

ОТЗЫВ

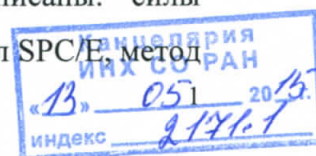
официального оппонента на диссертацию Геца Кирилла Викторовича
«Коллективные свойства низкочастотных колебаний в аморфных льдах низкой,
высокой и сверхвысокой плотности», представленную на соискание ученой
степени кандидата физико-математических наук
по специальности 02.00.04 – физическая химия.

Диссертационная работа Геца К.В. посвящена изучению аморфных льдов различной плотности методом компьютерного моделирования. В настоящее время аморфные льды являются предметом многочисленных исследований, целью которых является изучение и описание различных фазовых состояний льдов, фазовых переходов между ними, включая переходы между различными аморфными состояниями. Привлекательной стороной численных методов является возможность получения ответов на вопросы, которые недоступны современным экспериментальным методам. Одним из таких вопросов является описание собственных колебательных мод аморфных льдов в терагерцовом диапазоне. Так как эти колебания могут вовлекать в себя движения сотен атомов, то необходимо создание адекватных упрощенных моделей и развитие методов анализа колебательного отклика большого числа атомов. Таким образом, создание численных моделей льдов в приближении жесткой молекулы воды и анализ динамического отклика в терагерцовом диапазоне, которым посвящена диссертационная работа Геца К.В., является актуальной задачей.

Диссертационная работа состоит из введения, трех глав, выводов, заключения и списка цитируемой литературы из 204 наименований. Ее объем - 111 страниц, включая 28 рисунков и 3 таблицы.

В первой главе диссертации проведен литературный обзор, посвященный проблемам исследования аморфных фаз льдов, сделан акцент на фазовый переход между аморфными льдами различной плотности, обсуждена проблема низкочастотных (терагерцовых) колебательных возбуждений в аморфных льдах. В этой главе также рассмотрены модели воды для численного моделирования, приведены их параметры и обсуждены подходы к численному моделированию динамического отклика.

Вторая глава диссертации посвящена описанию численного метода, используемого в диссертационной работе. В этой главе описаны: силы межмолекулярного взаимодействия, модифицированный потенциал SPC/E, метод



решеточной динамики и способ оптимизации координат молекул воды в суперячейках аморфных льдов. Также в этой главе представлены характеристики модельных суперячеек и алгоритм расчетов.

В третьей главе диссертации приведены результаты численного эксперимента по изучению аморфных льдов различной плотности (LDA, HDA и VHDA). Показано соответствие рассчитанной функции радиального распределения по расстоянию кислород-кислород известным результатам из литературы. Также получено хорошее соответствие между плотностью колебательных состояний, рассчитанной в численном эксперименте, и данными по неупругому рассеянию нейтронов. В этой главе представлены результаты по так называемому коэффициенту участия (participation ratio) молекул в низкочастотном колебании и делается вывод о коллективном характере низкочастотных колебательных мод. Пространственное распределение молекул, участвующих в колебании проиллюстрировано на рисунках, а распределение молекул по относительным амплитудам, проанализировано на гистограмме. Также показаны проекции векторов смещения молекул воды в колебательной моде, этот результат представлен для одной из колебательных мод для каждой из фаз аморфного льда. В этой главе приведены дисперсионные кривые аморфных льдов и делается вывод об оптическом характере (в смысле подобия оптическим фононам в случае кристаллов) колебательных мод, дающих вклад в бозонный пик аморфных льдов.

К диссертационной работе имеется два замечания:

1). Есть замечание по тексту и оформлению диссертации. i). Структура глав, когда нет группировки различных параграфов по темам, не удобна для чтения и восприятия информации. Следовало бы сделать более крупные параграфы, включающие в себя несколько пунктов. ii). В ряде случаев подписи к рисункам не полны, например, на рис. 19 не указаны частоты колебаний, для которых показаны проекции векторов смещения; к рис. 13-16 нет описания критерия, по которому данная молекула воды считается участвующей в колебании. iii). Во второй главе обсуждаемые формулы не всегда вынесены в отдельную строчку и в большинстве случаев не снабжены нумерацией. Это не удобно для чтения. iv). В тексте используется большое количество аббревиатур от англоязычных выражений, что, с одной стороны, не всегда оправдано, а, с другой стороны, требует написания исходного англоязычного выражения при первом употреблении. v). Не хватает иллюстрирующих картинок в первой главе,

особенно, когда обсуждаются фазовые диаграммы и координационные оболочки. vi). В ряде случаев используется неудачная комбинация терминов типа «кристаллоподобное поведение коллективных колебаний», вместо акцента на сущности обсуждаемой характеристики. Некоторые утверждения в тексте сформулированы стилистически неудачно. Например, последнее предложение на стр. 74 и первое предложение на стр. 75.

2). Читателю, интересующемуся природой бозонного пика, хотелось бы видеть более глубокий анализ результатов, полученных для терагерцовых колебательных мод. Например, вывод о том, что колебания бозонного пика подобны оптическим фононам справедливо в рамках выбранной автором модели псевдокристалла. Но в модели псевдокристалла все колебательные моды, не относящиеся к его акустической ветви, автоматически являются оптическими фононами. Следовательно, вопрос требует более глубоко обсуждения, чтобы уйти от тривиальности. В реальном аморфном материале колебательные моды не являются плоскими волнами, что в общем случае делает невозможным деление колебательных мод на оптические и акустические. Классификация по модам зависит от способа рассмотрения. Например, если использовать подход, где оптическими называются моды, когда разные атомы структурной единицы двигаются в противофазе (Taraskin, Elliott, Physical Review B, 1995), то многие колебательные моды, обсуждаемые в диссертации, следует называть акустическими. Если встать на позицию, что аморфный материал состоит из нанометровых неоднородностей, то на рис. 19б, в можно увидеть вихреподобную закономерность в смещении молекул, которую можно интерпретировать как торсионную моду соответствующего кластера в приближении упругой сплошной среды. Кроме того, в третьей главе автор использует подход аддитивного вклада бозонного пика к акустическим возбуждениям при обсуждении плотности колебательных состояний, но при обсуждении собственных векторов колебания это предположение не используется. Это, с одной стороны, не самосогласованный подход, а, с другой стороны, указывает на неиспользованный потенциал полученных в диссертационной работе данных для выяснения справедливости или несправедливости аддитивного приближения для бозонного пика. Также хотелось бы узнать мнение автора о том, во что превратится резонанс акустической и нижней оптической ветвей, если отказаться от приближения псевдокристалла и волновой вектор перестанет быть хорошей характеристикой колебательных мод.

Сделанные замечания не ставят под сомнение результаты данной работы и не умаляют ее достоинства, а носят рекомендательный характер.

Диссертационная работа Геца К.В. выполнена на высоком уровне, получены новые интересные и важные результаты численных экспериментов, позволяющих описать структуру и динамический отклик аморфных льдов. В работе проведено усовершенствование численной модели аморфных льдов в приближении жесткой молекулы воды, получены собственные частоты и вектора колебательных мод терагерцового диапазона, проанализировано пространственное распределение молекул воды, принимающих участие в колебательной моде. Результаты обсуждаемой диссертации прошли качественную апробацию: они опубликованы в ведущих журналах по физической химии и докладывались на российских и международных симпозиумах и конференциях. Все результаты диссертационной работы, отраженные в выводах, являются *новыми* и получены *впервые*. Несомненно, что работы Геца К.В. вошедшие в диссертацию, привлекут внимание многих специалистов, изучающих неупорядоченные среды и использующих методы компьютерного моделирования.

Диссертационная работа Геца К.В. написана ясно, четко, хорошим научным стилем, является законченным исследованием, имеющим высокую научную и практическую ценность. Соискатель показал, что является высококвалифицированным специалистом в области численного эксперимента. Полученные в работе данные являются *практически значимыми*. Они могут быть в дальнейшем использованы при исследовании структуры и динамического отклика веществ компьютерным моделированием. Выводы, сформулированные в диссертации, являются достоверными и научно обоснованными. Автореферат правильно отражает содержание диссертации. Результаты работы могут найти применение в научных центрах, занимающихся исследованием неупорядоченных сред - в ИХФ РАН г. Москва, МГУ, ИХПФ РАН г. Черноголовка, ИНХ СО РАН, МТЦ СО РАН, ИФП СО РАН, ИК СО РАН, КФТИ КазНЦ РАН г. Казань, ФТИ им. А.Ф. Иоффе.

Представленная работа выполнена на высоком научном уровне, содержит решение актуальной задачи развития численного метода для исследования структуры и динамического отклика аморфных льдов. Диссертация соответствует п. 9 «Положения о присуждении ученых степеней», утвержденного постановлением Правительства Российской Федерации № 842 от 24 сентября

2013 г., а ее автор Гец Кирилл Викторович, несомненно, заслуживает ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 02.00.04 – физическая химия.

Официальный оппонент,

Заведующий лабораторией спектроскопии конденсированных сред

Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института автоматики и электрометрии Сибирского отделения Российской академии наук

д.ф.-м.н.

Суровцев Николай Владимирович

11.05.2015

Почтовый адрес: ИАиЭ СО РАН, 630090, г. Новосибирск, проспект Академика Коптюга, д. 1

Тел.: +7 (383) 330-79-78

E-mail.: lab21@iae.nsk.su

Согласен на включение моих персональных данных в документы, связанные с работой диссертационного совета, и их дальнейшую обработку.

Подпись зав.лаб. Суровцева Н.В. удостоверяю

Ученый секретарь ИАиЭ СО РАН

д.т.н.



С.В. Михляев