

Голові разової спеціалізованої вченої ради
Інституту сцинтиляційних матеріалів НАН
України, доктору технічних наук, професору, в.о.
провідного наукового співробітника відділу
технології вирощування монокристалів Інституту
сцинтиляційних матеріалів НАН України
Сідлецькому Олегу Цезаревичу

ВІДГУК

Офіційного опонента – члена-кореспондента НАН України, заступника
директора з наукової роботи Інституту проблем матеріалознавства ім. І.М.
Францевича НАН України, доктора технічних наук Згалат-Лозинського Остапа
Броніславовича на дисертаційну роботу Сібілєва Миколи Львовича «Отримання
комбінованих сцинтиляційних елементів методом 3D-друку», подану до захисту
у разову спеціалізовану вчену раду Інституту сцинтиляційних матеріалів
Національної академії наук України на здобуття ступеня доктора філософії за
спеціальністю 132 Матеріалознавство в галузі знань 13 Механічна інженерія.

Актуальність обраної теми дисертації.

Одним із найбільш перспективних напрямів сучасного сцинтиляційного
матеріалознавства є створення комбінованих сцинтиляційних елементів, у яких
поєднуються матеріали з різними фізичними властивостями та функціональним
призначенням. Такі конструкції дозволяють ефективно реалізувати переваги
окремих компонентів, забезпечуючи високий світловий вихід, ефективний збір
сцинтиляційного випромінювання, покращене просторове розділення сигналів
та можливість селективної реєстрації різних видів іонізуючого випромінювання.
Саме тому комбіновані сцинтиляційні детектори широко застосовуються у
сучасних експериментах фізики високих енергій, медицині, системах
радіаційного моніторингу, промисловій дефектоскопії, комплексах забезпечення
радіаційної безпеки та інших високотехнологічних галузях.

Водночас традиційні технології виготовлення сцинтиляційних детекторів
характеризуються високою трудомісткістю, значною кількістю послідовних
технологічних операцій та необхідністю механічного складання великої
кількості окремих елементів. Такі процеси потребують спеціалізованого
обладнання та значних витрат часу. Усе це обумовлює необхідність пошуку
принципово нових технологічних підходів до виготовлення сцинтиляційних
елементів, здатних забезпечити спрощення виробничого процесу без погіршення
їх функціональних характеристик.

Останніми роками розвиток адитивних технологій відкрив нові можливості для виготовлення виробів складної геометрії без застосування традиційних багатостадійних процесів механічної обробки. Особливий інтерес у цьому напрямі становить технологія FDM (Fused Deposition Modeling), яка відзначається відносною простотою реалізації, високою технологічністю, доступністю обладнання та можливістю використання широкого спектра термопластичних матеріалів. Метод FDM 3D-друку вже зарекомендував себе придатним для виготовлення полімерних сцинтиляторів. Однак, він залишається недостатньо дослідженим в сфері створення комбінованих сцинтиляційних елементів, оскільки потребує вирішення комплексу взаємопов'язаних матеріалознавчих і технологічних проблем, пов'язаних із забезпеченням рівномірного розподілу функціональних наповнювачів, збереженням сцинтиляційних властивостей композицій, мінімізацією внутрішніх дефектів і пористості, стабільністю процесу друку та ін. Це визначає високу наукову актуальність виконаного дисертаційного дослідження.

Дисертаційна робота Сібілева Миколи Львовича спрямована на вирішення важливої науково-прикладної задачі – отримання комбінованих сцинтиляційних елементів методом FDM 3D-друку на основі спеціально створених матеріалів різного функціонального призначення. Комплексний характер дослідження охоплює всі основні етапи технологічного процесу: від вибору полімерних матриць і функціональних наповнювачів до створення композиційних філаментів, оптимізації параметрів друку, виготовлення експериментальних зразків та дослідження їх структурних, оптичних і сцинтиляційних властивостей. Такий підхід дозволив автору не лише запропонувати нові матеріалознавчі рішення, а й довести можливість практичного використання адитивних технологій для виготовлення сучасних сцинтиляційних детекторів складної конструкції.

Дисертаційна робота є актуальною як з наукової, так і з практичної точки зору, оскільки в ній запропоновано новий економічно ефективний підхід до створення комбінованих сцинтиляційних елементів, що базується на використанні спеціально розроблених композиційних та металевих філаментів і можливостей FDM-технології для формування багатокомпонентних виробів із заданими функціональними властивостями.

Актуальність дисертації підтверджується також тим, що виконані дослідження проводилися у межах наукових програм Інституту сцинтиляційних матеріалів НАН України та міжнародних проєктів, спрямованих на розроблення новітніх сцинтиляційних матеріалів і детекторних систем для сучасних експериментальних установок.

Обґрунтованість сформульованих у дисертації наукових положень забезпечується комплексним використанням сучасних методів експериментальних досліджень, фізико-хімічного аналізу, математичного моделювання та статистичної обробки експериментальних даних. Автор використовує сучасне технологічне обладнання для виготовлення композиційних філаментів, FDM 3D-друку та дослідження властивостей створених матеріалів, що забезпечує належний рівень достовірності отриманих результатів.

Загальна характеристика роботи та отриманих у ній результатів

Кваліфікаційна наукова робота Сібілева Миколи Львовича має логічно вибудовану структуру. Послідовність викладення матеріалу свідчить про системний підхід автора до вирішення поставленої наукової задачі та забезпечує цілісне сприйняття отриманих результатів.

Дисертація складається із вступу, п'яти розділів, висновків та списку використаних джерел літератури. Загальний обсяг роботи складає 191 сторінка, з них 141 сторінка основного тексту (вступ, розділи дисертації та висновки). Список використаних джерел літератури містить 217 найменувань. Дисертація містить 15 таблиць, 47 рисунків і 3 додатки. Результати досліджень викладені грамотно з точки зору термінології і доступно для сприйняття.

У першому розділі дисертації виконано аналіз сучасного стану сцинтиляційного матеріалознавства та практичних аспектів використання методів 3D-друку. Автором узагальнено літературні дані щодо властивостей сцинтиляційних матеріалів, конструкцій сучасних детекторів і можливостей використання FDM 3D-друку для їх виготовлення. На основі критичного аналізу наукових джерел обґрунтовано вибір напряму досліджень, який обумовлює мету та основні завдання дисертаційної роботи.

Другий розділ присвячено технологіям створення матеріалів, розробленню методик вимірювань та досліджень властивостей матеріалів та друківаних виробів, опису використаного експериментального обладнання. Автором обґрунтовано технологічні заходи отримання композиційних філаментів, наведено методики визначення механічних, структурних, оптичних і сцинтиляційних характеристик матеріалів, що забезпечило достовірність і відтворюваність отриманих експериментальних результатів.

У третьому розділі досліджено закономірності формування композиційних сцинтиляційних матеріалів для FDM 3D-друку. Встановлено вплив складу композицій, концентрації та дисперсності сцинтиляційних наповнювачів, а також параметрів друку на структурні, оптичні та сцинтиляційні характеристики виготовлених виробів. На підставі отриманих результатів визначено оптимальні склади композиційних матеріалів для виготовлення сцинтиляційних елементів різного призначення.

У четвертому розділі проведено дослідження композиційних матеріалів для створення комбінованих сцинтиляційних детекторів на основі сцинтиляційних, світловідбиваючих та абсорбційних матеріалів. Представлено та реалізовано метод сумісного друку металевими та полімерними філаментами. Визначено фізико-технічні характеристики надрукованих елементів та підтверджено можливість використання FDM 3D-друку для виготовлення комбінованих детекторних систем.

У п'ятому розділі дисертації досліджено технологічні аспекти створення сцинтиляційних елементів для реєстрації теплових нейтронів та проведено порівняльний аналіз традиційної технології їх виготовлення з методом FDM 3D-друку. Автором визначено оптимальні співвідношення сцинтиляційного компонента й конвертора та підтверджено їх ефективність під час реєстрації теплових нейтронів. Значну увагу приділено дослідженню процесів формування багатошарових детекторів методом FDM 3D-друку, зокрема впливу теплофізичних параметрів друку на якість міжшарового сплавлення та структурну однорідність виробів, для чого розроблено відповідну математичну модель теплообміну.

Висновки дисертаційної роботи базуються на великому обсязі експериментального матеріалу, узгоджуються між собою та не суперечать сучасним уявленням про процеси формування композиційних полімерних матеріалів. Достовірність результатів підтверджується їх апробацією на міжнародних наукових конференціях, публікаціями у високореєтингових фахових виданнях та отриманими охоронними документами на об'єкти інтелектуальної власності.

Значимість дослідження для науки

Наукова новизна дисертаційної роботи є достатньо високою та полягає у комплексному вирішенні актуальної науково-технічної задачі створення комбінованих сцинтиляційних елементів із використанням адитивних технологій.

До наукових результатів, вперше отриманих автором особисто, відносяться:

1. Виявлено закономірності впливу на сцинтиляційні параметри 3D-друкованих зразків: гранулометричного складу та концентрації сцинтиляційного наповнювача, типу термопластичного сполучного середовища, а також товщини зразків. Відпрацьовано методи визначення оптимального складу сцинтиляційних філаментів на основі розроблених композиційних матеріалів з ZnSe:Al, GOS:Pr, GAGG:Ce, CsI:Tl і ZnS:Ag в якості сцинтиляційного наповнювача та PS і PMMA в якості термопластичного сполучного середовища. Це дозволило методом FDM 3D-друку створювати сцинтилятори для реєстрації рентгенівського, α - та β -випромінювання із відносними світловими виходами до 72 %, 94 % та 98 % відповідно по відношенню до монокристалу, а також плівки для рентгенівської візуалізації з просторовою розділовою здатністю до 3,35 пар ліній на мм.

2. Досліджено вплив складу металевих сплавів на основі Bi, Pb, Sn та Cd на процес FDM 3D-друку та властивості абсорберів гетерогенних детекторів. Показано, що легкоплавкий евтектичний сплав Bi–Pb–Sn (52 %, 32 %, 16 %) дозволяє друкувати абсорбційні шари сумісно з полімерними та композиційними матеріалами на основі PS в єдиному технологічному циклі завдяки температурі плавлення сплаву (98 °C) нижчій за температуру склування PS. Абсорбційні властивості надрукованих шарів забезпечуються високою густиною сплаву ($\rho = 9,7 \text{ г/см}^3$) та радіаційною довжиною ($X_0 = 0,63 \text{ см}$).

3. Встановлено залежність ефективності реєстрації теплових нейтронів від складу розробленого сцинтиляційного матеріалу ZnS:Ag/карборан, який виготовлено методом осадження конвертору нейтронів на гранули люмінофору з розчину. Показано, що при вмісті 14 мас.% карборану досягається максимум ефективності реєстрації в окремому шарі, що складає 49 %.

4. Визначено закономірності зв'язку між теплофізичними характеристиками матеріалів, режимами друку та функціональними і геометричними властивостями надрукованих багатошарових комбінованих сцинтиляційних елементів. На прикладі пари матеріалів (композиційний матеріал ZnS:Ag/B₂O₃ та PS) відпрацьовано метод визначення оптимального режиму 3D-друку. Встановлено єдиний параметр, який характеризує сукупність теплофізичних показників друку та обумовлює властивості надрукованих елементів – це час протягом якого температура шару, що друкується, перевищує температуру склування PS.

Практичне значення отриманих результатів

1. Запропоновано та реалізовано використання FDM 3D-друку для створення комбінованих сцинтиляційних елементів у єдиному технологічному циклі з використанням матеріалів різного функціонального призначення (сцинтиляційні, світлопровідні, світловідбиваючі та абсорбційні) і різної природи (термопластичні полімери, композиційні матеріали, металеві сплави).

2. В ході роботи розроблено філаменти для використання у створенні сцинтиляційних елементів методом FDM 3D друку, наступного складу:

- композиційні матеріали на основі гранул неорганічних сцинтиляторів (CsI:Tl, GAGG:Ce, GOS:Pr, ZnSe:Al, ZnS:Ag), диспергованих в матриці термопластичних полімерів (PS, PMMA) для друку детекторів α -, β - та рентгенівського випромінювання;

- композиційний матеріал на основі порошку сцинтилятору з конвертором (ZnS:Ag/B₂O₃), диспергованого в матрицю PS, для друку детекторів реєстрації теплових нейтронів;

- композиційний матеріал на основі порошку вольфраму, диспергованого в матрицю термопластичного полімеру (TPU) з високими показниками ρ та Z_{eff} для друку абсорбційних шарів гетерогенних детекторів;

- сплав металів (Bi–Pb–Sn) з високими показниками ρ та Z_{eff} , та температурою плавлення нижчою за температуру склування PS, для друку абсорбційних шарів гетерогенних детекторів.

3. Показано, що сцинтилятори, надруковані розробленими композиційними філаментами, забезпечують сцинтиляційні параметри співставні з детекторами, створеними традиційними методами:

- світловий вихід при реєстрації рентгенівського випромінювання - 72 % відносно монокристалічних сцинтиляторів;

- світловий вихід при реєстрації α -випромінювання – 94 % відносно монокристалу;

- світловий вихід при реєстрації β -випромінювання – 98 % відносно монокристалу;

- просторова роздільна здатність тонкошарових плівок рентгенівської візуалізації – до 3,35 пар ліній на мм, що складає до 87 % відносно відомих композиційних зразків.

Метод є економічно доцільним завдяки практично безвідходному процесу та використанню у виробництві залишків виготовлення детекторів з монокристалів, чи взагалі порошкоподібних матеріалів (наприклад, отриманих методом твердофазного синтезу чи сплавлення без стадії вирощування монокристалу).

4. На основі нового сцинтиляційного матеріалу ZnS:Ag/карборан створено сцинтиляційні елементи для реєстрації теплових нейтронів, які продемонстрували ефективність реєстрації теплових нейтронів на рівні 85 %, що перевищує відомі аналоги. Методом FDM 3D друку створено багат шарові сцинтиляційні елементи на основі ZnS:Ag/B₂O₃ для реєстрації теплових нейтронів. Виготовлені елементи мають ефективність реєстрації до 68 %, і не поступаються відомим аналогам.

5. Розроблено технологічні підходи, які можуть бути використані для 3D-друку різними матеріалами в єдиному циклі конструкційно складних сцинтиляторів, включаючи тонкі плівки, пошарові структури, у тому числі з інтегрованими абсорберами та світловодами. Використання FDM 3D друку для виготовлення комбінованих сцинтиляційних детекторів дозволяє підвищити ефективність виробництва завдяки автоматизації, швидкості та уникненню трудомістких процесів, притаманних традиційним методам створення детекторів.

За результатами розробок отримано патент України на корисну модель «Сцинтиляційний модуль гетерогенного детектору, отриманого 3D-друком» №158289 від 16.01.2025 та патент України на винахід «Сцинтиляційний елемент для реєстрації теплових нейтронів» № 130763 від 06.05.2026. Зареєстрована технологія синтезу ZnS:Ag (з додаванням конвертерів та без), державний реєстраційний номер: 0624U000112.

Результати досліджень можуть бути застосовані для виробництва прототипів та дрібносерійних партій детекторів у ФВЕ та фундаментальних дослідженнях, ядерній енергетиці та радіаційній безпеці, медицині та біофізиці, промисловості та неруйнівному контролю, системах радіаційного моніторингу та безпеки, тощо. Використання методів 3D друку дає можливість організації економічно ефективного виробництва комбінованих сцинтиляторів.

Основні положення дисертаційної роботи достатньою мірою апробовано на міжнародних і всеукраїнських наукових конференціях та відображено у наукових публікаціях автора. Результати досліджень опубліковано у фахових виданнях України та міжнародних наукових журналах, що індексуються у провідних наукометричних базах даних. Крім того, окремі технічні рішення захищено патентами України, що підтверджує їх новизну та практичну цінність.

Аналіз наведених у дисертації публікацій свідчить, що вони повною мірою відображають зміст виконаних досліджень, основні наукові положення, висновки та практичні результати роботи. Обсяг і рівень апробації результатів відповідають вимогам, що ставляться до дисертацій на здобуття ступеня доктора філософії.

Дискусійні положення та зауваження до дисертації

1. Економічна ефективність декларується неодноразово (с. 10, 24, 29 — «Метод є економічно доцільним завдяки практично безвідходному процесу...»), але жодних кількісних показників (собівартість, продуктивність друку, порівняння витрат) не наведено. Усі твердження про економічну доцільність мають виключно якісний характер.

2. Ефективність реєстрації теплових нейтронів традиційного детектора (85 %, конвертор — карборан, п. 5.1.1) порівнюється з ефективністю надрукованого детектора (68 %, конвертор — B_2O_3 , п. 5.2–5.4) як ілюстрація можливостей FDM-технології. Але детектори відрізняються не лише методом виготовлення, а й хімічним складом конвертора нейтронів, тому з наведених даних неможливо відокремити внесок власне технології друку від впливу заміни карборану на оксид бору.

3. У табл. 5.2 (с. 141) максимум ефективності реєстрації нейтронів (49,2 %) зафіксовано при вмісті карборану 14 мас.% проти 43,25 % (7 мас.%) і 32,3 % (20 мас.%). При цьому сумарна похибка вимірювання ефективності реєстрації нейтронів, зазначена в п. 5.4, становить ± 16 %. Кількість повторів вимірювань і похибка для кожного окремого складу в табл. 5.2 не наведені, що ускладнює оцінку достовірності обраного «оптимуму».

4. У табл. 3.4 відносний світловий вихід надрукованого сцинтилятора $ZnS:Ag$ наведено як 180 % відносно монокристала $ZnSe:Al$ — тобто відносно матеріалу іншої хімічної природи. Такий підхід ускладнює фізичну інтерпретацію результату; доцільніше було б наводити абсолютний світловий вихід (фотон/MeV) або порівнювати зі сцинтилятором того самого складу.

5. Температура плавлення сплаву $Bi-Pb-Sn$ становить ≈ 98 °C (п. 4.5.1), що не дуже далеко від можливих температур зберігання/експлуатації детектора (нагрівання від електроніки, транспортування). Питання температурної стабільності з'єднання «сцинтилятор–метал» та поведінки абсорбера за підвищених температур у роботі не розглянуто.

Зазначені вище зауваження та дискусійні положення не зменшують наукової новизни і практичного значення дисертаційної роботи, не впливають на положення, які виносяться на захист і не знижують її загальної позитивної оцінки.

Відсутність порушень академічної доброчесності

Під час виконання дисертаційної роботи здобувач дотримувався принципів академічної доброчесності. За результатами перевірки та аналізу

матеріалів дисертації не було виявлено ознак академічного плагіату, фабрикації, фальсифікації.

Загальний висновок та оцінка дисертації.

Дисертаційна робота Сібілева Миколи Львовича «Отримання комбінованих сцинтиляційних елементів методом 3D-друку» є завершеним самостійним науковим дослідженням, у якому вирішено актуальне науково-практичне завдання, що має важливе значення для розвитку матеріалознавства функціональних матеріалів та адитивних технологій.

Таким чином, вважаю, що за актуальністю теми, ступенем обґрунтованості наукових положень, достовірністю, науковою новизною, теоретичною та практичною значимістю, об'ємом і рівнем отриманих результатів, висновків, сформульованих у дисертації, повнотою їх викладення в опублікованих працях, представлена дисертаційна робота Сібілева Миколи Львовича «Отримання комбінованих сцинтиляційних елементів методом 3D-друку» повністю відповідає всім вимогам «Порядку присудження ступеня доктора філософії та скасування рішення разової спеціалізованої вченої ради закладу вищої освіти, наукової установи про присудження ступеня доктора філософії», затвердженого постановою Кабінету Міністрів України від 12 січня 2022 р. № 44, а її автор, Сібілев Микола Львович, заслуговує присудження наукового ступеня доктора філософії за спеціальністю 132 Матеріалознавство в галузі знань 13 Механічна інженерія.

Офіційний опонент:

член-кореспондент НАН України,
заступник директора з наукової роботи
Інституту проблем матеріалознавства
ім. І.М. Францевича НАН України,
доктор технічних наук



Остап ЗГАЛАТ-ЛОЗИНСЬКИЙ