

Министерство науки и высшего образования
Российской Федерации

Федеральное государственное
бюджетное учреждение науки
ФЕДЕРАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ
ЦЕНТР ХИМИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ
им. Н.Н. Семенова
Российской академии наук
(ФИЦ ХФ РАН)

119991 г. Москва, ул. Косыгина, д.4
Телефон: (499)137-29-51; Факс: (495) 651-21-91
E-mail: icp@chph.ras.ru

13.01.2023 № 68-04/23

На № _____

«УТВЕРЖДАЮ»

Директор ФИЦ ХФ РАН

д. х. н., профессор

В. А. Надточенко

« 13 » 01 2023 г.

ОТЗЫВ ВЕДУЩЕЙ ОРГАНИЗАЦИИ

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Федеральный исследовательский центр химической физики
им. Н.Н. Семенова Российской академии наук (ФИЦ ХФ РАН)
на диссертационную работу Милосердова Олега Александровича
на тему: «Математическое моделирование полимерных цепей в задачах
предсказания транспортных характеристик стеклообразных полимеров»,
представленную на соискание ученой степени кандидата технических наук
по специальности 1.2.2 – Математическое моделирование, численные методы
и комплексы программ (технические науки)

Актуальность темы исследования

В диссертационной работе решаются задачи математического моделирования транспортных характеристик стеклообразных полимеров. Задача разработки новых мембран является важной и актуальной задачей для разных областей промышленности. Исследования и разработки в области методов математического моделирования полимерных материалов позволяют получить новые методы и алгоритмы, способные помочь специалистам по мембранному газоразделению и синтезу полимеров, которые задаются

вопросами: какие транспортные характеристики получатся из полимера определенной структуры, или же какую структуру полимера необходимо использовать чтобы получить определенные транспортные свойства? На первый вопрос может дать решение прямой, а на второй – обратной задачи управления. В данной работе предлагается подход к решению прямой задачи, за счет предсказания транспортных свойств полимерных материалов по их структуре с помощью методов молекулярной механики и регрессионных моделей.

Структура и содержание работы

Диссертация состоит из введения, четырех глав, заключения, списка литературы и двух приложений. Общий объем работы составляет 159 страниц, в том числе 31 рисунок и 8 таблиц. Список литературы включает в себя 114 наименований.

Во введении соискатель обозначил актуальность разработки и совершенствования методов моделирования и предсказания транспортных свойств полимерных материалов, сформулировал цели и задачи исследования, привел, основные результаты работы и обосновал их научную новизну, теоретическую и практическую значимость работы.

В первой главе описываются задачи и методы предсказания транспортных свойств полимерных материалов. В начале главы описываются основные транспортные характеристики и приводится постановка задачи дизайна материалов с заданными свойствами. Большая часть главы посвящено описанию существующих методов предсказания транспортных характеристик (QSPR, методы групповых вкладов, методы молекулярной механики и динамики, методы Монте-Карло и некоторые другие).

Во второй главе автор поэтапно приводит описание разработанного метода предсказания транспортных характеристик аморфных полимеров на основе площади поверхности коротких полимерных цепей. В начале автор представляет подход к математическому моделированию транспортных характеристик с использованием методов молекулярно-механического

моделирования, специальных геометрических индексов и регрессионного анализа. Затем, автор описывает алгоритмы предсказания транспортных характеристик. Описывается разработанный численный метод оптимизации потенциальной энергии молекулы полимера, на основе методов молекулярно-механического моделирования, с целью генерации представительного набора конформаций полимерных цепей. После приводится сравнение алгоритмов Ли-Ричардса и Гастайгера-Марсили и предлагается новый численный метод вычисления поверхностно-зарядных геометрических индексов. Завершает главу описание регрессионного анализа. Автор строит регрессионные модели на основе шаговой регрессии с двунаправленным отбором значимых переменных. Используется 5-блочная кросс-валидация в процессе которой максимизируется значение коэффициент детерминации для каждой регрессии по каждой исключенной подвыборке. По выбранным переменным строится финальная универсальная регрессия с оптимальным набором параметров.

В третьей главе описывается разработанный комплекс программ на языке Python. для предсказания транспортных характеристик полимерных газоразделительных мембран, который состоит из блока интерфейсов данных, блока построения конформаций, блока вычисления геометрических индексов и блока регрессионного анализа. Автор предлагает два типовых сценария использования комплекса программ. Исследовательский сценарий позволяет использовать полноценный функционал и предназначен для обучения новых регрессионных моделей и модификации готовых решений. Пользовательский сценарий позволяет использовать встроенные регрессионные модели и методы кластеризации для удобной работы специалистов по синтезу полимеров.

Четвертая глава посвящена описанию прикладных задач. В начале главы пописывается источник экспериментальных данных – база данных «Газоразделительные параметры стеклообразных полимеров. Приводится пример обучения и использования универсальной регрессии для предсказания коэффициента растворимости S и константы Генри k_D , а также частные

регрессии для наиболее популярных газов H_2 , He, O_2 , N_2 , CO_2 , CH_4 . Частные регрессии показывают лучшее качество. Автор приводит в качестве метрики качества значение средней относительной ошибки предсказания для вышеописанных регрессий составило в диапазоне от 53% до 104%. Подобное качество объясняется различными экспериментальными данными, полученными при одинаковых условиях различными научными коллективами. Далее в главе описывается метод кластеризации полимеров на основе их геометрии. Выделенные автором кластеры тесно связаны с транспортными характеристиками полимеров, а расположение центра масс кластера, относительно центра масс всей выборки, форма кластера и его состав демонстрируют эти связи.

Научная новизна

В работе Милосердова О.А. получены новые научные результаты:

- предложен отличающийся от аналогов метод и алгоритм моделирования транспортных характеристик полимерных материалов, который основан на моделировании геометрии коротких отрезков молекул, вычислении для них числовых геометрических индексов и использовании их в качестве объясняющих переменных в регрессионных моделях;
- предложено новое семейство геометрических молекулярных дескрипторов, основанных на анализе кривых зависимости площади доступной поверхности молекул от радиуса «обкатки».
- новый разработанный алгоритм реализован в виде комплекса программ, автоматизирующего все процессы моделирования транспортных характеристик.

Обоснованность и достоверность полученных результатов

В работе используются корректные статистические методы. Полученные результаты сравнивались с модифицированным методом групповых вкладов и с экспериментально измеренными характеристиками новых полимерных материалов. Достоверность также подтверждается публикациями в ведущих

мировых рецензируемых журналах докладами на международных профильных конференциях и научных семинарах.

Публикации автора

Основные результаты диссертационной работы опубликованы в открытой печати. Автор опубликовал 13 работ по теме диссертации, из них 5 в изданиях WoS/Scopus и 8 публикаций в сборниках трудов и тезисов конференций.

Теоретическая и практическая значимость работы.

Практическая значимость новых алгоритмов и разработанного комплекса программ демонстрируется на задачах предсказания транспортных характеристик полимерных материалов. Теоретическая значимость заключается в возможности решения задачи предсказания транспортных характеристик полимерных материалов с помощью разработанного метода, а в совокупности с комплексом программ позволяет вырабатывать рекомендации по синтезу перспективных соединений.

Замечания по диссертационной работе

По результатам изучения диссертационной работы Милосердова О.А. можно сформулировать следующие замечания:

1. Работу хорошо бы дополнило исследование карты Рамачадрана для различных полимерных структур.
2. Автор ограничивается использованием линейных регрессий и не приводит сравнение, например, с полиномиальными регрессиями или с простыми нейронными сетями в несколько полносвязных слоев.
3. В главе 1 хотелось бы более четкого описания метода Гастайгера-Марсили: какие данные используются как исходные и что подгоняется.
4. В главе 2 для простоты восприятия хотелось бы иллюстрации структуры всех рассматриваемых полимеров.
5. В главе 3 не хватает простого визуального интерфейса, автор предлагает использовать терминал.

6. В работе не хватает сравнения полученных разработанным методом конформаций с результатами более точных методов молекулярно-динамического моделирования.

Указанные замечания не снижают ценности работы и не оказывают решающего внимания на положительную оценку диссертационной работы Милосердова О.А. Она представляет собой законченную работу, в которой решена задача разработки методов математического моделирования полимерных цепей в целях предсказания транспортных характеристик стеклообразных полимеров.

Заключение

Результаты диссертационной работы и выводы по ней, полученные Милосердовым О.А., свидетельствуют о том, что соискатель выполнил актуальное исследование, направленное на решение теоретических и практических задач в интересах мембранного газоразделения. Проведенные исследования отличаются от ранее выполненных другими авторами тем, что соискатель разработал новый метод моделирования транспортных характеристик полимерных материалов, основанный на моделировании геометрии коротких отрезков молекул, вычислении для них оригинального семейства геометрических индексов и использовании их в качестве объясняющих переменных в регрессионных моделях. Важной частью работы является созданный комплекс программ, способный помочь специалистам в области мембранного газоразделения существенно сократить время, затрачиваемое на получение новых полимерных материалов с экстремальными характеристиками.

На основе вышеизложенного можно заключить, что диссертация Милосердова Олега Александровича «Математическое моделирование полимерных цепей в задачах предсказания транспортных характеристик стеклообразных полимеров» является законченным научным исследованием, полностью удовлетворяет критериям положения о присуждении научных степеней, предъявляемых к диссертации на соискание степени кандидата технических

наук по специальности 1.2.2 – «Математическое моделирование, численные методы и комплексы программ (технические науки)», а ее автор, Милосердов Олег Александрович, заслуживает присуждения степени кандидата технических наук по этой специальности.

Диссертационная работа Милосердова Олега Александровича на тему: «Математическое моделирование полимерных цепей в задачах предсказания транспортных характеристик стеклообразных полимеров» обсуждена, отзыв на нее рассмотрен и утвержден на заседании семинара лаборатории Физики и механики полимеров Федерального государственного бюджетного учреждения науки Федерального исследовательского центра химической физики им. Н.Н. Семенова РАН (протокол № 1 от 10 января 2023 года).

Отзыв подготовила:

Зав. лабораторией физики и механики полимеров ФИЦ ХФ РАН, доктор физ.-мат. наук (02.00.06 – Высокомолекулярные соединения), старший научный сотрудник



Ковалева Маргарита Алексеевна

« 12» января 2023 г.

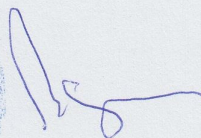
Адрес:

119991, г. Москва, ул. Косыгина, 4, Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Федеральный исследовательский центр химической физики им. Н.Н. Семенова Российской академии наук (ФИЦ ХФ РАН)

Тел.: +7 (495) 939-75-15; адрес электронной почты: makovaleva@chph.ras.ru

Подпись д.ф.-м.н. Ковалевой М.А. заверяю:

Ученый секретарь ФИЦ ХФ РАН, к.ф.-м.н.



Ларичев М.Н.