

## ОТЗЫВ

Официального оппонента д.ф.-м.н. Егранова Александра Васильевича на диссертационную работу Дресвянского Владимира Петровича «Дефектообразование при фемтосекундном лазерном возбуждении и свойства индуцированных центров окраски в диэлектрических кристаллах», представленную к защите на соискание ученой степени доктора физико-математических наук по специальности 01.04.07 – Физика конденсированного состояния

**Актуальность темы.** Диссертация посвящена решению важной фундаментальной задачи в области физики - взаимодействие интенсивного оптического излучения с веществом. Процессы образование радиационных дефектов при воздействии ВУФ и ионизирующих излучений изучены достаточно хорошо. С созданием фемтосекундных лазеров с помощью которых также можно было создавать дефекты возникла необходимость в изучении процессов, происходящих при новом виде электронного возбуждения. На основе полученных данных теоретических и экспериментальных исследований, на примере кристаллов фторида лития, автором сформирована физическая модель процессов фемтосекундного лазерного дефектообразования в диэлектрических кристаллах, включающая самофокусировку и филаментацию возбуждающего оптического излучения, многофотонно-туннельную ионизацию вещества с генерацией электронно-дырочных пар и экситонов, распад экситонов на первичные френкелевские дефекты, их перезарядку, миграцию и агрегацию, с учетом азимутальной анизотропии взаимодействия интенсивного лазерного излучения с кубическими кристаллами. Представленная в диссертации совокупность научных результатов вносит существенный вклад в развитие нелинейной фотофизики конденсированных сред. Все предложенные автором методы и подходы обоснованы и аргументированы.

**Целью диссертационной работы** являлось изучение процессов лазерного дефектообразования в широкозонных диэлектрических кристаллах в условиях самофокусировки и филаментации возбуждающего фемтосекундного излучения и исследование физических свойств одиночных люминесцирующих дефектов и их ансамблей, индуцированных в объеме кристаллической среды.

### **Структура и основное содержание работы.**

Диссертация состоит из введения, пяти глав, заключения, благодарности, двух приложений, списка литературы, включающего 366 наименований, содержит 346 страниц текста, 118 рисунка и 13 таблиц.

По теме диссертации опубликовано 48 научных публикаций в международных и российских журналах, индексируемых в международных базах Web of science, Scopus или включенных в перечень ВАК, один патент на полезную модель и один патент на изобретение.

**В первой главе** представлен литературный обзор, посвященный рассмотрению вопросов и проблем, определяющих совокупность задач диссертационной работы, а именно: радиационному образованию центров окраски; нелинейным фотофизическим процессам в широкозонных диэлектриках; лазерно-индуцированному первичному дефектообразованию в щелочно-галоидных кристаллах и пространственному распределению центров окраски, индуцированных в кристаллах фторида лития интенсивным фемтосекундным лазерным излучением.

**Во второй главе** изложены результаты теоретических и экспериментальных исследований процессов лазерного дефектообразования в диэлектрических кристаллах. В этой главе сформулировано **третье защищаемое положение**: «Изменение соотношения интенсивностей полос поглощения простых и агрегатных центров окраски в пользу последних регистрируемое в спектрах поглощения кристаллов с различным временем облучения, свидетельствует о существенном влиянии локального нагрева кристалла в местах прохождения световых филаментов на процессы агрегации и коагуляции дефектов за счет увеличения скорости диффузии кинетических частиц и может служить обоснованием методики контроля температуры в процессе лазерного возбуждения.»

С этим утверждением автора трудно не согласиться. Однако имеются некоторые замечания:

- при описании рис.2.25 (кривая 1) автор пишет, что в данном случае в ходе облучения процессов агрегации еще нет, а на рисунке отчетливо наблюдается полоса  $F_2$  центров.

**Третья глава** посвящена изучению механизмов взаимодействия интенсивного фемтосекундного лазерного излучения с веществом по характеристикам дефектообразования, реализующегося в диэлектрических средах с учетом поляризации возбуждающего светового поля.

В этой части сформулировано **второе защищаемое положение**: «Азимутальная анизотропия взаимодействия интенсивного лазерного излучения с кристаллическими средами кубической сингонии сказывается на эффективности образования практически всех типов простых и агрегатных электронных центров окраски через два разнонаправленных механизма. Во-первых, через управление величиной эффективной нелинейной восприимчивости третьего порядка, определяемой компонентами ее тензора, и контролирующей самофокусировку и величину ее критической интенсивности. Во-вторых, через управление эффективной массой действующих носителей, участвующих в процессах высоконелинейной межзонной фотоионизации, в образовании анионных экситонов, распадающихся затем на френкелевские пары, которые в ходе последующих процессов миграции, перезарядки и агрегации формируют стабильные люминесцирующие квантовые системы.»

В этой же главе сформулировано и **первое защищаемое положение**: Эффективность образования простых и агрегатных центров окраски в кубических кристаллах фторида лития при нормальном падении лазерного луча на плоскость грани куба периодически зависит от угла ориентации электрического вектора по отношению к направлению  $[100]$  с периодом  $\pi/2$  и имеет максимумы при углах, равных  $n\pi/4$ , где  $n = 1, 3, 5, 7$ .» Первое и второе защищаемые положения связаны между собой.

- Процессы образование радиационных дефектов при воздействии ВУФ и ионизирующих излучений изучены достаточно хорошо. Установлен экситонный механизм образования радиационных дефектов и модели многих центров окраски. С созданием фемтосекундных лазеров с помощью которых также можно было создавать дефекты возникла необходимость в изучении процессов, происходящих при новом виде электронного возбуждения. Работа эта была необходима, и автор проделал ее. Диссертант установил, что во многом те процессы, которые происходят при действии ионизирующих излучений имеют место и при действии фемтосекундных импульсов света. Установил и некоторые особенности при таком возбуждении, которые сформулированы в первых трех защищаемых положениях, в частности, связанные с анизотропией образования дефектов.

**Четвертая глава** посвящена изучению свойств одиночных радиационных дефектов и их ансамблей, которые могут быть созданы при облучении диэлектрических кристаллов интенсивным лазерным излучением или другими видами радиации.

В этой главе, а также в пятой главе сформулировано **четвертое защищаемое положение**, которое формулируется следующим образом: «Регистрируемые квантовые траектории одиночных центров окраски, индуцированных в объеме кубического кристалла, несут в себе информацию о структуре, природе и динамике квантовой системы. Характеристики (соотношения интенсивностей) квантовых траекторий служат обоснованием обобщенного метода лазерной сканирующей конфокальной люминесцентной микроскопии одиночных квантовых систем, находящихся в кристаллической матрице, основанного на анализе соотношения интенсивностей поляризованных квантовых траекторий.»

**В пятой главе** на основе совокупности полученных экспериментальных результатов сформулированы динамические модели поведения одиночных  $F_2$  и  $F_3^+$  центров окраски и представлено обоснование универсального метода определения типов и мультипольности квантовых систем в диэлектрических кристаллах, основанного на анализе поляризационных квантовых траекторий интенсивности фотолюминесценции одиночных центров окраски.

- Обнаруженное резкое и полное исчезновение флуоресценции на временной кривой, которое автор приводит в качестве доказательства, что наблюдается именно одиночный центр окраски, выглядит убедительным.

Однако имеются некоторые замечания и вопросы по этому защищаемому положению:

- исследовались только два типа центров, оба из которых имеют триплетное состояние, хотя этот эффект обнаружен довольно давно. Естественно было бы расширить исследования на центры, как собственные, так и примесные, не имеющие триплетных состояний. Возможно и в других кристаллах. Это только бы усилило доказательную базу этого эффекта.

- анализ зависимости интенсивности люминесценции от времени (траектория интенсивности) для одиночных органических молекул, имеющих триплетное состояние, проводился во многих работах (например, Basché, Th, S. Kummer, and Ch Bräuchle. "Direct spectroscopic observation of quantum jumps of a single molecule." *Nature* 373.6510 (1995): 132-134). Из такого анализа определялась вероятность перехода в триплетное состояние и время жизни в триплетном состоянии и в самом простом случае использовали только величину интервала и количество таких интервалов, как для on, так и off случаев и никакого анализа уравнений для этого не требовалось. Предварительно полученные таким образом результаты далее можно было использовать в уравнениях (4.1). И даже в случае сильной флуктуации свечения, когда требовался учет интенсивности, процедура не сильно усложнялась (например, García-Parajó, M. F., Veerman, J. A., Bouwhuis, R., Vallée, R., & van Hulst, N. F. (2001). Optical probing of single fluorescent molecules and proteins *ChemPhysChem*, 2(6), 347-360). Автор пошел более сложным путем и в результате не смог оценить из экспериментальных данных вероятность перехода в триплетное состояние.

- сравнивая изображения свечения одиночных  $F_2$  центров (Рис.4.3) с аналогичными изображениями свечения органических молекул, имеющие в своем составе десятки, а может быть сотни атомов (например, García-Parajó, M. F., Veerman, J. A., Bouwhuis, R., Vallée, R., & van Hulst, N. F. (2001). Optical probing of single fluorescent molecules and proteins. *ChemPhysChem*, 2(6), 347-360), видим что размеры светящегося пятна сопоставимы в обоих случаях, и светящееся пятно значительно превосходит размеры  $F_2$

центров, и может быть и размеры органических молекул. Чем определяется размер светящегося пятна одиночных молекул?

- Для обоснования выбора времени жизни триплетного состояния (10 сек) автор ссылается на известные данные для  $F_2$  центров в щелочно-галогидных кристаллах, при этом приводит статью, в которой время жизни триплетного состояния  $F_2$  центров в кристалле LiF составляло 72 мсек (хотя не совсем понятно, что они измеряли). В щелочно-галогидных кристаллах такое большое время жизни для этих центров характерно при низких температурах, при комнатной температуре оно значительно короче.

**Достоверность и обоснованность** полученных результатов диссертационного исследования подтверждена совокупностью применяемых в работе апробированных физических методов, выбором адекватных теоретических моделей, систематическим характером экспериментальных исследований с применением современного научного оборудования и поверенных средств измерений, воспроизводимостью полученных результатов и анализом погрешностей измерений.

Основные результаты диссертационной работы были получены и прошли экспертную оценку в рамках реализации ряда проектов.

### **Замечания общего характера по диссертационной работе.**

- неоднократно и в диссертации, и в автореферате встречается выражение: «электрон-фононным и электронно-колебательным однородным уширением спектральных линий». В чем разница?

- в автореферате можно обнаружить много небрежностей, особенно это касается подписей к рисункам – к примеру рис.2 в автореферате и рис.2.25 в диссертации три кривые без описания, в то время как в статье было нормальное описание трех кривых, на рис 8 в автореферате три вида спектров и шесть фотографий образцов и объяснений нет, ни в подписи к рисунку, ни в тексте автореферата. Если они одинаковы или просто очень похожи, то надо было и привести один спектр.

- не обоснованным выглядит стремление автора ввести новую терминологию – например: квантовые траектории интенсивности люминесценции, что просто означает зависимость интенсивности свечения от времени (по размеру ничуть не больше). И если второе понятно без объяснений, то первое надо постоянно объяснять и напоминать. В зарубежной литературе используется для этого термин траектория свечения (по видимому, тоже не совсем удачный), автор ввел дополнение к нему в виде квантовые. Какой смысл несет слово квантовые?

- автор использует много паразитных слов не несущих никакой информации – например: постоянно использует выражение «записанные спектры свечения» вместо обычно используемого в литературе спектры свечения или «Рисунок 2.9 – Картина распределения интенсивности фотолюминесценции» - вместо просто распределение интенсивности фотолюминесценции или Рисунок 2.21 «отдельных временных компонентов» – что означает слово отдельных и т.д. И в основном это касается описания экспериментальных результатов. В тоже время обзор, который занимает тоже значительную часть диссертации, написан ясно, понятно и хорошо.

- Вопросы, рассмотренные в диссертации, далеко не ограничиваются защищаемыми положениями. В частности, автор рассматривал процессы, происходящие при термолюминесценции кристаллов, как дозиметрических, так и беспримесных выращенных на воздухе. Автором предложен механизм термостимулированного высвечивания запасенной энергии. Основным свечением в спектре термостимулированной люминесценции является, как считает автор, свечение  $F_2$  центра окраски. По мнению диссертанта в этих процессах участвуют и другие центры окраски.

Первые попытки связать пики термолюминесценции фтористого лития с центрами окраски возникли в самом начале исследований ТСЛ в дозиметрических кристаллах LiF. Позднее от этого пришлось отказаться. Но время от времени к этому возвращаются, в частности в тех работах, на которые автор ссылается. Утверждения автора о природе термолюминесценции можно считать еще одной попыткой связать ТСЛ с центрами окраски.

Перечисленные замечания не снижают ценность работы и не затрагивают основного содержания диссертации, а, скорее, указывают возможные направления дальнейшего развития этих исследований.

### **Заключение.**

Диссертационная работа Дресвянского Владимира Петровича выполнена на высоком научном уровне и представляет собой завершённую научно-квалификационную работу, в которой содержится решение задачи, имеющей существенное значение для физики конденсированных сред и физического материаловедения. Представленная в диссертации совокупность научных результатов вносит существенный вклад в развитие нелинейной фотофизики конденсированных сред.

Автореферат диссертации и опубликованные работы автора отражают научную новизну и содержание работы.

Диссертационная работа удовлетворяет всем требованиям, изложенным в пп. 9-11, 13, 14 «Положения о присуждении ученых степеней», утвержденном Постановлением Правительства РФ от 24.09.2013 г. № 842 и соответствует формуле специальности 01.04.07 -Физика конденсированного состояния и областям исследований № 1, 4-6, сформулированным в паспорте этой специальности.

Считаю, что диссертационная работа «Дефектообразование при фемтосекундном лазерном возбуждении и свойства индуцированных центров окраски в диэлектрических кристаллах» по актуальности, научному уровню, объему решаемых задач и завершённости исследований отвечает всем критериям Положения о присуждении ученых степеней, предъявляемым к докторским диссертациям, а ее автор, Дресвянский Владимир Петрович, заслуживает присуждения ученой степени доктора физико-математических наук по специальности 01.04.07 «физика конденсированного состояния».

Официальный оппонент

Егранов Александр Васильевич

доктор физико- математических наук (01.04.07 – Физика конденсированного состояния)

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки

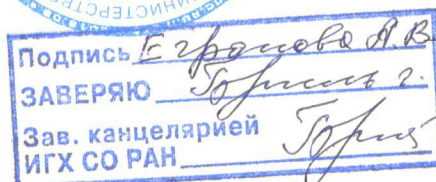
Институт геохимии им. А.П.Виноградова

Сибирского отделения Российской академии наук (ИГХ СО РАН)

664033 г. Иркутск, ул. Фаворского, д.1 "А" +7(3952)426600

Ведущий научный сотрудник

e-mail: [alegra@igc.irk.ru](mailto:alegra@igc.irk.ru)



Егранов А.В.

31.03.2022.