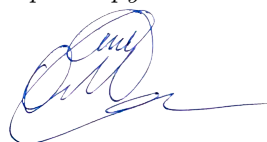


Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
ИНСТИТУТ ПРОБЛЕМ УПРАВЛЕНИЯ
им. В.А. ТРАПЕЗНИКОВА
РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК

На правах рукописи



Милосердов Олег Александрович

**МАТЕМАТИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ
ПОЛИМЕРНЫХ ЦЕПЕЙ В ЗАДАЧАХ
ПРЕДСКАЗАНИЯ ТРАНСПОРТНЫХ
ХАРАКТЕРИСТИК СТЕКЛООБРАЗНЫХ
ПОЛИМЕРОВ**

Специальность 1.2.2 — Математическое моделирование,
численные методы и комплексы программ (технические науки)

АВТОРЕФЕРАТ
диссертации на соискание ученой степени
кандидата технических наук

Москва — 2022

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте проблем управления имени В.А. Трапезникова Российской академии наук (ИПУ РАН).

Научный руководитель: **Губко Михаил Владимирович**, доктор физико-математических наук, Профессор РАН.

Официальные оппоненты: **Печников Андрей Анатольевич**, доктор технических наук, доцент Карельского Научного Центра РАН.
Кузнецов Сергей Олегович, доктор физико-математических наук, профессор Национального исследовательского университета «Высшая школа экономики».


Ведущая организация: Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Федеральный исследовательский центр химической физики им. Н.Н. Семенова Российской академии наук.

Защита состоится 6 февраля 2022 года в 14:00 на заседании диссертационного совета 24.1.107.01 при Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте проблем управления имени В.А. Трапезникова Российской академии наук по адресу: Россия, г. Москва, ул. Профсоюзная, д. 65.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ИПУ РАН и на сайте www.ipu.ru.

Автореферат разослан “__” _____ 20__ года.

Ученый секретарь
Диссертационного совета 24.1.107.01,
кандидат технических наук

 / Жарко Е.Ф.

Общая характеристика работы

Актуальность темы исследования. Мембранное газоразделение является одним из быстро развивающихся направлений мембранной науки и технологий. Полимерные газоразделительные мембраны имеют широкий круг применения в различных отраслях промышленности: концентрирование водорода из отходящих газов каталитического риформинга, сбросных газов нефтехимии, очистки нефти; получение азота для создания инертной среды и обеспечения пожаро- и взрывобезопасности при хранении опасных веществ, тушении пожаров в шахтах, обеспечении условий для длительного хранения пищевых продуктов; обогащение воздуха кислородом для обеспечения медицинских нужд и технологических процессов в металлургии.

Однако большинство используемых в современных технологических процессах материалов полимерных мембран разработаны в 80х годах XX века и по своим характеристикам не в полной мере соответствуют современным задачам мембранного газоразделения. Поэтому требуются новые материалы для создания мембран, отличающихся улучшенными газоразделительными (т.н. «транспортными») характеристиками. Проведение экспериментов и синтез кажущихся перспективными полимеров требует больших средств и времени, поэтому большое значение имеют математические модели, способные предсказывать характеристики интересующих нас полимеров по их структуре. Эти модели позволяют получить структурную формулу полимера с оптимальным набором транспортных характеристик, экономя финансовые и временные ресурсы, которые были бы затрачены на поиск, подбор и синтез полимеров с худшими характеристиками. Существующие модели и методы обладают рядом недостатков, которые не позволяют использовать их для дизайна новых мате-

риалов, что обуславливает актуальность разработки улучшенных методов предсказания транспортных характеристик полимерных материалов.

Объектом исследования являются транспортные характеристики пористых материалов на основе различных классов химических веществ.

Предметом исследования являются математические модели, алгоритмы и программные средства автоматизированного поиска перспективных мембранных материалов на основе количественного прогнозирования транспортных характеристик материалов по структурной формуле их молекул.

Цели и задачи. Целью исследования является разработка математических моделей молекул стеклообразных полимеров и численных методов расчета характеристик молекулярной поверхности их полимерных цепей для создания алгоритмов количественного прогнозирования транспортных характеристик газоразделительных мембран на основе этих полимеров.

Для достижения поставленной цели необходимо решить следующие задачи:

1. Провести анализ существующих математических моделей стеклообразных полимеров и методов предсказания их транспортных характеристик.
2. Разработать математические модели поверхности молекул аморфных полимеров.
3. Предложить численные методы предсказания транспортных характеристик аморфных полимеров на основе площади поверхности их молекул.
4. Разработать комплекс программ, основанный на библиотеках с открытым исходным кодом, позволяющий провести как моделирование от мономерного звена полимера до его

конформаций, так и рассчитать необходимые переменные для предсказания характеристик полимерных газоразделительных мембран.

5. Продемонстрировать эффективность разработанных методов и алгоритмов для задач анализа и синтеза полимерных материалов с заданными свойствами в интересах мембранной технологии.

Область исследования. Диссертационная работа соответствует специальности 1.2.2 «Математическое моделирование, численные методы и комплексы программ (технические науки)» по следующим пунктам:

1. Разработка новых математических методов моделирования объектов и явлений;
2. Развитие качественных и приближенных аналитических методов исследования математических моделей;
3. Реализация эффективных численных методов и алгоритмов в виде комплексов проблемно-ориентированных программ для проведения вычислительного эксперимента;
4. Комплексные исследования научных и технических проблем с применением современной технологии математического моделирования и вычислительного эксперимента;
5. Разработка систем компьютерного и имитационного моделирования.

Методы исследования. В диссертационной работе применяются методы молекулярно-механического моделирования, машинного обучения, математической статистики. Используются статистические критерии, регрессионный анализ, регрессии с пошаговым отбором переменных, стратегии кросс-валидации, методы кластеризации. При реализации разработанных методов ис-

пользуется среда Python и пакеты RDKit, pandas, multiprocessing, numpy, scipy, sklearn, statsmodels.

Научная новизна.

1. На основе подхода QSPR (предсказания физико-химических свойств веществ по их структурным химическим формулам) предложен отличающийся от аналогов метод и алгоритм моделирования геометрии коротких отрезков молекул полимерных материалов, вычисления для них числовых геометрических индексов, а также предсказания транспортных характеристик материалов методами машинного обучения и регрессионного анализа.
2. Для предсказания физико-химических (в первую очередь, транспортных) характеристик полимеров предложено новое семейство геометрических молекулярных дескрипторов, основанных на анализе кривых зависимости площади доступной поверхности молекул от радиуса «обкатки».
3. Предложенный общий алгоритм предсказания транспортных характеристик с использованием разработанных новых геометрических индексов впервые реализован в виде комплекса программ, автоматизирующего все процессы моделирования транспортных характеристик от загрузки исходных наборов до расчета прогнозируемых значений транспортных характеристик новых полимерных материалов по их структурной формуле.

Теоретическая и практическая значимость работы.

Теоретическая значимость разработанного метода состоит в том что он позволяет решать задачу предсказания транспортных характеристик полимерных материалов. В совокупности с комплексом программ, разработанным на языке Python, он позволяет вы-

рабатывать рекомендации по синтезу перспективных соединений даже в условиях работы на персональном компьютере.

Практическая значимость новых алгоритмов и разработанных программных средств продемонстрирована на задачах:

1. предсказания коэффициента растворимости (при бесконечном разбавлении) легких газов в стеклообразных полимерах различных классов, используемых в мембранной технологии (в частности, впервые построена универсальная регрессия, позволяющая предсказывать значение коэффициента растворимости при бесконечном разбавлении большинства легких газов в стеклообразных полимерах самых разных химических классов),
2. прогнозирования коэффициента растворимости и селективности растворимости новых полимеров,
3. предсказания константы Генри стеклообразных полимеров различных химических классов,
4. кластеризации полимерных материалов различных классов на основе геометрии их молекул для их типизации в интересах мембранной технологии и для исследования их физико-химических свойств.

Основные результаты, выносимые на защиту.

1. Методы математического моделирования конформаций полимеров и их геометрических свойств;
2. Регрессионные модели, предсказывающие транспортные характеристики полимерных мембран;
3. Метод кластеризации конформационных структур аморфных полимеров, позволяющий провести параллели между транспортными характеристиками полимерных мембран и геометрической формой их полимерных цепей, показывающий эффективность разработанных методов и алгоритмов;

4. Комплекс программ, позволяющий полностью автоматизировать процесс получения молекул полимеров большого размера, а также процесс расчета необходимых индексов для предсказания транспортных характеристик полимеров.

Степень обоснованности и достоверности полученных результатов. Представленные в работе результаты решения поставленных задач являются достоверными и обоснованными, поскольку они используют корректные статистические методы в процессе проведения вычислений, а также по причине использования представительных валидационных выборок для проверки качества полученных регрессий. Разрабатываемые алгоритмы и методы прошли апробацию публикациями в международных журналах, а о результатах исследования доложено на нескольких конференциях. Для подтверждения работоспособности регрессионных моделей были предсказаны характеристики еще не синтезированных полимеров, результаты предсказания сравнивались с модифицированным методом групповых вкладов, а затем и с экспериментально измеренными характеристиками новых полимерных материалов.

Реализация и внедрение результатов исследования. В среде Python разработан комплекс программ, основанный на библиотеках с открытым исходным кодом, позволяющий:

- провести моделирование конформационных структур полимеров, используемых в мембранном газоразделении,
- рассчитать необходимые переменные для предсказания характеристик полимерных газоразделительных мембран,
- построить собственные регрессии для большого набора данных,
- предсказать транспортные характеристики полимерных га-

зоразделительных мембран на основе предложенных регрессий,

- провести кластерный анализ конформационных структур аморфных полимеров на основе их геометрии для дальнейшего анализа связей между транспортными характеристиками полимерных мембран и кластерами.

Разработанный комплекс программ прогнозирования характеристик полимерных материалов использовался в ходе научных исследований Лабораторией мембранного газоразделения ИНХС им. А.В. Топчиева РАН для прогнозирования коэффициента растворимости новых перспективных полимерных материалов.

Апробация результатов.

- 57, 58, 60 и 61 научные конференции МФТИ: Радиотехника и кибернетика за 2014 – 2018 годы.
- XII, XIII, XV, XVI Всероссийские школы-конференции молодых ученых «Управление большими системами» за 2015 – 2019 годы.
- XIV Всероссийская научная конференция с международным участием «Мембраны-2019» 2019 года;
- 32nd International Mathematics, Chemistry, Computing. Dubrovnik, Croatia 2021.

Также основные положения диссертации докладывались и обсуждались на докладах научных семинаров «Теория управления организационными системами» в Институте проблем управления имени В.А. Трапезникова Российской академии наук (ИПУ РАН) и «Применение хроматографии в нефтехимии и аналитике» Института нефтехимического синтеза им. А.В. Топчиева Российской академии наук (ИНХС РАН)

Публикации. По теме диссертации опубликовано 13 работ, среди которых 5 публикаций в рецензируемых научных изданиях,

индексируемых Web of Science и Scopus, в том числе, одна публикация за единоличным авторством соискателя, 8 публикаций в сборниках трудов и тезисов конференций.

Личный вклад соискателя. Все исследования, изложенные в диссертационной работе, выполнены лично соискателем в процессе научной деятельности. Во всех работах, выполненных в соавторстве, автор внес значительный вклад в разработку представленных методов и алгоритмов, а также в проведение численных экспериментов и создание комплекса программ.

Структура и объем работы. Диссертационная работа состоит из введения, четырех глав, заключения, списка литературы и двух приложений. Работа изложена на 159 страницах, содержит 8 таблиц и 31 иллюстрацию. Библиография содержит 114 наименований.

Содержание работы

В **Главе 1** диссертации приводится концепция растворения и диффузии, описывающая явления транспорта газов через непористые мембраны, определяются основные транспортные характеристики полимерных материалов. Описывается постановка задачи дизайна материалов с экстремальными транспортными характеристиками, а именно, разработка математических моделей и алгоритмов предсказания свойств и поиска веществ с заданными физико-химическими свойствами и применение их для разработки рекомендаций по синтезу перспективных соединений.

Также в **Главе 1** проводится анализ существующих математических моделей стеклообразных полимеров и методов предсказания их транспортных характеристик, в частности, методы эмпирических групповых вкладов, QSPR-моделирования, молекулярной динамики и механики, а также методы Монте-Карло и машинного обучения. Приводится описание способов представ-

ления молекул, а также перечисляются популярные силовые поля для проведения молекулярно-механического и молекулярно-динамического моделирования. Анализируются недостатки описанных методов.

В **Главе 2** описывается разработанный метод предсказания транспортных характеристик аморфных полимеров на основе *площади поверхности коротких полимерных цепей* (ППКПЦ). Он лишен перечисленных в первой главе недостатков: не требует экспериментальных данных о полимерном материале; применим к широкому кругу полимеров, в том числе еще не синтезированных; предъявляет весьма скромные требования к вычислительным мощностям. В основе предлагаемого метода лежит гипотеза о том, что коэффициент растворимости газа в полимере и связанные с этим характеристики в той или иной мере зависят от параметров поверхности контакта между молекулой полимера и молекулой газа.

В **разделе 2.1** диссертационной работы приводится метод математического моделирования транспортных характеристик полимеров. В **подразделе 2.1.1** описывается метод молекулярно-механического моделирования. Для каждого рассматриваемого полимера готовится «олигомерная цепь», состоящая из нескольких сотен атомов, затем ее геометрия оптимизируется в некотором эмпирическом силовом поле. Таким образом получается конформация молекулы полимера.

В **подразделе 2.1.2** описываются геометрические индексы на основе площади ППКПЦ. Геометрия полимерных конформаций должна быть преобразована в числовые дескрипторы, используемые в качестве объясняющих переменных в регрессиях для прогнозирования транспортных характеристик. Для этого вычисляется ряд поверхностных и поверхностно-зарядных гео-

метрических индексов для различных значений радиуса «обкатки» газа-пенетранта из диапазона от 0 до 3 Å. Таким образом получается кривая зависимости геометрических индексов от радиуса «обкатки» газа-пенетранта. Доступная площадь поверхности (ASA), рассчитанная для полимера, характеризует систему «газ-полимер», поскольку каждая площадь рассчитывается с использованием определенного радиуса проникающего газа. Требуются показатели, характеризующие только полимер. Чтобы выявить такие производные индексы, отметим, что ASA (усредненная по конформациям) может быть аппроксимирована линейной зависимостью от радиуса R (газа) газа-пенетранта. Зависимость ASA от характеристик пары «полимер-газ» можно записать в виде:

$$ASA(polymer, gas) = c_{ASA}(polymer) + d_{ASA}(polymer)R(gas), (1)$$

где $c_{ASA}(polymer)$ (Å² моль/см³) и $d_{ASA}(polymer)$ (Å моль/см³) зависят от формы конформации олигомера. Следовательно, совокупность площадей поверхности, рассчитанных для одного полимера при различных радиусах газа-пенетранта, порождает два новых дескриптора полимера: «начальная» площадь поверхности $c_{ASA}(polymer)$ и наклон площади поверхности $d_{ASA}(polymer)$. Эти производные индексы оцениваются для каждого полимера методом наименьших квадратов из серии значений ASA , рассчитанных для эффективных радиусов рассматриваемых газов на некотором диапазоне радиусов «обкатки». Границы этого диапазона – минимальный и максимальный радиусы «обкатки» – являются настраиваемыми параметрами предлагаемого метода.

В подразделе **2.1.3** приводится подход к построению регрессионной модели для предсказания транспортных характеристик полимерных мембран на основе представленных геометрических индексов. Для построения предсказательной модели используется множественная линейная регрессия с пошаговым отбором

переменных. Агломеративный метод кластеризации используется для кластеризации конформаций полимеров и поиска зависимостей между транспортными характеристиками полимеров различных химических классов.

В разделе 2.2 приводятся разработанные алгоритмы предсказания транспортных характеристик полимерных мембран. В подразделе 2.2.1 описывается разработанный численный метод оптимизации потенциальной энергии молекулы полимера, на основе методов молекулярно-механического моделирования, с целью генерации представительного набора конформаций полимерных цепей. Разработанный численный метод применим для специфических полимеров, используемых в мембранном газоразделении, и удовлетворяет требованиям по точности, устойчивости и экономичности. Оригинальность предложенного метода моделирования определяется использованием процедуры, аналогичной процедуре полимеризации при создании полимерного образца, которая позволила кардинально уменьшить время вычислений, за счет пошаговой оптимизации потенциальной энергии молекулы с дополнительными граничными условиями.

В подразделе 2.2.2 приводится сравнение алгоритмов Ли-Ричардса и Шрайка-Рипли, которые отвечают за расчет площади поверхности «обкатки» молекулы. На основе методов Ли-Ричардса и Гастайгера-Марсили предложен новый численный метод вычисления поверхностно-зарядных геометрических индексов, которые впоследствии используются для предсказания транспортных характеристик стеклообразных полимеров.

В подразделе 2.2.3 описывается подход к обучению регрессионных моделей на основе шаговой регрессии с двунаправленным отбором значимых переменных. В начале, производится линеаризация кривых зависимости геометрических индексов от R

на ряде диапазонов. Затем, выборка разбивается на обучающую и валидационную. На обучающей выборке проводится процедура 5-блочной кросс-валидации. Затем происходит построение регрессий с пошаговым отбором переменных для данных из обучающей выборки с исключенной подвыборкой для заданных значений границ диапазонов радиусов (R^- , R^+) и пороговых значений f_{in} и f_{out} , ответственных за включение в регрессию и исключение из нее объясняющих переменных. На следующем шаге вычисляется коэффициент детерминации R^2 для каждой регрессии по каждой исключенной подвыборке, который затем усредняется. После линейные регрессии обучаются по наборам R^- , R^+ и f_{in} , f_{out} , дающим наибольший R^2 . На финальном этапе выбирается оптимальный набор R^- , R^+ и f_{in} , f_{out} и на всей обучающей выборке строится регрессия с наиболее значимыми переменными.

В **Главе 3** описывается разработанный комплекс программ для предсказания транспортных характеристик полимерных газоразделительных мембран, приводится его функциональный состав (см. также Рис. 1): блок интерфейсов данных, блок построения конформаций молекул, блок вычисления геометрических индексов и параметров молекул, блок регрессионного анализа. Также описываются два типовых сценария использования комплекса программ, условно называемые исследовательским и пользовательским.

В **подразделе 3.1.1** приводится описание блока интерфейсов данных, где для хранения и передачи структур полимеров между Базой данных и разработанным комплексом программ используется формат файлов SDF, а для передачи информации о газах – XLSX.

В **подразделе 3.1.2** описывается блок построения конформаций молекул, где на вход подается структура полимерного звена

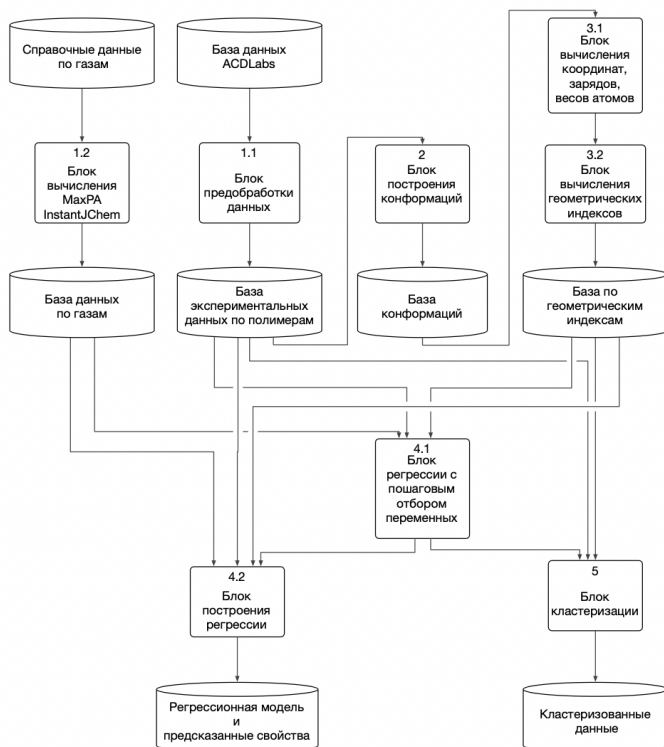


Рис. 1 – Функциональная схема разработанного комплекса программ.

в формате SDF, а также параметры, такие как: число мономеров, силовое поле (MMFF94, MMFF94s, UFF) и другие технические параметры. На выходе данного блока получается SDF файл с рассчитанными координатами конформации молекулы полимера. Таким образом, на выходе блока образуется база конформаций молекул.

В подразделе 3.1.3 описывается блок вычисления параметров молекул, где на вход подаются координаты атомов (формат SDF). Функциональное назначение блока – вычисление атомного номера, радиусов Ван-дер-Ваальса и частичных зарядов атомов

по Гастайгеру–Марсели. Вычисленные параметры подаются на вход блока вычисления геометрических индексов, где с использованием алгоритма Ли-Ричардса для каждого атома вычисляются площади, доступные для «обкатки» газом-пенетрантом, и следом, производится расчет основных геометрических индексов. На выходе блока получаем три файла формата HDF5: с координатами атомов молекулы в трехмерном пространстве, значениями радиусов, частичных зарядов и весов атомов; с рассчитанными значениями геометрических индексов для каждого атома в зависимости от радиуса «обкатки»; с рассчитанными значениями суммарных геометрических индексов в зависимости от радиуса «обкатки».

В **подразделе 3.1.4** характеризуется блок регрессионного анализа, где на вход подаются значения рассчитанных геометрических индексов в формате HDF5, а также экспериментальные значения транспортных характеристик и метки разбиения на тестовую и обучающую выборки в формате XLSX. На выходе данного блока получаем список отобранных объясняющих переменных с коэффициентами, а также эффективности предсказания на обучающей и тестовой выборках.

В **разделе 3.2** приводятся сценарии использования комплекса программ: пользовательский и исследовательский. Исследовательский сценарий позволяет расширять обучающее множество за счет новых полимеров, вычислять свои индексы и вносить изменения в уже разработанные, изменять параметры построения регрессионных моделей и строить свои модели на основе произведенных расчетов. Пользовательский сценарий предлагает использовать разработанные и обученные модели для предсказания транспортных характеристик новых, еще не синтезированных полимеров, а также использовать предложенную в разделе

кластеризацию для оценки и сравнения значений транспортных характеристик полимеров.

В **Главе 4** диссертации рассказывается о применении разработанной методики для дизайна материалов с заданными свойствами. В **разделе 4.1** приводится информация и анализ базы данных стеклообразных полимеров, используемых в интересах мембранного газоразделения, в которой собраны более 6000 записей о взаимодействии элементов системы «газ-полимер». В **разделе 4.2** дается обоснование достаточной длины конформации и количества генерируемых конформаций. Показывается, что значения индексов начинают сходиться на длине молекулы в 600 атомов и усреднении значений по 5-6 конформациям.

В **разделе 4.3** подробно описывается предсказание одного из наиболее важных транспортных характеристик – коэффициента растворимости S . В набор данных для обучения и тестирования «универсальной» регрессии входит 1586 строк экспериментальных данных по парам «полимер-газ» (383 уникальных полимера, 13 различных химических классов). Согласно описанному ранее алгоритму построения регрессии был получен оптимальный диапазон $[R^-, R^+] = [0.0, 1.4] \text{ \AA}$ линейзации кривых $ASA, \dots, PNSA_3$ и значения оптимальных параметров шаговой регрессии $f_{in} = 0.01, f_{out} = 0.07$, давшие в результате кросс-валидации максимальный средний скорректированный коэффициент детерминации. Данным значениям параметров соответствовала регрессия (настроенная уже на полной обучающей выборке), которая состоит всего из 6 переменных:

$$\lg S = -2.55 - 1.402c_{ASA} - 13.833d_{PNSA_3} + 3.74c_{PNSA_3} + \text{MaxPA}(0.182 + 0.235c_{ASA} - 2.308d_{PPSA_3}). \quad (2)$$

Коэффициент детерминации на тестовой выборке составил

$R^2 = 0.72$, а средняя относительная ошибка $MRE = 104\%$. Диаграмма рассеяния представлена на рисунке 2.

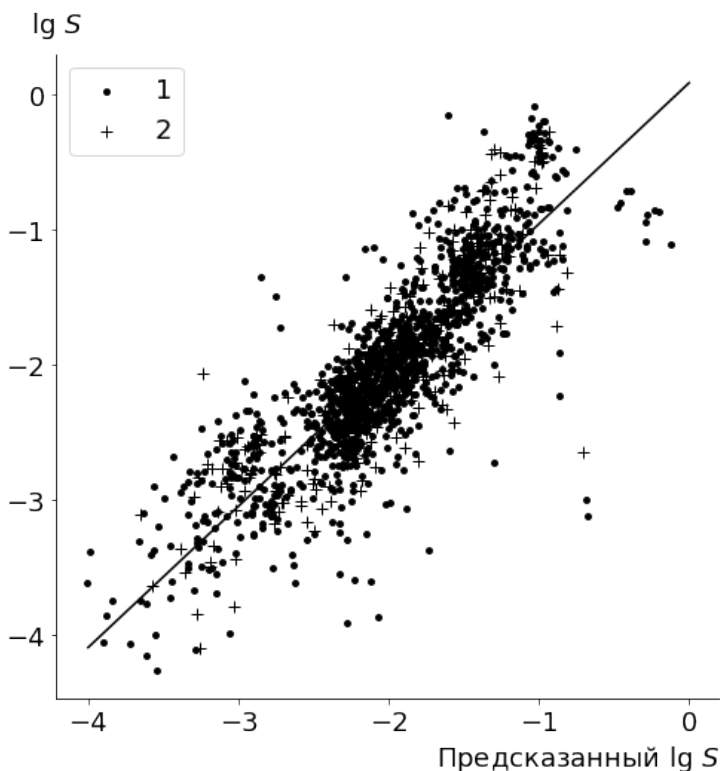


Рис. 2 – Диаграмма рассеяния для предсказания $\lg S$. $\lg[\text{см}^3 \text{ (н.у.)} / \text{см}^3 \text{ (см.рт.ст.)}]$. 1 – обучающая выборка, 2 – тестовая.

На основе значимых переменных, полученных для универсальной регрессии, построены частные регрессии для газов He , H_2 , O_2 , N_2 , CO_2 , CH_4 . Частные регрессии показывают лучшее качество. Значение средней относительной ошибки предсказания для частных регрессий составило от 53% до 100%.

В разделе 4.4 метод ППКПЦ был использован для проведения поиска высокопроницаемых полимеров. Отбирались потен-

циальные структуры и необходимо было определить наиболее перспективный полимер с точки зрения коэффициента растворимости. Прогнозы методов МАС/ВС (модифицированные методы групповых вкладов) и ППКПЦ находятся в пределах одного порядка величины по сравнению с экспериментальными значениями. Стоит отметить, что методы МАС/ВС и ППКПЦ показали противоположные отклонения; в основном отрицательно в случае МАС/ВС и в основном положительно в случае ППКПЦ.

В разделе 4.5 описывается процесс обучения регрессионной модели, способной предсказать значение константы Генри k_D . В результате применения шаговой регрессии была получена формула, задействующая единственную переменную, характеризующую полимер – это чувствительность индекса $PNSA_3$ (площади отрицательно заряженной доступной поверхности с учетом величины частичного заряда) к радиусу «обкатки», при этом скорректированный коэффициент детерминации $R^2 = 0.81$, $RMSE = 0.09$.

$$\lg k_D = \text{MaxPA}(0.12 - 2.96d_{PPSA_3}) - 4.11. \quad (3)$$

В разделе 4.6 предлагается метод кластеризации полимеров на основе их геометрии, а также исследуются транспортные характеристики выявленных кластеров (групп полимеров) для выявления связей между геометрией полимерных цепочек и транспортными характеристиками веществ. Проведенный анализ позволяет говорить о глубокой зависимости транспортных характеристик полимеров от формы и геометрии конформаций молекул полимера. Полученная кластеризация позволяет выделить признаки и характеристики молекул полимеров с различными экстремальными свойствами, что будет полезно в задачах поиска и синтеза новых перспективных полимеров.

Выводы

В процессе работы над диссертацией были получены следующие результаты:

1. Проведен анализ существующих математических моделей стеклообразных полимеров и методов предсказания их транспортных характеристик.
2. Разработан метод моделирования конформаций полимерных цепей, позволяющий получить реалистичные молекулы полимерных цепей, необходимые для вычисления поверхностных и поверхностно-зарядных геометрических индексов. В частности, предложено семейство геометрических молекулярных дескрипторов, основанных на анализе кривых зависимости площади доступной поверхности молекул от радиуса «обкатки».
3. На основе регрессионных моделей разработаны численные методы предсказания транспортных характеристик полимерных мембран.
4. Разработан комплекс программ, позволяющий полностью автоматизировать процесс моделирования полимерных цепей стеклообразных мембранных материалов и предсказания их транспортных характеристик. Все вычисления имеют возможность распараллеливания на кластере и приемлемое (для работы на ПК) время расчета одного полимера.
5. Продемонстрирована эффективность разработанных методов и алгоритмов в задачах предсказания транспортных характеристик полимерных мембран, таких как коэффициент растворимости S и константа закона Генри k_D . Предложена кластеризация конформационных структур аморфных полимеров, основанная лишь на значениях геометрических индексов.

Список публикаций по теме диссертации

Публикации Web of Science/Scopus

1. Miloserdov O. Classifying Amorphous Polymers for Membrane Technology Basing on Accessible Surface Area of Their Conformations // Adv. Syst. Sci. Appl. –2020. – Vol. 20. – No. 3. – P. 91-104.
2. Alentiev, A., Chirkov, S., Nikiforov, R., Buzin, M., Miloserdov, O. et al. S. Structure-Property Relationship on the Example of Gas Separation Characteristics of Poly (Arylene Ether Ketone) s and Poly (Diphenylene Phtalide) // Membranes. – 2021. –Vol. 11. –No. 9. –P. 677-697.
3. Goubko M., Miloserdov O., Yampolskii Yu. et al. Prediction of Solubility Parameters of Light Gases in Glassy Polymers on the Basis of Simulation of a Short Segment of a Polymer Chain // Polymer Science, Series A. – 2019. –Т. 61. –№. 5. –С. 718-732.
4. Goubko M., Miloserdov O., Yampolskii Yu. et al. A novel model to predict infinite dilution solubility coefficients in glassy polymers // J. Polym. Sci. Part B: Polym. Phys. – 2017. – Vol. 55. – No. 3. – P. 228-244.
5. Goubko M., Miloserdov O. Simple Alcohols with the Lowest Normal Boiling Point Using Topological Indices // MATCH Commun. Math. Comput. Chem.-2016, – P .75, – No.1, – P. 29-56.

Публикации в трудах и тезисах конференций

6. Губко М.В., Милосердов О.А., Ямпольский Ю.П. и др. Универсальная модель для предсказания растворимости газов в стеклообразных полимерах // Тезисы докладов XIII все-российской научной конференции Мембраны-2016, 10-14 октября 2016 года, Нижний Новгород. – С. 159-161.
7. Губко М.В., Милосердов О.А., Ямпольский Ю.П. и др. Но-

- вый метод предсказания растворимости и константы неспецифической сорбции k_D для легких газов в стеклообразных полимерах // Тезисы докладов XIV Всероссийской научной конференции Мембраны-2019. — Сочи, 2019. — С. 344–346.
8. Милосердов О.А., Губко М.В. Использование алгоритма Ли-Ричардса для расчета поверхностно-зарядных характеристик макромолекул в задаче предсказания транспортных свойств стеклообразных полимеров / Труды 61-й Всероссийской научной конференции МФТИ "Радиотехника и компьютерные технологии – Москва, 2018. – С. 46-48.
 9. Милосердов О.А., Губко М.В. Классификация конформационных структур аморфных полимеров в интересах мембранной технологии // Труды 60-й научной конференции МФТИ: Радиотехника и кибернетика, – Москва, 2017. – С. 75-76.
 10. Милосердов О.А., Губко М.В. Классификация стеклообразных полимеров по транспортным свойствам на основе локальной геометрии полимерных цепей // Труды 16-й Всероссийской школы-конференция молодых ученых УБС 2019, Тамбов. –С. 107-110.
 11. Милосердов О.А., Губко М.В., Ямпольский Ю.П. и др. Классификация конформационных структур аморфных полимеров мембранного назначения // Тезисы докладов XIV Всероссийской научной конференции Мембраны-2019. — Сочи, 2019. — С. 177-179.
 12. Милосердов О.А., Губко М.В., Ямпольский Ю.П. и др. Предсказание транспортных характеристик стеклообразных полимеров по зависимости площади макромолекулы от радиуса «обкатки» // Материалы XV Всероссийской

школы-конференции молодых ученых УВС 2018. – ВГТУ, 2018. – Т. 2, – С. 76-80.

13. Miloserdov O.A., Goubko M.V. QSPR method for prediction of sorption parameters of light gases in glassy polymers / Book of abstracts of the 32nd International Course and Conference on the Interfaces among Mathematics, Chemistry and Computer Sciences: Mathematics, Chemistry, Computing (Dubrovnik, 2021). Zagreb: Croatian Chemical Society, 2021. – P. 18.

Вклад автора в совместные публикации:

[3], [4], [6], [8], [12], [13] – разработка методов предсказания коэффициента растворимости, создание программного комплекса, проведение численных экспериментов.

[9], [10], [11] – разработка метода кластеризации аморфных полимеров, программная реализация расчетов, проведение численных экспериментов.

[2] – предсказание транспортных характеристик полимеров, сравнение методов предсказания транспортных характеристик, проведение численных экспериментов.

[5] – проведение численных экспериментов.

[7] – разработка методов предсказания константы Генри, проведение численных экспериментов.

Научное издание

Милосердов Олег Александрович

**МАТЕМАТИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ
ПОЛИМЕРНЫХ ЦЕПЕЙ В ЗАДАЧАХ
ПРЕДСКАЗАНИЯ ТРАНСПОРТНЫХ
ХАРАКТЕРИСТИК СТЕКЛООБРАЗНЫХ
ПОЛИМЕРОВ**

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата технических наук

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки

Институт проблем управления имени

В.А. Трапезникова

Российской академии наук

117997

ул. Профсоюзная, д.65

Россия, Москва

www.ipu.ru