела II положения о присуждении ученых степеней, утвержденного постановлением Правительства Российской Федерации от 24 сентября 2013 года № 842, а ее автор, Томас Виктор Габриэлевич, заслуживает присуждения ему ученой степени доктора геолого-минералогических наук по специальности 25.00.05 «Минералогия, кристаллография».

Содержание автореферата соответствуют диссертации.

Главный научный сотрудник Института кристаллографии им. А. В. Шубникова Федерального государственного учреждения «Федеральный научно-исследовательский центр «Кристаллография и фотоника» Российской академии наук», д.ф.-м.н.

А.Э. Волошин

«14» февраля 2022 г.

119333, Россия, Москва, Ленинский проспект, дом 59
тел. (499)135-64-02
e-mail: voloshin@ns.crys.ras.ru

Подпись главного научного сотрудника ФГУ «ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН» А.Э. Волошина удостоверяю.

Ученый секретарь

ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН



Л. А. Дадинова