

## **ОТЗЫВ ОФИЦИАЛЬНОГО ОППОНЕНТА**

на диссертацию Моховой Елизаветы Константиновны, тема «Интенсификация и моделирование вакуумной сублимационной сушки материалов различной структуры (на примере биополимерных матриц и суспензий)», представленную к защите на соискание ученой степени кандидата технических наук по научной специальности 2.6.13. Процессы и аппараты химических технологий

### **Актуальность темы исследования**

Диссертационная работа Моховой Е.К. посвящена интенсификации и моделированию вакуумной сублимационной сушки материалов различной структуры (на примере биополимерных матриц и суспензий). Несмотря на длительный период практического применения вакуумной сублимационной сушки, данная технология продолжает оставаться объектом исследований и конструкторско-технологических разработок, направленных на снижение временных и энергетических затрат.

Разработка технологий получения биodeградируемых, композиционных и дисперсных полимерных материалов является актуальным направлением развития медицины, в частности регенеративной медицины, а также биотехнологии. Вакуумная сублимационная сушка (ВСС) позволяет получать биополимерные матрицы, обладающие развитой макропористой структурой, которая обеспечивает сорбционные свойства, а также удалять растворитель в щадящих температурных режимах и в отсутствие длительного контакта с кислородом воздуха (процесс ведется в вакууме). Необходимо отметить, что ВСС позволяет получать также порошки, если передаваемый на сушку материал представляет собой суспензию или если замораживание материала происходит непосредственно при его распылении.

Вакуумная сублимационная сушка является энергозатратным методом, поэтому исследование и интенсификация процесса вакуумной

сублимационной сушки являются актуальными и важными направлениями в области повышения энергоэффективности и увеличения производительности в сфере получения биополимерных материалов. Для анализа и кинетического расчета аппаратов широко применяются методы математического моделирования, развитие которых, также является неотъемлемой частью представленной работы.

Важно отметить, что работа выполнялась при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации, что является дополнительным подтверждением востребованности представленной темы и ее актуальности для развития наукоемких отраслей Российской Федерации.

### **Основное содержание работы**

Диссертационная работа состоит из введения, 5 глав, заключения, списка литературы из 194 наименований, 5 приложений. Общий объем работы составляет 241 страницу печатного текста, включая 35 таблиц и 94 рисунка.

*Во введении* отражены и обоснованы актуальность работы, представлены ее новизна, научная и практическая значимости. Сформулированы цель и задачи исследования, отмечен личный вклад автора, указаны сведения об апробации работы.

*В первой главе* проведен анализ научно-технической литературы в области получения и изучения характеристик новых биodeградируемых, композиционных и дисперсных полимерных материалов, применяющихся в качестве подложек для культивирования клеток или систем доставки активных фармацевтических ингредиентов. Рассмотрены способы управления ростом и морфологией кристаллов льда, их влияние на формируемую микроструктуру полимерных материалов.

Рассмотрены основные этапы и описаны способы интенсификации вакуумной сублимационной сушки на различных стадиях процесса.

Рассмотрены методы математического моделирования тепло- и массопереноса на этапах предварительной заморозки исходных растворов полимеров и непосредственно вакуумной сублимационной сушки. На основании литературного обзора были сформулированы основные задачи диссертационной работы.

*Во второй главе* выделены различные типы материалов в зависимости от их строения для выявления взаимосвязи между структурой образцов и последующей кинетикой вакуумной сублимационной сушки. Подобного рода деление материалов на различные типы, такие как условно гомогенные, условно гетерогенные и структурированные ультразвуком на этапе предварительной заморозки, позволяет учесть особенности структуры материалов при математическом описании кинетики вакуумной сублимационной сушки.

В экспериментальной работе получено порядка 17 различных образцов. Представлены результаты микроскопического исследования размеров кристаллов льда и их морфологии. Полученные результаты использовались при последующем математическом моделировании стадии предварительной заморозки.

*В третьей главе* представлены способы интенсификации вакуумной сублимационной сушки на различных стадиях ведения процесса.

В рамках интенсификации стадии предварительной заморозки и получения структурноориентированных материалов предложена конструкция установки для проведения процесса с ультразвуковым воздействием. Получены и проанализированы результаты исследования кинетики заморозки образцов без и с ультразвуковым воздействием. Сокращение времени этапа предварительной заморозки растворов полимеров в результате импульсного воздействия ультразвуком в период фазового перехода, автор связывает с образованием большого количества кавитационных пузырьков, поверхности которых выступают в качестве центров зарождения кристаллов льда, что подкрепляется соответствующими

теоретическими исследованиями, отраженными в цитируемой научно-технической литературе.

Во второй части третьей главы приводятся результаты исследования градиентов давления на кинетику вакуумной сублимационной сушки для материалов различной структуры. В рамках интенсификации стадии сушки разработана конструкция установки для проведения процесса вакуумной сублимационной сушки с одновременным инфракрасным и ультразвуковым воздействием; приведено подробное описание составляющих ее конструктивных элементов. Разработана система управления процессом вакуумной сублимационной сушки, а также программный модуль, позволяющий взаимодействовать с микроконтроллером, исследовать и анализировать кинетику сушки различных материалов в режиме реального времени. Проведены серии экспериментов по исследованию кинетики сушки различных матриц и суспензий.

Результаты исследований показали, что совместное применение ультразвука на этапе заморозки, и применение инфракрасного и импульсного ультразвукового воздействия на последующем этапе вакуумной сублимационной сушки приводит к синергетическому эффекту, тем самым интенсификация проходит на всех этапах технологического процесса, и более эффективно на этапе сушки.

*Четвертая глава* посвящена математическому моделированию стадии предварительной заморозки и вакуумной сублимационной сушки. Приводится подробное математическое описание каждого из этапов.

В первой части главы путем математического моделирования этапа заморозки с применением метода оптимизации подобраны коэффициенты к уравнению распределения кристаллов льда по размерам.

Во второй части главы предлагается подход для учета особенностей строения материала при расчете скорости тепло- и массопереноса в процессе вакуумной сублимационной сушки. Кроме того, предлагается подход, основанный на объединении математической модели кинетики сушки для

материалов различной структуры, написанной на языке программирования Python, с моделью – программный пакет Ansys Fluent, основанной на расчете гидро- и газодинамики. Описанный подход позволил рассчитать распределение паров по объемам лабораторного и промышленного лиофилизаторов.

В третьей части главы подтверждена адекватность математической модели кинетики сушки на пилотной установке Labconco с использованием факторов различия и подобия.

В пятой главе представлены результаты расчета экономической эффективности процесса вакуумной сублимационной сушки для четырех различных режимов. Показано, что режим сушки, включающий предварительную заморозку с ультразвуковым воздействием и непосредственно сушку с инфракрасным и импульсным ультразвуковым воздействием, является наиболее экономически выгодным, в особенности на промышленной установке.

Заключение содержит основные результаты диссертационной работы, а также рекомендации и перспективы.

### **Научная новизна диссертации**

В зависимости от физической структуры и технологии получения выделены соответствующие типы материалов, рассматриваемые в данной диссертационной работе. Исследовано влияние ультразвуковых колебаний, примененных на стадии предварительной заморозки, на морфологию кристаллов льда и последующую структуру, и морфологию материалов после вакуумной сублимационной сушки.

Исследованы способы интенсификации стадии предварительной заморозки и последующей вакуумной сублимационной сушки. Изучено влияние ультразвука на кинетику заморозки, а также влияние градиентов давления, инфракрасного излучения и ультразвукового воздействия на кинетику вакуумной сублимационной сушки.

Разработана математическая модель кинетики заморозки полимерных материалов, в том числе с учетом влияния ультразвука на кинетику заморозки. В модели, с помощью методов оптимизации, подобраны коэффициенты эмпирического уравнения, описывающего распределение кристаллов льда по размерам.

При расчете скорости тепло- и массопереноса в процессе вакуумной сублимационной сушки предложен подход для учета особенностей строения материала, заключающийся в различном расположении компонентов материала и распределении физико-химических свойств в расчетной области. Разработана математическая модель для расчета вакуумной сублимационной сушки материалов различной структуры с учетом неравномерного распределения водяных паров по объемам лабораторного и промышленного лиофилизаторов.

Исследовано влияние давления водяных паров на кинетику сушки при организации процесса в лабораторной и промышленной установках. Получены результаты расчета кинетики вакуумной сублимационной сушки материалов различной структуры с учетом ультразвукового и инфракрасного воздействия.

### **Теоретическая и практическая значимость диссертации**

Для различных образцов, которые могут быть использованы как матриксы или подложки для культивирования клеток, а также как системы доставки лекарственных препаратов, апробированы методики получения.

Предложен ряд конструктивных решений для интенсификации вакуумной сублимационной сушки на каждом этапе процесса. В частности, предложена конструкция установки для проведения процесса предварительной заморозки с ультразвуковым воздействием, а также предложена конструкция установки для проведения вакуумной сублимационной сушки с одновременным инфракрасным и ультразвуковым

воздействием в объеме рабочей камеры, что было осуществлено впервые для сушки полимерных матриксов и суспензий.

При проведении экспериментальных работ по исследованию кинетики вакуумной сублимационной сушки использовались разработанные автоматизированная система управления процессом сушки с одновременным инфракрасным и ультразвуковым воздействием, а также программный модуль, служащий для определения влагосодержания и температуры материала в процессе сушки.

Проведено и проанализировано большое количество экспериментальных исследований по кинетике замораживания и вакуумной сублимационной сушки материалов различной структуры, насчитывающих 81 эксперимент. Даны соответствующие рекомендации по проведению процесса вакуумной сублимационной сушки с ультразвуковым и инфракрасным воздействием.

Практическая значимость диссертационной работы подчеркивается рядом разработанных и зарегистрированных программ для ЭВМ, позволяющих рассчитывать кинетику заморозки и вакуумной сублимационной сушки, а также зарегистрированным патентом на полезную модель.

Проведенные расчеты экономической эффективности процесса вакуумной сублимационной сушки подтвердили сокращение энергетических затрат при организации процесса с одновременным инфракрасным излучением и ультразвуковым воздействием, в особенности, в установке промышленного масштаба.

#### **Степень обоснованности и достоверности научных положений и выводов**

Достоверность результатов работы подтверждается достаточным объемом экспериментальных данных, полученных с применением современных аналитических методов и стандартизированных методик. Для математической модели кинетики заморозки и последующей вакуумной

сублимационной сушки проведено сравнение расчетных и экспериментальных данных. В работе использованы известные методы математического и компьютерного моделирования, вычислительной гидродинамики.

Научные положения апробированы на международных и российских конференциях, опубликованы в рецензируемых научных изданиях.

Достоверность полученных результатов также определяется выполнением диссертационной работы в научной школе с богатым успешным опытом в области исследования химико-технологических процессов.

### **Замечания и рекомендации**

Основные положения работы достаточно аргументированы и вносят вклад, как в теорию, так и в практику реализации новой технологии. В то же время при анализе представленного материала возникли следующие замечания:

1. В диссертации дан обстоятельный обзор зарубежных работ по сублимационной сушке (в основном, химико-фармацевтических препаратов). Однако, количество отечественных работ по сублимационной сушке в списке литературы весьма ограничено. В частности, в нем отсутствуют ссылки на работы таких авторов, как Г.В. Семенов (сублимационная сушка пищевых материалов) и Д.П. Лебедев (сублимационная сушка медпрепаратов), которые активно занимались исследованиями в области сублимационной сушки. Работы по сублимационной сушке этих и других авторов докладывались на международных научно-практических конференциях «СЭТТ» и «СЭТМТ» (например, «СЭТТ-2005», «СЭТТ-2008», СЭТМТ-2023), проводимых в России. Отметим, что коллектив под руководством профессора Г. В. Семенова в 2022 г. получил премию Правительства РФ «за создание и внедрение высокоэффективных технологий и оборудования для переработки и хранения сельскохозяйственного сырья, систем контроля и



управления качеством пищевой продукции, обеспечивающей здоровье нации, импортозамещение и продовольственную безопасность России». В этой работе центральное место занимает именно сублимационная сушка пищевых материалов.

2. В главе 3 диссертант приводит результаты исследования кинетики заморозки и последующей вакуумной сублимационной сушки, с учетом ультразвукового воздействия. Приводятся результаты исследования для ультразвука с частотой 40 кГц и мощностью 50 Вт. Однако, исследование процесса заморозки и сушки при других параметрах ультразвука в диссертационной работе не представлены. Вполне возможно, что изменение частоты ультразвука будет способствовать более эффективному проникновению ультразвуковых волн через толщину материала.

3. В разделе 3.2.3 дан подробный анализ кинетики сушки для материалов различной структуры, а также сделаны соответствующие выводы о влиянии структуры и морфологии поверхности исследуемых образцов на кинетику сушки. Приводятся снимки сканирующей электронной микроскопии для ряда образцов на основе альгинат-хитозана и альгинат-желатина и дается подробный их анализ. Однако, не хватает снимков сканирующей электронной микроскопии для образцов на основе поливинилового спирта, для выявления влияния ультразвука на морфологию поверхности данного образца.

4. На опытных кривых вакуумной сублимационной сушки суспензии (образцы С2 и С3), приведенных на стр. 135 диссертации, начиная со времени примерно 700 мин наблюдается некоторое ускорение процесса. Из диссертации не ясно, чем оно вызвано. Или это неточность эксперимента?

5. Имеются неточности при формулировке граничных условий к дифференциальному уравнению теплопроводности на страницах 146-147 диссертации, а именно:

- коэффициент теплоотдачи  $h$  в уравнении (4.21) назван коэффициентом теплопередачи. Коэффициент теплоотдачи и коэффициент теплопередачи – разные коэффициенты.

- граничное условие при  $x = 0$  сформулировано в виде уравнения (4.23):

$$\lambda \frac{\partial T}{\partial x} = h(T_{\text{стекло}} - T_{\text{внз}}), \quad (4.23)$$

в котором правая часть уравнения записана через уравнение теплоотдачи, причем указано, что коэффициент  $h$  находили через число Nu по выражению (4.26):

$$h = \frac{\text{Nu} \lambda_{\text{стекло}}}{L}, \quad (4.26)$$

Но уравнение теплоотдачи Ньютона описывает теплообмен между некоторой поверхностью (стенкой) и потоком газа или жидкости. В данном же случае поверхность материала контактирует с поверхностью твердого тела (стекла).

- автор на стр. 146 приводит критериальные уравнения (4.27) и (4.29) для расчета коэффициента теплоотдачи, но не указывает литературные источники, откуда они взяты. Для этих уравнений надо было также привести диапазоны изменения определяющих критериев подобия, в которых эти уравнения справедливы.

Сделанные замечания не влияют на общую положительную оценку диссертационной работы. Выполненное исследование указывает на высокий профессиональный уровень соискателя. Диссертация прошла хорошую апробацию и достаточно полно опубликована.

### **Соответствие диссертации предъявляемым требованиям**

Диссертация Моховой Е.К. «Интенсификация и моделирование вакуумной сублимационной сушки материалов различной структуры (на примере биополимерных матриксов и суспензий)» соответствует паспорту научной специальности 2.6.13. Процессы и аппараты химических технологий по направлениям исследований: «фундаментальные исследования явлений

переноса энергии, массы и импульса в химико-технологических процессах и аппаратах», «способы, приемы, методология исследования гидродинамики движения жидкости, газов, перемещение сыпучих материалов в технологических аппаратах и схемах», «способы, приемы, методология исследования химических, тепловых, массообменных и совмещенных процессов, совершенствование их аппаратного оформления», «способы, приемы, методология изучения нестационарных режимов протекания процессов в химической аппаратуре, в том числе с целью формирования предпосылок эффективного управления и автоматизации», «методы и способы интенсификации химико-технологических процессов, в том числе с помощью физико-химических воздействий на перерабатываемые материалы».

Соискателем представлено необходимое количество публикаций, содержание которых достаточно полно отражает содержание диссертационной работы. Результаты работы представлены на 1 научной конференции всероссийского и 8 научных конференциях международного уровня. Оформление диссертации и автореферата выполнено в соответствии с требованиями, изложение диссертации выстроено логично. Содержание автореферата в полной мере отражает содержание диссертации. Диссертация Моховой Е.К. соответствует критериям, установленным Положением о порядке присуждения ученых степеней в РХТУ им. Д.И. Менделеева и положением о диссертационном совете РХТУ им. Д.И. Менделеева.

### **Заключение**

Диссертационная работа Моховой Елизаветы Константиновны на тему «Интенсификация и моделирование вакуумной сублимационной сушки материалов различной структуры (на примере биополимерных матриц и суспензий)» является законченной научно-квалификационной работой, в которой решена актуальная задача повышения энергоэффективности и увеличения производительности в сфере получения биополимерных

материалов. Кроме того, был предложен способ интенсификации процесса вакуумной сублимационной сушки на каждой стадии технологического процесса: от предварительной заморозки до непосредственно самой сушки. Автором было проведено большое количество экспериментальных, аналитических и теоретических исследований.

Диссертационная работа Моховой Е.К полностью соответствует Положению о порядке присуждения ученых степеней в федеральном государственном бюджетном образовательном учреждении высшего образования «Российский химико-технологический университет им. Д.И. Менделеева», утвержденного приказом и.о. ректора РХТУ им. Д.И. Менделеева от 14.09.2023 г. № 103ОД. Мохова Елизавета Константиновна заслуживает присуждения ученой степени кандидата технических наук по специальности 2.6.13. Процессы и аппараты химических технологий.

#### Официальный оппонент

Профессор кафедры «Теплотехника, гидравлика и энергообеспечение предприятий» ФГБОУ ВО «Российский государственный аграрный университет – МСХА имени К.А. Тимирязева», д.т.н., профессор

 Рудобашта Станислав Павлович

Адрес: 127434, Российская Федерация, г. Москва, ул. Тимирязевская, 49.  
Телефон: +7 (499) 976-15-76  
E-mail: srudobashta@rgau-msha.ru

ПОДПИСЬ  
ЗАВЕРЯЮ

  


М.А.Пастухова

материалов. Кроме того, был предложен способ интенсификации процесса вакуумной сублимационной сушки на каждой стадии технологического процесса: от предварительной заморозки до непосредственно самой сушки. Автором было проведено большое количество экспериментальных, аналитических и теоретических исследований.

Диссертационная работа Моховой Е.К полностью соответствует Положению о порядке присуждения ученых степеней в федеральном государственном бюджетном образовательном учреждении высшего образования «Российский химико-технологический университет им. Д.И. Менделеева», утвержденного приказом и.о. ректора РХТУ им. Д.И. Менделеева от 14.09.2023 г. № 103ОД. Мохова Елизавета Константиновна заслуживает присуждения ученой степени кандидата технических наук по специальности 2.6.13. Процессы и аппараты химических технологий.

#### Официальный оппонент

Профессор кафедры «Теплотехника, гидравлика и энергообеспечение предприятий» ФГБОУ ВО «Российский государственный аграрный университет – МСХА имени К.А. Тимирязева», д.т.н., профессор

 Рудобашта Станислав Павлович

Адрес: 127434, Российская Федерация, г. Москва, ул. Тимирязевская, 49.  
Телефон: +7 (499) 976-15-76  
E-mail: srudobashta@rgau-msha.ru

Отдел по организации и  
координации диссертационных  
советов

  
Подпись сотрудника

  
Рудобашта

№ 138-03/24 от 14.03.24