

# Облікова картка дисертації

## I. Загальні відомості

Державний обліковий номер: 0823U101394

Особливі позначки: відкрита

Дата реєстрації: 21-11-2023

Статус: Захищена

Реквізити наказу МОН / наказу закладу:



## II. Відомості про здобувача

Власне Прізвище Ім'я По-батькові:

1. Кофанов Денис Олегович

2. Denys O. Kofanov

Кваліфікація:

Ідентифікатор ORCID ID: Не застосовується

Вид дисертації: доктор філософії

Аспірантура/Докторантура: так

Шифр наукової спеціальності: 132

Назва наукової спеціальності: Матеріалознавство

Галузь / галузі знань: механічна інженерія

Освітньо-наукова програма зі спеціальності: Матеріалознавство

Дата захисту: 10-01-2024

Спеціальність за освітою: фізика та астрономія

Місце роботи здобувача: Інститут сцинтиляційних матеріалів Національної академії наук України

Код за ЄДРПОУ: 23756522

Місцезнаходження: проспект Науки, буд. 60, Харків, Харківський р-н., 61072, Україна

Форма власності: Державна

Сфера управління: Національна академія наук України

Ідентифікатор ROR:

### **III. Відомості про організацію, де відбувся захист**

**Шифр спеціалізованої вченої ради (разової спеціалізованої вченої ради):** ДФ 3230

**Повне найменування юридичної особи:** Інститут сцинтиляційних матеріалів Національної академії наук України

**Код за ЄДРПОУ:** 23756522

**Місцезнаходження:** проспект Науки, буд. 60, Харків, Харківський р-н., 61072, Україна

**Форма власності:** Державна

**Сфера управління:** Національна академія наук України

**Ідентифікатор ROR:**

### **IV. Відомості про підприємство, установу, організацію, в якій було виконано дисертацію**

**Повне найменування юридичної особи:** Інститут сцинтиляційних матеріалів Національної академії наук України

**Код за ЄДРПОУ:** 23756522

**Місцезнаходження:** проспект Науки, буд. 60, Харків, Харківський р-н., 61072, Україна

**Форма власності:** Державна

**Сфера управління:** Національна академія наук України

**Ідентифікатор ROR:**

### **V. Відомості про дисертацію**

**Мова дисертації:** Українська

**Коди тематичних рубрик:** 81.09.03

**Тема дисертації:**

1. Отримання сцинтиляційних кристалів рідкісноземельних гранатів із розплаву у відновлювальному та інертному середовищах
2. Obtaining crystals of rare-earth garnets from melt in reducing and inert environments

**Реферат:**

1. Кофанов Д.О. Отримання сцинтиляційних кристалів рідкісноземельних гранатів із розплаву у відновлювальному та інертному середовищах. – Кваліфікаційна наукова праця на правах рукопису. Дисертація на здобуття наукового ступеня доктора філософії за спеціальністю 102 «Матеріалознавство». – Інститут сцинтиляційних матеріалів НАН України, Харків, 2023. Дисертація присвячена розробці методів отримання та характеристики кристалів змішаних гранатів вирощених з розплаву у відновлювальному та інертному середовищах для наступного покоління гранулярних детекторів на прискорювачах частинок. Розроблений метод отримання довгих волокон YAG:Ce з покращеною довжиною поглинання, вирощених методом мікро витягування у інертній атмосфері, а також кристалів твердих розчинів LuхY3-хAl5O12 із поліпшеними характеристиками методом Чохральського, вирощених у відновлювальній атмосфері, з

використанням дешевих вольфрамових тиглів. На сьогоднішній день актуальною проблемою залишається пошук нових типів детекторів для наступного покоління експериментів з фізики високих енергій. Одним із перспективних варіантів такого детектору є гранулярний детектор, який складається з великої кількості монокристалічних волокон, сигнали з яких реєструються окремо. Волокна в такому детекторі поділяються на 2 типи – активовані сцинтиляційні волокна для реєстрації сцинтиляційного світла та неактивовані волокна для реєстрації Черенківського випромінювання. У той час, як для неактивованих волокон достатньо бути прозорим у області чутливості фотодетектору та спектру випромінювання Черенківського світла, для активованих сцинтиляційних волокон вимоги є набагато жорсткішими: вони повинні мати довжину більше 20 см, достатньо великий світловий вихід ( $> 15000$  фотонів/MeV), довжину поглинання (міра оптичної прозорості волокна) більше 20 см. Перші прототипи гранулярних детекторів на основі волокон  $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ , вирощених методом мікро витягування, та волокон  $\text{Gd}_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$  вирізаних з кристалічної булі, вирощеної методом Чохральського, були протестовані, але не показали бажаних результатів, тож пошук оптимального сцинтиляційного матеріалу, що стане основою нового типу детекторів для фізики високих енергій, є актуальним завданням. На основі аналізу публікацій в розділі 1 встановлено, що сцинтиляційні кристали, такі, як германат вісмуту (BGO), вольфрамат свинцю (PWO) вже довгий час використовуються у детекторах на прискорювачах частинок, зокрема в Європейському Центрі Ядерних Досліджень (CERN). Розвиток детекторів для нової генерації часопролітних томографів (Time-Of-Flight PET), а також збільшення енергії частинок на прискорювачах спонукають до розробки нових сцинтиляційних матеріалів із контрольованими параметрами. Одним із напрямків сцинтиляційного матеріалознавства є керування енергетичною структурою кристалів задля запобігання утворення пасток носіїв заряду та контролю їх транспорту до центрів люмінесценції (власних чи домішкових). В рамках цієї концепції були розроблені такі кристали, як  $\text{Gd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}:\text{Ce}$  зі світловим виходом 50000-60000 фотонів/MeV,  $\text{Y}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}:\text{Ce}$  із часом загасання 20 нс,  $(\text{Lu},\text{Y})_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ , та інші матеріали з покращеними властивостями. Зокрема, для розробки матеріалу, який би відповідав необхідним вимогам експериментів фізики високих енергій, варто звернути увагу на кристали на основі  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  та  $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ , а також, на твердий розчин з них –  $(\text{Lu},\text{Y})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ , враховуючи можливість вирощування їх декількома методами, а саме методом мікро витягування для отримання кристалів одразу у вигляді волокон, чи методом Чохральського з використанням дешевих W тиглів. Ці роботи доцільно було провести на базі Інституту сцинтиляційних матеріалів НАН України у співробітництві з Інститутом світла та матерії, Ліон, Франція та CERN. В другому розділі докладно описані експериментальні процедури підготовки сировини, особливості конструкцій ростових вузлів, методів контролю за вирощуванням, післяростової обробки кристалів для обидвох методів вирощування – мікро витягування та Чохральського. Також у розділі описані методи виготовлення експериментальних зразків і особливості методів їх характеристизації, а саме вимірювання сцинтиляційних та оптичних властивостей. В розділі 3 описуються методики вирощування монокристалічних волокон на основі YAG та GAGG методом мікро витягування та їх вплив на оптичні та сцинтиляційні властивості кристалів, а також на їх дефектну структуру. Першим кроком був вибір оптимальної сировини для вирощування волокон YAG. Була вирощена серія волокон із використанням спечених порошків  $\text{Y}_2\text{O}_3$  та  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , змішаних у стехіометричному співвідношенні. Отримані волокна мали велику кількість структурних дефектів, що призводило до їх розтріскування. Причиною цього є той факт, що методи, такі, як EFG та мікро витягування, де кристалізація відбувається з тонкого меніску розплаву і немає відтиснення домішок до основного об'єму розплава, є більш чутливими до чистоти сировини та зсуву складу розплаву від стехіометрії в бік одного з компонентів.

2. The dissertation is dedicated to the development of fabrication methods and characterizing crystals of mixed garnets grown from melt in reducing and inert environments for the next generation of granular particle detectors. A method for obtaining long YAG:Ce fibers with improved attenuation length grown by the  $\mu$ -PD method in an inert atmosphere has been developed, as well as crystals of solid solutions  $\text{Lu}_x\text{Y}_{3-x}\text{Al}_5\text{O}_{12}$  with improved characteristics were grown by the Czochralski method in a reducing atmosphere using cheap tungsten crucibles. To date, the search for new types of detectors for the next generation of experiments in high-energy physics remains a relevant problem. One promising option for such a detector is a granular detector, which

consists of a large number of fibers, signals from which are recorded separately. Fibers in such a detector are divided into 2 types - activated scintillating fibers for registering scintillation light, and non-activated fibers for registering Cherenkov radiation. While non-activated fibers only need to be transparent in the sensitivity range of the photodetector and the Cherenkov light spectrum, the requirements for activated scintillating fibers are much more stringent: they must have a length of more than 20 cm, a sufficiently large light output ( $> 15000$  photons/MeV), and an attenuation length (a measure of the optical transparency of the fiber) of over 20 cm. The first prototypes of granular detectors based on  $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  fibers grown by the  $\mu$ -PD method and  $\text{Gd}_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$  fibers cut from boules grown by the Czochralski method were tested but did not yield the desired results. Therefore, the search for the optimal scintillating material that will serve as the basis for a new type of high-energy physics detectors was continued. In Chapter 1, the analysis of publications suggests that scintillating crystals such as bismuth germanate (BGO) and lead tungstate (PWO) have been used for a long time in particle accelerator detectors, including at CERN. The development of tomography detectors and the increase in particle collision frequency at accelerators lead to the need for new scintillating materials with controlled parameters. This task is addressed by controlling the energy structure of crystals to prevent the formation of charge carrier traps and to control their transport to luminescent centers (intrinsic or dopant). Within this concept, crystals such as  $\text{Gd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}:\text{Ce}$  with a light output of 50000-60000 photons/MeV,  $\text{Y}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}:\text{Ce}$  with a decay time of 20 ns,  $(\text{Lu},\text{Y})_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ , and other materials with improved properties were developed. It was concluded that to develop a material that would meet the necessary requirements of high-energy physics experiments, attention should be focused on crystals based on  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  and  $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ , and accordingly, on a solid solution of them -  $(\text{Lu},\text{Y})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ , taking into account the possibility of growing them by several methods, namely the  $\mu$ -PD method for obtaining fibers, or the Czochralski method using inexpensive W crucibles. These works were carried out at the Institute for Scintillation Materials of the National Academy of Sciences of Ukraine in collaboration with the Institute of Light and Matter, CNRS, Lyon, France, and CERN. In the second chapter, detailed descriptions of the experimental procedures for raw material preparation, features of growth chamber construction, growth monitoring methods, and post-growth processing of crystals for both  $\mu$ -PD and Czochralski methods are provided. The chapter also outlines the methods of fabricating experimental samples and the characterization procedures of their scintillation and optical properties. In Chapter 3, the methodologies for growing single-crystal YAG and GAGG fibers by the  $\mu$ -PD method and their impact on the optical and scintillation properties of the crystals, as well as their defect structure, are described in detail. The first step was the selection of optimal raw materials for growing YAG fibers. A series of fibers was grown using sintered  $\text{Y}_2\text{O}_3$  and  $\text{Al}_2\text{O}_3$  powders mixed in a stoichiometric ratio. The obtained fibers had a significant number of structural defects, leading to their cracking. This was attributed to the feature of EFG and  $\mu$ -PD methods where crystallization occurs from a thin melt meniscus and there is no segregation of impurities into the main melt volume. Such methods are more sensitive to the purity of the raw material and deviation of the melt composition from stoichiometry towards one of the components. In subsequent experiments, fragments of YAG and YAG:Ce crystals grown by the Czochralski method at the Institute of Scintillation Materials for the National Academy of Sciences of Ukraine were used as raw materials. The fibers grown in this way contained less defects, but their attenuation length was below the required threshold of 20 cm.

**Державний реєстраційний номер ДіР:**

**Пріоритетний напрям розвитку науки і техніки:** Нові речовини і матеріали

**Стратегічний пріоритетний напрям інноваційної діяльності:** Освоєння нових технологій виробництва матеріалів, їх оброблення і з'єднання, створення індустрії наноматеріалів та нанотехнологій

**Підсумки дослідження:** Нове вирішення актуального наукового завдання

**Публікації:**

- O. Sidletskiy, K. Lebbou, D. Kofanov, V. Kononets, Ia. Gerasymov, R. Bouaita, V. Jary, R. Kucerkova, M. Nikl, A. Polesel, K. Pauwels, E. Auffray. Progress in fabrication of long transparent YAG:Ce and YAG:Ce,Mg single crystalline fibers for HEP applications. CrystEngComm, 2019, 21, 1728 – 1733
- O. Sidletskiy, K. Lebbou, D. Kofanov. Micro-pulling-down growth of YAG- and LuAG-based garnet fibres: advances and bottlenecks. CrystEngComm, 2021,23, 2633–2643
- D. Kofanov, I. Gerasymov, O. Sidletskiy, et al. LuAG:Ce and LuYAG:Ce scintillation crystals grown under reducing conditions from W crucibles. Optical Materials, 2022, 134(10),113176

**Наукова (науково-технічна) продукція:** матеріали; методи, теорії, гіпотези

**Соціально-економічна спрямованість:** створення принципово нової продукції (матеріалів, технологій тощо) для забезпечення експортного потенціалу та заміщенню імпорту

**Охоронні документи на ОПВ:**

Винаходи, корисні моделі, промислові зразки

Д. Кофанов, С. Ткаченко, Я. Герасимов, О. Сідлецький. Патент на корисну модель №145280 «Спосіб вирощування монокристалів» від 25.11.2020; Д. Кофанов, С. Ткаченко, Д. Курцев, О. Сідлецький Патент на корисну модель №145281 «Пристрій для затравлення під час вирощування монокристалів» від 25.11.2020

**Впровадження результатів дисертації:** Планується до впровадження

**Зв'язок з науковими темами:** 0119U100791, 0122U200403

## **VI. Відомості про наукового керівника/керівників (консультанта)**

**Власне Прізвище Ім'я По-батькові:**

1. Сідлецький Олег Цезаревич
2. Oleg Sidletskiy

**Кваліфікація:** д. т. н., професор, 05.02.01

**Ідентифікатор ORCID ID:** Не застосовується

**Додаткова інформація:**

**Повне найменування юридичної особи:** Інститут сцинтиляційних матеріалів Національної академії наук України

**Код за ЄДРПОУ:** 23756522

**Місцезнаходження:** проспект Науки, буд. 60, Харків, Харківський р-н., 61072, Україна

**Форма власності:** Державна

**Сфера управління:** Національна академія наук України

**Ідентифікатор ROR:**

## **VII. Відомості про офіційних опонентів та рецензентів**

**Офіційні опоненти**

**Власне Прізвище Ім'я По-батькові:**

1. Пріхна Тетяна Олексіївна

2. Tetiana Prikhna

**Кваліфікація:** д.т.н., професор, академік НАН України, 05.02.01

**Ідентифікатор ORCID ID:** 0000-0002-1621-0681

**Додаткова інформація:**

**Повне найменування юридичної особи:** Інститут надтвердих матеріалів ім. В. М. Бакуля  
Національної академії наук України

**Код за ЄДРПОУ:** 05417377

**Місцезнаходження:** вул. Автозаводська, буд. 2, Київ, 04074, Україна

**Форма власності:** Державна

**Сфера управління:** Національна академія наук України

**Ідентифікатор ROR:**

**Власне Прізвище Ім'я По-батькові:**

1. Крижановська Олександра Сергіївна

2. Oleksandra Kryzhanovska

**Кваліфікація:** к. т. н., 05.02.01

**Ідентифікатор ORCID ID:** 0009-0001-1792-9444

**Додаткова інформація:**

**Повне найменування юридичної особи:** Інститут монокристалів Національної академії наук  
України

**Код за ЄДРПОУ:** 00210217

**Місцезнаходження:** проспект Науки, буд. 60, Харків, Харківський р-н., 61072, Україна

**Форма власності:** Державна

**Сфера управління:** Національна академія наук України

**Ідентифікатор ROR:**

**Рецензенти**

**Власне Прізвище Ім'я По-батькові:**

1. Чергинець Віктор Леонідович

2. Victor L. Cherginets

**Кваліфікація:** д.х.н., професор, 02.00.04

**Ідентифікатор ORCID ID:** 0000-0002-2308-8979

**Додаткова інформація:**

**Повне найменування юридичної особи:** Інститут сцинтиляційних матеріалів Національної академії  
наук України

**Код за ЄДРПОУ:** 23756522

**Місцезнаходження:** проспект Науки, буд. 60, Харків, Харківський р-н., 61072, Україна

**Форма власності:** Державна

**Сфера управління:** Національна академія наук України

**Ідентифікатор ROR:**

**Власне Прізвище Ім'я По-батькові:**

1. Тупіцина Ірина Аркадіївна

2. Irina A. Tupitsyna

**Кваліфікація:** к. т. н., с.д., 05.02.01

**Ідентифікатор ORCID ID:** 0000-0002-6763-180

**Додаткова інформація:**

**Повне найменування юридичної особи:** Інститут сцинтиляційних матеріалів Національної академії наук України

**Код за ЄДРПОУ:** 23756522

**Місцезнаходження:** проспект Науки, буд. 60, Харків, Харківський р-н., 61072, Україна

**Форма власності:** Державна

**Сфера управління:** Національна академія наук України

**Ідентифікатор ROR:**

## VIII. Заключні відомості

**Власне Прізвище Ім'я По-батькові  
голови ради**

Тарасов Володимир Олексійович

**Власне Прізвище Ім'я По-батькові  
головуючого на засіданні**

Тарасов Володимир Олексійович

**Відповідальний за підготовку  
облікових документів**

Сорокін Олександр Васильович

**Реєстратор**

УкрІНТЕІ

**Керівник відділу УкрІНТЕІ, що є  
відповідальним за реєстрацію наукової  
діяльності**



Юрченко Тетяна Анатоліївна