



ВІДГУК

67-72-35/2  
02.12.2022р.

офіційного опонента

на дисертаційну роботу **Тростянчина Андрія Миколайовича**  
на тему «**Концепція застосування водневої обробки для удосконалення структурно-фазового стану та властивостей функціональних матеріалів на основі сплавів рідкісноземельних та перехідних металів**», яка подана на здобуття наукового ступеня доктора технічних наук за спеціальністю 05.02.01 – матеріалознавство

### Актуальність теми дисертації

Дисертаційна робота присвячена вивченню закономірностей взаємодії з воднем функціональних матеріалів на основі рідкісноземельних металів (РЗМ), що використовуються в багатьох високотехнологічних галузях. Висока вартість сплавів на основі РЗМ сприяли інтенсифікації досліджень з пошуку альтернативних матеріалів, або шляхів покращення властивостей існуючих. Зокрема це стуються гідридних матеріалів на основі РЗМ, серед яких своєрідним еталоном є сполука  $\text{LaNi}_5$ , і які є надзвичайно перспективними з точки зору компактного зберігання водню в зв'язаному стані. На особливу увагу також заслуговують постійні магніти на основі сплавів систем  $\text{Sm-Co}$  та  $\text{Nd-Fe-B}$ , які володіють найвищими серед усіх відомих матеріалів властивостями і є незамінними в багатьох застосуваннях від автомобілебудування до аерокосмічної галузі, включаючи обладнання відновлювальної енергетики, електромобілів, безпілотних літальних апаратів тощо. Існуючі літературні дані свідчать про позитивний вплив водневої обробки методом гідрування, диспропорціонування, десорбції, рекомбінації (ГДПР) на фазово-структурний стан інтерметалічних сполук, включаючи гомогенізацію та здрібнення мікроструктури до наномасштабу. У зв'язку з цим актуальною задачею є дослідження впливу параметрів водневої обробки (тиск водню, умови, температура та тривалість взаємодії) на зміну мікроструктури та фазового складу, виявлення основних закономірностей застосування водню для обробки різних типів РЗМ-вмісних матеріалів. Це дозволить вирішити актуальну проблему сучасного гідридного матеріалознавства в області ініційованих воднем фазових перетворень у сплавах на основі РЗМ. Для прогнозування експлуатаційних властивостей досліджуваних матеріалів передбачено застосування методів комп'ютерного моделювання, що дозволить значною мірою скорити трудомісткість, тривалість та вартість експериментальних досліджень дефіцитних сплавів РЗМ. Додатковим підтвердженням актуальності теми дисертації є її зв'язок з науковими програмами, планами та темами, які виконувались у Фізико-механічному інституті ім.Г.В.Карпенка НАНУ та Національному університеті «Львівська політехніка» впродовж 2002-2018 рр., та в яких автор приймав участь як керівник, відповідальний виконавець та виконавець.

## Загальна характеристика роботи

Дисертаційна робота Тростянчина А.М. складається зі вступу, семи розділів, висновків, додатків та списку використаних джерел та додатків. Робота викладена на 404 сторінках, містить 80 рисунків та 69 таблиць. Список використаних джерел містить 255 найменувань.

У **вступі** описано актуальність теми, наведено зв'язок роботи з науковими програмами, планами і темами, мету і завдання досліджень, наукову новизну та практичну цінність отриманих результатів, особистий внесок здобувача, представлено дані стосовно апробації результатів дисертації, публікації, структуру і обсяг роботи.

У **першому розділі** представлено ґрунтовний літературний огляд стосовно використання водню у хіміко-термічний обробці функціональних матеріалів, включаючи види водневої обробки та їх вплив на мікроструктуру та властивості матеріалів. Проаналізовано сучасний стан ринку функціональних матеріалів на основі рідкісноземельних матеріалів (РЗМ) та відзначено особливу перспективність подальшого вдосконалення воденьоакуючих та феромагнітних сплавів, зокрема методами водневої обробки. Автор акцентує увагу на необхідності розроблення способів формування анізотропної дрібнозеренної структури в даних матеріалах, а також на можливостях та проблемних аспектах застосування засобів обчислювального інтелекту як в матеріалознавстві загалом, так і прогнозування властивостей матеріалів зокрема. На основі узагальнення представлених даних сформульовану мету та завдання досліджень.

У **другому розділі** докладно охарактеризовано матеріали та методики експериментальних досліджень. Зокрема описано методи отримання досліджуваних сплавів та їх водневої обробки. В роботі застосовано системний підхід до вивчення природи ініційованих воднем фазових перетворень в сплавах на основі РЗМ з використанням рентгенівського фазового аналізу, а також оптичної та скануючої електронної мікроскопії. Проведено встановлення гранулометричних характеристик порошкових матеріалів, отримано дослідні зразки зв'язаних та спечених постійних магнітів та комп'ютерне прогнозування їх властивостей.

У **третьому розділі** описано закономірності взаємодії з воднем сплавів на основі сполуки  $\text{LaNi}_5$ , в яких частина нікелю заміщена кобальтом або алюмінієм, а частина лантану – неодимом. Встановлено вплив вихідного хімічного складу на характер та температури фазових перетворень за водневої обробки методом гідрування, диспропорціонування, десорбції, рекомбінації (ГДДР) сплавів  $\text{LaNi}_{5-x}\text{Co}_x\text{-H}_2$  ( $x = 0,2; 0,6; 1,0; 1,5$  та  $2,0$ ),  $\text{La}_{0,5}\text{Nd}_{0,5}\text{Ni}_{5-x}\text{Al}_x$  ( $x = 0; 1; 1,5$ ) та  $\text{La}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Ni}_{3,5}\text{Al}_{1,5}\text{-H}_2$  ( $x = 0,1$  та  $0,2$ ). Показано, що за певних умов реалізації ГДДР в досліджуваних сплавах можливе формування кристалографічної текстури, а також двофазного складу, коли додатково да основної фази із структурним типом

CaCu<sub>5</sub> виділяється кобальт. Оскільки сполука LaNi<sub>5</sub> є немагнітним аналогом феромагнітної фази SmCo<sub>5</sub>, висунуто припущення, що обробка феромагнітних сплавів на основі РЗМ в середовищі водню матиме подібний ефект. В наступних розділах дисертаційної роботи детально досліджено можливість забезпечення в результаті водневої обробки поєднання кількох ключових, з точки зору створення нового покоління постійних магнітів, умов: співіснування магнітотвердої та магнітом'якої фаз, здрібнення мікроструктури та текстурування феромагнітної фази.

У четвертому розділі представлено результати вивчення впливу параметрів водневої обробки на структуру, фазовий склад та властивості феромагнітних сплавів системи Sm-Co. Показано можливість диспропорціонування високостабільної фази SmCo<sub>5</sub> у водні низького тиску та суттєвий вплив на фазовий склад способу реалізації (*звичайний* чи *солід* ГДДР) водневої обробки. Встановлено оптимальні з практичної точки зору параметри обробки промислового феромагнітного сплаву КС37 на етапі гідрування-диспропорціонування, а саме тиск водню 0,5...0,6 МПа, температура 640 °С, тривалість витримки від 2 до 5 год, які забезпечують наявність залишків основної феромагнітної фази серед продуктів диспропорціонування та формування кристалографічної текстури на етапі рекомбінування. Застосування комбінованого способу водневої обробки, який поєднує високоенергетичний помел в планетарному млині з подальшою обробкою методом *солід* ГДДР дозволяє контролювано змінювати якісний та кількісний фазовий склад, а також магнітні властивості. При цьому коерцитивна сила підвищується з підвищенням температури рекомбінування, досягаючи максимальної величини ~ 41 кЕ при температурі 950 °С. Металографічними дослідженнями виявлено, що реакція диспропорціонування розпочинається по границях зерен і поширюється до їх центру. При цьому навколо зерен фази SmCo<sub>5</sub> утворюється область, яка складається з високодисперсної суміші продуктів диспропорціонування з розмірами зерен 55...90 нм в комірках якої розташовані залишки недиспропорціонованої фази SmCo<sub>5</sub>.

П'ятий розділ дисертації присвячений встановленню закономірностей взаємодії з воднем феромагнітних сплавів системи Nd-Fe-B. Отримані результати підтвердили встановлені закономірності ініційованих воднем фазових перетворень в РЗМ-вмісних матеріалах: гомогенізаційний ефект, здрібнення мікроструктури, появу кристалографічної текстури за умови наявності фрагментів основної фази серед продуктів її диспропорціонування, високотемпературну рекомбінацію у водні та можливість цілеспрямовано керувати фазовим складом та параметрами мікроструктури, змінюючи режими обробки. Висвітлено особливості реалізації комбінованого способу водневої обробки даних сплавів. Для запобі-

гання агломерації високодисперсних частинок порошків, внаслідок чого знижується їх здатність до текстурування, під час помелу слід застосовувати поверхнево активну речовину. Комплексне легування сплавів на основі сполуки  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  залізом та цирконієм (Fe + Zr) дозволяє одночасно домогтись здрібнення мікроструктури та наявності залишків основної фази серед продуктів диспропорціонування, що забезпечує їх текстурування.

У шостому розділі представлено розроблені технологічні прийоми водневої обробки досліджуваних матеріалів. На основі експериментально встановлених закономірностей запропоновано три способи формування у феромагнітних сплавах систем Sm-Co та Nd-Fe-B анізотропної дрібнодисперсної структури. Автор на конкретних прикладах демонструє вплив режимів обробки (тиск водню, температуру нагріву в водні та вакуумі, а також тривалість витримки на етапах диспропорціонування та рекомбінування, частота обертання камери млина та тривалість помелу тощо) на розмір зерен, параметром текстури та магнітні властивості. Показано можливість формування високодисперсної мікроструктури (розмір зерен 120-320 нм) за умов низькотемпературного спікання у водні.

У сьомому розділі дисертаційної роботи встановлено ефективність використання методів машинного навчання для прогнозування магнітних властивостей феромагнітних сплавів системи Sm-Co. Проведено експериментальне порівняння вісьмох існуючих методів машинного навчання, встановлено точність їх роботи та показано, що лише ансамблеві методи дозволяють побудувати адекватну модель для прогнозування. Побудову ансамблевих моделей здійснювали із застосуванням стратегій скетінгу, бустингу та беггінгу. При цьому в якості гетерогенні елементів використано Neural Networks, AdaBoost, Gradient Boosting та алгоритм Random Forest. Експериментально встановлено, що алгоритм Random Forest як основа ансамблевих моделей, побудованих із застосуванням стратегій скетінгу та беггінгу, демонструє найкращі результати роботи при прогнозуванні магнітних властивостей. Окремо необхідно наголосити, що використання бустингової стратегії ансамблювання дозволило отримати достатньо високу точність прогнозування максимального енергетичного добутку у випадку наявності короткого набору даних (лише 190 спостережень). Розв'язання таких задач є надзвичайно важливим завданням сучасного матеріалознавства, оскільки дозволяє застосовувати засоби обчислювального інтелекту в умовах наявності обмеженої кількості експериментально встановлених вихідних даних.

**Висновки** належним чином відображають основні результати дисертаційної роботи.

## **Ступінь обґрунтованості наукових положень, висновків та рекомендацій, сформульованих в дисертації, їх достовірність**

Наукові результати, що отримані в дисертації, ґрунтуються на аналізі значної кількості літературних джерел, використанні сучасних методів та методик досліджень процесів ініційованих воднем фазово-структурних перетворень в сплавах на основі рідкісноземельних металів. Це дозволило автору на основі узагальнення результатів досліджень запропонувати регулятивний механізм цілеспрямованої зміни мікроструктури і фазового складу функціональних матеріалів на основі РЗМ для забезпечення заданих експлуатаційних властивостей шляхом вибору технологічних параметрів водневої обробки методами машинного навчання. Достовірність наукових положень дисертації не викликає сумніву, оскільки підтверджена значним обсягом експериментальних досліджень, результати яких були обговорені та схвалені науковою спільнотою на численних вітчизняних та міжнародних конференціях, а також захищені відповідними патентами України на винахід. Отримані результати узгоджуються з сучасними постулатами водневої металургії та гідридного матеріалознавства.

## **Наукова новизна роботи**

Автором запропоновано застосовувати засоби штучного інтелекту для вибору параметрів водневої обробки функціональних матеріалів на основі рідкісноземельних та перехідних металів, що дозволяє керувати їх експлуатаційними властивостями за рахунок цілеспрямованої зміни фазового складу та мікроструктури. Вперше встановлено механізм та умови повного диспропорціонування у водні низького тиску високостабільної фази  $\text{SmCo}_5$ . Отримали подальший розвиток наукові основи формування високодисперсної анізотропної структури у функціональних матеріалах на основі РЗМ внаслідок обробки в середовищі водню та встановлено конкретні параметри обробки, які забезпечують отримання заданих властивостей. Експериментально підтверджено, що для формування текстури внаслідок обробки методом гідрування, диспропорціонування, десорбування та рекомбінування (ГДДР) необхідно забезпечити присутність залишків основної фази серед продуктів диспропорціонування. Вперше показано, що комплексне легування сплавів системи Nd-Fe-B залізом та цирконієм дозволяє одержати після рекомбінування дрібнозеренну мікроструктуру та високий ступінь текстури. Розроблено алгоритми комп'ютерного прогнозування магнітних властивостей РЗМ-вмісних матеріалів, що дозволило на 12-15% підвищити точність роботи ансамблевих методів машинного навчання.



### **Практичне цінність отриманих результатів**

Для отримання порошків феромагнітних сплавів систем Sm-Co та Nd-Fe-B з контрольованим фазовим складом, розміром структурних складових та параметром текстури розроблено та запатентовано такі способи водневої обробки: воднево-вакуумна термічна обробка, помел у водні та ГДДР за низьких тисків водню. Створено вихідну базу даних та розроблено ансамблеву модель комп'ютерного прогнозування магнітних властивостей, що дозволяє здійснювати вибір технологічних режимів водневої обробки з використанням методів машинного навчання. Це дозволило суттєво знизити трудомісткість, тривалість та вартість експериментальних досліджень впливу хімічного та фазового складу, параметрів мікроструктури, наявності текстури тощо на магнітні властивості. Отримані результати будуть використанні при розробленні технології отримання багатofункціональних оксидних керамічних покриттів з використанням методів обчислювального інтелекту, а також для синтезу товстоплівкових порошкових функціональних покриттів. Результати дисертаційної роботи запроваджено в навчальний процес підготовки бакалаврів та магістрів Національного університету «Львівська політехніка».

### **Загальна характеристика дисертації та реферату**

За структурою, об'ємом та стилем викладення дисертаційна робота Тростянчина А.М. та її реферат розкривають суть вирішення науково-технічної проблеми, відповідають меті роботи та її завданням. Дисертація оформлена згідно вимог до докторських дисертацій, реферат повною мірою відображає суть дисертації. Тема і зміст дисертації відповідає паспорту спеціальності 05.02.01 – матеріалознавство. Основні результати дисертації достатньо повно висвітлені в 40 публікаціях, з яких 17 статей у фахових виданнях, індексованих в наукометричних базах даних Scopus та Web of Science, та 5 патентів України на винахід.

### **Зауваження до дисертації та автореферату**

1. В деяких випадках світлин мікроструктур представлені за великих збільшень (наприклад, рис. 4.7.17, б -  $\times 10\ 000$ ) не дають додаткової інформації порівняно із поданими за менших збільшень проте вищої якості.

2. Під час інтерпретації результатів рентгенівського фазового аналізу диспропорціонованих матеріалів автор часто стверджує про наявність залишків вихідної фази, хоча на самих дифрактограмах рентгенівські відбиття таких фаз відсутні.

3. У другому розділі дуже обмежені дані щодо технології пресування.

3. Досягнення кінцевих результатів формування структури досягається за-

вдяки процесів гідрування-дегідрування. Швидкість та термін цього процесу залежить від ступеня насичення металів воднем, а кінцевий результат досягається шляхом дегідрування. У роботі не розглянуто залежність кінцевого результату від ступеня насичення металів воднем, а розглядається лише його максимальне значення. Можливо, кінцевих результатів можливо було досягнути і при менших концентраціях водню.

4. У роботі наявні акти про можливість впровадження результатів роботи у виробництво, але відсутні самі результати впровадження.

Вказані зауваження не знижують цінності досягнутих результатів і високого наукового рівня дисертаційної роботи Тростянчина Андрія Миколайовича, яка є закінченим науковим дослідженням, виконаним із застосуванням сучасних експериментальних методик.

#### **Висновок щодо відповідності дисертації поставленим вимогам**

Вважаю, що дисертаційна робота Тростянчина Андрія Миколайовича «Концепція застосування водневої обробки для удосконалення структур-но-фазового стану та властивостей функціональних матеріалів на основі сплавів рідкісноземельних та перехідних металів» є завершеною науковою роботою, в якій отримані нові науково обґрунтовані результати, зокрема стосовно закономірностей зміни фазового-структурного стану РЗМ-вмісних функціональних матеріалів залежно від умов водневої обробки, а також особливостей застосування засобів обчислювального інтелекту для прогнозування їх експлуатаційних властивостей.

Робота відповідає паспорту спеціальності 05.02.01 – матеріалознавство, не містить академічного плагіату, задовольняє чинні вимоги п.п. 7 та 9 Порядку прилюдження та позбавлення наукового ступеня доктора наук, затвердженого постановою Кабінету Міністрів України від 17 листопада 2021 року № 1197, а її автор заслуговує присвоєння наукового ступеня доктора технічних наук за спеціальністю 05.02.01 – матеріалознавство.

Офіційний опонент,  
доктор технічних наук, професор  
завідувач кафедри обладнання та  
технології зварювального виробництва  
Національного університету  
«Запорізька політехніка»,



Підпис О.В. Овчинников  
**ЗАСВІДЧУЮ**  
**ВЧЕНИЙ СЕКРЕТАР**  
НАЦІОНАЛЬНОГО УНІВЕРСИТЕТУ  
"ЗАПОРІЗЬКА ПОЛІТЕХНІКА"

*Овчинников*  
*Кусташа*