На правах рукописи

Кучко Артем Владимирович

РАЗРАБОТКА МАТЕМАТИЧЕСКИХ МЕТОДОВ ИНТЕРПРЕТАЦИИ ДАННЫХ МАЛОУГЛОВОГО РЕНТГЕНОВСКОГО РАССЕЯНИЯ ОТ ПОЛИДИСПЕРСНОЙ СИСТЕМЫ НАНОЧАСТИЦ

Специальность 1.3.2 — «Приборы и методы экспериментальной физики»

АВТОРЕФЕРАТ
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Санкт – Петербург 2025

Работа выполнена в федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институт аналитического приборостроения Российской академии наук (ИАП РАН).

Научный руководитель:

кандидат физико-математических наук, старший преподаватель физического факультета Санкт-Петербургского национального исследовательского университета информационных технологий механики оптики. — **Смирнов Александр Витальевич**

Официальные оппоненты:

доктор химических наук, ведущий научный сотрудник лаборатории рефлектометрии и малоуглового рентгеновского рассеяния Института кристаллографии им. А.В. Шубникова ФНИЦ «Кристаллографии и Фотоники». — **Волков Владимир Владимирович**

кандидат физико-математических наук, доцент кафедры вычислительной физики Санкт-Петербургского государственного университета — **Монахов Вадим Валериевич**

Ведущая организация:

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки «Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук»

Защита состоится «11» февраля 2026 года в 11:00 на заседании Диссертационного совета 24.1.029.01 на базе федерального государственного бюджетного учреждения науки Институт аналитического приборостроения Российской академии наук (ИАП РАН по адресу: 198095, а/я 140, Санкт Петербург, ул. Ивана Черных, 31-33, лит. А.)

С диссертацией можно ознакомиться в научно-технической библиотеке ИАП РАН по тому же адресу и на сайте в сети Интернет по ссылке: https://iairas.ru/.

Отзывы на диссертацию и автореферат направлять по адресу: 198095, а/я 140, Санкт-Петербург, ул. Ивана Черных, 31-33, лит. А, ИАП РАН, Диссертационный совет.

Автореферат разослан « » _____ 202_ года.

Ученый секретарь Диссертационного совета,
доктор физико-математических наук — Буляница А.Л.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность проблемы. Частицы, размеры которых лежат в диапазоне 1…100 нм (наночастицы), имеют множество научных и промышленных применений ввиду их особых физико-химических, электромагнитных, оптических и, механических свойств. Материалы, содержащие в своем составе такие частицы, используются при изготовлении электронных, оптических и магнитных устройств; при создании специальных керамик, композитных материалов, катализаторов химических реакций, люминесцентных биологических меток и химических сенсоров; в медицине, фармацевтике, нанобиотехнологических разработках. Физические и химические свойства этих материалов существенно зависят от морфологических, структурных и размерных параметров наночастиц. Определение указанных параметров является неотъемлемой задачей для разработки технологий синтеза и применения материалов на основе наночастиц. Получаемые с помощью существующих методов порошки из наночастиц из-за разброса параметров (прежде всего размеров) представляют собой полидисперсные системы.

Малоугловое рентгеновское рассеяние (МУРР) широко используется для получения информации о структуре материалов, содержащих в своем составе наночастицы. Этот метод позволяет исследовать образцы самых разных типов: аэрозоли, коллоидные суспензии, сухие порошки и композитные материалы. По сравнению с другими методами МУРР обеспечивают статистически наиболее достоверную информацию, так как в одном исследовании одновременно определяются усредненные параметры большого количества частиц.

Интенсивность МУРР от полидисперсной системы связана интегральным соотношением с распределением размеров единичных рассеивателей (частиц), их, морфологическими и размерными параметрами. Задача определения по данным МУРР основной структурной характеристики полидисперсной системы – распределения размеров частиц – относится к классу обратных задач. Для решения этой задачи существенную роль играет выбор модели единичной частицы и совокупный учет всей информации, полученной об исследуемой системе независимыми экспериментальными методами.

Степень разработки проблемы. Существующие методы решения обратной задачи моделирования полидисперсной системы на основе данных МУРР ориентированы на поиск распределения по параметрам, специфичным для каждой предполагаемой модели единичной частицы. Такой подход не позволяет проводить сравнение распределений, найденных по одной кривой рассеяния при разных гипотезах о форме частиц, и затрудняет проверку эффективности метода решения рассматриваемой обратной задачи с точки зрения его способности идентифицировать модель единичной частицы. В теории рентгеновского рассеяния имеется универсальный параметр – радиус гирации, который применим для описания частицы любой формы.

Кроме того, в большинстве исследований под распределением по размерам понимают распределение количества частиц. Для практических нужд, несомненно, важнее распределение объемных долей частиц. В данной работе предлагается в качестве основной функции, описывающей полидисперсную систему, использовать функцию $f\left(R_g\right)$ распределения объемных полей по радиусам гирации (Volume fraction distribution function, в дальнейшем — VFDF).

В программных пакетах, поставляемых с оборудованием для изучения МУРР, традиционно используются алгоритмы, основанные на самых простых методах поиска распределения, при которых могут быть найдены только параметры распределения заранее заданного вида (распределение Гаусса, Шульца-Зимма и т.п.). Такой метод решения, как правило, позволяет для данной индикатрисы рассеяния найти наилучшее распределение заданного вида при заданной форме рассеивателя, но дает ложное решение, если неверно угадана форма рассеивателя или вид распределения.

Разработка лишенного указанных недостатков метода моделирования полидисперсной системы является основой для совершенствования аппаратуры и экспериментальной методики в области исследование полидисперсных систем с помощью МУРР.

По результатам сравнения методов поиска модельных распределений в качестве основного инструмента вычисления VFDF был выбран метод байесовского анализа (МБА). В отечественной литературе этот метод также известен как метод статистической регуляризации [1].

Целью работы является разработка методов решения обратной задачи моделирования систем наночастиц для расширения возможностей интерпретации экспериментальных данных МУРР.

В предлагаемой работе были поставлены и решены следующие задачи:

1. Разработка метода интерпретации данных МУРР от полидисперсной системы, использующего универсальную для всех типов рассеивающих объектов функцию распределения
2. Разработка численного метода для вычисления универсальной функции распределения по данным малоуглового рентгеновского эксперимента в отсутствие межчастичной интерференции.
3. Разработка метода обработки данных МУРР для случая, когда вклад межчастичной интерференции в интенсивность рассеяния существенен
4. Тестирование методов на имитационных и натурных кривых.
5. Создание соответствующего программного обеспечения

Научная новизна работы

1. Предложен способ интерпретации данных МУРР от полидисперсной системы, использующий универсальную для всех типов рассеивающих объектов функцию распределения (VFDF).

2. Метод байесовского анализа адаптирован для вычисления VFDF по данным малоуглового рентгеновского эксперимента в отсутствие межчастичной интерференции.

3. Разработан итерационный метод обработки данных МУРР, учитывающий вклад межчастичной интерференции в интенсивность рассеяния

Объект исследования

Объектом исследования являются математические модели рассеивающей полидисперсной системы наночастиц.

Предмет исследования

Предметом исследования являются математические методы решения обратной задачи МУРР для полидисперсных систем; методы валидации моделей;

Теоретическая значимость

Теоретическая значимость работы определяется введением универсальной функции распределения VFDF, с соответствующим расширением постановки задачи моделирования полидисперсной системы наночастиц на основе интенсивности МУРР, развитие метода Байесовского анализа для решения обратной задачи моделирования рассеивающей системы. Полученные методы моделирования и валидации модели применимы для широкого класса систем рассеивателей. Разработанные методы выбора оптимального параметра регуляризации и сетки аргумента VFDF применимы для задач поиска оптимальных параметров регуляризации в других научных областях. Итерационный метод, предложенный для моделирования на основе данных МУРР от плотных систем шарообразных частиц, может быть применен для частиц других форм с другим характером взаимодействия.

Практическая значимость и внедрение результатов

Программный пакет SAXSEV, реализующий разработанные методы, предназначен для моделирования полидисперсной системы на основе экспериментальной интенсивности МУРР и независимых экспериментальных данных. С помощью пакета вычисляется функция VFDF (функция распределения производителей и потребителей наноматериалов. SAXSEV позволяет вычислять VFDF не только для разреженных полидисперсных систем, но (в случае шарообразных частиц) и для систем с большой долей заполнения объемом рассеивающим веществом, то есть непосредственно для порошков.

В программный комплекс включено Web-приложение, которое обеспечивает общедоступное систематизированное хранение данных, полученных в ходе

эксперимента по малоугловому рентгеновскому рассеянию, и соответствующих этим данным результатов моделирования.

Разработанный программный пакет был применен для:

– изучения морфологии частиц нанопорошка диоксида циркония, порошков, создаваемых в системах ZrO_2–Gd_2O_3 и ZrO_2–Y_2O_3 при гидротермальных условиях;

– моделирования структуры порошков из углеродных частиц, полученных с помощью восстановления карбидных наноматериалов, а также порошковых наполнителей из наночастиц детонационных наноалмазов и оксида кремния в составе композитного материала.

Все перечисленные выше исследования проводились в Университете ИТМО, ФГУП «НИИСК», РГПУ и ФТИ РАН [2-10].

Результаты работы докладывались на XL ¬ XLIII, научных и учебно-методических конференциях Университета ИТМО (2011-2014 гг., г. СПб.), I, III и X Конгрессы молодых Ученых (2012, 2014, 2021гг., г. СПб). По теме диссертации опубликованы три печатные работы в изданиях, включенных в перечень ВАК РФ, получено 4 свидетельства о государственной регистрации программы для ЭВМ. Для представления результатов работы создана предметно-ориентированная информационная БД, получено свидетельство о государственной регистрации.

Соответствие паспорту специальности:

Полученные научные результаты соответствуют следующему пункту паспорта научной специальности 1.3.2 — «Приборы и методы экспериментальной физики» (физико-математические науки).

Пункт 9 паспорта специальности

«Разработка методов математической обработки экспериментальных результатов».

На защиту выносятся:

1. Метод анализа индикатрисы МУРР от полидисперсной системой наночастиц разных форм и анизометричности, использующая универсальную функцию распределения (VFDF)
2. Адаптация метода байесовского анализа для интерпретации данных МУРР от полидисперсной системы наночастиц в отсутствие межчастичных интерференционных вкладов в рассеяние
3. Итерационный метод обработки данных МУРР, позволяющий учесть межчастичные интерференционные вклады в интенсивность рассеяния.

Методы исследования. В работе использованы методы теории вероятности и математической статистики, численные методы, методы оптимизации, и методы анализа данных МУРР.

Достоверность научных результатов обусловлена обоснованием постановки задач, корректным использованием методов, экспериментальными исследованиями, верифицирующими разработанные методы и алгоритмы, согласием функций VFDF и удельных поверхностей, полученных разработанными методами на симулированных данных МУРР с исходными функциями и значениями удельных поверхностей, используемыми для моделирования рассеяния. Результаты, полученные на реальных данных, согласуются с опубликованными ранее исследованиями.

Апробация работы. Основные результаты работы были представлены на XL, XLI, XLII, XLIII, научных и учебно-методических конференциях Университета ИТМО (2011-2014 гг., г. СПб.), на I, III, X Конгрессах молодых Ученых (2012,2014, 2021 гг. соответственно, г. СПб.).

Публикации. По теме диссертационной работы опубликованы три печатных работы в изданиях из перечня изданий ВАК РФ, получены: два свидетельства о государственной регистрации программы для ЭВМ.

Личный вклад автора в работах, выполненных в соавторстве, включает:

– введение функции VFDF и участии в постановке задачи моделирования при помощи этой функции полидисперсной системы по данным МУРР;

– получение основного уравнения, связывающего интенсивность МУРР с функцией VFDF для различных типов единичных рассеивателей;

– модификацию метода МБА для вычисления VFDF и разработку метода выбора оптимальных параметров модели на основе системы критериев;

– разработку метода определения типа модели рассеивателя на основе экспериментальных данных об удельной поверхности;

– разработку итерационного метода решения задачи для систем шарообразных частиц с учетом межчастичных интерференционных вкладов в интенсивность рассеяния;

– проектирование и разработку пакета программ для вычисления функции VFDF по данным МУРР, а также web-приложения для хранения данных натурного и модельного экспериментов;

– проведение и интерпретация результатов имитационных экспериментов, показывающих эффективность предложенных методов.

СТРУКТУРА И ОБЪЕМ РАБОТЫ

Диссертация состоит из введения, шести глав, заключения, списка использованной литературы, словаря терминов и четырех приложений. Содержит 124

страницы текста (включая15 страниц приложений), 20 иллюстраций, 8 таблиц. Список литературы содержит 182 наименований.

КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **введении** дано обоснование актуальности темы диссертационной работы, сформулированы цель и основные задачи исследований, обозначена научная новизна работы. Описана структура диссертации и указаны основные положения, выносимые на защиту.

В первой главе проведен аналитический обзор методов исследования полидисперсных систем наночастиц по данным рентгеновского малоуглового рассеяния. Проведено сравнение следующих методов: метода инвариантов рассеивающей системы, метода поиска параметрически заданного модельного распределения по размерам, метода прямого интегрального преобразования интенсивности рассеяния, метода непрямого Фурье преобразования для поиска модельного распределения и других методов численного решения основного интегрального уравнения, связывающего функцию распределения размеров и интенсивность рассеяния.

Результатом сравнительного анализа является обоснованный выбор МБА для вычисления модельных распределений частиц по размерам и выбор радиуса гирации как универсального размерного параметра применимого для любой модели единичного рассеивателя.

Во второй главе дано описание математического формализма разработанной модификации МБА для вычисления модельного распределения объемных долей частиц по их радиусам гирации при заданной форме и анизометричности единичной частицы.

Радиус гирации частицы в теории МУРР определяется как среднеквадратичное расстояние рассеивающих центров (в данном случае электронов) от их «центра тяжести»:

$$R_g = \sqrt{\int_V \rho(\mathrm{r})\left|\mathrm{r}-\mathrm{r}_{ц.т.}\right|^2 dV \Big/ \int_V \rho(\mathrm{r})dV},$$

где интегрирование проводится по всему объему частицы,

r — радиус вектор элемента объема dV;

ρ(**r**) — электронная плотность (количество электронов в единице объёма);

$\mathrm{r}_{ц.т.} = \int_V \rho(\mathrm{r})\mathrm{r}\,dV \Big/ \int_V \rho(\mathrm{r})dV$ — радиус-вектор «центра тяжести» распределения электронов.

Выбор радиуса гирации в качестве аргумента функции распределения позволяет единым образом сравнивать модельные распределения, получаемые при интерпретации одной и той же интенсивности рассеяния с использованием различных гипотез относительно формы и анизометричности отдельных частиц.

В качестве типичных моделей единичных рассеивателей были выбраны однородные частицы с высокой степенью симметрии: эллипсоид вращения, прямой цилиндр, прямоугольный параллелепипед. При использовании радиуса гирации как характеристики размеров таких частиц для однозначного определения интенсивности рассеяния от единичной частицы необходимо ввести дополнительный безразмерный параметр ε (анизометричность), характеризующий отношение продольного и поперечного размеров частицы.

Аргументом интенсивности МУРР является модуль вектора рассеяния:

$q = (4\pi/\lambda)\sin(\theta/2)$,

где: θ – угол рассеяния, λ – длина волны рентгеновского излучения.

Введем нормированную интенсивность $F_{ft}(q, R_g, \varepsilon)$ рассеяния частицей с радиусом гирации R_g и анизометричности ε. Индекс *ft* указывает на форму модельной частицы (*e*-эллипсоид, *c*-цилиндр, *p*-параллелепипед).

На основе классических формул для интенсивности рассеяния получены формулы:

$$F_e(q, R_g, \varepsilon) = \int_0^1 \Phi\left(Q_e\sqrt{1 + x^2(\varepsilon^2 - 1)}\right)dx,$$

где $\Phi(x) = \left(3\frac{\sin x - x\cos x}{x^3}\right)^2$, $Q_e = qR_g\sqrt{\frac{5}{\varepsilon^2 + 2}}$;

$$F_c(q, R_g, \varepsilon) = 4\int_0^1 G\left(Q_c\frac{\sqrt{1-x^2}}{2}\right)S\left(Q_c\varepsilon\frac{x}{2}\right)dx,$$

где $G(t) = \left[\frac{J_1(t)}{t}\right]^2$; $J_1(t)$ – функция Бесселя первого рода; $Q_c = qR_g\sqrt{\frac{24}{2\varepsilon^2 + 3}}$.

$$F_p(q, Rg, \varepsilon) = \frac{2}{\pi}\int_0^1 S\left(Q_p\varepsilon\frac{x}{2}\right)\int_0^{\frac{\pi}{2}} S\left(Q_p\sqrt{1-x^2}\frac{\cos(y)}{2}\right)S\left(Q_p\sqrt{1-x^2}\frac{\sin(y)}{2}\right)dxdy,$$

где $S(t) = \left[\frac{\sin(t)}{t}\right]^2$; $Q_p = qR_g\sqrt{\frac{12}{\varepsilon^2 + 2}}$.

Геометрические параметры частиц выражаются через радиус гирации и анизометричность. Для эллипсоида вращения с полуосями R, R, εR радиус круглого сечения $R(R_g, \varepsilon) = R_g\sqrt{\frac{5}{2 + \varepsilon^2}}$. Для прямого цилиндра: диаметр $D(R_g, \varepsilon) = R_g\sqrt{\frac{24}{2\varepsilon^2 + 3}}$, высота $H(R_g, \varepsilon) = \varepsilon D(R_g, \varepsilon)$. Для прямоугольного параллелепипеда с ребрами *a*, *a*, ε*a*

длина ребра в квадратном сечении $a\left(R_g,\varepsilon\right)=R_g\sqrt{\frac{12}{2+\varepsilon^2}}$.

Из анализа графиков нормированных интенсивностей $F_{ft}\left(q,R_g,\varepsilon\right)$ следует, что для разных по форме частиц при одном и том же значении R_g в диапазоне $\varepsilon = 0.5\ldots2$ наблюдается хорошее совпадение нормированных интенсивностей в начальной, наиболее существенной области значений q (спад интенсивности в этой области составляет почти два порядка).

Введём функцию VFDF $f\left(R_g\right)$ так, чтобы объём частиц $dV\left(R_g\right)$, приходящийся на диапазон радиусов гирации от R_g до R_g+dR_g , был пропорционален $f\left(R_g\right)dR_g$. Пренебрегая вкладами от межчастичной интерференции, интенсивность рассеяния системой можно представить в виде

$$I_{ft}(q,\varepsilon)=\tilde{A}\int_{R_{\min}}^{R_{\max}} f(R_g)F_{ft}(q,R_g,\varepsilon)V_{ft}(R_g,\varepsilon)dR_g \quad , \qquad (1)$$

где $\tilde{A}$ – постоянная, зависящая от геометрии съемки (размеров сечения первичного пучка и детектора, расстояния образец-детектор), электронного контраста на границах частиц и нормировочной константы для функции $f\left(R_g\right)$;

$R_{\min}$, $R_{\max}$, – наибольший и наименьший радиусы гирации соответственно:

$V_{ft}\left(R_g,\varepsilon\right)$ – объем частицы.

Решение задачи моделирования разреженной полидисперсной системы сводится к нахождению функции распределения $f\left(R_g\right)$ на основе уравнения (1) исходя из экспериментальной интенсивности $I_{ft}(q,\varepsilon)$. При этом форма и анизометричность частиц, составляющих моделируемую систему, являются входными параметрами задачи. Указанная задача даже без учета экспериментальных погрешностей относится к классу некорректных обратных задач и требует регуляризации для своего решения.

В соответствии с МБА, функцию распределения $f\left(R_g\right)$ можно найти как наиболее вероятное распределение из некоторого множества возможных функций распределения для заданной индикатрисы рассеяния. Апостериорная вероятность функции $f\left(R_g\right)$ при известных значениях интенсивности выводится с помощью теоремы Байеса, в предположении, что экспериментальные погрешности независимы между собой и распределены по нормальному закону. При этом на множестве возможных функций вводится априорное распределение $P_\alpha(f)$ вероятности с параметром α, который накладывает мягкое ограничение на степень гладкости искомой функции и служит

параметром регуляризации задачи. Чем больше α, тем более жесткие ограничения накладываются на гладкость .

Используя модификацию МБА, адаптированную для исследуемой задачи, на заданной сетке узлов $\left[R_{g,k}\right]_{k=1}^{M}$ при заданном значении α получаем наиболее вероятные значения искомой функции распределения:

$$f_k^{\alpha} = \sum_{j=1}^{M}\sum_{i=1}^{N}\left(\left(\mathrm{B}+\alpha\Omega\right)^{-1}\right)_{k,i}\frac{K_{j,i}}{S_j^2}I_j,\ k=1,2,...,M, \qquad (2)$$

где $I_j = I_{ft}\left(q_j,\varepsilon\right)$ и S_j $(j=1,2,...,N)$ экспериментальные значения интенсивности рассеяния и их среднеквадратичные погрешности, $K_{j,i} = V_{ft}(Rg_i,\varepsilon)F_{ft}(q_j,Rg_i,\varepsilon)C_i\left(\left[Rg_k\right]_{k\ 1}^{M}\right)$ – заданное на двумерной сетке ядро интегрального уравнения (1), $B_{i,t} = \sum_{j=1}^{N}\frac{K_{j,t}K_{j,i}}{S_j^{\ 2}}$, $\Omega_{i,t} = \sum_{m=1}^{M-2}D_{m,i}D_{m,t}C'_m\left(\left[Rg'_{m'}\right]_{m'=1}^{M-2}\right)$, **D** — матрица размерности $(M-2)\times M$, представляющая оператор вычисления производных второго порядка от искомой функции, C_i и C'_m – квадратурные коэффициенты, зависящие от сетки узлов.

Среднеквадратичная неопределенность найденных значений функции (2) вычисляется по формуле

$$\Delta f_k^{\alpha} = \sqrt{\left(\left(\mathrm{B}+\alpha\Omega\right)^{-1}\right)_{k,k}}. \qquad (3)$$

Эта неопределенность характеризует устойчивость к экспериментальным погрешностям решения, найденного с учетом требуемой степени гладкости.

Выбор оптимального значения регуляризатора $\alpha_{опт}$ – существенная часть решения задачи. Однако, выбору оптимального значения параметра должен предшествовать выбор сетки $\left[R_{g,k}\right]_{k-1}^{M}$ аргументов искомой функции, прежде всего выбор общего количества *M* точек сетки и общего закона распределения их густоты (равномерный, равномерно логарифмический и т.д.). Правильность выбора сетки в первую очередь можно определить по характерному поведению трех функций:

$$\Phi(\alpha) = \frac{1}{N}\sum_{j=1}^{N}\frac{\left(I_j^{\alpha}-I_j\right)^2}{S_j^2};\quad X(\alpha) = \sum_{i=1}^{M}\sum_{t=1}^{M}\Omega_{i,t}f_i^{\alpha}f_t^{\alpha};\quad \Phi_{+}(\alpha) = \frac{1}{N}\sum_{j=1}^{N}\frac{\left(I_{+j}^{\alpha}-I_j\right)^2}{S_j^2}. \qquad (4)$$

Здесь I_j^{α} значения интенсивности, вычисленные по формуле (1) для распределения (2); I_{+j}^{α} значения интенсивности, вычисленные на основе распределения

f_{+k}^{α}, в котором отрицательные значения f_k^{α} заменены нулевыми. Функция $\Phi(\alpha)$ – традиционная оценочная (целевая) функция — при правильном выборе сетки в окрестности $\alpha_{\text{опт}}$ должна быть приблизительно равна единице и иметь точку перегиба. Функция $X(\alpha)$ – квадратичная форма, дающая оценку интеграла от квадрата второй производной, также должна иметь точку перегиба вблизи $\alpha_{\text{опт}}$. Функция $\Phi_{+}(\alpha)$, введенная в данной работе, позволяет оценить вклад в решение не имеющих физического смысла отрицательных значений f_k^{α}. При правильном выборе сетки около

должно быть выполнено условие несущественности отрицательных значений:

$$\left|\Phi(\alpha)-\Phi_{+}(\alpha)\right| / \Phi(\alpha) \ll 1. \qquad (5)$$

Система критериев для более точного выбора значения $\alpha_{\text{опт}}$ обсуждается в главе 4.

Одной из важнейших характеристик полидисперсной системы является площадь удельной поверхности на единицу собственного объема частиц. Для порошковых и пористых образцов она может быть найдена альтернативными методами, например, адсорбционными, и использована для проверки адекватности модели. В работе получены соотношения для расчета удельной поверхности и ее неопределенности на основе модельной функции распределения объемных долей (2) и неопределенности (3):

$$S_{\text{уд}} = K_{fi}(\varepsilon)\frac{\int_{R\min}^{R\max}\frac{1}{R_g}f(R_g)dR_g}{\int_{R\min}^{R\max}f(R_g)dR_g} \approx K_{fi}(\varepsilon)\frac{\sum_{i=0}^{M}C_i\left(f_i/R_{g,i}\right)}{\sum_{i=0}^{M}C_i f_i}; \qquad (6)$$

$$\Delta S_{\text{уд}} = K_{fi}(\varepsilon)\sqrt{\sum_{k=0}^{M}\left(\frac{C_k}{\sum_{i=0}^{M}C_i f_i}\left(\frac{1}{R_{g,k}}-\frac{\sum_{i=0}^{M}C_i\left(f_i/R_{g,i}\right)}{\sum_{i=0}^{M}C_i f_i}\right)\Delta f_k\right)^2}. \qquad (7)$$

Здесь $K_{fi}(\varepsilon)$ – коэффициент, зависящий от формы и анизометричности частицы, C_i – квадратурные коэффициенты. Для эллипсоида

$$K_e(\varepsilon)=\frac{3\sqrt{2+\varepsilon^2}}{2\varepsilon\sqrt{5}}\left[1+\frac{\varepsilon^2}{\sqrt{1-\varepsilon^2}}\ln\left(\frac{1+\sqrt{1-\varepsilon^2}}{\varepsilon}\right)\right] \text{ при } \varepsilon < 1,$$

$$K_e(\varepsilon)=\frac{3\sqrt{2+\varepsilon^2}}{2\varepsilon\sqrt{5}}\left[1+\frac{\varepsilon^2}{\sqrt{\varepsilon^2-1}}\arcsin\left(\frac{\sqrt{\varepsilon^2-1}}{\varepsilon}\right)\right] \text{ при } \varepsilon > 1 \text{ и } K_e(\varepsilon)=3 \text{ при } \varepsilon = 1,$$

для цилиндра: $K_c(\varepsilon) = (2\varepsilon+1)\sqrt{3+2\varepsilon^2} \Big/ \left(\varepsilon\sqrt{6}\right)$,

для параллелепипеда $K_p(\varepsilon) = (2\varepsilon+1)\sqrt{2+\varepsilon^2} \Big/ \left(\varepsilon\sqrt{3}\right)$.

В третьей главе исследована эффективность предложенного метода моделирования полидисперсной системы и вычисления удельной поверхности для модельных полидисперсных систем из частиц с разной формой и анизометричностью. В качестве характерного распределения объемных долей по радиусам гирации было выбрано распределение Шульца-Зимма (см. рис. 1). Распределения похожего вида, например, наблюдаются для нанопорошка диоксида циркония, получаемого в гидротермальных условиях. Для исходного распределения по формуле (1) были вычислены значения интенсивности рассеяния $I_j = I_{fi}(q_j, \varepsilon)$ для частиц трех рассматриваемых форм и семи значений анизометричности ε в интервале 0,5 … 2. В интенсивность рассеяния был внесен шум, распределенный по нормальному закону, со среднеквадратичным отклонением $S_j = \sqrt{I_j}$, константа *A* в формуле (1) выбиралась, так что среднеквадратичное отклонение не превышало 1% от интенсивности. Для каждой из интенсивностей для указанных выше трех форм и значений ε, с помощью формул (2) и (3), были вычислены функция VFDF $\tilde{f} \equiv f^{\alpha}$ и ее неопределенность $\Delta\tilde{f}$ при оптимальном значении регуляризатора. Качество решения определялось по относительному отклонению вычисленной VFDF от исходной:

$$\delta\left(f, \tilde{f}\right) = \frac{\left\|f - \tilde{f}\right\|}{\|f\|} \qquad (8)$$

с нормой $\|f\| = \sqrt{\int_{R_{\min}}^{R_{\max}} \left(f\left(R_g\right)\right)^2 dR_g} \approx \sqrt{\sum_{i=0}^{M} \left(f\left(R_{g,i}\right)\right)^2 C_i \left(\left[R_{g,k}\right]_{k=1}^{M}\right)}$.

Как показывает анализ значений $\delta\left(f, \tilde{f}\right)$, если предполагаемые форма и анизометричность частицы совпадают с истинными формой и анизометричностью, то отклонение вычисленной VFDF от истинной не превышает 4% . Заметим однако, что при совпадении предполагаемой и истинной форм значения $\delta\left(f, \tilde{f}\right) \le 4\%$ достигаются и для не совпадающих значений анизометричности, если предполагаемое ε = 0,8…1,2. На рисунке 1*a* в качестве примера представлены исходная функция VFDF и три вычисленных при трех предполагаемых формах частиц. Неопределенность $\Delta\tilde{f}$, вычисляемая по формуле (3), не соответствует, в общем случае, различию между вычисленной и истинной функциями VFDF. Однако при вычислении с оптимальным значением регуляризатора и «правильной» предполагаемой форме частиц абсолютная

погрешность решения $\left\| f - \tilde{f} \right\|$ оказалась близкой к погрешности модельной VFDF $\Delta\tilde{f}$ (см. рисунок. 1*b*). Это утверждение справедливо для всех исследованных форм и значений анизометричности.

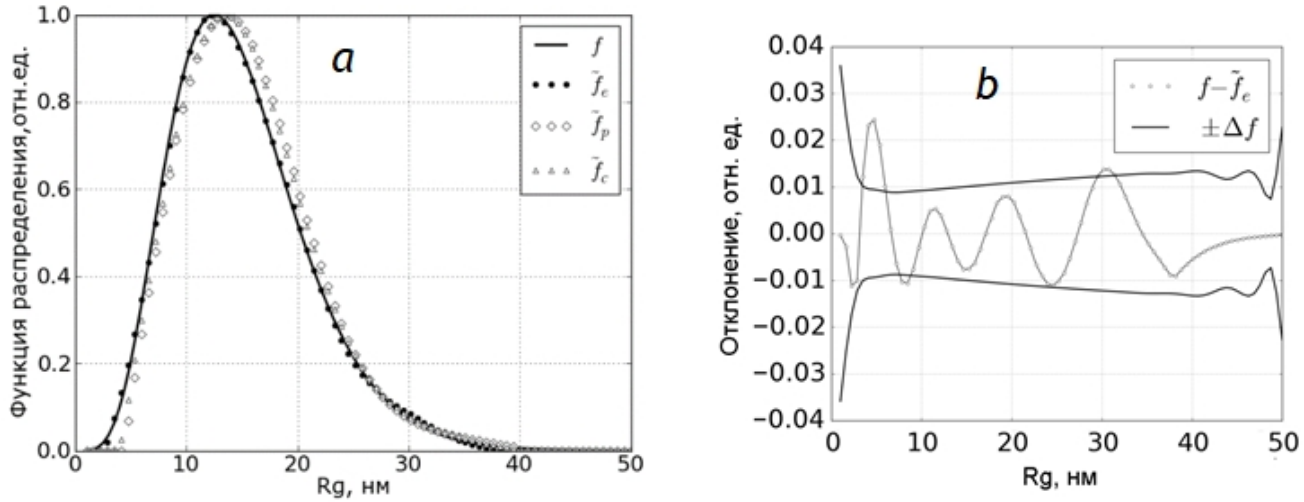

Рисунок 1*a*. Истинная VFDF (f) и VFDF, вычисленные в предположении, что частицы имеют форму шара ($\tilde{f}_e$), цилиндра ($\tilde{f}_c$), куба ($\tilde{f}_p$), при вычислении VFDF предполагалось, что частицы обладают единичной анизометричностью.

Рисунок 1*b*. Разность ($f - \tilde{f}_e$) истинной и вычисленной VFDF и неопределенность ($\pm\Delta f$) при правильном предположении о форме частиц.

Для исследуемых форм частиц и значений ε по формуле (6) были вычислены удельные поверхности: $S_{\text{уд}}$ – для исходной функции VFDF и $\tilde{S}_{\text{уд}}$ – для всех $\tilde{f}$ (вычисленных VFDF) и по формуле (7) неопределенности удельной поверхности $\Delta\tilde{S}_{\text{уд}}$, обусловленные неопределенностями (3) для каждой вычисленной функцией VFDF.

Для каждой из форм частиц минимальная удельная поверхность получается в случае распределения изометричных частиц (ε = 1), причем отличие удельной поверхности распределения частиц с анизометричностью ε = 0,5 или ε = 2 от удельной поверхности распределения изометричных частиц может достигать 20% (для эллипсоидов).

Качество неопределенности удельной поверхности (7) оценивалось с помощью отношения $\left(\tilde{S}_{\text{уд}} - S_{\text{уд}}\right) / \Delta\tilde{S}_{\text{уд}}$. Показано, что при совпадении предполагаемых и истинных формы и анизометричности частиц значения и различаются на величину, не превышающую $\Delta\tilde{S}_{\text{уд}}$. В этом случае, следовательно, неопределенность удельной

поверхности (7) является адекватной оценкой разности модельного и истинного значений удельной поверхности. Кроме того, оказалось, что при совпадении предполагаемой и истинной формы частиц, даже при неправильном предположении об анизометричности и сильном различии между вычисленной и исходной функциями VFDF, значений удельной поверхности, найденное из вычисленной функцией VFDF оказывается близко к истинному.

Так, например, расчеты показывают, что для распределений эллипсоидальных частиц с ε =0,63…1,6, исходная и вычисленная функции VFDF могут различаться почти на 30%, а относительное различие модельного и истинного значений не превышает 3%.

Различие значений удельной поверхности, полученные из вычисленной функции VFDF для рассмотренных форм частиц при неправильном предположении о форме частиц, является довольно значительным (по отношению к оценке неопределённости $\Delta\tilde{S}_{\text{уд}}$ удельной поверхности). В связи с этим сравнение значения удельной поверхности, найденной по вычисленной функции VFDF, со значением, известным из других экспериментов, позволяет либо сузить круг подходящих моделей единичных частиц, либо выбрать наиболее вероятную форму и анизометричность.

В четвертой главе описан разработанный программный пакет SAXSEV, реализующий МБА для вычисления модельной VFDF и связанной с этим распределением удельной поверхности частиц при разных гипотезах об их форме и анизометричности.

Пакет SAXSEV – не имеющее аналогов кроссплатформенное приложение с графическим интерфейсом, удовлетворяющее следующим требованиям: использование математического метода, не зависящего от ожидаемого аналитического вида модельного распределения, независимость от экспериментального оборудования, кроссплатформенность, открытый исходный код.

В качестве языка программирования для создания кроссплатформенного программного обеспечения с открытым исходным кодом был выбран Python 3, активно используемый в научных вычислениях. Благодаря открытому исходному коду и применению библиотек для научных вычислений NumPy, SciPy программный пакет SAXSEV легко модифицируем как для решения других вычислительных задач, связанных с функцией распределения по размерам, так и для расширения круга возможных моделей единичных рассеивателей.

Входными данными для построения модели служат набор значений интенсивности МУРР, погрешности значений интенсивности, предполагаемые геометрическая форма и анизометричность единичных частиц. В процессе работы для каждого значения параметра регуляризации из задаваемого диапазона значений вычисляется наиболее вероятное распределение объемных долей и из найденных

распределений выбирается оптимальный параметр регуляризации и наилучшее модельное распределение на основе нескольких отдельных и одного общего критериев качества решения. Для выбранного распределения вычисляется удельная поверхность, неопределенность функции распределения и найденной удельной поверхности.

За основу используемой системы критериев для выбора оптимального параметра регуляризации были взяты шесть интуитивных критериев [11], обычно используемых в методе непрямого Фурье-преобразования. Однако в процессе апробации разработанного метода решения обратной задачи на экспериментальных данных для более точного выбора оптимального значения параметра регуляризации и соответствующего модельного распределения потребовалось дополнить систему критериев двумя оригинальными критериями. Во-первых, критерием несущественности отрицательных (нефизических) значений функции распределения $IMPMIN = (\Phi_+ - \Phi)/\Phi$ и, во-вторых, критерием существенности значимых различий вычисленной и экспериментальной интенсивностей рассеяния: $ERRDEV = Nerr/N$. Здесь $Nerr$ – количество точек, в которых модуль разности $I_j^{(\alpha)} - I_j^{(src)}$ превышает удвоенное (утроенное) значение S_j корня из дисперсии .

Важным элементом пакета является модуль, позволяющий «улучшить» решение с помощью корректировки сетки аргументов искомой функции. Для удобства выбора оптимального значения регуляризатора пакет SAXSEV дает графическое представление зависимостей частных и обобщенного критериев качества решения от параметра регуляризации.

Алгоритм, положенный в основу SAXSEV 2.1, был успешно применен в исследованиях эффективности МБА для анализа МУРР от модельных систем, при изучении порошков из наночастиц , формирующихся в системе ZrO_2–Gd_2O_3–H_2O в гидротермальных условиях, для исследования порошка из углеродных частиц, полученных восстановлением карбидных наноматериалов, а также аморфного диоксида кремния в качестве наполнителя для полимерного композитного материала [6 – 9].

Визуальное представление окончательного результата работы пакета SAXSEV, получаемое при исследовании одного из нанопорошков сложного оксида циркония и гадолиния дано на рисунке 2.

Работоспособность текущей версии пакета SAXSEV 2.1 протестирована для платформ Windows 8/10/11, Ubuntu 14.1/22.02. Полная документация к программному пакету SAXSEV доступна по адресу http://ev.saxslab.org.

В пятой главе предлагается подход к задаче вычисления VFDF из интенсивности с учетом интерференционных вкладов. Этот подход основан на использовании аналитического выражения интенсивности МУРР, найденном в приближении Перкуса-Йевика, для полидисперсной системы шарообразных частиц с потенциалом взаимодействия твердых сфер [12]. В рамках предлагаемого подхода предложена

итерационная процедура, с помощью которой одновременно подбираются функция VFDF и соответствующий структурный фактор.

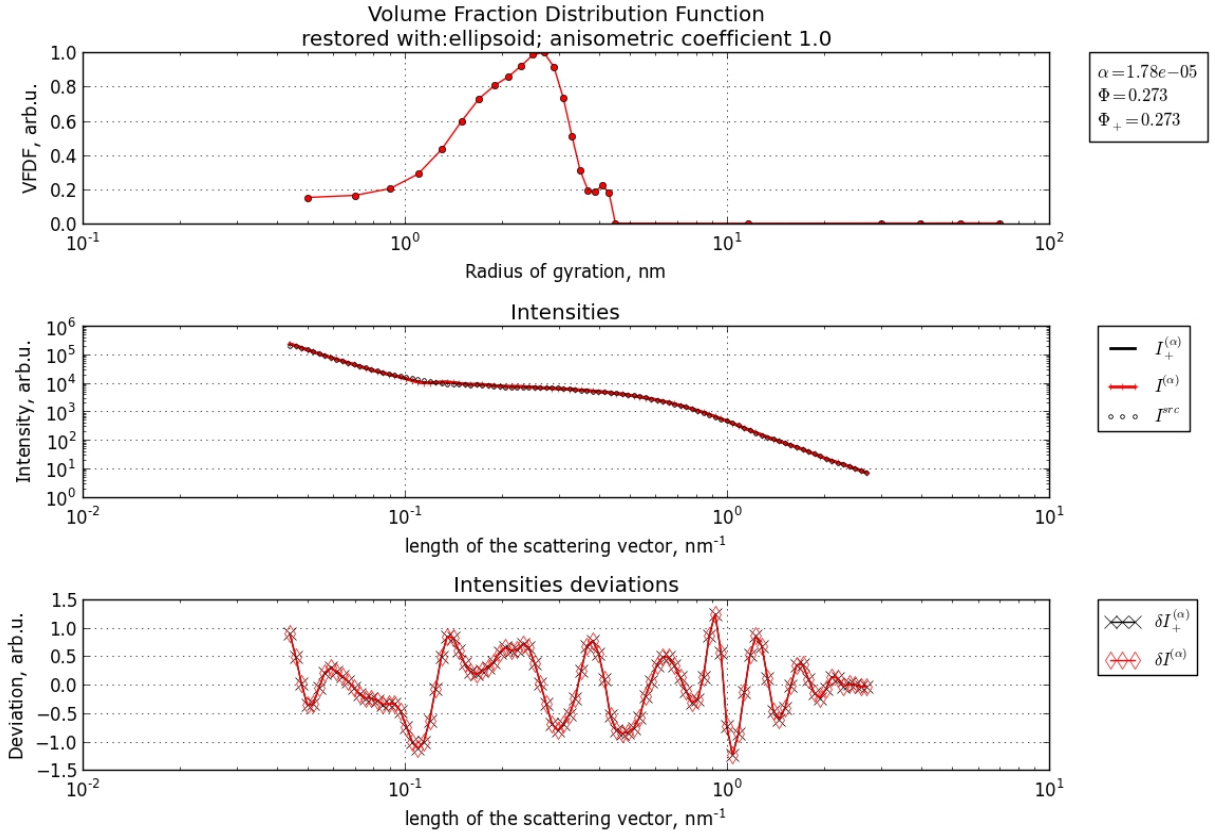

Рисунок 2. – Результат работы SAXSEV для реального нанопорошка ZrO_2–Gd_2O_3. Графики: верхний — вычисленная VFDF; средний — экспериментальная $I^{(src)}$ и вычисленные $I^{(\alpha)}$, $I_+^{(\alpha)}$ интенсивности; нижний — относительные отклонения $\delta I^{(\alpha)}$, $\delta I_+^{(\alpha)}$ вычисленных интенсивностей от экспериментальной.

Проведена оценка степени искажения функции распределения VFDF, вычисленной без учета интерференционных вкладов, в зависимости от доли φ заполнения объема рассеивающим веществом для типичного модельного распределения Шульца-Зимма. Установлено, что относительное отклонение вычисленной функции VFDF от истинной $\delta(f_{src}, f_+) \leq 10\%$ только при $\varphi \leq 0.06$. Заметим, что, величина φ для реальных образцов может достигать значения 0.4.

Далее описана предлагаемая итерационная процедура вычисления VFDF по интенсивности МУРР, и представлены результаты применения итерационной процедуры для имитационных кривых интенсивности МУРР при значениях φ=0.1…0.4.

В качестве первого приближения $f_+^{(0)}$ для искомой VFDF выступает функция, найденная МБА (см. главу 2) из исходной интенсивности рассеяния $I_{src}(q)$. Цикл итерационной процедуры включает следующие шаги:

1. Для распределения $f_+^{(i)}$ (i – индекс текущей итерации) с учётом известной доли φ заполнения объема рассеивающим веществом вычисляются интенсивность $I^{(i)}(q)$ рассеяния с учетом интерференционных вкладов и интенсивность и $I_0^{(i)}(q)$, – без учета таких вкладов.

2. Вычисляется структурный фактор:

$$S^{(i)}(q) = \frac{I^{(i)}(q)}{I_0^{(i)}(q)} \qquad (9)$$

3. Вычисляется приближенное значение интенсивности без интерференционных вкладов:

$$I_{iter}^{(i)}(q) = \frac{I_{src}(q)}{S^{(i)}(q)} \qquad (10)$$

4. На основе интенсивности $I_{iter}^{(i)}(q)$ МБА вычисляется $f_+^{(i+1)}$.

Показано, что для φ≤0.3 описанная итерационная процедура сходится. Однако при φ = 0.4 решения $f_+^{(i)}$ «осциллируют» вблизи истинной функции f, не приближаясь к ней. Этот эффект подавляется при использовании модифицированной итерационной процедуры, в которой после нескольких последовательных шагов вычисляется усредненная функция распределения, используемая в качестве исходной для последующих итераций. Во всех случаях относительное различие текущей итерации и истинной функции оказалось меньше разности результатов двух последовательных итераций: $\delta\left(f_{src}, f_1^{(i)}\right) \quad \left(f_1^{(i-1)}, f_1^{(i)}\right)$

В шестой главе подтверждена сходимость итерационного метода вычисления функции VFDF разработанного в главе 5 для экспериментальных кривых рассеяния от порошковых образцов из наночастиц. Эти порошковые образцы на основе системы ZrO_2 + Y_2O_3 синтезированы в широком диапазоне соотношения компонентов: массовая доля оксида иттрия варьируется от 2.7% до 44%. При этом получаются порошки, сильно различающиеся по характерному размеру частиц [10].

Описана методика необходимой предварительной обработки кривых. Такая обработка позволяет устранить искажения экспериментальных кривых рассеяния, обусловленные присутствием в реальном образце больших агломератов частиц и вкладом в рассеяние от неоднородностей электронной плотности на атомарном уровне. Выяснена быстрота сходимости и представлены результаты применения итерационной процедуры для вычисления VFDF для указанных экспериментальных образцов (см рис. 3).

Работа содержит 4 приложения, в которых представлены:

– вывод формулы для неопределенности функции VFDF;

– аналитическое выражение для интенсивности МУРР с учетом межчастичной интерференции от системы шарообразных частиц с потенциалом взаимодействия твердых сфер и заданной функцией распределения частиц по размерам;

– описание web−приложения для агрегации данных малоуглового рентгеновского рассеяния SAXSDB1.02;

– акты внедрения результатов работы.

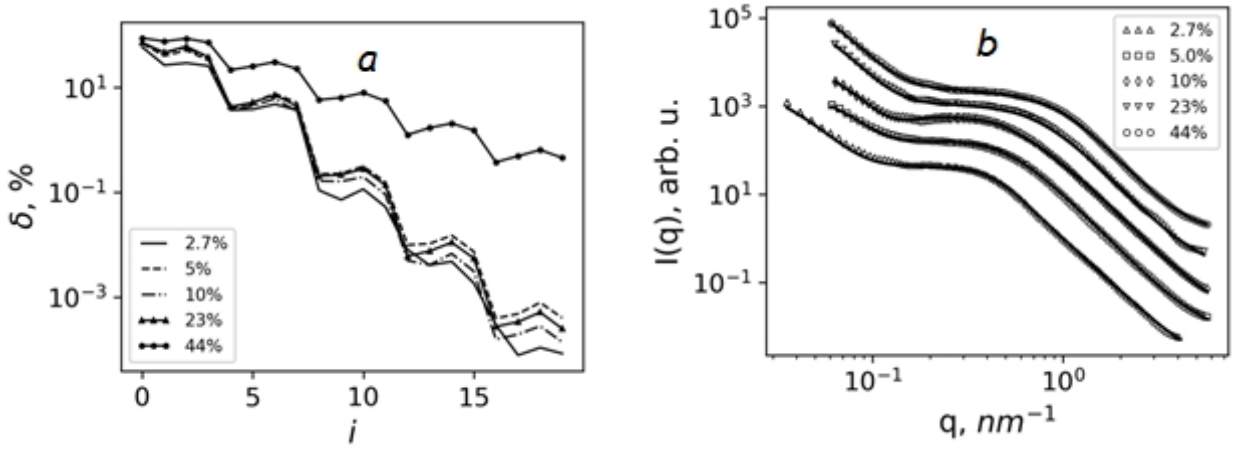

Рисунок 3*a*. Зависимость относительной разности $\delta\left(f_i^{(i-1)}, f_i^{(i)}\right)$ от номера i итерации для порошковых образцов состава ZrO_2+Y_2O_3. В легенде указана массовая доля (в %) оксида иттрия в образце.

Рисунок 3*b*. Сравнение экспериментальных интенсивностей рассеяния (точки) и интенсивностей, рассчитанных из найденных VFDF с учетом интерференционных вкладов (сплошные линии) для тех же образцов.

Заключение

1. Представлена модель рассеяния полидисперсной системой наночастиц в форме интегрального уравнения, связывающего теоретическую интенсивность МУРР и функцию VFDF. Использование радиуса гирации в качестве аргумента функции VFDF позволяет единообразно сравнивать распределения, полученные для различных моделей единичных рассеивателей. Полученное в работе основное уравнение позволяет включать в рассмотрение возможных моделей не только форму частиц, но и их анизометричность, что существенно расширяет возможности интерпретации данных МУРР.

2. Для решения указанного интегрального уравнения на произвольной сетке значений радиусов гирации адаптирован метод байесовского анализа. Введена оценочная функция, позволяющая определить степень существенности не имеющих физического смысла отрицательных значений модельного решения. Сформулированы критерии правильности выбора сетки. Для моделей полидисперсной системы из частиц, имеющих высокую степень симметрии (эллипсоид вращения, прямой цилиндр и прямоугольный параллелепипед), предложен способ вычисления удельной поверхности и ее погрешности на основе модельной функции VFDF. Решение обратной задачи в

рамках разработанного подхода позволяет напрямую, и, следовательно, с минимальными искажениями находить по индикатрисе МУРР функцию распределения объемных долей, более важную для характеризации системы, чем распределение количества частиц по размерам.

3. Разработан и протестирован программный пакет, реализующий МБА для решения обратной задачи моделирования полидисперсной системы наночастиц и вычисление ассоциированной с модельной функцией VFDF удельной поверхности. Входной информацией для построения модельного распределения служит интенсивность МУРР и предполагаемые форма и анизометричность единичных частиц (рассеивателей). За счет добавления двух оригинальных критериев существенно улучшена система критериев выбора оптимального значения регуляризатора.

4. На имитационных кривых интенсивности рассеяния исследована эффективность предложенного метода моделирования полидисперсной системы и вычисления ассоциированной с модельной VFDF удельной поверхности. Для систем из частиц, имеющих три различные формы с высокой степенью симметрии и анизометричность в интервале 0,5…2 показано, что, если погрешность в исходной интенсивности МУРР не превышает 1%, то отклонение VFDF, вычисленной в рамках МБА, от истинной VFDF не превышает 4%, и погрешность VFDF, найденная в рамках разработанного подхода, правильно оценивает это отклонение. Показано, что сравнение независимых данных об удельной поверхности и значений удельной поверхности, вычисленных по данной индикатрисе МУРР для широкого набора модельных форм и анизометричностей рассеивателей, позволяет выбрать наиболее вероятную форму и анизометричность рассеивателей.

5. Разработанный вариант МБА непосредственно применим для моделирования сильно разреженных полидисперсных систем, в которых объемная доля φ заполнения объема рассеивающим веществом не превышает нескольких процентов (взвесь порошка в жидкости или сильно разбавленная порошковая компонента в составе композитного материала). Для плотной полидисперсной системы шарообразных частиц с разной долей заполнения пространства рассеивающим веществом вычислены модельные индикатрисы с учетом интерференционных вкладов. Показано, что вычисление из них функции VFDF без учета межчастичной интерференции приводит к относительной ошибке не более 10%, только если доля заполнения пространства не превышает $\varphi \leq 0.06$. В то же время в порошковых образцах доля заполнения объема может достигать 0.4. Это означает, что при интерпретации индикатрисы рассеяния от плотных систем (например, нанопорошков) учет интерференционных вкладов в интенсивности МУРР необходим. Для образцов с большой объемной долей заполнения пространства на примере шарообразных частиц впервые разработан итерационный метод одновременного вычисления функции распределения объемных долей и структурного фактора по индикатрисе МУРР. Эффективность метода продемонстрирована на примере $\varphi = 0.1, 0.2,$

0.3, 0.4.

6. Итерационный метод вычисления функции VFDF опробован на экспериментальных кривых интенсивности МУРР от порошкового образцов состава ZrO_2 +Y_2O_3, синтезированных в широком диапазоне соотношения компонентов (массовая доля оксида иттрия варьируется от 2.7% до 44%). Показана сходимость итерационной процедуры всех образцов. Получены функции распределения частиц и соответствующие им значения удельной поверхности.

7. При моделировании рассеивающей полидисперсной системы на основе экспериментальных кривых интенсивности МУРР необходима предварительная обработка для устранения искажений кривой, обусловленных наличием в реальной системе больших агломератов частиц и внутричастичных неоднородностей атомарного размера. Предложена методика такой предварительной обработки.

8. Разработанный итерационный метод вычисления функции VFDF с учетом вкладов межчастичной интерференции в интенсивность МУРР реализован для плотной полидисперсной системы шарообразных частиц с потенциалом взаимодействия твердых сфер, поскольку в этом случае существует аналитическое решение для расчета интенсивности рассеяния. Однако метод может быть реализован и для частиц с другой морфологией и другим потенциалом взаимодействия, как только будет разработана методика вычисления структурного фактора для плотной системы таких частиц. Указанное вычисление может быть выполнено на основе прямого моделирования пространственного расположения частиц в представителях статистического ансамбля для рассеивающей системы.

9. Разработанный вариант МБА для поиска положительных решений некорректной задачи может быть использован для решения других обратных задач подобного типа.

Цитируемая литература

1. В. П. Козлов, М. С. Малкевич. Использование методов математической статистики для решения некорректных задач // Успехи физических наук. — 1970. — Т. 102. — Вып. 3. — С. 345–386.

2. Возняковский А.П., Смирнов А.В. и др. Геометрические характеристики частиц детонационного углерода по данным рентгеновского малоуглового рассеяния // Сверхтвердые материалы. — 2015. — Т. 37. — № 5. — С. 83-91.

3. Voznyakovskii A.P., Smirnov A.V. et. all. The effect of nanocarbons on the structural and thermophysical characteristics of a polymer matrix // International Polymer Science and Technology. — 2017. — V. 44. — №. 11. — P. 10-15.

4. Смирнов А.В., Федоров Б.А. и др. Структурные и электретные свойства полипропилена с различным содержанием аморфного диоксида кремния // Наносистемы: физика, химия, математика. — 2012. — Т. 3. — № 2. — С. 65–72.

5. Enikeeva M.O., Proskurina O.V. et. all. Structure of Y0.75La0.25PO4·0.67H2O

rhabdophane nanoparticles synthesized by the hydrothermal microwave method. //J. of Solid State Chem. — 2023. — V. 319. — P.123829.

6. Смирнов А.В., Федоров Б.А. и др. Наночастицы со строением типа “ядро–оболочка”, формирующиеся в системе ZrO2–Gd2O3–H2O в гидротермальных условиях // Доклады Академии наук. — 2014. — Т. 456. — № 2. — С. 171–173.

7. Альмяшева О.В., Смирнов А.В. и др. Особенности строения наночастиц переменного состава со структурой типа флюорита, сформированных в гидротермальных условиях на основе систем ZrO2–Y2O3 И ZrO2–Gd2O3// Журнал общей химии. 2014. Т. 84. № 5. С. 711-716;

8. Смирнов А.В., Федоров Б.А. и др. Особенности строения углеродных наночастиц, полученных хлорированием нанопорошка β-sic // Доклады Академии наук. — 2014. — Т. 458. — № 4. — С. 430–435.

9. Смирнов А.В., Федоров Б.А. и др. Структурные и электретные свойства полипропилена с различным содержанием аморфного диоксида кремния // Наносистемы: физика, химия, математика. — 2012. — Т. 3. — № 2. — С. 65–72.

10. Shuklina A.I., Smirnov A.V., et al. Structure of nanoparticles in the ZrO2–Y2O3 system, as obtained under hydrothermal conditions // Nanosystems: Physics, Chemistry, Mathematics. — 2020. — V. 11 (6). — P. 729–738.

11. Svergun D.I. Determination of the regularization parameter in indirect-transform methods using perceptual criteria // Journal of Applied Crystallography. — 1992. — V. 25. — № 4. — P. 495–503.

12. Vrij A. Mixtures of hard spheres in the Percus-Yevick approximation. Light scattering at finite angles. J. of Chem. Phys. — 1979. — V. 71 (8). — P. 3267–3270.

Публикации по теме диссертационной работы

1. Кучко А. В., Смирнов А.В. Расчет Функции распределения объемов наночастиц и удельной поверхности методом статистической регуляризации из индикатрисы рентгеновского малоуглового рассеяния // Наносистемы: физика, химия, математика. — 2012. — Т. 3. — № 3. — С. 76–91 (**входит в перечень ВАК**).

2. Кучко А.В., Смирнов А.В. SAXSEV 2.1 кроссплатформенное приложение для анализа данных рентгеновского малоуглового рассеяния от полидисперсных систем//Научно-технический вестник информационных технологий, механики и оптики. — 2015. — Т. 15. — № 2. — С. 267–274 (**входит в перечень ВАК**).

3. Kuchko A.V., Smirnov A.V. Iterative method of reconstructing the size distribution function of spherical nanoparticles based on the intensity of the small-angle X-ray scattering including the interference contribution to the intensity // Nanosystems: Physics, Chemistry, Mathematics. — 2022. — V. 13 (1). — P. 62–70 (**входит в перечень ВАК**).

4. Кучко А.В., Смирнов А.В. Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ №2014662795 09.12.2014 «Кроссплатформенное приложения для

анализа данных малоуглового рентгеновского рассеяния от изотропных образцов полидисперсного состава «SAXSEV»»

5. Кучко А.В., Смирнов А.В. Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ № 2022681268 10.11.2022 Скрипт для вычисления интенсивности малоуглового рентгеновского рассеяния от полидисперсной системы шарообразных частиц с учетом межчастичных интерференционных вкладов.

Другие публикации соискателя

6. Кучко А.В., Смирнов А.В. Разработка интерактивного web-приложения для работы с данными рентгеновского малоуглового рассеяния // Компьютерные инструменты в образовании. — 2015. — № 2. — С. 25–32 (**входит в перечень ВАК**).

7. Кучко А.В., Смирнов А.В. Свидетельство о государственной регистрации базы данных №201562050618.03.2015 «База данных натурного и модельного эксперимента по малоугловому рентгеновскому рассеянию и данных о структуре исследуемых объектов (SAXSDB)»

8. Кучко А.В. Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ №2015613804 26.03.2015 «Интерактивное web-приложение SAXSDB1.02, предназначенное для удаленного хранения, структурирования, визуализации и анализа данных натурного и модельного эксперимента по малоугловому рентгеновскому рассеянию и полученной из этих данных структурной информации»