

## **ОТЗЫВ**

официального оппонента, д.ф.-м.н. Авдеева Михаила Васильевича на диссертационную работу Крюковой Алёны Евгеньевны «КОМБИНИРОВАННЫЙ ПОДХОД К ПОИСКУ РАСПРЕДЕЛЕНИЙ РАЗМЕРОВ СФЕРИЧЕСКИХ НАНОЧАСТИЦ ПО ДАННЫМ МАЛОУГЛОВОГО РЕНТГЕНОВСКОГО РАССЕЙНИЯ», представленную на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 1.3.8. – «физика конденсированного состояния»

### **Актуальность диссертационной работы**

Целью диссертационной работы Крюковой А.Е. было систематическое исследование устойчивости восстановления распределений частиц по размерам методом малоуглового рассеяния (МУР) для смесей полидисперсных сферических частиц и разработка новых оптимизационных схем, позволяющих существенно расширить диапазон сходимости к правильному решению.

Работа безусловно является актуальной, так как поиск распределений частиц по размерам сильно зависит от множества факторов: от ошибок в исходных данных, от реализации алгоритма поиска, от величин стартовых значений параметров модели, от типа и уровня шума в данных и связано это с плохой обусловленностью обратной задачи, которая может приводить к сильной неустойчивости решений. То есть, работа нацелена на преодоление основной проблемы МУР – неоднозначности поиска решения. В работе предложен подход, обладающий повышенной устойчивостью к заданию параметров системы в широком диапазоне.

Все полученные в исследовании Крюковой А.Е. данные являются оригинальными и актуальными, а также закладывают основу для дальнейшего развития метода исследования полидисперсных систем, который до сих пор остается недостаточно проработанным.

Предложенный в работе подход является универсальным, поскольку разработки применимы как к данным малоуглового рассеяния рентгеновских лучей (МУРР), так и к данным малоуглового рассеяния нейтронов (МУРН).

## Структура и основное содержание диссертации

Диссертация Крюковой А.Е. содержит введение, четыре главы, основные результаты, два приложения. Каждая глава диссертационной работы имеет заключение, в которых отражены основные результаты, представленные в разделе. В конце работы представлены общие выводы, которые в полной мере отражают основные научные результаты и способствуют лучшему восприятию текста. Диссертация изложена на 125 страницах, включает в себя 16 рисунков и 8 таблиц. Список литературы состоит из 112 наименований цитируемой литературы и 8 публикаций по теме диссертации.

Во введении обозначена актуальность работы, поставлены цель и задачи, отмечены научная новизна и практическая значимость. Определены положения, выносимые на защиту, личный вклад автора. Приведены данные об участиях в конференциях и список публикаций по теме диссертации.

В первой главе диссертационной работы представлен обзор литературных данных. Приводится история развития метода МУР, кратко описаны его основы, детали эксперимента, методы интерпретации данных. Описаны основные алгоритмы для анализа полидисперсных систем: поиск функции распределения частиц по размерам с использованием регуляризации по Тихонову (реализован в программе GNOM), прямой поиск гистограммы распределения по размерам (VOLDIS) и параметрическое задание функции распределения по размерам (MIXTURE/POLYMIX). Кроме того, рассмотрены принципиально разные оптимизационные методы, реализованные в программе MIXTURE в диссертационном исследовании (с целью поиска наиболее эффективного из них): градиентный метод Бройдена-Флетчера-Гольдфарба-Шанно (BFGS), метод многогранника Нелдера-Мида (NM), метод моделирования отжига (SA).

Во второй главе представлены результаты исследования устойчивости решений при анализе теоретических полидисперсных систем методом МУР с использованием программы MIXTURE, в которой реализован градиентный метод BFGS на примере девяти теоретических двухкомпонентных систем сферических частиц. Восстановленные значения параметров распределения сравнивались с их истинными значениями. Причем восстановленное значение считалось правильным, если оно находилось в пределах 5% от заданного. Таким образом были построены контурные графики границ стартовых значений параметров распределений, обеспечивающих сходимость к правильному решению. Кроме того, установлена зависимость решения от типа шума в данных. Оказалось, что наличие пуассоновского

шума с умеренным относительным уровнем играет свою положительную роль при восстановлении решения.

В третьей главе представлен эффективный алгоритм поиска решений при анализе данных МУР, включающий в себя анализ методами регуляризации, прямого поиска гистограммы и в виде суперпозиции гладких аналитических функций. Подход был протестирован как на двухкомпонентных системах, так и на более сложных трехкомпонентных смесях. Описанный подход, позволяющий получать структурную информацию о составе и распределении частиц в системе (в том числе количество компонент и их средние размеры) без каких либо предварительных предположений, является важным элементом метода с расширенной областью устойчивости.

В четвертой главе представлены результаты поиска распределения частиц по размерам по данным МУРР от раствора кремнезоля с применением программы MIXTURE. Была использована стандартная программа с реализованным в ней оптимизационным методом BFGS, а также три новые, в которых реализованы принципиально разные алгоритмы: SA, NM, а также комбинация методов BFGS и SA, требующая определенного контроля. Следует отметить, что комбинация BFGS и SA позволила получить наиболее широкие границы устойчивости по сравнению с другими предложенными методами. Таким образом, в сочетании с алгоритмом поиска стартовых значений параметров, описанных в предыдущей главе, представлен новый метод для поиска распределений частиц по размерам с расширенной областью сходимости.

В заключении диссертации сформулированы основные результаты проведенных исследований, приведены выводы, в которых хорошо отмечено, что сделано впервые.

Затем представлены 2 приложения, в которых продемонстрированы преимущества нового комбинированного подхода поиска распределений частиц по размерам для растворов кремнезоля (приложение А), и для оксида цинка (приложение Б).

Завершают работу список сокращений и условных обозначений, список работ автора по теме диссертации и список цитируемой литературы.

## **Обоснованность и достоверность полученных результатов**

Достоверность представленных в работе результатов подтверждается использованием экспериментальной установки «АМУР-К» (Россия, Москва), алгоритмов поиска распределений частиц по размерам методом МУР, реализованных в основных программах обработки экспериментальных данных: MIXTURE, GNOM, VOLDIS, POLYMIX. Кроме того, достоверность результатов подтверждается наличием большого количества систематических численных исследований различных модельных вариантов, результаты которых отражены в 8 публикациях в рецензируемых научных изданиях, индексируемых международными базами (Scopus, Web of Science) и включенных в перечень ведущих периодических изданий ВАК РФ и тезисами по результатам участия в 13 различных национальных и международных конференциях.

## **Научная ценность и практическая значимость работы**

В работе реализован комплексный подход к исследованию устойчивости решений задачи поиска распределений частиц по размерам для смесей полидисперсных частиц сферической формы, включающий построение двумерных контурных графиков с границами стартовых значений параметров распределений, обеспечивающих сходимость к правильному решению, анализ эффективности четырех различных оптимизационных схем, создание на этой основе новой схемы комбинированного использования алгоритмов поиска распределений наночастиц по размерам, программную реализацию предложенного подхода и демонстрацию его работоспособности при восстановлении распределений для модельных полидисперсных систем, а также для экспериментальных данных МУР в двухкомпонентных системах. В результате работы экспериментально продемонстрировано превосходство предложенного метода перед обычно применяемыми схемами оптимизации. Представленная в работе схема позволяет расширить диапазон сходимости к точному решению обратной задачи для получения распределения частиц по размерам по данным МУР и может быть успешно использована при проведении исследований и характеристики функциональных материалов. Таким образом практическая значимость работы не вызывает сомнения. А научная новизна, как уже отмечалось выше, подтверждается большим количеством опубликованных статей по теме диссертации.

## **Замечания по диссертации**

1) На стр. 60 описано три типа модельных систем: А, Б, В. При этом используются термины: «узкие и широкие» распределения, «перекрывающиеся и неперекрывающиеся» распределения. Какие математические критерии использовались в определении этих терминов?

2) На стр. 100 в Приложении А «АНАЛИЗ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ДАННЫХ МАЛОУГЛОВОГО РЕНТГЕНОВСКОГО РАССЕЙНИЯ ОТ РАСТВОРА КРЕМНЕЗОЛЯ» читаем: «на кривой рассеяния от меньших частиц кремнезоля SM наклон меньше, что характерно для частиц с меньшей степенью агрегации». Не ясно, о какой агрегации идет речь. На стр. 86 сказано, что «растворы изначально стабилизировались для предотвращения агрегации».

3) При проведении экспериментов МУРР на реальных растворах как на практике проверялось отсутствие эффекта структурного фактора?

4) В определении эффекта структурного фактора используется очень приблизительная формула (1.13) с локально-монодисперсным приближением, которое фактически не используется в обработке данных. В данной ситуации правильнее было бы записать точное выражение со смешанными парциальными структурными факторами и сказать, что их эффектом можно пренебречь. Если приведение формулы (1.13) некоторым образом определяет дальнейший план по расширению подхода с учетом эффекта структурного фактора, то я бы рекомендовал сначала рассмотреть случаи с точным аналитическим решением для интенсивности рассеяния, например, модель взаимодействующих полидисперсных жестких сфер.

Приведенные замечания не снижают общей высокой оценки диссертации, не влияют на общее впечатление о работе и на положительную оценку.

## **Итоговое заключение**

Диссертация оформлена в соответствии с требованиями ВАК. Стиль изложения диссертации четкий и ясный. Многочисленные цветные рисунки (в частности - контурные графики границ стартовых значений параметров распределений) хорошо иллюстрируют основные результаты, полученные путем многочисленных аналитических и компьютерных расчетов. Содержание автореферата и диссертации соответствуют друг другу.

Личный вклад диссертанта не подлежит сомнению. Все результаты, представленные в работе, получены лично автором, либо при его непосредственном участии. Обсуждение результатов и их интерпретация проводились совместно с научным руководителем и соавторами публикаций.

Диссертационная работа является законченным исследованием и полностью соответствует критериям, предъявляемым к кандидатским диссертациям, установленным согласно разделу 2 «Положения о порядке присуждения ученых степеней» от 24 сентября 2013 г. №842, утвержденного постановлением Правительства Российской Федерации, а ее автор, Крюкова Алёна Евгеньевна, заслуживает присуждения ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 1.3.8 – «Физика конденсированного состояния».

**Официальный оппонент:**

д.ф.-м.н., начальник сектора нейтронной оптики Лаборатории нейтронной физики им. И.М. Франка, Международной правительственной организации Объединенный институт ядерных исследований (ЛНФ ОИЯИ)

**Авдеев Михаил Васильевич**



«22» 09 2022 г.

Специальность, по которой официальным оппонентом защищена диссертация: 01.04.07 – физика конденсированного состояния

Адрес места работы: 141980, Московская обл., г. Дубна, ул. Жолио-Кюри, 6  
Тел.: 8(496)216-26-74  
Email: avd@nf.jinr.ru

Подпись Авдеева М.В. заверяю  
Ученый секретарь ЛНФ ОИЯИ



Д. Худоба