

ЗАКЛЮЧЕНИЕ ДИССЕРТАЦИОННОГО СОВЕТА 24.1.245.01 НА БАЗЕ
ФЕДЕРАЛЬНОГО ГОСУДАРСТВЕННОГО УЧРЕЖДЕНИЯ «ФЕДЕРАЛЬНЫЙ
НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ЦЕНТР «КРИСТАЛЛОГРАФИЯ И
ФОТОНИКА» РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК» ПО ДИССЕРТАЦИИ
КРЮКОВОЙ АЛЁНЫ ЕВГЕНЬЕВНЫ НА СОИСКАНИЕ УЧЁНОЙ СТЕПЕНИ
КАНДИДАТА ФИЗИКО-МАТЕМАТИЧЕСКИХ НАУК

аттестационное дело № _____

решение диссертационного совета от 11 октября 2022 г., протокол № 8

О присуждении **Крюковой Алёне Евгеньевне**, гражданке Российской Федерации, учёной степени кандидата физико-математических наук.

Диссертация «Комбинированный подход к поиску распределений размеров сферических наночастиц по данным малоуглового рентгеновского рассеяния» принята к защите 12.07.2022 г., протокол № 5, диссертационным советом 24.1.245.01 на базе Федерального государственного учреждения «Федеральный научно-исследовательский центр «Кристаллография и фотоника» Российской академии наук» (ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН), Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (Минобрнауки России), 119333, г. Москва, Ленинский проспект, дом 59. Диссертационный совет 24.1.245.01 создан приказом Федеральной службы по надзору в сфере образования и науки № 105/нк от 11.04.2012 г.

Соискатель Крюкова Алёна Евгеньевна, 1992 г.р., в 2016 г. окончила кафедру лазерной физики факультета «Высший физический колледж» Федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего профессионального образования «Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ»» по специальности физика конденсированного состояния вещества. В настоящее время Крюкова А.Е. работает в лаборатории рефлектометрии и малоуглового рассеяния структурного подразделения ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН – «Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова РАН» (ИК РАН), Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в должности младшего научного сотрудника.

Диссертационная работа выполнена в лаборатории рефлектометрии и малоуглового рассеяния структурного подразделения ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН – «Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова РАН» (ИК РАН), Министерства науки и высшего образования Российской Федерации.

Научный руководитель – **Конарев Петр Валерьевич**, кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник лаборатории рефлектометрии и малоуглового рассеяния Института кристаллографии им. А.В. Шубникова ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН.

Официальные оппоненты:

Авдеев Михаил Васильевич, доктор физико-математических наук, начальник сектора нейтронной оптики Лаборатории нейтронной физики им. И.М. Франка Объединенного института ядерных исследований.

Ларичев Юрий Васильевич, кандидат химических наук, старший научный сотрудник отдела исследования катализаторов Института катализа им. Г.К. Борескова ФИЦ СО РАН.

— дали **положительные отзывы** на диссертацию.

Ведущая организация **Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ»** (г. Москва) в своём **положительном отзыве**, подписанном доктором физико-математических наук, доцентом, и. о. заведующим кафедрой физики твердого тела и наносистем НИЯУ МИФИ И.А. Рудневым, доктором физико-математических наук, доцентом, директором Института лазерных и плазменных технологий НИЯУ МИФИ А.П. Кузнецовым, доктором физико-математических наук, профессором, председателем Совета по аттестации и подготовке научно-педагогических кадров Н.А. Кудряшовым и утвержденном доктором физико-математических наук, ректором НИЯУ МИФИ Шевченко Владимиром Игоревичем, указала, что диссертационная работа Крюковой Алёны Евгеньевны «Комбинированный подход к поиску распределений размеров сферических наночастиц по данным малоуглового рентгеновского рассеяния» посвящена поиску распределений частиц по размерам при анализе полидисперсных систем сферических частиц. Актуальность представленной диссертационной работы состоит в том, что исследовать полидисперсные системы типа нанокомпозитов, гелей, полимеров и пр., свойства которых коррелируют с формой функции распределения частиц по размерам гораздо труднее, чем монодисперсные, так как анализ данных становится более неоднозначным. В диссертационной работе разработан подход, позволяющий частично преодолеть проблему неоднозначности за счет увеличения диапазона устойчивых решений и повышающий тем самым надежность анализа данных малоуглового рассеяния (МУР), что чрезвычайно востребовано на практике.

Научная новизна рассматриваемой работы заключается в предложенном новом методе поиска размерных распределений наночастиц полидисперсных систем с расширенной областью сходимости. Анализ разбивается на два этапа. На первом определяются стартовые значения параметров системы путем последовательного сочетания прямого поиска распределений с регуляризацией, прямого поиска гистограммы и поиска распределения в виде суперпозиции гладких аналитических функций. Это позволяет проводить эффективную оценку стартовых значений параметров, в том числе для систем, для которых отсутствует априорная информация о количестве компонентов и средних размерах частиц. Определение корректных стартовых параметров нередко оказывается сложной задачей и, если они окажутся далеки от истинных, получение адекватных результатов моделирования окажется весьма затруднительным. На завершающем этапе анализа данных МУР используется сочетание градиентного метода минимизации в варианте Бройдена-Флетчера-Гольдфарба-Шанно и метода имитации отжига. Данная оптимальная схема комбинированного использования алгоритмов была определена в результате сравнения эффективности работы различных оптимизационных алгоритмов.

Новизна работы заключается также в том, что впервые проведено систематическое исследование устойчивости решений обратной задачи определения структурных параметров наночастиц по данным малоуглового рассеяния для сложных полидисперсных систем и исследовано влияние шумовой составляющей данных МУР на поиск распределения частиц по размерам.

Материал диссертационной работы изложен грамотно, последовательно и аккуратно с использованием адекватной терминологии, строго соблюдаемой по тексту. Рисунки, графики и таблицы хорошо иллюстрируют и дополняют содержание текста.

Таким образом, диссертационная работа «Комбинированный подход к поиску распределений размеров сферических наночастиц по данным малоуглового рентгеновского рассеяния» является законченной научно-исследовательской работой, удовлетворяющей требованиям ВАК, предъявляемым к кандидатским диссертациям, а её автор, Крюкова Алёна Евгеньевна, заслуживает присуждения ей степени кандидата физико-математических наук по специальности 1.3.8. – «Физика конденсированного состояния» за вклад в разработку методов анализа данных малоуглового рассеяния, а именно детальное изучение проблем устойчивости решений задач малоуглового рассеяния и развитие нового подхода к поиску распределений размеров сферических наночастиц по данным малоуглового рентгеновского рассеяния с расширенной областью сходимости.

Выбор официальных оппонентов и ведущей организации обосновывается тем, что оппоненты являются ведущими специалистами в области физики конденсированного состояния, рентгеновских и нейтронных методов анализа, а в ведущей организации активно проводятся фундаментальные и прикладные исследования в области физики твердого тела, функциональных материалов, тонких плёнок и наноструктур с перспективными физическими свойствами.

В основе диссертации лежат результаты, представленные в 8 печатных работах, а также представлены доклады на национальных и международных научных конференциях.

Наиболее значимые научные работы по теме диссертации:

1. **Крюкова А.Е.**, Конарев, П.В., Волков, В.В. Исследование устойчивости решений при анализе полидисперсных систем методом малоуглового рассеяния // Кристаллография. – 2018. – Т. 63, № 1. – С. 32-37.

2. **Kryukova A.E.**, Konarev, P.V., Volkov, V.V., Asadchikov, V.E. Restoring silicasol structural parameters using gradient and simulation annealing optimization schemes from small-angle X-ray scattering data // Journal of Molecular Liquids. – 2019. – V. 283. – P. 221-224.

3. Волков В.В., Конарев П.В., **Крюкова А.Е.** Комбинированная схема восстановления функции распределения частиц по размерам с использованием данных малоуглового рассеяния // Письма в ЖЭТФ. – 2020. – Т. 112, № 9. – С. 632-636.

4. **Крюкова А.Е.**, Конарев, П.В., Волков, В.В. Поиск эффективного алгоритма для восстановления решений при анализе данных малоуглового рассеяния от раствора кремнезоля // Кристаллография. – 2021. – Т. 66, № 5. – С. 730-737.

На диссертацию и автореферат поступило **7 положительных отзывов.**

1. Бойко Константин Михайлович – к.б.н., старший научный сотрудник лаборатории

инженерной энзимологии Федерального государственного учреждения "Федерального исследовательского центра «Фундаментальные основы биотехнологии» Российской академии наук" (ФИЦ Биотехнологии РАН) отметил следующие замечания: наличие некоторого количества опечаток (в частности, в автореферате) и упоминание в работе одновременно двух единиц длины - нм и Å, что нарушает единообразие.

2. Герке Кирилл Миронович – к.ф.-м.н., ведущий научный сотрудник лаборатории фундаментальных проблем нефтегазовой геофизики и геофизического мониторинга Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института физики земли им. О.Ю. Шмидта Российской академии наук (ИФЗ РАН) отметил следующее замечание: в главе 4 не очень полно описано, как возникла идея комбинации квазиньютоновского градиентного метода оптимизации и метода моделирования отжига.

3. Менушенков Алексей Павлович – д.ф.-м.н., профессор кафедры физики твердого тела и наносистем Федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования "Национальный исследовательский ядерный университет "МИФИ" (НИЯУ "МИФИ") отметил следующие замечания: в автореферате очень кратко описаны результаты применения метода к реальным объектам, приведенные в приложениях диссертации, хотя ссылка на текст диссертации имеется. Вероятно, это связано с ограниченностью объема автореферата.

4. Велигжанин Алексей Александрович – к.ф.-м.н., начальник отдела синхротронных экспериментальных станций Курчатовского комплекса синхротронно-нейтронных исследований Федерального государственного бюджетного учреждения "Национальный исследовательский центр "Курчатовский институт" (НИЦ "Курчатовский институт") отметил следующие замечания:

1. Положения на защиту сформулированы не в форме утверждений, что не позволяет их «защитить» или опровергнуть.

2. В автореферате утверждается, что при добавлении к данным пуассоновского шума величиной 25% происходит расширение диапазона сходимости решения, но не приведены какие-либо объяснения данному явлению. В частности, полезно было бы исследовать, как диапазон сходимости изменяется по мере роста величины шума.

3. Сложно воспринять, насколько велики диапазоны изменений величин на рисунках 5 и 7, поскольку координатные оси приведены в абсолютных единицах. Возможно, удобнее было бы выразить координаты в процентах от истинной величины.

5. Ксенофонов Александр Леонидович – к.х.н., ведущий научный сотрудник отдела хроматографического анализа Института физико-химической биологии им. А.Н. Белозерского (НИИ ФХБ) – без замечаний.

6. Можяев Андрей Александрович – к.х.н., научный сотрудник лаборатории молекулярных технологий Института биоорганической химии им. академиком М.М. Шемакина и Ю.А. Овчинникова РАН (ИБХ РАН) отметил следующее пожелание: хотелось бы более подробного описания причин выбора стартовых значений параметров для модельных систем, а также диапазона, в пределах которого проводился поиск решения.

7. Батищев Олег Вячеславович – д.ф.-м.н., доцент, заместитель директора Института

физической химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина РАН (ИФХЭ РАН) по научной работе, отметил следующие замечания: в главах 2 и 4 проведены систематические исследования на устойчивость, при которых значений только двух стартовых параметров варьировались в некотором диапазоне, а остальные фиксировались. Но остается неясным, сохранится ли устойчивость при варьировании всех возможных параметров. Кроме того, в автореферате приведены слишком мелкие подписи к некоторым рисункам, затрудняющие восприятие материала, и небольшое количество опечаток.

Диссертационный совет отмечает, что на основании выполненных соискателем исследований разработан новый комбинированный подход, позволяющий с использованием ряда численных методов существенно расширить область сходимости к правильному решению в многомерном пространстве стартовых параметров модели и улучшить надежность анализа данных малоуглового рассеяния. **Проведен** анализ литературных данных, включающий основные алгоритмы анализа полидисперсных систем и ряд оптимизационных схем, используемых в исследовании. **Впервые выполнено** систематическое исследование устойчивости решений задачи поиска распределений сферических частиц по размерам из данных малоуглового рассеяния с помощью различных минимизационных методов поиска. **Анализ проведен** на ряде модельных и реальных объектов, состоящих из двух типов полидисперсных систем сферических частиц с перекрывающимися и частично перекрывающимися распределениями. **Определены** диапазоны сходимости решений при изменении одного и двух стартовых параметров модели в виде двумерных карт допустимых начальных значений среднего размера и полуширины распределений. По результатам модельных экспериментов были **выработаны рекомендации** для модифицирования программ POLY MIX и VOLDIS с целью повышения их эффективности. **Впервые** с использованием данных малоуглового рассеяния от раствора кремнезоля в сферическом приближении формы частиц **проведено сравнение эффективности** четырех минимизационных схем поиска распределений по размерам: метода многогранника Нелдера-Мида, метода моделирования отжига, квазиньютоновского градиентного метода Бройдена-Флетчера-Гольдфарба-Шанно и нового подхода – сочетания градиентного метода и метода моделирования отжига. Анализ полученных данных **позволил расположить** методы в порядке возрастания их эффективности: а) метод Нелдера-Мида, б) метод моделирования отжига, в) метод Бройдена-Флетчера-Гольдфарба-Шанно, г) комбинация метода Бройдена-Флетчера-Гольдфарба-Шанно и метода моделирования отжига. Каждый метод был **реализован** в виде модификации программы MIXTURE. **Впервые предложена** схема поиска распределений размеров частиц по данным малоуглового рассеяния, сочетающая в себе последовательный анализ методами прямого поиска с помощью регуляризации, непараметрического сглаживания распределения и в виде суперпозиции гладких аналитических функций. При этом результаты, полученные методами прямого поиска, используют для построения стартовых приближений для суперпозиционного метода. Такой подход позволил **расширить** диапазон сходимости к точному решению обратной задачи в

пространстве параметров, описывающих структурную модель исследуемой системы во всех рассмотренных случаях с разбросом не хуже 1% по параметрам распределения. **Анализ проведен** на примере двух- и трехкомпонентных модельных полидисперсных систем сферических частиц. **Впервые разработана** схема комбинирования методов поиска распределений с чередованием двух принципиально разных алгоритмов минимизации – квазиньютоновского градиентного поиска Бройдена-Флетчера-Гольдфарба-Шанно и метода моделирования отжига. Данная **схема позволила расширить** область допустимых стартовых значений параметров модели, при которых возможно нахождение параметров распределений с разбросом не хуже 5%, что минимум на 15% лучше, по сравнению с подходами, основанными на использовании только одного из методов поиска. Комбинированный **подход может быть использован** как завершающий этап последовательного анализа методами прямого поиска с помощью регуляризации, непараметрического сглаживания распределения и в виде суперпозиции гладких аналитических функций. В совокупности, предложенные **схемы представляют** собой метод поиска распределений сферических частиц по размерам с расширенной областью сходимости. **Впервые** для теоретических двухкомпонентных полидисперсных систем сферических частиц **проведено исследование** влияния уровня шумов в данных малоуглового рассеяния на устойчивость решений. **Показано**, что добавление к данным гауссовского шума уменьшает диапазоны допустимых стартовых значений параметров при поиске истинного решения, а наличие пуассоновского шума с относительным уровнем 25% в области малых интенсивностей наоборот расширяет. Эффективность работы предложенных схем поиска распределений частиц по размерам с расширенной областью сходимости **продемонстрирована на примерах** анализа данных рассеяния от растворов кремнезоль и полимерных матриц с наночастицами оксида цинка.

Значение полученных соискателем результатов исследований для практики подтверждается тем, что поиск распределений частиц по размерам с расширенной областью сходимости может быть применен к исследованию любых полидисперсных систем. Так, например, в работе исследован раствор кремнезоля, область применения которых сильно зависят от размеров частиц. Кроме того, с использованием данного подхода можно исследовать белковые объекты. В частности, на основе анализа распределений частиц по размерам можно делать предположения об олигомерном составе белковых растворов, что позволяет в дальнейшем проводить более детальное моделирование с использованием структурных моделей высокого разрешения.

Оценка достоверности результатов определяется тем, что экспериментальные данные были получены автором на современном оборудовании с использованием стандартных апробированных методов диагностики материалов и структур, а также обусловлена проведением взаимодополняющих экспериментов с последующим комплексным анализом данных, а также сравнением с существующими литературными данными. По материалам диссертационной работы опубликовано **8 статей** в изданиях, индексируемых базами данных Web of Science и Scopus и входящих в перечень ведущих

периодических изданий ВАК. Результаты исследования прошли апробацию на 9-и международных и 4-х всероссийских конференциях.

Личный вклад соискателя состоит в проведении всей обработки данных малоуглового рассеяния от многокомпонентных систем с использованием поиска параметрических и непараметрических моделей распределений методами линейных и нелинейных наименьших квадратов. Автор выполнил систематическое исследование устойчивости квазиньютоновского градиентного метода минимизации на большой серии модельных задач с теоретическими мультимодальными распределениями. Автор непосредственно участвовал в процессе разработки модифицированного алгоритма поиска распределения частиц по размерам, реализованного в программах MIXTURE и POLYMIX, в части автоматизации подбора стартовых значений параметров. Автор активно участвовал в подготовке материалов для публикаций в рецензируемых научных журналах и докладов на национальных и международных научных конференциях по теме диссертации.

Диссертация отвечает на ключевые вопросы поставленной научной проблемы и соответствует критерию внутреннего единства. Объединяющим фактором и основной идейной линией являются анализ устойчивости восстановления распределений частиц по размерам для сложных полидисперсных систем сферических частиц на основе данных малоуглового рассеяния.

Диссертация представляет собой законченную научно-квалификационную работу, которая полностью соответствует критериям, установленным Положением о порядке присуждения учёных степеней, утверждённым постановлением Правительства Российской Федерации от 24 сентября 2013 г. № 842 (в действующей редакции).

На заседании 11 октября 2022 года диссертационный совет принял решение присудить Крюковой Алёне Евгеньевне ученую степень кандидата физико-математических наук по специальности 1.3.8. (01.04.07) – «физика конденсированного состояния».

При проведении тайного голосования диссертационный совет в количестве 18 человек, из них 6 докторов наук по специальности 1.3.8. (01.04.07) – «физика конденсированного состояния», участвовавших в заседании, из 25 человек, входящих в состав совета, проголосовали: за – 16, против – 0, недействительных бюллетеней – 2.

Заместитель председателя диссертационного совета,
доктор физико-математических наук

В.М. Каневский

Учёный секретарь диссертационного совета,
кандидат физико-математических наук

К.В. Фролов

«11» октября 2022 г.

Ученый секретарь
ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН
кандидат физико-математических наук



Л.А. Дадинова