

ЗАТВЕРДЖУЮ

Директор Інституту фізики
конденсованих систем НАН України

чл.-кор. НАН України

"3"

липень

2025 р.

С.М.Брик



Результати обговорення та проведення презентації дисертаційної роботи Галини Бутович та висновок про наукову новизну, теоретичне та практичне значення результатів дисертації

ВИТЯГ

з протоколу № 1272 фахового семінару

Інституту фізики конденсованих систем НАН України від 19.06.2025 р.

1. ПРИСУТНІ 40 працівників Інституту фізики конденсованих систем НАН України, а саме:

1. Андрій Богданович БАУМКЕТНЕР, провідний науковий співробітник
2. Ірина Степанівна БЗОВСЬКА, кандидат фізико-математичних наук, вчений секретар
3. Вікторія Богданівна БЛАВАЦЬКА, доктор фізико-математичних наук, завідувач лабораторії
4. Тарас Михайлович БРИК, доктор фізико-математичних наук, директор Інституту фізики конденсованих систем НАН України
5. Андрій Степанович ВДОВИЧ, доктор фізико-математичних наук, старший науковий співробітник
6. Олег Володимирович ВЕЛИЧКО, доктор фізико-математичних наук, старший науковий співробітник
7. Юрій Васильович ГОЛОВАЧ, доктор фізико-математичних наук, професор, академік НАН України, головний науковий співробітник
8. Мирослав Федорович ГОЛОВКО, доктор фізико-математичних наук, професор, член-кореспондент НАН України, головний науковий співробітник
9. Тарас Ігорович ГУТАК, доктор філософії, молодший науковий співробітник
10. Тарас Васильович ДЕМЧУК, доктор філософії, науковий співробітник
11. Олег Володимирович ДЕРЖКО, доктор фізико-математичних наук, завідувач відділу квантової статистики
12. Оксана Андріївна ДОБУШ, кандидатка фізико-математичних наук, наукова співробітниця, докторантка
13. Данило Андрійович ДОБУШОВСЬКИЙ, молодший науковий співробітник
14. Олександр Львович ІВАНКІВ, кандидат фізико-математичних наук, заступник директора з наукової роботи
15. Василь Васильович ІГНАТЮК, кандидат фізико-математичних наук, старший науковий співробітник

16. Ілля-Микола Анджейович ІЛЕНКОВ, аспірант
17. Ярослав Миколайович ІЛЬНИЦЬКИЙ, професор, доктор фізико-математичних наук, завідувач відділу комп'ютерного моделювання багаточастинкових систем
18. Ігор Володимирович ІДАК, аспірант
19. Остап Юрійович КАЛЮЖНИЙ, кандидат фізико-математичних наук, молодший науковий співробітник
20. Марія Іванівна КОПЧА, доктор філософії, молодший науковий співробітник
21. Марія Ярославівна КОРВАЦЬКА, молодша наукова співробітниця
22. Іван Ярославович КРАВЦІВ, кандидат фізико-математичних наук, науковий співробітник
23. Тарас Євстахійович КРОХМАЛЬСЬКИЙ, кандидат фізико-математичних наук, старший науковий співробітник
24. Олеся Михайлівна КРУПНІЦЬКА, кандидат фізико-математичних наук, науковий співробітник
25. Назар Борисович КУКАРКІН, аспірант
26. Богдан Михайлович ЛІСНИЙ, кандидат фізико-математичних наук, старший науковий співробітник
27. Ігор Миронович МРИГЛОД, доктор фізико-математичних наук, академік НАН України, головний науковий співробітник
28. Микола Іванович ПАЦАГАН, заступник директора з загальних питань
29. Оксана Вадимівна ПАЦАГАН, доктор фізико-математичних наук, провідна наукова співробітниця
30. Тарас Миколайович ПАЦАГАН, доктор фізико-математичних наук, заступник директора з наукової роботи, завідувач відділу теорії м'якої речовини
31. Ігор Васильович ПИЛЮК, доктор фізико-математичних наук, провідний науковий співробітник
32. Роман Васильович РОМАНІК, кандидат фізико-математичних наук, докторант
33. Петро Васильович САПРІЯНЧУК, аспірант
34. Михайло Васильович ТОКАРЧУК, доктор фізико-математичних наук, професор, головний науковий співробітник
35. Андрій Дмитрович ТРОХИМЧУК, доктор фізико-математичних наук, провідний науковий співробітник
36. Андрій Михайлович ШВАЙКА, доктор фізико-математичних наук, провідний науковий співробітник
37. Микола Адріанович ШПОТ, кандидат фізико-математичних наук, старший науковий співробітник
38. Ярослав Йосифович ЦУР, доктор фізико-математичних наук, провідний науковий співробітник
39. Юрій Григорович ЯРЕМКО, доктор фізико-математичних наук, провідний науковий співробітник

40. Дмитро Любомирович ЯРЕМЧУК, доктор філософії, молодший науковий співробітник

З присутніх – 17 докторів наук, 4 доктори філософії та 11 кандидатів наук (фахівців за профілем поданої дисертації). Голова засідання – доктор фізико-математичних наук, академік НАН України, головний науковий співробітник І. М. МРИГЛОД.

2. СЛУХАЛИ доповідь аспірантки відділу теорії м'якої речовини Бутович Галини Анатоліївни за матеріалами дисертаційної роботи “Комп’ютерне моделювання полімерно-ферментних комплексів та хелатних структур іонів важких металів”, поданої на здобуття ступеня доктора філософії за спеціальністю 104 – “Фізика та астрономія”.

Науковий керівник – доктор фізико-математичних наук, завідувач відділу теорії м'якої речовини Тарас Миколайович ПАЦАГАН.

Тему дисертації затверджено 29 травня 2025 року на засіданні вченої ради Інституту фізики конденсованих систем НАН України протокол №50.

Робота була виконана у відділі теорії м'якої речовини Інституту фізики конденсованих систем НАН України.

Після доповіді були поставлені запитання, на які доповідач дав правильні та ґрунтовні відповіді:

Академік НАН України І. М. Мриглод:

1) В мене є питання до вступу. Ви сказали, що, з одного боку, целюлосомі – це природні ферментно-полімерні комплекси, які утворюються мікроорганізмами. З іншого боку, йдеться про те, що бажано оптимізувати розташування ферментів на полімерних щітках. Тобто, перше і друге не пов'язано. Чи є змога проводити такі зміни без участі мікроорганізмів?

Відповідь: Використовуються як целюлосомі, що отримані природним шляхом, так і синтезуються ці комплекси штучно. Вирішується задача пошуку оптимального розташування ферментів на полімерах, який буде давати найкращий результат ефективності гідролізу.

2) Дякую. Йшла мова про те, що хелатування використовується в терапії, коли іони важких металів зв'язуються у комплекси. Ці комплекси краще виводяться з організму, чи вони просто блокують дію?

Відповідь: Так, хелатування нейтралізує іони металу. Тоді вони вже не можуть ефективно взаємодіяти з молекулами нашого організму.

3) Виводяться вони теж краще? Тобто, в хелатній формі вони виходять з організму краще?

Відповідь: Саме так. Проте, якщо забагато спожити EDTA, то можуть вивестись також і корисні елементи, наприклад, кальцій. Тому треба підбирати дозування.

4) І ще один аспект, який, мабуть, важливий для моделювання. Наголос робився на тому, що мова йде про неоднорідний розподіл ферментів на полімері. Наскільки цей акцент важливий?

Відповідь: Розглядається певний розподіл ферментів на ланцюгу. Він дуже важливий.

5) Я, власне, питав про неоднорідний розподіл. Але, фактично, в моделі ви використовуєте однорідний розподіл, з певною змінною щільністю, і він є регулярний. В цій моделі є можливість врахувати неоднорідність розподілу? Наприклад, коли більше скупчення на краях, або посередині?

Відповідь: Неоднорідність розподілу також важлива. Наприклад, в моделі C2 має місце розташування патчів (функціональних груп) виключно по краях. І для цієї моделі зв'язування було найбільш ефективним. Вся різноманітність розподілів не розглядалася, але так – можна розташовувати їх по-різному.

6) Я зрозумів. Ви вживаєте термін “патчі”.

Відповідь: Так, з англійської “patches“, або “плями”.

Член-кореспондент НАН України М. Ф. Головки:

1) Я спочатку недуже зрозумів показники 50 і 49. Ми знаємо потенціал Леннарда-Джонса, коли маємо 12 і 6. А чим обумовлений цей т. зв. Міє-потенціал? Коли фактично і відштовхувальна, і притягальна частина мають майже однакові показники.

Відповідь: Потенціал Міє – це узагальнення потенціалу Леннарда-Джонса. Форма такого потенціалу є ближчою до форми потенціалу твердої сфери. Для цього було підібрано відповідні показники і параметри.

2) Тобто, якщо ви робите симуляції, то є проблеми, якщо у вас тверда кулька, то ви її просто так якось пом'якшуєте?

Відповідь: Так. Пом'якшуємо, використовуючи потенціал псевдо-твердих сфер. Оскільки в цих симуляціях ми оперуємо силами, які розбігаються у випадку потенціалу правдивих твердих сфер.

3) Я ще до вступу хотів задати питання. Всі ці системи мають ще воду. Чомусь, ви нічого про це не сказали.

Відповідь: Тут (стосується розділу 2) присутність води не моделювалася у явному вигляді. Вона враховувалася неявно в рамках методу Ланжевенової динаміки.

4) Тобто, як потенціал середньої сили?

Відповідь: Присутність води враховувалася через випадкові сили і дисипативні сили тертя. Такий підхід, в тому числі, дозволяє заощадити обчислювальні ресурси.

Академік НАН України І. М. Мриглюд:

1) А для чого віднімати частину (йдеться про притягальну частину потенціалу Mie)? Чому не взяти просто м'який кор, велику степінь? Навіщо цей другий член, коли степені великі? Він забирає ресурс.

Відповідь: Це стандартний підхід представлення відштовхувального потенціалу по принципу WCA (Вікса-Чендлера-Андерсона)

Старший науковий співробітник Ігнатюк В. В.:

1) Якщо можна, кілька слів про природу випадкових сил, про які ви говорили? Тобто, це був дробовий шум, який враховує структуру молекул води, якісь білі шуми, чи якісь забарвлені?

Відповідь: Білі шуми. Це було зроблено стандартними засобами пакету LAMMPS для Ланжевенової динаміки.

Д. ф.-м. наук, директор інституту Брик Т.М.:

1) Ви порівнюєте молекулярну динаміку і DFT розрахунки. Я так розумію, що молекулярна динаміка робилася з явно врахованою водою, а DFT розрахунки

були без води. Чи з водою так само?

Відповідь: Розглядалися випадки без молекул води (DFT), і випадки, коли явно врахована присутність молекул води в перші координаційній сфері. Якщо говорити саме про результати, представлені на даному слайді, то тут повністю без води – вода врахована тільки в неявному вигляді.

2) Чорним зображено молекулярну динаміку в присутності молекул води? А чому значення DFT настільки відрізняються?

Відповідь: В залежності від вибору базисного набору хвильових функцій виходять дуже різні результати.

3) Ви електронні хвильові функції розкладали лише для іонів ртуті, а для атомів оточення не брали хвильові функції?

Відповідь: Для атомів полімеру PEI на графіку, який дуже відрізняється від інших, були використані інші набори хвильових функцій (6-31+g(d,p)). І це впливало на результат.

Член-кореспондент НАН України М. Ф. Головка:

1) Мова іде про іон ртуті. Він не є такий, як іон натрію із замкнутою оболонкою. Чи тут не відбуваються зміни у цьому іоні? Колись ми займалися розрахунками елемента Вестона з ртутним електродом. То було більше, ніж 40 років тому. І там допускалося, що іони ртуті можуть утворювати димери. І тоді, замість Hg^{2+} , формується є димер, який має тільки заряд +1. Чи ви бачите якісь зміни самого іона ртуті, коли робите квантово-механічні моделювання?

Відповідь: Ми використовували закрити оболонку, бо атом ртуті має 80 електронів. Але, якщо використовувати відкриту, то несильно щось змінювалося. Для ртуті перерозподіл зарядів дійсно має велике значення. В наступному розділі теж є ртуть, ми показуємо, як заряди перерозподіляються, і при цьому можуть формуватися ковалентні зв'язки. Тобто не лише Кулонівська взаємодія є важливою для іонів ртуті.

Д. ф.-м. наук, професор, головний науковий співробітник М. В. Токарчук:

1) Є іони, молекули води і полімер. А як в молекулярній динаміці враховується те, що заряджені частинки рухаються, і виникають поля, і тоді ефекти екранування мали би бути якось відображені. Чи їх тут нема? Коли є заряд і диполі, то очевидно, щось має бути.

Відповідь: Тут звісно вода спричинює екранування взаємодії. А заряди залишаються постійними, бо в методі молекулярної динаміки вони фіксовані.

Академік НАН України І. М. Мриглюд:

1) У вас є дослідження залежності від довжини ланцюга і т.д., і є певні результати. А експерименти з такими системами робились десь? Хоча б мінімальне порівняння з ними можна зробити?

Відповідь: Для саме таких систем, з лінійними поліетиленімінами – насправді мало даних. Зазвичай експериментаторами розглядаються молекули поліетиленіміну з великою молекулярною масою, а вони, як правило, розгалужені. До речі, такі системи вивчалися у свій час у Львівській політехніці. Було спостережено, що часто для таких великих молекул при високій концентрації іонів тільки 2 нітрогени зв'язуються з іоном, як і в нас. Проте, ці експерименти не можуть сказати про все, що ми моделювали.

2) Щодо зв'язку із попереднім розділом, якби я хотів дослідити аналогічні залежності, то що треба було б зробити?

Відповідь: Тут аналогія в тому, що ми спостерігаємо певне насичення іонів на полімері.

3) PEI-5 – це що означає?

Відповідь: Ланцюг лінійного поліетиленіміну, який містить 5 нітрогенів.

Д. ф.-м. наук, директор інституту Брик Т.М.:

1) Знову питання про DFT розрахунки. Я бачу, що заряд іону ртуті міг змінюватися. А як у вашій версії DFT задавалися хвильові функції? Можна 6s і 6p функції не розраховувати і вважати, що вони весь час незаповнені, або закладати їх і дивитися їхнє заповнення. Тоді дійсно буде зменшення заряду. І чи враховувалися 5d електрони? Це суттєво, бо ця оболонка повністю заповнена в ртуті і поляризується, що дуже сильно впливає на структуру оточення. Ми робили ab-initio симуляції для ртуті і обов'язково враховували.

Відповідь: В LanL2DZ описі 6s і 6p орбіталі описуються базисом та можуть брати участь у перерозподілі електронної густини. 5d електрони враховані й поляризуються. Замороженими залишаються тільки внутрішні оболонки, які замінюються ефективним потенціалом ядра.

Д. ф.-м. наук, професор, головний науковий співробітник М. В. Токарчук:

1) Є теорія, МД, DFT та експериментальні значення, які суттєво відрізняються. Що ще треба було б зробити, щоб було ближче до експерименту? Магнітні властивості не так просто зразу врахувати.

Відповідь: В DFT можна було б спробувати врахувати більшу кількість молекул води. Було зауважено проблеми з вибором базису хвильових функцій. Можливо варто спробувати використати інші базиси, наприклад такі, що враховують релятивістські ефекти. Також експериментальні дані були для різних концентрацій цих іонів, що може впливати на різницю в результатах. Існує проблема підібрати умови точно так, як це було в експерименті. Порівнюючи комп'ютерні результати з експериментом, важливо відтворення принаймні тенденції.

Академік НАН України І. М. Мриглод:

1) Ви використали термін протонування. Чи це – усталений термін? І чи має вплив кислотність середовища? Чи досліджувалося, як кислотність впливає на полімер PEI? Як воно в біологічних системах?

Відповідь: Для полімера PEI також може бути додаткова протонація. Англійською використовується термін “protonation”. В біологічних системах, при кислотностях близьких до нейтральної, протонація є незначною. В промисловості стараються підвищувати рН, тобто понижувати протонацію, оскільки це підсилює хелатацію. Наприклад у випадку EDTA. Але треба дивитися, що при цьому іон металу разом з -ОН групою може випадати в осад. Наприклад, це важливо в тетруванні.

2) А як можна тому запобігти?

Відповідь: Наприклад, додають ще один хелатуючий агент, який слабший за основний.

2) Чи можете сформулювати певні практичні рекомендації з точки зору того чи іншого застосування чи для експериментаторів, який ефект було б цікаво дослідити окремо.

Відповідь: У випадку EDTA є важливими захоплення, та утворення комплексів з важкими іонами металів і їх декомплексация. Як нами було показано, це можна контролювати зміною рН середовища. А у випадку полімерів PEI, недостатньо експериментів саме для низькомолекулярних PEI. Проте, нами показано, що

вони також здатні формувати стабільні комплекси, хоча й не такі стійкі, як EDTA.

Член-кореспондент НАН України М. Ф. Головка:

1) Найбільш шкідливими є пари ртуті, наприклад, коли розбити термометр. Ви можете щось прокоментувати з точки зору екології?

Відповідь: Зараз, це більш актуально для нас, а за кордоном, наприклад, вже не користуються такими термометрами. Для них актуальна проблеми забруднення ртуттю стічних вод та потрапляння її у водойми, яка в свою чергу може потрапляти в рибу, яку споживають люди. А ми маємо відмовлятися від ртутних термометрів.

3. ВИСТУПИ ПРИСУТНІХ

З оцінкою дисертаційної роботи Бутович Г.А., аспірантки відділу теорії м'якої речовини, виступили:

Д. ф.-м. наук, заступник директора з наукової роботи, завідувач відділу
Т. М. Пацаган:

Сьогодні ми заслухали дисертаційну роботу Галі в цілому. Галя виконувала цю роботу впродовж аспірантури в нашому інституті у співпраці з Технологічним університетом Леппеєнранти з її другим науковим керівником – професором Ерккі Лахдеранта. Подвійна аспірантура – це додатковий виклик для здобувача, і цей досвід був корисний для Галі, як і для нашого інституту загалом. Ключовою особливістю дисертації є вивчення явища комплексоутворення. При цьому використовувалися, в основному, методи комп'ютерного моделювання і квантово-хімічні розрахунки. Але є також присутні і теоретичні підходи статистичної фізики рідин, які розвиваються в нашому відділі. Це термодинамічна теорія збурень Вертгайма, що виконувалася у співпраці з Юрієм Володимировичем Калюжним. Було показано, що для окремих випадків теорію можна покращити. Це дозволило також продемонструвати, що нерівномірний розподіл функціональних сегментів на ланцюгу впливає на результат, а блокування молекул ферментів один одного утруднює зв'язування. Є різниця, чи вони зв'язуються з полімером на краях, чи посередині. Інша велика частина роботи – це вивчення хелатування. Це те, що ми робили в співпраці з фінською групою, в яку також входили Фатемех Кешаварз та Бернардо Барб'єлліні. Ця співпраця дала свої плоди. Галя гарно попрацювала. А спільні дискусії з фінськими партнерами і обмін знаннями сприяли швидкому прогресу. В Галі, крім публікацій, були виступи на конференціях. Зокрема, на конференції EMLG в Італії, з постером, де мала можливість поспілкуватися з учасниками конференції щодо результатів її дослідження. Галя – наполеглива, допитлива, любить дошукуватися до рішення, за період аспірантури отримала

великий досвід в комп'ютерному моделюванні. Сьогодні ви побачили частину її роботи, що стосуються кінцевих результатів. Але в процесі виконання роботи, Галя багато пробувала різних підходів і моделей, в тому числі і ті, де результати отримати не вдалося. Так вона набувала додаткового досвіду і корисних навиків. Я дуже радий, як Галя попрацювала. Ми бачимо добру дисертаційну роботу. Хочу подякувати за її працю і гарне представлення. Дякую всім.

Академік НАН України, д. ф.-м. наук, головний науковий співробітник **І. М. Мриглюд:**

Хотів тільки звернути увагу, що похибка теорії порядку декількох відсотків. А стосовно енергії адсорбції в комп'ютерних симуляціях, то там перепади в рази. Я вітаю вас і Юрія Володимировича, теорія виглядає дуже успішною.

Професор, доктор фізико-математичних наук, завідувач відділу **Я. М. Ільницький:**

Підтримую і пропоную підтримати роботу Галини. Вона якнайкраще себе проявила в плані кваліфікаційного семінару. Фактично маючи, коли вона прийшла до нас, навиків тільки фахівця з прикладної математики та ІТ, дуже багато навчилася, зрозуміла фізико-хімічні властивості в своїх задачах і як робити квантово-механічні і класично-механічні симуляції хелантів. Це є важлива тема, особливо в час війни. В нас була гарна співпраця з університетом Лаппеенранти. З точки зору кваліфікації Галина проявила себе висококваліфікованим фахівцем, відзначається прискіпливістю і працездатністю. Звісно, хотілося би, щоб результати з РЕІ досягли такого рівня точності, як інші. Робилися зауваження стосовно розкиду енергії адсорбції. На жаль, це є, і Галина багато часу на це витратила на цю складну проблему. Сподіваємося, що в майбутньому це тако вдасться вирішити. Це все – частини більших задач, які в майбутньому можуть вийти на експериментально-практичні масштаби. Галина – перша аспірантка Тараса Миколайовича, і він багато доклався до її навчання.

Д. ф.-м. наук, професор, головний науковий співробітник **М. В. Токарчук:** Хочу привітати Тараса Миколайовича і Галину. Галина – була моєю студенткою, коли навчалася в Львівській Політехніці на кафедрі прикладної математики. Так що вона має гарну математичну підготовку. І за ці 4 роки аспірантури в нашому Інституті, коли вона представляла результати на семінарах, було видно, як вона зростала в розумінні фізико-механічних чи фізико-хімічних процесів, в тому, чим ми займаємося. І це дуже важливо. Побажая успіхів, оскільки для порівняння з експериментом ще треба працювати. Гарна робота.

Д. ф.-м. наук, директор інституту **Т. М. Брик:**

Ми послухали дуже цікаву роботу, яка створює дуже гарне враження. І приємно те, що є не тільки метод класичної молекулярної динаміки, де явно

враховуються молекули води, силові поля, і все на атомарному рівні, а також робиться порівняння з *ab-initio* розрахунками. Розрахунки робилися методами квантової хімії, тобто, методами, які використовують Гаусівські локалізовані орбіталі, в певному наближенні обмінно-кореляційної взаємодії. Більш-менш розумні результати виходять. Хотілося б, щоб Галя більш детально розібралась, які електрони за що відповідають, бо перевага *ab-initio* методів якраз в тому, що ви можете чітко прослідкувати участь кожної орбіталі в хімічному зв'язку та ефективних зарядах. Але для закінченої роботи цього, що зроблено, є достатньо. У майбутньому це можна вдосконалювати, використовуючи не просто DFT метод на рівні квантової хімії для якогось комплексу, а ще для 30-40 молекул води запустити *ab-initio* динаміку. У підсумку, підтримую роботу і думаю, що ми можемо дати позитивний відгук сьогоднішньому семінару.

Член-кореспондент НАН України **М. Ф. Головкин**:

Також підтримую, дуже гарне враження після семінару. Галина, фактично, прийшла як спеціаліст з прикладної математики і інформатики, але протягом аспірантури багато навчилася. І дуже добре, що Тарас Миколайович їй запропонував подвійну аспірантуру з Фінляндією, що простимулювало вивчення нових задач. Тут відкриваються нові проблеми, і можна багато чого ще в майбутньому робити. Мені подобається, що Галя працьовита і відкрита для нових проблем. І я думаю, що це – хороша робота, і наш семінар може рекомендувати її до захисту.

Академік НАН України, д. ф.-м. наук, головний науковий співробітник **І. М. Мриглюк**:

Вдалий виступ, спосіб викладу і регламент. Йдеться про доволі складні об'єкти дослідження. Видно, що старі розробки Інституту можуть бути застосовні, і вони дають корисну інформацію. Цікаві результати, опубліковані в гарних журналах, і напрямок дослідження має перспективу. Для Інституту це нова тематика. В майбутньому треба приділити більше уваги аналізу отриманих результатів і їх практичній значимості. А загалом, робота добротна і може бути рекомендована до захисту.

4. ЗАСЛУХАВШИ ТА ОБГОВОРИВШИ ДОПОВІДЬ Бутович Галини Анатоліївни, а також за результатами попередньої експертизи представленої дисертації на фаховому семінарі Інституту фізики конденсованих систем НАН України, прийнято наступні висновки щодо дисертаційної роботи “Комп’ютерне моделювання полімерно-ферментних комплексів та хелатних структур іонів важких металів”.

ВИСНОВОК

**фахового семінару зі спеціальності Інституту фізики конденсованих систем НАН України про наукову новизну, теоретичне та практичне значення результатів дисертації “Комп’ютерне моделювання полімерно-ферментних комплексів та хелатних структур іонів важких металів” здобувача вищої освіти ступеня доктора філософії
Бутович Галини Анатоліївни
за спеціальністю 104 – “Фізика та астрономія”**

4.1. Актуальність теми дисертації

Дослідження комплексоутворення в молекулярних системах є одним із фундаментальних напрямків у галузі м’якої речовини, який охоплює широкий клас рідин, серед яких розчини іонів та різного роду низько- та високо- молекулярних сполук, полімерних систем та біомолекул. Такі дослідження, виконані на мікроскопічному рівні, дозволяють зрозуміти основні механізми утворення комплексів молекул та іонів, що сприяє з’ясуванню умов, за яких виникають ці явища. Особливу увагу останнім часом приділяється вивченню явищу хелатації іонів важких металів, а саме структурі та стабільності комплексів цих іонів з поширеними хелатуючими агентами. Не менший інтерес представляють біомолекулярні системи в контексті захоплення полімерів білкових молекул, зокрема ферментів.

Виконане дослідження показало основні структурні особливості комплексів іонів важких металів із молекулами етелендіамінтетраоцтової кислоти при різних кислотностях водного середовища та отримано енергії зв’язаності між ними. Воно проводилося на атомістичному рівні за допомогою методу молекулярної динаміки і квантово-хімічних розрахунків. Також розглянуто випадок хелатування іонів ртуті полімерами поліетиленіміну різної довжини. Для полімерно-ферментних систем, передбачено ступені зв’язаності комплексів в залежності від густини і температури. Для цього виконувалося грубозернисте комп’ютерне моделювання методом ланжевенової динаміки та порівнювалися результати із передбаченнями термодинамічної теорії збурень Вертгайма.

Результати цієї дисертації корисні для наукових досліджень та практичних застосувань в галузях виробництва біопалива із целюлозної сировини, очищення стічних вод від токсичних елементів та інших галузях хімічної промисловості.

4.2. Зв’язок теми дисертації з державними програмами, науковими напрямами інституту та відділу

Дисертаційне дослідження було проведено в Інституті фізики конденсованих систем Національної академії наук України та Технологічному університеті Лалпееенранти-Лахті у Фінляндії згідно з угодою про співробітництво між двома установами. Представлені в дисертації результати отримувалися згідно планів робіт в рамках бюджетної теми НАН України “Статистична теорія складних

рідин: вплив просторового обмеження та анізотропії, мезоскопічного впорядкування та аномальних ефектів”, 2021-2024, 0120U100202) та грантової програми Національного фонду досліджень України (проект “Плямисті колоїди в пористих середовищах: теорія та комп’ютерне моделювання”, 2021-2023, № 2020.02/0317), за підтримки Національного агентства з питань освіти Фінляндії (стипендія EDUFI для докторантів з України, номер ОРН-4602-2022, програми Team Finland Knowledge, номер 12/221/2023), Технологічного університету Лаппеенранті-Лахті та стипендії Президента України для молодих вчених (2024-2025, Україна).

4.3. Особистий внесок здобувача в отримання наукових результатів

Постановка завдань здійснювалась науковим керівником дисертаційної роботи, доктором фізико-математичних наук, завідувачем відділу теорії м’якої речовини Тарасом Миколайовичем Пацаганом. Особистий внесок автора дисертації у спільних публікаціях:

- виконала молекулярно-динамічне моделювання хелатних комплексів у воді у NPT ансамблі;
- провела квантово-хімічні розрахунки з використанням методу функціоналу густини (DFT);
- виконала грубозернисте моделювання полімер-ферментних комплексів методом Ланжевенової динаміки;
- проаналізувала та візуалізувала дані.

4.4. Достовірність та обґрунтованість отриманих результатів та запропонованих автором рішень, висновків, рекомендацій

Результати, отримані теоретичним методом, перевіряли методами комп’ютерного моделювання. Структури хелатних комплексів, отриманих методом молекулярної динаміки, перевіряли методом DFT обчислень. Результати та висновки роботи були обговорені на семінарах та конференціях, опубліковані в наукових журналах.

4.5. Ступінь новизни основних результатів дисертаційної роботи порівняно з відомими дослідженнями аналогічного характеру

За результатами дисертаційної роботи вперше:

- розроблено теоретичну та обчислювальну базу для опису комплексоутворення в полімерно-ферментних системах з використанням моделі грубозернистих плямистих частинок у поєднанні з модифікованою версією термодинамічної теорії збурень Вертгайма. Вплив розподілу функціональних груп вздовж полімерного ланцюга на ступінь зв’язування вперше було систематично досліджено за допомогою комп’ютерного моделювання методом Ланжевенової динаміки.

- на атомістичному рівні детальна структурна та енергетична характеристика хелатних комплексів, утворених між іонами важких металів та поліетилєніміном (PEI) або етилендіамінтетраоцтовою кислотою (EDTA) у водних середовищах, була отримана шляхом поєднання молекулярної динаміки та квантово-хімічних (DFT) розрахунків. Кількісно оцінено вплив довжини полімерного ланцюга та іонного завантаження на стабільність комплексу. Крім того, було з'ясовано роль стану протонування EDTA у визначенні ефективності хелатування, що підкреслює важливість рН у контролі комплексоутворення.

4.6. Перелік наукових праць, які відображають основні результати дисертації

За матеріалами дисертації опубліковано 6 наукових праць, з них: 2 статті у фахових наукових виданнях, що індексуються наукометричними базами Scopus та Web of Science [1-2], препринт [3] та 3 тези конференцій [4-6].

Статті:

- 1) Butovych, H., Kalyuzhnyi, Y.V., Patsahan, T., Ilnytskyi, J. Modeling of polymer-enzyme conjugates formation: Thermodynamic perturbation theory and computer simulations. // *J. Mol. Liq.* – 2023. – Vol. 385. – P. 122321.
- 2) Butovych, H., Keshavarz F., Barbiellini B., Lähderanta E., Ilnytskyi J., Patsahan T. Role of EDTA protonation in chelation-based removal of mercury ions from water. // *Phys. Chem. Chem. Phys.* – 2024. – Vol. 26. – P. 25402-25411.
- 3) H. Butovych, J. Ilnytskyi, E. Lähderanta, T. Patsahan, Chelation of the mercury ions by polyethyleneimine: Atomistic molecular dynamics study, arXiv – 2025. – 2506.18835.

Тези конференцій:

- 4) H. Butovych, T. Patsahan, J. Ilnytskyi, E. Lähderanta, B. Barbiellini, F. Keshavarz, “Chelation of heavy metals by ethylenediaminetetraacetic acid in aqueous solution”, EMLG-JMLG Annual Meeting 2024, Structure and Dynamics of Hydrogen-Bonded Systems, 8-13 September, 2024, Trieste, Italy, Book of Abstracts, p. 96. <https://indico.elettra.eu/event/39/>
- 5) H. Butovych, F. Keshavarz, J. Ilnytskyi, B. Barbiellini, E. Lähderanta, T. Patsahan, “Computer simulation of complexes formed by heavy metal ions and EDTA molecules in aqueous solution”, 1st annual workshop on the use of computer simulations in nanophysics “Nanophysics meets computer simulations”, November 8, 2024, Lviv, Ukraine, Book of Abstracts, p. 9. <https://icmp.lviv.ua/nanosim>
- 6) Г. Бутович, Ф. Кешаварз, Б. Барб'єлліні, Е. Лахдеранта, Я. Ільницький, Т. Пацаган, “ЕДТА при різних рівнях протонації для хелатування іонів ртуті у водному розчині”, 24-та Всеукраїнська школа-семінар молодих вчених зі статистичної фізики та теорії конденсованої речовини, 24-25 жовтня 2024 р., Львів, Збірка тез, с.32.

4.7. Апробація основних результатів дослідження на конференціях, симпозіумах, семінарах тощо

Основні результати дисертаційної роботи доповідались і обговорювались на наступних наукових конференціях: Щорічна конференція EMLG-JMLG 2024: Структура та динаміка систем з водневими зв'язками, Трієст, Італія (8-13 вересня 2024 р.), 1-й щорічний семінар з використання комп'ютерного моделювання в нанофізиці "Nanophysics meets computer simulations", Львів (8 листопада 2024 р.), 24-та Всеукраїнська школа-семінар молодих вчених зі статистичної фізики та теорії конденсованої речовини, Львів (24-25 жовтня 2024 р.), а також семінари ІФКС.

4.8. Наукове значення виконаного дослідження із зазначенням можливих наукових галузей та розділів в програмі навчальних курсів, де можуть бути застосовані отримані результати

Було розроблено теоретичну та обчислювальну базу для опису комплексоутворення в полімерно-ферментних системах з використанням моделі грубозернистих плямистих частинок у поєднанні з модифікованою версією термодинамічної теорії збурень Вертгайма. Вперше було систематично досліджено вплив розташування функціональних груп вздовж полімерного ланцюга на ступінь зв'язування за допомогою моделювання динаміки Ланжевена. Детальні структурні та енергетичні характеристики хелатних комплексів, утворених між іонами важких металів та поліетиленіміном (PEI) або етилендіамінтетраоцтовою кислотою (EDTA) у водних середовищах, були отримані за допомогою методів молекулярної динаміки та квантово-хімічних (DFT) розрахунків. Кількісно оцінено вплив довжини полімерного ланцюга та кількості іонів на стабільність комплексу. Крім того, було з'ясовано роль протонування EDTA у ефективності хелатування, що підкреслює важливість рН у контролі комплексоутворення.

4.9 Практична цінність результатів дослідження із зазначенням конкретного підприємства, або галузі народного господарства, де вони можуть бути застосовані

Результати цього дослідження сприяють оптимізації полімерно-ферментних систем для використання в біокаталітичних процесах, таких як ферментативне перетворення целюлозної біомаси в біопаливо. Запропонована структура грубозернистого моделювання дозволяє прогнозувати та налаштовувати ефективність зв'язування полімер-фермент, що може сприяти раціональному розробці стратегій іммобілізації ферментів у промислових застосуваннях.

У контексті екологічної ремедіації, атомістичне моделювання хелатування важких металів за допомогою PEI та EDTA забезпечує розуміння структури та стабільності отриманих комплексів у водних середовищах. Ці результати можуть бути застосовані для розробки більш ефективних матеріалів та протоколів для видалення токсичних іонів металів (наприклад, Hg^{2+} , Cd^{2+} , Pb^{2+}) із забрудненої

води. Продемонстрований вплив структури полімеру та протонування лігандів на ефективність хелатування пропонує цінні рекомендації для розробки хелатуючих агентів та наноматеріалів наступного покоління в екологічних та медичних технологіях.

4.10. Оцінка структури дисертації, її мови та стилю викладення

Загалом дисертація має логічну структуру. Дисертаційна робота складається із вступу, розділу із оглядом літератури, трьох оригінальних розділів, основних положень дисертації, списку використаних джерел і чотирьох додатків.

Дисертаційна робота за структурою, мовою та стилем викладення відповідає вимогам Міністерства освіти і науки України.

У ході обговорення дисертації до здобувача не було висуното жодних зауважень щодо суті самої роботи.

4.11. Відповідність дисертації паспорту спеціальності, за якою вона представлена до захисту

Дисертація є самостійною науково-дослідною роботою. Робота є актуальною і виконана на високому науковому рівні. Автор має високу теоретичну підготовку і необхідні професійні знання. Робота відповідає спеціальності 104 – “Фізика та астрономія”.

5. З урахуванням вище зазначеного, на фаховому семінарі зі спеціальності 104 – “Фізика та астрономія” Інституту фізики конденсованих систем НАН України ухвалили:

5.1. Дисертаційна робота на тему “Комп’ютерне моделювання полімерно-ферментних комплексів та хелатних структур іонів важких металів” є завершеною науковою працею, у якій розв’язані актуальні наукові завдання: 1) . Ці результати відповідають спеціальності 104 – “Фізика та астрономія” та мають важливе значення для галузі 10 – “Природничі науки”.

5.2. Матеріали дисертації Г.А. Бутович повністю висвітлені у 6 наукових публікаціях, з них 2 статті включено до міжнародних наукометричних баз.

5.3. Дисертація Г. А. Бутович відповідає вимогам наказу МОН України № 40 від 12.01.2017 р. “Про затвердження вимог до оформлення дисертації”, Порядку присудження ступеня доктора філософії та скасування рішення разової спеціалізованої вченої ради закладу вищої освіти, наукової установи про присудження ступеня доктора філософії, затвердженому Постановою Кабінету Міністрів України від 12 січня 2022 р. № 44.

5.4. З урахуванням наукової зрілості та професійних якостей Г.А. Бутович, дисертаційна робота “Комп’ютерне моделювання полімерно-ферментних комплексів та хелатних структур іонів важких металів” рекомендується до подання до розгляду та захисту на спеціалізованій вченій раді.

За затвердження висновку проголосували:

за	- 40 (одностайно)
проти	- 0 (немає)
утрималися	- 0 (немає)

Керівник семінару
академік НАН України,
доктор фіз.-мат. наук



І. М. Мриглюд

Секретар семінару
наук. співробітниця,
к. фіз.-мат. наук



О. А. Добуш