

УДК 66.011:519.876.5

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ КЛЕТОЧНО-АВТОМАТНОГО ПОДХОДА ДЛЯ СОЗДАНИЯ ЦИФРОВЫХ ДВОЙНИКОВ ИЕРАРХИЧЕСКИХ ПОРИСТЫХ СТРУКТУР

© 2025 г. И. В. Лебедев, В. И. Гашенко, О. В. Федотова, А. А. Абрамов, П. Ю. Цыганков,
Н. В. Меньшутина*

Российский химико-технологический университет им. Д.И. Менделеева, Москва, Россия

**e-mail: chemcom@muctr.ru*

Поступила в редакцию 08.10.2024

После доработки 20.02.2025

Принята в печать 26.02.2025

В статье предложена мультимасштабная модель на основе клеточно-автоматного подхода для создания цифровых двойников пористых иерархических структур аэрогелей на основе альгината натрия. Предлагаемая модель использует клеточно-автоматный подход для генерации структур на мезо- и макроуровнях с их последующим объединением в единую цифровую мультимасштабную структуру, которая содержит как мезо-, так и макропоры. Экспериментально исследованы образцы аэрогелей на основе альгината натрия. Проведены вычислительные эксперименты по генерации цифровых структур, соответствующих полученным экспериментальным образцам. Дано сравнение структурных характеристик цифровых и экспериментальных образцов, на основе которых были сделаны выводы о корректной работе модели. Полученные цифровые мультимасштабные структуры могут быть использованы в дальнейшем для прогнозирования свойств иерархических структур, что позволит частично заменить натурные эксперименты вычислительными и, следовательно, снизить затраты при разработке новых материалов с заданными свойствами.

Ключевые слова: клеточные автоматы, моделирование, пористые материалы, иерархические структуры, мультимасштабная модель, кривые Безье, волокнистые материалы, аэрогели, альгинат натрия, золь-гель процесс

DOI: 10.31857/S0040357125020049 **EDN:** ndcdxf

ВВЕДЕНИЕ

В настоящий момент все большее значение приобретают материалы со специфичными, строго заданными функциональными свойствами. Перспективным подходом к заданию этих свойств является разработка методов, обеспечивающих формирование четкой иерархической структуры на микро-, мезо- и макроуровне. Аэрогели являются перспективными материалами для реализации этого подхода.

Аэрогели представляют собой класс высокопористых наноструктурированных материалов с такими свойствами, как низкая плотность (от 0.001 до 0.2 г/см³), высокая пористость (более 90%), высокая удельная площадь поверхности (более 200 м²/г) [1, 2]. Благодаря этим свойствам аэрогели являются инновационным материалом для широкого спектра потенциальных применений [3]. Множество исследований доказали эффективность использования аэрогелей в качестве

доставки активных веществ [4–6]. Однако исследования, связанные с получением аэрогелей с иерархической пористой структурой, представлены очень слабо. Высокая загрузка активных веществ в сочетании с медленным высвобождением из аэрогелей за счет создания иерархической пористой структуры позволит получить препарат с контролируемым терапевтическим эффектом.

Формирование иерархической структуры аэрогелей позволит получить системы доставки активных фармацевтических субстанций с контролируемым профилем высвобождения. Кроме того, иерархическая пористость материалов может способствовать пролиферативной активности клеток за счет интенсификации массообменных процессов. На сегодняшний день разработка новых систем доставки активных фармацевтических субстанций и платформ для культивирования клеток является крайне актуальной задачей.

Стоит отметить, что разработка новых систем доставки активных веществ всегда связана с проведением большого количества экспериментальных исследований для получения целевых свойств, что ведет к увеличению времени исследования и финансовых затрат. Поэтому в настоящий момент все более широко применяются современные методы математического и компьютерного моделирования при разработке новых лекарственных средств и систем их доставки [7]. При моделировании процессов движения и высвобождения в гетерогенных системах со сложной геометрией, таких как аэрогели, перспективным может быть использование клеточно-автоматного (КА) моделирования. Основная идея КА-моделирования заключается в разбиении системы на клетки одинакового размера, каждая из которых находится в одном из возможных состояний, при этом состояния каждый шаг по времени меняются в соответствии с заданными правилами перехода. Такой подход позволяет разбить систему на локальные независимые участки, что, в свою очередь, позволяет моделировать большие неоднородные системы без использования сложного математического аппарата [8].

Особенностью иерархических структур аэрогелей является наличие как открытой сети мезопор, так и значительного объема макропор, которые влияют на конечные свойства материала. При этом макропоры намного превосходят по размерам мезопористые участки структуры. Это создает трудность при моделировании структуры образца, так как модель должна учитывать особенности структуры как на мезо-, так и на макроуровне. Решить эту проблему позволит создание мультимасштабной модели структуры аэрогеля.

В данной работе предлагается мультимасштабная модель иерархических пористых структур аэрогелей на основе альгината натрия, которая позволяет получать цифровые структуры, которые соответствуют экспериментальным образцам как на мезо-, так и на макроуровне.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Материалы. В качестве исходного вещества для получения аэрогелей используется альгинат натрия (Sigma-Aldrich, США). В качестве порообразующего агента используется поверхностно активное вещество (ПАВ) Triton X-100 (Sigma-Aldrich, США). Гидрокарбонат натрия (РусХим, РФ) и уксусная кислота (РусХим, РФ) используются для дополнительного вспенивания материала. В качестве растворителя используется изопропиловый спирт (ИПС), (РусХим, РФ).

Дистиллированная вода была получена в лаборатории.

Методика. Процесс получения частиц аэрогелей на основе альгината натрия с иерархической пористой структурой осуществляется с использованием ПАВ в качестве порообразующего агента на стадии гелеобразования. Кроме того, в качестве дополнительных порообразующих агентов используются гидрокарбонат натрия и уксусная кислота, способствующие образованию диоксида углерода в процессе гелеобразования. Взаимодействие гидрокарбоната натрия с уксусной кислотой приводит к образованию диоксида углерода.

С целью повышения устойчивости пузырьков газа используется ПАВ. ПАВ приводит к образованию адсорбционных слоев на поверхности пузырьков, что вызывает снижение поверхностного натяжения на границе жидкости и газа. В результате уменьшения межфазного поверхностного натяжения повышается устойчивость образованных воздушных пузырьков в структуре частиц на основе альгината натрия.

Таким образом, процесс получения частиц аэрогелей на основе альгината натрия с иерархической пористой структурой состоит из нескольких этапов: получение раствора полимера с порообразующим агентом, гелеобразование, замена растворителя, сверхкритическая сушка.

На первом этапе проводится получение раствора, который состоит из альгината натрия, ПАВ и гидрокарбоната натрия. В данной работе с целью равномерного распределения гидрокарбоната натрия по объему полимера проводится диспергирование с использованием ротор-статорного гомогенизатора со скоростью вращения ротора 6000 об/мин на протяжении 5 минут. Концентрация альгината натрия в смеси составляет 2 мас. %. Концентрация ПАВ варьируется от 0 до 1 мас. %. Концентрация гидрокарбоната натрия была постоянной и составила 0.9 мас. %. В табл. 1 приводится обозначение для каждого из образцов.

Таблица 1. Обозначение образцов

Номер образца	Концентрация альгината натрия, мас. %	Концентрация ПАВ, мас. %	Концентрация гидрокарбоната натрия, мас. %
1	2.0	0	0.9
2		0.25	
3		0.50	
4		1.00	

В качестве сшивающего агента используют 1 мас. % раствор хлорида кальция. Для разло-

жения гидрокарбоната натрия в раствор сшивающего агента добавляется уксусная кислота (концентрация в растворе 10 мас. %). С использованием шприцевого насоса осуществляется капельное введение раствора альгината натрия, содержащего ПАВ и гидрокарбонат натрия, в раствор сшивающего агента. Полученные частицы выдерживаются в растворе сшивающего агента в течение 24 часов с целью завершения процесса гелеобразования.

Далее проводится этап замены растворителя. Для минимизации усадки осуществляется ступенчатая замена растворителя с увеличением массового содержания ИПС (20% → 40% → 60% → 80% → 100%). Между этапами замены частицы выдерживаются 4 часа. Последний этап замены (на 100%) проводится до достижения концентрации спирта 98 мас. %.

Завершающий этап – сверхкритическая сушка – проводится в среде сверхкритического диоксида углерода при температуре 40 °C и давлении 120 бар в течение 5 часов. Процесс проводится в реакторе высокого давления объемом 250 мл собственной разработки.

Аналитические методы. Истинная плотность образцов определялась методом гелиевой пикнометрии с помощью прибора Anton Paar UltraPyc 5000. Мезопористая структура образцов исследовалась методом низкотемпературной адсорбции азота (77 K) на анализаторе удельной поверхности и пористости NOVA 2200E (Quantachrome Instruments Corp., США). Для получения увеличенных изображений полученных образцов использовался оптический стереомикроскоп ADF S645. На рис. 1 представлены результаты микро-КТ для образца 3.

Исследование образцов методом компьютерной рентгеновской микротомографии (микро-КТ) производилось с помощью микротомографа SkyScan-1172 (Bruker Corporation, Германия).

На основе полученных экспериментальных данных были сделаны выводы об особенностях структуры исследуемых аэрогельных частиц на основе альгината натрия.

ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ

Из визуального наблюдения снимков СЭМ видно, что на мезоуровне структура частиц представляет собой твердый скелет, образованный нановолокнами. Кроме того, структура содержит открытую сеть мезопор, то есть пор, имеющих диаметр от 2 до 50 нм. Стоит отметить, что на мезоуровне образцы исследуемых частиц имеют достаточно низкую пористость, а основная доля от общего объема пор относится к крупным (больше 50 мкм) макропорам, то есть исследуемый материал имеет большой объем макропор, что подтверждают визуальные наблюдения. Таким образом, структура материала является неоднородной, и в ней может быть выделено два типа областей – мезопористая и макропористая (рис. 2).

Так как макропоры в исследуемых образцах имеют большой размер, эти области можно отнести к разным масштабам моделирования, при этом геометрия мезопористой области оказывает влияние на макросвойства материала, из-за чего при разработке модели структур необходимо учитывать геометрию материала как на мезо-, так и на макроуровне. В рамках работы была раз-

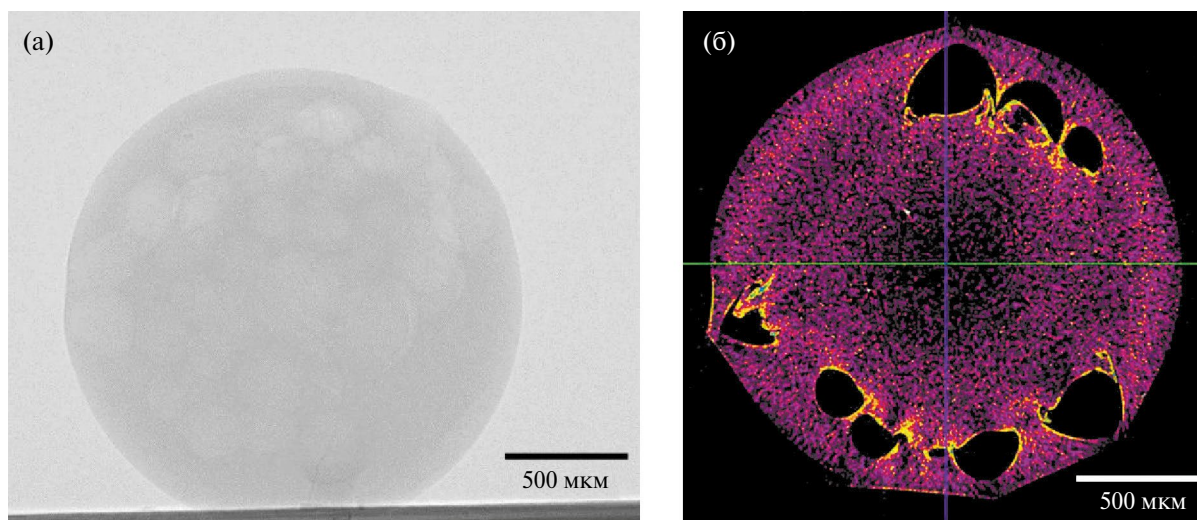


Рис. 1. Результаты компьютерной рентгеновской микротомографии образца 3: (а) теневая проекция; (б) двумерный срез.

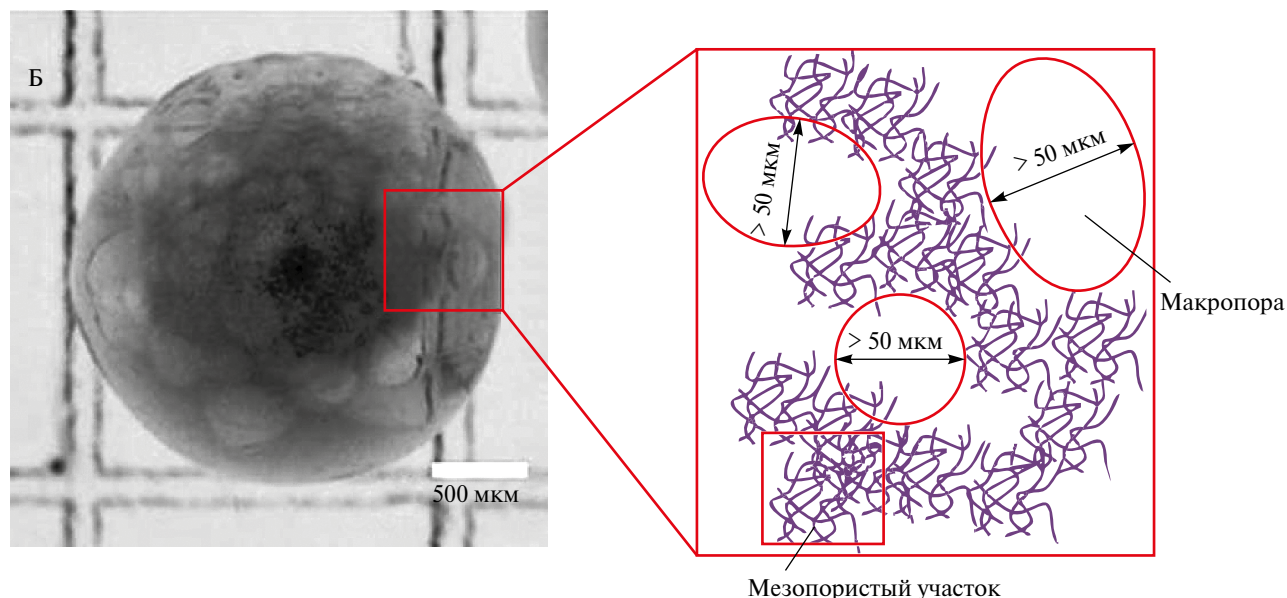


Рис. 2. Схематичное изображение макропористой структуры аэрогеля.

работана мультимасштабная КА модель структур аэрогельных частиц на основе альгината натрия. Предлагаемая модель состоит из двух КА моделей – модель мезопористой области и модель макропористой области.

КА модель мезопористой области. На мезоуровне структуры аэрогелей, образованных нановолокнами, успешно моделируют с использованием кривых Безье [9, 10]. Поэтому в рамках работы для моделирования мезопористого участка была использована модель на основе кривых Безье.

Кривые Безье строятся по опорным точкам, которых может быть две и более. Количество заданных опорных точек определяет порядок кривой. Две опорные точки задают кривую Безье как линейную кривую (кривую первого порядка – прямую), три опорные точки – как квадратичную (кривую второго порядка), четыре – как кубическую (кривую третьего порядка) и так далее.

Разработанная модель имеет следующие допущения:

- пространство, в котором проводится моделирование, является кубом (квадратом в случае двухмерной структуры) заданных размеров;

- пространство, в котором проводится моделирование, делится на клетки одинакового размера квадратной (двухмерная структура) или кубической (трехмерная структура) формы;

- масштаб одной клетки соответствует участку пространства в заданном масштабе;

- каждая клетка может иметь одно состояние: “волокно” или “пустота”. Пустые клетки характеризуют положение пор в структуре;

соседними считаются клетки, имеющие общую грань;

для генерации одного волокна строится кривая Безье третьего порядка. Считается, что волокно проходит по кривой Безье – клетки, через которые проходит кривая Безье, переходят в состояние “волокно”;

диаметр всех волокон одинаковый;

диаметр поперечного сечения волокна определяется количеством занятых им клеток в поперечном сечении. Например, при масштабе одной клетки в 1 нм волокно диаметром 5 нм в поперечном сечении будет занимать 5 клеток (рис. 3);

начало и конец волокна лежат на гранях моделируемого пространства.

Данная модель работает следующим образом: на поле строится кривая Безье, начало и конец которой лежат на гранях поля. Таким образом, кривая проходит через все поле. После этого на построенной кривой строится дискретное волокно заданной толщины (с заданным диаметром поперечного сечения) (рис. 4). Затем строится новая кривая и волокно на ней. Процесс продолжается до тех пор, пока цифровая структура не достигнет заданной пористости.

Для построения волокна используются кривые Безье третьего порядка, которые строятся по четырем опорным точкам:

$$B(t) = (1-t)^3 P_0 + 3t(1-t)^2 P_1 + 3t^2(1-t) P_2 + t^3 P_3, t \in [0, 1], \quad (1)$$

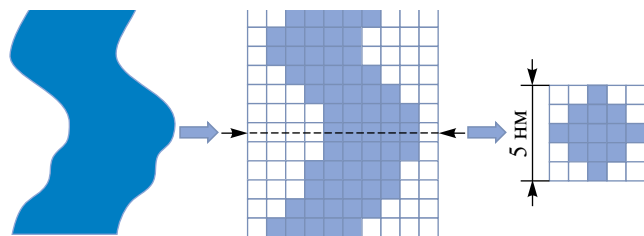


Рис. 3. Измерение диаметра поперечного сечения волокна.

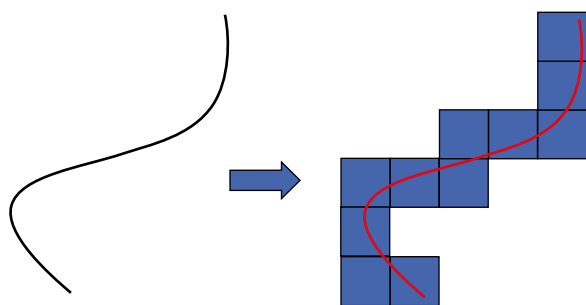


Рис. 4. Волокно, построенное с помощью кривой Безье.

где P_0, P_1, P_2, P_3 – опорные точки, каждая из которых содержит набор из трех пространственных координат, а t – шаг. Шаг t непрерывно возрастает в диапазоне от 0 до 1.

Основными входными параметрами модели являются диаметр поперечного сечения волокна и пористость структуры.

Сначала на поле случайно выбираются опорные точки P_0, P_1, P_2, P_3 , при этом P_0 и P_3 лежат на границах структуры. По этим опорным точкам в соответствии с формулой (1) строится кривая Безье. Все клетки, через которые проходит кривая, переходят в состояние “волокно”. Далее диаметр волокна постепенно увеличивается, пока не достигнет заданного. Диаметр волокна увеличивается следующим образом: вокруг каждой клетки волокна формируется сфера (в случае двухмерного поля – окружность) с диаметром, равным входному диаметру поперечного сечения волокна. Все клетки внутри сферы (окружности) переходят в состояние “волокно”. Таким образом волокно утолщается до заданного размера.

Выходным параметром модели является цифровая структура мезопористого участка (рис. 5).

Полученные цифровые структуры позволяют учитывать гетерогенность материала на мезоуровне, состоящего из твердого каркаса и открытой сети пор, и могут быть использованы в качестве входных параметров для КА модели макропористой области.

КА модель макропористой области. Макропоры исследуемых аэрогелей имеют шарообразную форму и равномерно распределены по его струк-

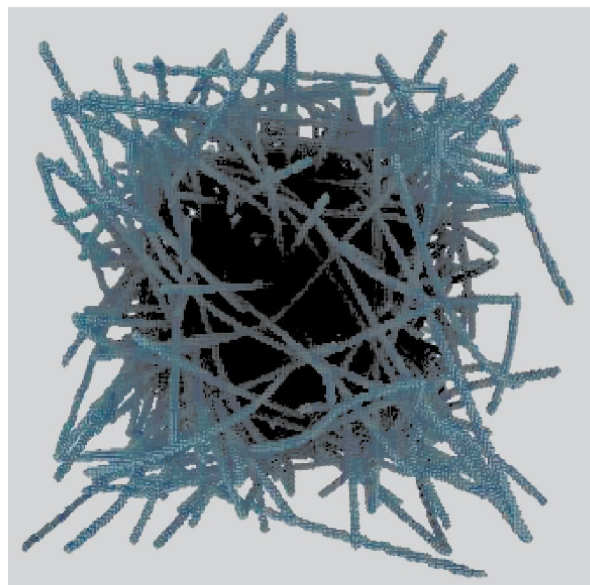


Рис. 5. Цифровая волокнистая структура, полученная с помощью модели на основе кривых Безье.

туре. Поэтому задача создания цифровой копии на макроуровне заключается в генерации макропор, распределение которых по размерам соответствует экспериментальному образцу.

Для генерации макропористой структуры была разработана оригинальная КА модель “Геоиды”.

Разработанная модель имеет следующие допущения:

- пространство, в котором проводится моделирование, является кубом (квадратом в случае двухмерной структуры) заданных размеров;

- пространство, в котором проводится моделирование, делится на клетки одинакового размера квадратной (двухмерная структура) или кубической (трехмерная структура) формы;

- масштаб одной клетки соответствует участку пространства в заданном масштабе;

- каждая клетка может иметь одно состояние: “материал” или “пустота” (“пора”). Пустые клетки характеризуют положение макропор в структуре;

- макропоры имеют шарообразную форму.

Основная идея модели заключается в следующем. В начале работы все клетки поля имеют состояние “материал”. После этого на поле в случайных местах поочередно размещаются шарообразные поры в соответствии с заданным распределением пор по размерам – клетки, в которых размещена пора, меняют свое состояние на “пора” (рис. 6).

Входными параметрами модели являются распределение макропор по размерам (объем, ко-

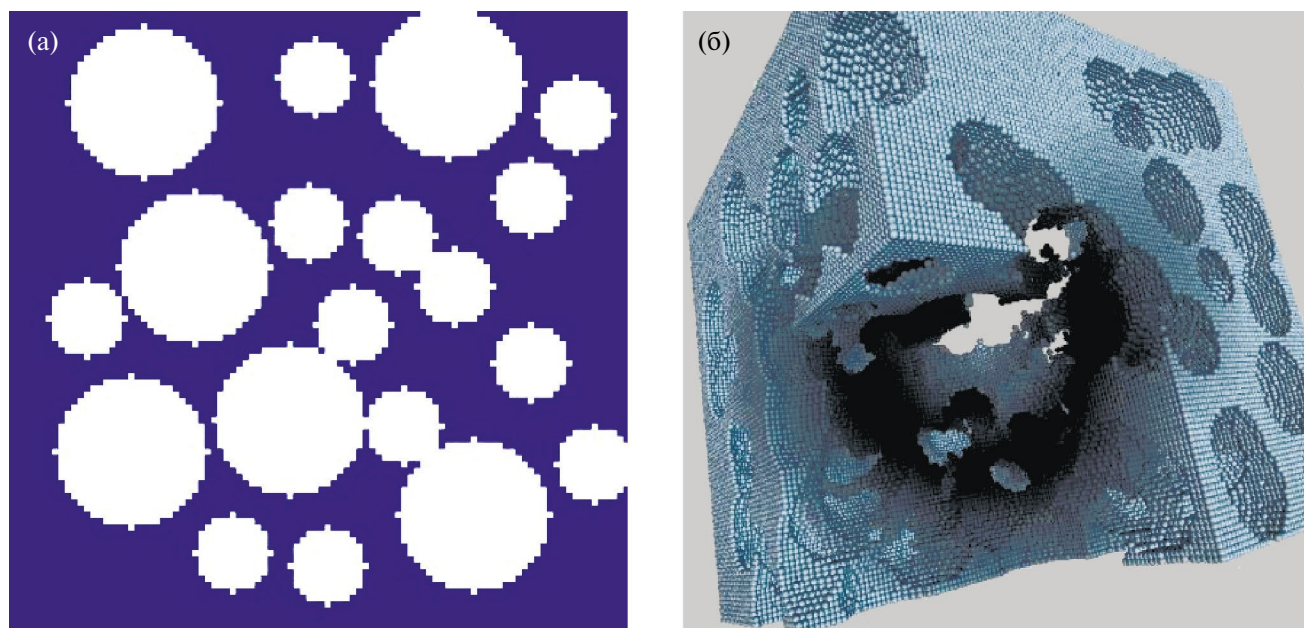


Рис. 6. Результат работы модели “Геоиды” для двухмерной (а) и трехмерной (б) структур.

торый занимают в структуре поры различных диаметров), данные о котором получают из аналитических исследований, и размер поля. Из полученного распределения может быть рассчитано количество пор каждого диаметра, которое присутствует на поле. Макропоры размещаются от большего диаметра к меньшему, чтобы мелкие поры не препятствовали размещению крупных. Результатом работы модели является цифровая макропористая структура. Данная структура может быть использована в дальнейшем в модели перекрытия для создания мультимасштабной иерархической цифровой структуры, которая содержит в себе как мезо-, так и макропористые участки.

Модель перекрытия. Структуры аэрогеля относятся к фракталам, то есть являются самоподобными на различных уровнях (рис. 7).

Из приведенной на рис. 7 схемы видно, что нановолокна образуют мезопористый волокнистый кластер. Несколько таких кластеров образуют более крупную структурную единицу, имеющую макропоры, которые далее образуют макропористую нановолокнистую структуру. Для генерации единой иерархической структуры, содержащей как мезо-, так и макропористые участки была разработана модель перекрытия.

В качестве входных параметров модель перекрытия использует ранее сгенерированные цифровые структуры на мезо- и на макроуровнях. Структура на макроуровне генерируется с помощью КА модели “Геоиды”, структура на мезоуровне — с помощью КА модели на основе

кривых Безье. Далее структуры объединяются с помощью оригинальной модели перекрытия, разработанной на основе алгоритма, представленного в [11].

Стоит отметить, что структура на мезоуровне значительно меньше, чем структура на макроуровне — если размер мезоуровневой структуры составляет десятки и сотни нанометров, то на макроуровне размер цифровой структуры соответствует сотням мкм. Поэтому для корректного объединения структур структура на мезоуровне достраивается до размеров макроструктуры путем размещения аналогичных структур на поле большего размера (рис. 8).

Объединение цифровых структур в одну заключается в том, что состояние клетки итоговой структуры определяется состояниями клеток мезо- и макроструктур с теми же координатами: в том случае, если состояние клетки мезострук-

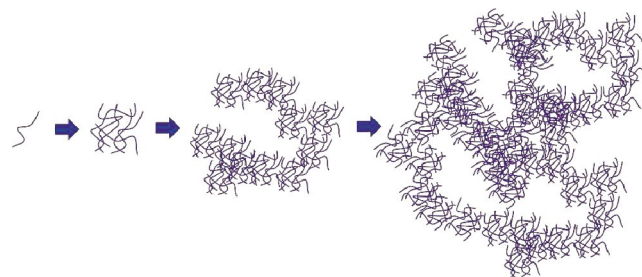


Рис. 7. Самоподобие иерархической волокнистой структуры аэрогелей на основе альгината натрия.

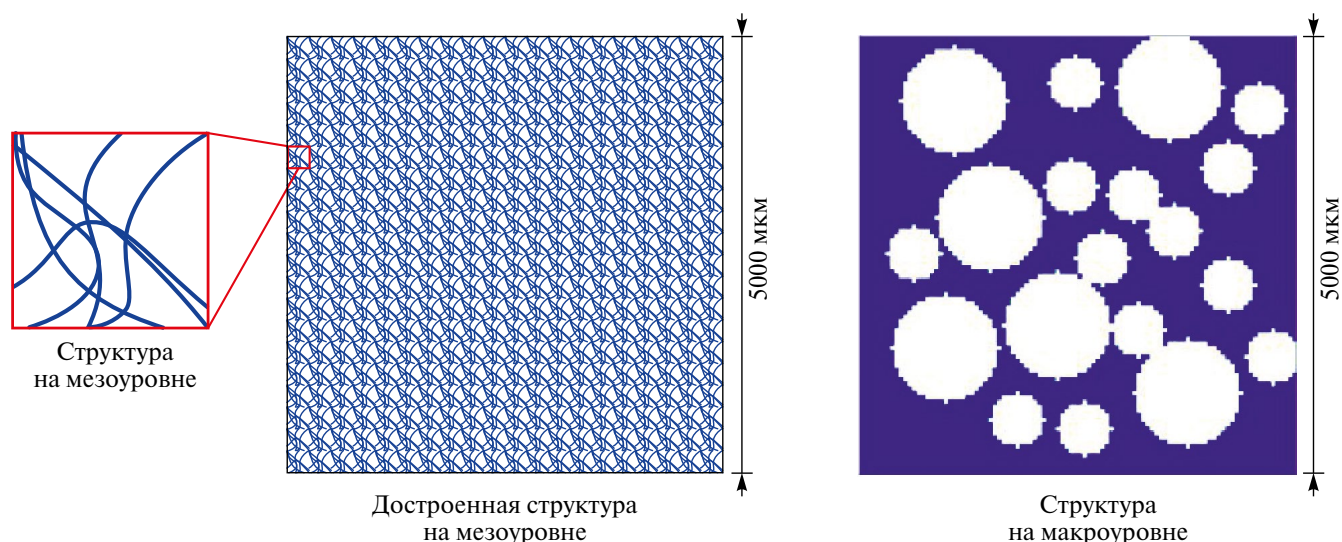


Рис. 8. Достройка мезоуровневой структуры до размеров макроструктуры.

туры — “волокно”, а состояние клетки макроструктуры с той же координатой — “пустота” (“пора”), то клетка итоговой структуры с той же координатой переходит в состояние “пора”. Во всех остальных случаях клетки итоговой структуры имеют то же состояние, что и клетки мезоструктуры. Иллюстрация работы модели перекрытия представлена на рис. 9.

Результатом работы модели перекрытия является цифровая иерархическая пористая структура, которая соответствует размерам входной макроструктуры. Таким образом, модель перекрытия позволяет создавать цифровую структуру, которая содержит как объединенную сеть мезопор, так и шарообразные макропоры, позволяя учитывать особенности иерархической структуры на различных масштабах. В рамках работы предложенная модель была использована для моделирования иерархических пористых структур частиц аэрогеля на основе альгината натрия.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

С использованием модели иерархических структур были сгенерированы цифровые структуры аэрогельных частиц на основе альгината натрия, соответствующие наработанным экспериментальным образцам. Моделирование иерархических структур проходило в два этапа — моделирование на мезоуровне и моделирование на макроуровне.

Моделирование аэрогельных частиц на основе альгината натрия на мезоуровне. Было проведено моделирование 4 образцов аэрогельных частиц

на основе альгината натрия с ПАВ с использованием модели на основе кривых Безье. Входными параметрами модели на основе кривых Безье являются пористость структуры и диаметр поперечного сечения волокна (диаметр волокна). Стоит отметить, что пористость структуры на мезоуровне и общая пористость образца отличаются, поэтому пористость структуры на мезоуровне рассчитывалась следующим образом (2):

$$P_{\text{мезо}} = \frac{V_{\text{мезо}}}{V_{\text{мезо}} + V_{\text{ТВ}}}, \quad (2)$$

где $V_{\text{мезо}}$ — удельный объем мезопор, $\text{см}^3/\text{г}$, $V_{\text{ТВ}}$ — удельный объем твердого каркаса образца, $\text{см}^3/\text{г}$.

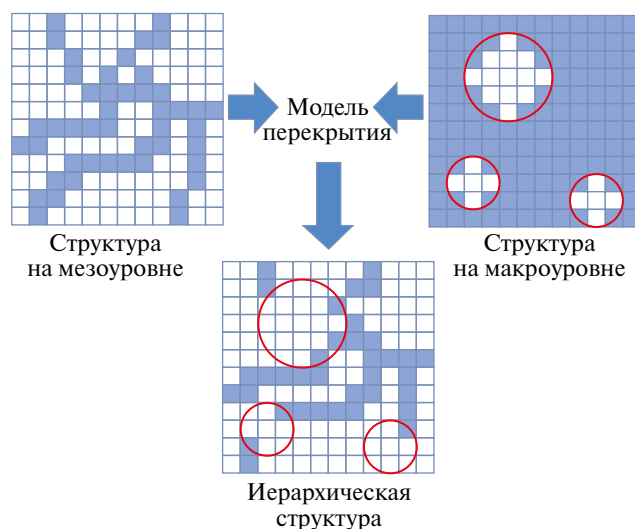


Рис. 9. Схема работы модели перекрытия.

Удельный объем мезопор был получен из аналитических данных азотной порометрии. Удельный объем твердого каркаса образца может быть рассчитан из его истинной плотности (3):

$$V_{\text{ТВ}} = \frac{1}{\rho_{\text{ист}}}. \quad (3)$$

Диаметр поперечного сечения волокна является эмпирическим параметром. Для установления его значения для каждого образца был сгенерирован набор цифровых структур с различным диаметром поперечного сечения волокна, из которого были выбраны цифровые структуры, наиболее соответствующие экспериментальным. Для каждой структуры значение диаметра поперечного сечения волокна варьировалось от 5 до 25 нм с шагом 2 нм. Таким образом, всего было сгенерировано 44 цифровые структуры. Сгенерированные цифровые структуры являлись трехмерными с размерами 400×400×400 нм при масштабе одной клетки, равной 1 нм.

В табл. 2 представлены данные по диаметру поперечного сечения волокна для цифровых структур, соответствующих исследуемым образцам.

На рис. 10–11 представлены изображения цифровых структур аэрогельных частиц на основе альгината натрия на мезоуровне.

Критерием соответствия мезоуровневых цифровых и экспериментальных структур является распределение пор по размерам, так как оно главным образом определяет геометрию структуры и, следовательно, параметры образца. Поэтому для оценки точности работы модели было проведено сравнение распределения пор по размерам цифровых структур и экспериментальных образцов. На рис. 12–15 представлены экспериментальные и расчетные кривые распределения пор по размерам.

Среднее отклонение расчетных и экспериментальных кривых не превышает 14%, что говорит о соответствии сгенерированных цифровых структур экспериментальным образцам. Полученные цифровые структуры были использованы далее в качестве входных параметров для генерации цифровых структур на макроуровне.

Моделирование аэрогельных частиц на основе альгината натрия на макроуровне. С помощью

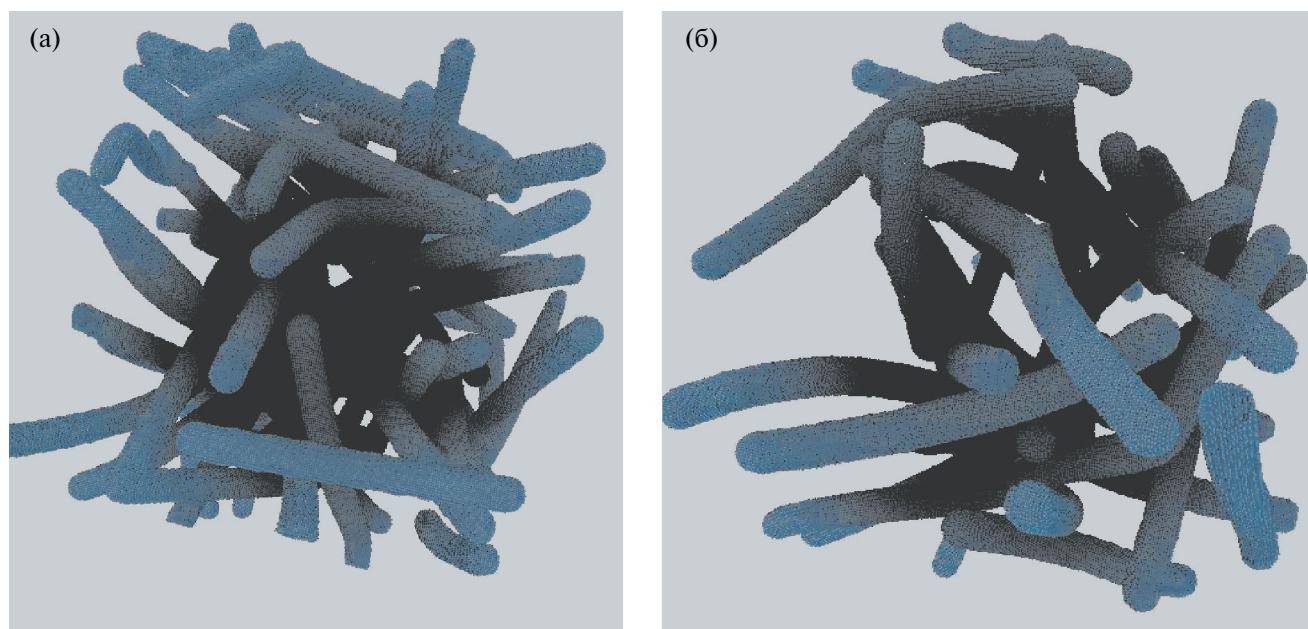


Рис. 10. Цифровые трехмерные структуры аэрогелей на основе альгината натрия, соответствующие образцам: (а) – образец 1; (б) – образец 2.

Таблица 2. Параметры цифровых структур аэрогельных частиц на основе альгината натрия

Образец	Удельный объем мезопор, см ³ /г	Истинная плотность, г/см ³	Кажущаяся плотность, г/см ³	Пористость, %	Диаметр волокна, нм
1	1.90	2.198	0.055	97.5	17
2	8.60	2.201	0.039	98.2	17
3	5.60	2.196	0.038	98.3	19
4	4.00	2.197	0.036	98.4	15

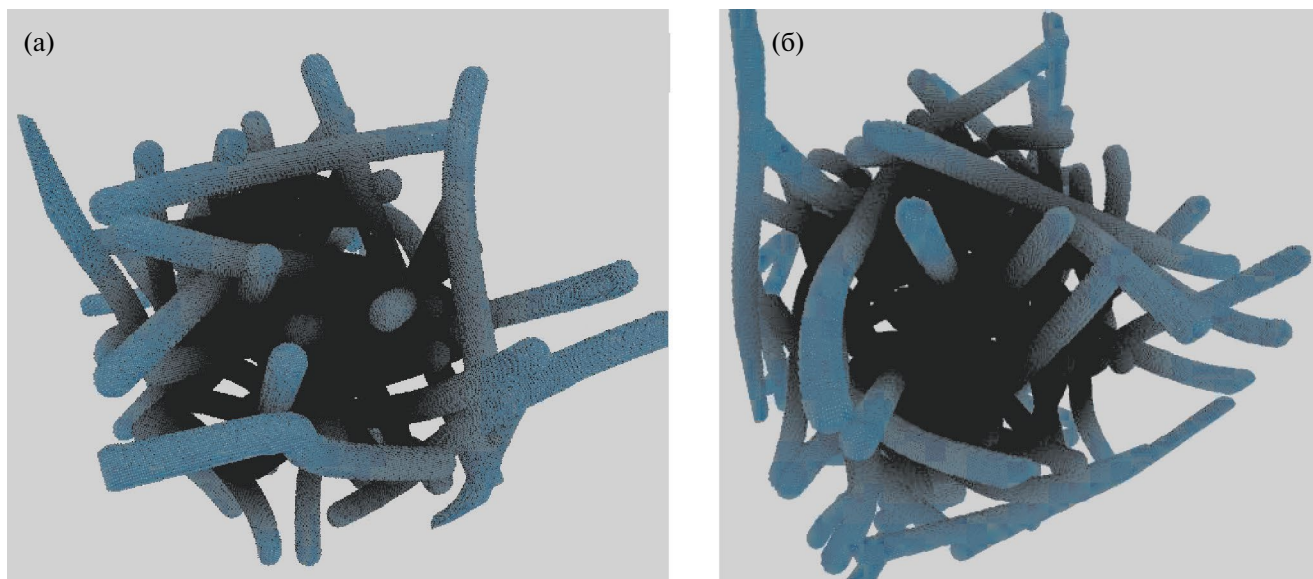


Рис. 11. Цифровые трехмерные структуры аэрогелей на основе альгината натрия, соответствующие образцам: (а) – образец 3; (б) – образец 4.

предложенной модели “Геоиды” были получены цифровые структуры аэрогеля на основе частиц альгината натрия на макроуровне, соответствующие ранее наработанным экспериментальным образцам (табл. 2).

Распределение макропор по размерам было получено напрямую из данных компьютерной томографии образцов. Так как распределение пор по размерам является входным параметром, то цифровая структура на макроуровне соответству-

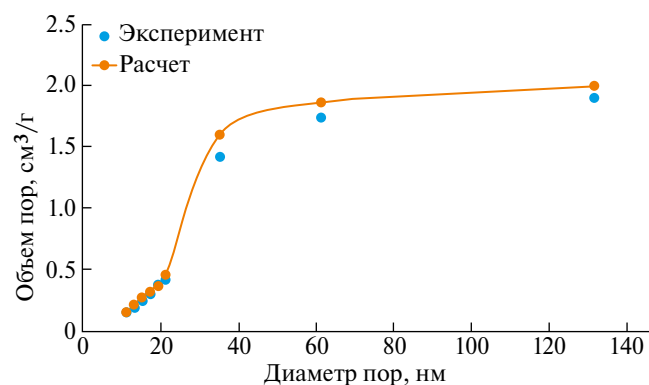


Рис. 12. Расчетная и экспериментальная кривые распределения пор по размерам образца 1.

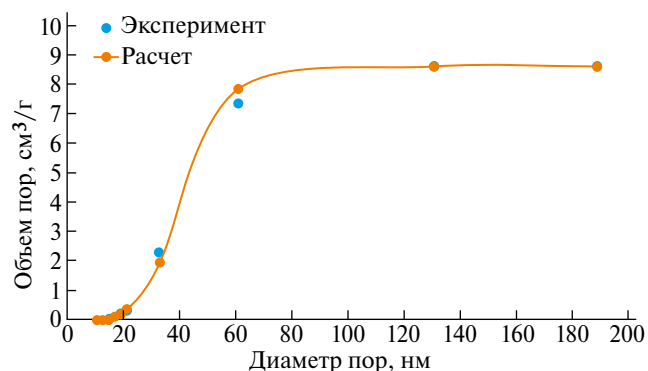


Рис. 13. Расчетная и экспериментальная кривые распределения пор по размерам образца 2.

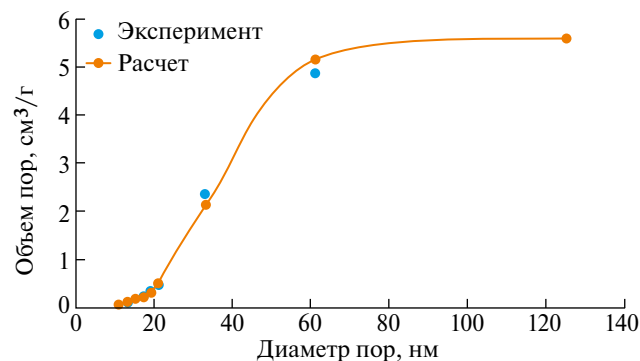


Рис. 14. Расчетная и экспериментальная кривые распределения пор по размерам образца 3.

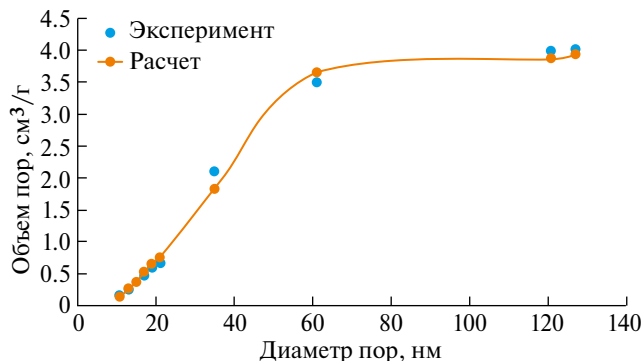


Рис. 15. Расчетная и экспериментальная кривые распределения пор по размерам образца 4.

ет структуре экспериментального образца. Сгенерированные цифровые структуры являлись трехмерными с размерами $5000 \times 5000 \times 5000$ мкм.

Сгенерированные цифровые структуры на мезо- и макроуровне были использованы далее в качестве входных параметров для генерации цифровых иерархических структур, соответствующих экспериментальным образцам частиц аэрогеля на основе альгината натрия.

Моделирование иерархических структур аэрогельных частиц на основе альгината натрия. С помощью предложенной модели перекрытия были проведены вычислительные эксперименты по мультимасштабному моделированию иерархических цифровых структур аэрогелей на основе альгината натрия, содержащих как сеть мезопор, так и макропоры.

В качестве критерия соответствия итоговых иерархических структур была выбрана общая пористость структуры, так как для иерархической структуры она не является входным параметром, но при этом должна совпадать с пористостью экспериментального образца. Максимальное отклонение пористости цифровых структур от реальных составило не более 1.5%. Из низкого значения отклонения расчетной и экспериментальной пористости, а также из соответствия структур на мезо- и макроуровнях можно сделать вывод о корректной работе моделей.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе была предложена модель создания цифровых иерархических пористых структур на основе КА подхода.

Для решения задачи моделирования иерархических структур были разработаны две модели, которые позволяют получать цифровые структуры, соответствующие экспериментальным образцам на двух уровнях: на мезоуровне — с помощью модели, основанной на построении кривых Безье, и на макроуровне — с помощью оригинальной КА модели “Геоиды”. Для генерации единой мультимасштабной иерархической структуры была разработана оригинальная КА модель “Перекрытия”.

Получены экспериментальные образцы частиц аэрогелей на основе альгината натрия, имеющие иерархическую структуру, содержащую как открытую сеть мезопор, так и объем макропор. Для наработанных образцов были проведены аналитические исследования, из которых были получены распределения мезо- и макропор по размерам, пористость (97.5-98.4%), истинная ($2.196\text{--}2.201$ г/см³) и кажущаяся плотность ($0.036\text{--}0.055$ г/см³).

Для наработанных образцов были проведены вычислительные эксперименты по генерации цифровых структур, соответствующие экспериментальным. Для генерации цифровых структур на мезоуровне были сгенерированы 44 цифровые структуры с различными диаметрами поперечного сечения волокна, из которых были выбраны те структуры, распределение пор по размерам которых наиболее соответствует экспериментальному. Для выбранных структур на мезоуровне среднее отклонение расчетных и экспериментальных кривых распределения пор по размерам не превышает 14%. Далее с использованием распределения макропор по размерам были сгенерированы цифровые макроструктуры, соответствующие экспериментальным. С использованием сгенерированных мезо- и макроструктур были получены мультимасштабные иерархические структуры, соответствующие экспериментальным образцам частиц аэрогелей на основе альгината натрия. Сгенерированные цифровые структуры содержат как открытую сеть мезопор, так и макропоры.

Разработанные модели были реализованы с использованием высокопроизводительных параллельных вычислений, что позволяет генерировать крупные цифровые структуры размером до тысяч мкм при масштабе одной клетки, равной 1 нм, что существенно повышает точность моделирования.

Предложенная модель позволяет получать цифровые пористые структуры, которые дают возможность учитывать особенности геометрии реальных иерархических структур на различных уровнях — как на мезо-, так и на макроуровнях. Полученные цифровые структуры могут быть использованы в дальнейшем для расчета по ним физических и физико-химических свойств, а также различных процессов, таких как растворение внедренных активных фармацевтических ингредиентов и массоперенос. Это позволит существенно снизить затраты при разработке новых иерархических пористых материалов с заданными свойствами путем частичной замены натуральных экспериментов вычислительными.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российским Научным Фондом № 23-13-00368 “Наноструктурированные материалы с иерархической пористой структурой для решения задач медицины и фармацевтики”.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Меньшутина Н.В., Ловская Д.Д., Лебедев А.Е., Лебедев Е.А.* Процессы получения частиц аэрогелей на

- основе альгината натрия с использованием сверхкритической сушки в аппаратах различного объема // Сверхкритические Флюиды: Теория и Практика. 2017. Т. 12. № 2. С. 35.
2. *Smirnova I., Gurikov P.* Aerogel production: Current status, research directions, and future opportunities: 30th Year Anniversary Issue of the Journal of Supercritical Fluids // The Journal of Supercritical Fluids. 2018. Т. 134. С. 228.
 3. *Stergar J., Maver U.* Review of aerogel-based materials in biomedical applications // Journal of Sol-Gel Science and Technology. 2016. V. 77. № 3. P. 738.
 4. *García-González C.A., Alnaief M., Smirnova I.* Polysaccharide-based aerogels—Promising biodegradable carriers for drug delivery systems // Carbohydrate Polymers. 2011. Т. 86. № 4. С. 1425.
 5. *García-González C.A., Sosnik A., Kalmár J., De Marco I., Erkey C., Concheiro A., Alvarez-Lorenzo C.* Aerogels in drug delivery: From design to application // Journal of Controlled Release. 2021. Т. 332. С. 40.
 6. *Menshutina N., Majouga A., Uvarova A., Lovskaya D., Tsygankov P., Mochalova M., Abramova O., Ushakova V., Morozova A., Silantyev A.* Chitosan Aerogel Particles as Nasal Drug Delivery Systems // Gels. 2022. V. 8. № 12. P. 796.
 7. *Smirnova I., Suttiruengwong S., Arlt W.* Feasibility study of hydrophilic and hydrophobic silica aerogels as drug delivery systems: Aerogels 7. Proceedings of the 7th International Symposium on Aerogels // Journal of Non-Crystalline Solids. 2004. Т. 350. С. 54.
 8. Toward Predictive Multiscale Modeling of Vascular Tumor Growth | Archives of Computational Methods in Engineering. <https://link.springer.com/article/10.1007/s11831-015-9156-x>
 9. *Menshutina N.V., Kolnoochenko A.V., Lebedev E.A.* Cellular Automata in Chemistry and Chemical Engineering // Annual Review of Chemical and Biomolecular Engineering. 2020. Т. 11. № 1. С. 87.
 10. *Лебедев И.В. и др.* Цифровые двойники пористых структур аэрогелей с использованием клеточно-автоматного подхода и кривых Безье // Теоретические основы химической технологии. 2023. Т. 57. № 4. С. 412.
 11. *Gerke K.M., Karsanina M.V., Mallants D.* Universal stochastic multiscale image fusion: an example application for shale rock // Scientific reports. 2015. Т. 5. № 1. С. 15880.

USING CELL-AUTOMATION APPROACH TO CREATE DIGITAL TWINS OF HIERARCHICAL POROUS STRUCTURES

I. V. Lebedev, V. I. Gashenko, O. V. Fedotova, A. A. Abramov, P. Yu. Tsygankov, N. V. Men'shutina*

Russian University of Chemical Technology named after D.I. Mendeleev, Moscow, Russia

**e-mail: chemcom@muctr.ru*

Abstract. This paper proposes a multiscale model based on a cellular-automation approach for generating digital doubles of porous hierarchical structures of sodium alginate-based aerogels. The proposed model utilizes a cell-automation approach to generate structures at meso- and macro-levels and then combine them into a single digital multiscale structure that contains both meso- and macro-pores. Samples of sodium alginate-based aerogels have been experimentally investigated. Computational experiments have been carried out to generate digital structures corresponding to the experimental samples obtained. Comparison of the structural characteristics of digital and experimental samples was carried out, on the basis of which conclusions were drawn about the correct operation of the model. The obtained digital multiscale structures can be used in the future to predict the properties of hierarchical structures, which will partially replace in situ experiments with computational ones and, therefore, reduce costs in the development of new materials with specified properties.

Keywords: *cellular automata, modeling, porous materials, hierarchical structures, multiscale model, Bézier curves, fibrous materials, aerogels, sodium alginate, sol-gel process*