

ОТЗЫВ ОФИЦИАЛЬНОГО ОППОНЕНТА

на диссертационную работу Русалева Юрия Владимировича «Определение взаимосвязи между локальной атомной структурой наноматериалов, их стабильностью и каталитическими свойствами методами суперкомпьютерного моделирования и машинного обучения», представленную на соискание учёной степени кандидата физико-математических наук по специальности 2.6.6 – Нанотехнологии и наноматериалы (физико-математические науки).

Диссертационная работа Русалева Юрия Владимировича посвящена исследованию и разработке подходов для многомасштабного моделирования свойств материалов с использованием потенциалов межатомного взаимодействия типа ReaxFF. Потенциалы данного типа были использованы для анализа стабильности и механических свойств плёнок и наночастиц, в том числе биметаллических. Применение машинного обучения в работе позволило проанализировать большие объёмы экспериментальных данных для выявления связи между параметрами установки напыления и результирующей твёрдостью покрытий, что важно для практического применения. Интересной особенностью данной работы является экспериментальная методика, позволяющая найти связь между структурой и каталитическими свойствами материалов. В работе она продемонстрирована на примере изучения локальной атомной структуры каталитических центров оксида меди на носителе из оксида церия непосредственно в ходе реакции окисления СО с помощью рентгеновской спектроскопии поглощения. Данное исследование посвящено актуальной и практически важной задаче, которую можно сформулировать, как разработка методов для диагностики и ускоренного создания наноматериалов, применяемых в промышленности.

Структура диссертации Ю.В. Русалева включает в себя введение, три основные главы, заключение, список литературы из 164 наименований, 8 публикаций автора по тематике диссертационного исследования. Работа изложена на 119 страницах, включая 39 рисунков и 12 таблиц.

Во введении приводятся цели и задачи исследования, обосновывается актуальность данной работы, формулируется научная новизна и практическая значимость работы. Первая глава содержит обзор современного состояния исследований по тематике диссертационного исследования. Во второй главе описаны детали расчётов молекулярной динамики и Монте-Карло, расчётов с помощью теории функционала плотности. Также приводится описание, использованных алгоритмов машинного обучения и экспериментальные подробности измерения спектров на синхротроне. Третья глава, содержит основные результаты научно-исследовательской работы. В заключении кратко представлены основные результаты работы и сформулированы выводы.

В ходе исследования была изучена взаимосвязь между локальной атомной структурой материалов и их свойствами. Так, для систем палладий-золото были созданы потенциалы типа ReaxFF. С полученными потенциалами в расчётах молекулярной динамики и Монте-Карло было исследовано упорядочение в сплавах и наночастицах с различной концентрацией палладия и золота.

С помощью методов молекулярной динамики были проведено моделирование эксперимента по наноиндентированию тонких плёнок, что позволяет исследовать механические и трибологические свойства покрытий, применяемых в промышленности.

Стоит также отметить и применение современных методов машинного обучения для исследования наноматериалов. Например, использованный алгоритм адаптивного построения выборки позволяет сократить количество ресурсоёмких расчётов для задачи предсказания энергии адсорбции молекул на поверхности катализатора.

Работа имеет экспериментальную часть, в которой исследуется зарядовое состояние активных центров катализатора в ходе реакции с помощью спектроскопии рентгеновского поглощения с временным разрешением. Описанные результаты определяют научную новизну данной диссертационной работы.

Достоверность и практическая значимость диссертационного исследования подтверждаются применением ряда современных экспериментальных методик и подходов к анализу данных на основе машинного обучения и компьютерного моделирования. Расчёты выполнены на суперкомпьютере Института интеллектуальных материалов ЮФУ с помощью таких программных комплексов, как VASP, LAMMPS, SCM AMS. Экспериментальная часть работы по измерению спектров рентгеновского поглощения с временным разрешением выполнена в швейцарском синхротронном центре SLS. Полученные данные обработаны и представлены корректным образом. Все это в совокупности свидетельствует о высокой квалификации Русалева Юрия Владимировича и подтверждает достоверность представленных данных.

При прочтении диссертации возникло несколько замечаний.

1) В разделе, посвящённом обзору современного состояния литературы по тематике диссертации недостаточно внимания уделено описанию примеров применения межатомных потенциалов, созданных на основе нейронных сетей. Остаётся нераскрытым вопрос, почему автор остановился именно на подходе ReaxFF для системы палладий-золото.

2) При составлении базы данных результатов напыления покрытий и анализа их твёрдости методами машинного обучения автор остановился на методе магнетронных распылительных систем с постоянным током. Однако у таких систем есть важный параметр конфигурации магнитного поля в рабочей камере. Результат напыления будет зависеть от наличия несбалансированных линий магнитного поля и степени несбалансированности. Как степень несбалансированности учтена в обучающей выборке? Возможно, включение этого дополнительного численного параметра улучшит качество предсказания. Также представляет практический интерес расширения методики на область импульсных и радиочастотных магнетронов, однако, автор не приводит анализа такой возможности.

3) В главе, посвящённой исследованию твёрдости покрытий в качестве материала использовался металлический кобальт. Почему автор остановился на

выборе этого материала для численного моделирования, а не исследовал твёрдость покрытий из нитрида титана или сплавов палладий-золото, которые обсуждаются в других разделах диссертации? Возникает вопрос и к процедуре отжига плёнок, выполненного методом молекулярной динамики. Почему автор остановился именно на такой скорости охлаждения? Для достижения глобального минимума следует применять комбинацию методов молекулярной динамики и Монте-Карло, однако в данной главе такой подход не описан.

4) В разделе, посвящённом рентгеноспектральной диагностике катализатора Cu/CeO₂ автор приводит значения концентрации ионов Cu⁺ в ходе эксперимента, полученную на основе данных XANES за К-краем меди. Однако в тексте не описано, как именно получены данные значения и какова погрешность определения концентрации таких дефектов. Представляет практический интерес количественное описание локальной атомной структуры атомов меди со степенью окисления +2 и +1 в ходе циклирования. В тексте обсуждается возможная координация центров меди молекулами СО. Проводил ли автор теоретическое моделирование спектров поглощения при наличии адсорбатов и как эти вычисления согласуются с экспериментом?

5) В работе в качестве предсказания качества моделей использовался коэффициент детерминации, средняя абсолютная ошибка (MAE) и средняя квадратичная ошибка (MSE) – стр. 38 в диссертации. Автор фактически привёл формулу для дисперсии (MSE), в русской литературе под средней квадратической ошибкой понимается квадратный корень из дисперсии. Почему также не анализировались коэффициенты регрессии, которые говорят о тесноте связи и коэффициенты аппроксимации который показывает степень соответствия предложенной модели исходным данным.

6) С методической точки зрения неправильно называть используемые в работе функционалы в рамках DFT как первопринципные (*ab initio*) так как все они основаны на приближенных формулах и содержат эмпирические поправки.

7) Список литературы оформлен в стиле отличном от текста диссертации.

В заключении следует отметить, что сделанные замечания имеют частный характер и не снижают общей положительной оценки работы. Основные защищаемые положения диссертации обоснованы, характеризуются научной новизной и практической значимостью.

Всё вышеизложенное позволяет с полным основанием считать, что представленная к защите диссертационная работа Русалева Юрия Владимировича выполнена на высоком научном уровне и полностью отвечает критериям раздела 2 Положения о присуждении учёных степеней в Федеральном государственном автономном образовательном учреждении высшего образования «Южный Федеральный Университет», предъявляемым к диссертациям на соискание учёной степени кандидата наук, а соискатель – Русалев Юрий Владимирович заслуживает присуждения учёной степени кандидата физико-математических наук по специальности 2.6.6 – Нанотехнологии и наноматериалы (физико-математические науки).

Официальный оппонент:

Томилин Феликс Николаевич, кандидат химических наук (специальность 02.00.04 – физическая химия), Федеральное государственное бюджетное научное учреждение «Федеральный исследовательский центр «Красноярский научный центр Сибирского отделения Российской академии наук» (ФИЦ КНЦ СО РАН), Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук – обособленное подразделение ФИЦ КНЦ СО РАН, старший научный сотрудник, Лаборатория физики магнитных явлений (Адрес: 660036 г. Красноярск Академгородок, 50, строение 38, тел.: + (3912)43-26-35, e-mail: dn@iph.krasn.ru)

12.02.2024 г.

Согласен на обработку моих персональных данных

Подпись Томилина Ф.
Зав. кафедрой
уч. секретарь



Томилов