Облікова картка дисертації

I. Загальні відомості

Державний обліковий номер: 0421U100425

Особливі позначки: відкрита

Дата реєстрації: 04-03-2021

Статус: Захищена

Реквізити наказу МОН / наказу закладу:

II. Відомості про здобувача

Власне Прізвище Ім'я По-батькові:

1. Коритко Дмитро Михайлович
2. Korytko Dmytro Mykhailovych

Кваліфікація:

Ідентифікатор ORCID ID: Не застосовується

Вид дисертації: кандидат наук

Аспірантура/Докторантура: так

Шифр наукової спеціальності: 02.00.04

Назва наукової спеціальності: Фізична хімія

Галузь / галузі знань: Не застосовується

Освітньо-наукова програма зі спеціальності: Не застосовується

Дата захисту: 16-02-2021

Спеціальність за освітою: Хімія

Місце роботи здобувача: Київський національний університет імені Тараса Шевченка

Код за ЄДРПОУ: 02070944

Місцезнаходження: вул. Володимирська, буд. 60, м. Київ, Київська обл., 01033, Україна

Форма власності:

Сфера управління: Міністерство освіти і науки України

Ідентифікатор ROR: Не застосовується

III. Відомості про організацію, де відбувся захист

Шифр спеціалізованої вченої ради (разової спеціалізованої вченої ради): Д 26.001.03

Повне найменування юридичної особи: Київський національний університет імені Тараса Шевченка

Код за ЄДРПОУ: 02070944

Місцезнаходження: вул. Володимирська, буд. 60, м. Київ, Київська обл., 01033, Україна

Форма власності:

Сфера управління: Міністерство освіти і науки України

Ідентифікатор ROR: Не застосовується

IV. Відомості про підприємство, установу, організацію, в якій було виконано дисертацію

Повне найменування юридичної особи: Київський національний університет імені Тараса Шевченка

Код за ЄДРПОУ: 02070944

Місцезнаходження: вул. Володимирська, буд. 60, м. Київ, Київська обл., 01033, Україна

Форма власності:

Сфера управління: Міністерство освіти і науки України

Ідентифікатор ROR: Не застосовується

V. Відомості про дисертацію

Мова дисертації:

Коди тематичних рубрик: 53.41.37.15, 53.41.43, 61.13.25.33, 31.15.37

Тема дисертації:

1. Структура, хімія поверхні та функціоналізація наноматеріалів, виготовлених на основі карбіду кремнію
2. Structure, surface chemistry and functionalization of silicon carbide-based nanomaterials

Реферат/анотація:

1. Дисертаційна робота присвячена питанням дослідження наноструктурованих матеріалів, створених на основі карбіду кремнію, оптимізації методів їх синтезу, хімічного модифікування та регулюванню фізико-хімічних властивостей. Значна увага приділена з'ясуванню впливу умов хімічної обробки на фізико-хімічні властивості та стан поверхні, а також розробці простих і ефективних методів їх модифікування і функціоналізації. Перспективи матеріалів з керованою морфологією на основі наноструктурованого SiC вбачаються у використанні в якості стійких носіїв каталізаторів, для розробки технологій одержання композитів і біосумісних наноматеріалів, сенсорних елементів та оптичних зондів у медико-біологічних дослідженнях. Представлено спосіб контрольованого зменшення розмірів наночастинок (НЧ) SiC від 17 до 9 нм шляхом регулювання температури прожарювання на повітрі у межах від 400 до 900 ˚С. Встановлено склад поверхні та силу кислотно-основних центрів НЧ SiC в залежності від обраного реагенту видалення

оксидного шару. Серед підходів до функціоналізації поверхні НЧ SiC реалізовано можливість ковалентного прищеплення 1-алкенів безпосередньо до поверхні з формуванням гідрофобних НЧ SiC, а також залучення карбоксильних груп поверхні (що формуються в умовах окисного розчинення SiC дією суміші HF-HNO3) для модифікування ліофільних та електрокінетичних властивостей НЧ SiC. У роботі оптимізовано умови термохімічного синтезу мезопоруватого SiC з полімерного прекурсору SiC (полікарбосилану, PCS) методом нанокастингу із застосуванням в якості темплату наночастинок SiO2 із комерційно доступного водного золю, що дало можливість отримати поруватий SiC зі сферичними мезопорами розміром 12 та 22 нм. Проведено комплексне багатопараметричне дослідження зі встановлення факторів, що впливають на морфологію та кристалічність мезопоруватих SiC. Представлено дослідження залежності структурних параметрів мезопор, розміру кристалітів, що складають їх стінки від температури синтезу, складу нанокомпозиту PCS/SiO2 та способу його отримання. Також оцінено стійкість матеріалу до термічного окиснення в залежності від обраної температури синтезу (досліджено 1200, 1300 та 1400 ˚C). Наведено дані дослідження впливу кількості добавки комплексу Ni(II) на характер кристалічності фази SiC і на структуру кінцевого матеріалу та зроблено рекомендацію з підбору оптимальних умов термохімічного синтезу для отримання мезопоруватого SiC з морфологічними параметрами та кристалічністю, найкращими для використання в якості носія каталітично-активних наночастинок металів. Розглянуто процес електрохімічного розчинення (анодування) компактного полікристалічного SiC в розчинах HF та встановлено елементний, фазовий склад і морфологію продуктів. Досліджено вплив умов анодування (опір пластин SiC, склад електроліту, густина струму) на вихід продуктів та їх співвідношення. Вперше проведено детальне дослідження хімічної природи та фізикохімічних властивостей розчинного продукту електрохімічного травлення (т.зв. “вуглець фторооксид”, Carbon Fluorooxide, CFO) із залученням широкого набору незалежних фізичних і хімічних методів. В роботі проведено деяку аналогію між електрохімічним розчиненням SiC в результаті анодної реакції в розчинах HF та окисним хімічним травленням SiC під дією суміші HF–HNO3 через формування органічної речовини складної будови – CFO або його аналогів. Також наводиться порівняння встановлених фізико-хімічних властивостей CFO з природними (гумінові речовини) та синтетичними макромолекулярними сполуками та графен оксидом для оцінки структурної аналогії та відмінностей. Встановлено склад CFO за функціональними групами (-COO(H,Et), CAlk/Ar–(OH,F), та запропоновано модель будови цієї речовини. В межах елементного аналізу, встановлено хімічний стан та вміст Фтору в CFO за формами, а також досліджено кінетику його гідролітичного відщеплення в залежності від pH та лужності середовища. Охарактеризовано силу кислотних груп CFO та запропоновано методи нескладного хімічного модифікування і функціоналізації CFO через реакції карбоксильної групи з амінами (етилендіамін, діетаноламін та C18H37-NH2) для спрямованої зміни ліофільних властивостей. У роботі представлені детальні дослідження оптичних властивостей CFO. Показано, що для CFO характерні як одно-, так і двофотонна фотолюмінесценція. Показана можливість використання виявлених фотолюмінесцентних властивостей CFO для біовізуалізації живих клітин. Електрокаталітична активність CFO у реакції відновлення H2O2 використана при модифікуванні ним (у складі композитної плівки) планарних вугільних електродів та отриманні більш селективних електрохімічних сенсорів на перекис водню, що мають високу чутливість і широкий лінійний діапазон визначуваних концентрацій.

2. The dissertation is devoted to the study of nanostructured materials based on silicon carbide, optimization of their synthesis methods, chemical modification and regulation of physicochemical properties. Much attention was paid to elucidating the influence of chemical treatment conditions on the physicochemical properties and surface composition, as well as the development of simple and effective methods for their modification and functionalization. Prospects for the materials with controlled morphology based on nanostructured SiC were seen in the use as stable catalyst support, for the development of technologies of composites and biocompatible nanomaterials making, sensors elements and optical probes in biomedical research. The method of controlled reduction of SiC nanoparticles' (NPs) size from 17 to 9 nm by adjusting the calcination temperature in air in the range from 400 to 900 ˚C was presented. SiC NPs' surface composition and strength of the acid-base sites depending on the selected oxide layer removal agent were determined. Among the approaches to the

functionalization of the SiC NPs' surface chemistry, the possibility of covalent grafting of 1-alkenes directly to the surface with the formation of hydrophobic SiC NPs, as well as the involvement of carboxyl surface groups (formed under oxidative etching in HF-HNO3 mixture) in modification of its lyophilic and electrokinetic properties were noted. Conditions of thermochemical synthesis of mesoporous SiC from a polymer SiC-precursor (polycarbosilane, PCS) via method of "nanocasting" were optimized using SiO2 nanoparticles (from commercially available aqueous sol) as a template, which made it possible to obtain porous SiC with spherical mesopores of 12 and 22 nm. The comprehensive multiparametric study to determine the factors influencing the morphology and crystallinity of mesoporous SiC was performed. The study of the dependence of structural parameters of mesopores, size of the crystallites making up their walls on the synthesis temperature, the composition of PCS/SiO2 nanocomposite and the method of its production were presented. The resistance of the material to thermal oxidation depending on the selected synthesis temperature (1200, 1300 and 1400 ˚C) was also evaluated The study data of the influence of the additive amount of Ni (II) complex on SiC phase crystallinity and structure of the final material were presented and the recommendation on selection of the optimal thermochemical synthesis conditions for obtaining of the mesoporous SiC with morphological parameters and crystallinity best for a support for catalytically active metal nanoparticles was made. The process of electrochemical dissolution (anodizing) of a compact polycrystalline SiC in HF solutions was considered and the elemental, phase composition and morphology of the products were determined. The influence of anodizing conditions (such as SiC plate resistivity, electrolyte composition, current density) on the yield of the products and their ratios was studied. For the first time, a detailed study of the chemical nature and physicochemical properties of the soluble product of SiC electrochemical dissolution (so-called "Carbon Fluorooxide", CFO) with a wide range of independent physical and chemical methods were performed. Some analogy was drawn between electrochemical dissolution of SiC as a result of anodic reaction in HF solutions and oxidative chemical etching of SiC under the action of HF – HNO3 mixture due to formation of organic matter of complex structure - CFO or its analogues. The physicochemical properties of the CFO were also compared to some natural (humic substances) and synthetic macromolecular compounds as well as graphene oxide in order to evaluate the structural analogy and differences. The CFO's functional groups composition was determined (-COO(H, Et), CAlk/Ar–(OH, F), and the structural model of this substance was proposed. Within the elemental analysis, the chemical state of Fluorine and its content in the CFO by chemical forms were made and also kinetics of its hydrolytic cleavage as a function of pH and alkalinity of the medium were studied. The strength of CFO's acid groups was characterized and the methods of simple chemical modification and functionalization through reactions of carboxyl group with amines (ethylenediamine, diethanolamine and C18H37-NH2) were suggested. The work represents detailed studies of the optical properties of CFO. It was shown that for CFO both one- and two-photon photoluminescence is characteristic. The possibility of using the detected photoluminescent properties of the CFO for biovisualization of living cells was shown. Electrocatalytic activity of the CFO in H2O2 reduction reaction was used to modify carbon planar electrodes (as a component of a composite film) in obtaining of more selective electrochemical sensor for hydrogen peroxide, which have high sensitivity and a wide linear range of detectable concentrations.

Державний реєстраційний номер ДіР:

Пріоритетний напрям розвитку науки і техніки:

Стратегічний пріоритетний напрям інноваційної діяльності:

Підсумки дослідження:

Публікації:

Наукова (науково-технічна) продукція:

Соціально-економічна спрямованість:

Охоронні документи на ОПІВ:

Впровадження результатів дисертації:

Зв'язок з науковими темами:

VI. Відомості про наукового керівника/керівників (консультанта)

Власне Прізвище Ім'я По-батькові:

1. Алексєєв Сергій Олександрович

2. Alekseev Sergei Aleksandrovych

Кваліфікація: к. х. н., 02.00.01

Ідентифікатор ORCID ID: Не застосовується

Додаткова інформація:

Повне найменування юридичної особи:

Код за ЄДРПОУ:

Місцезнаходження:

Форма власності:

Сфера управління:

Ідентифікатор ROR: Не застосовується

VII. Відомості про офіційних опонентів та рецензентів

Офіційні опоненти

Власне Прізвище Ім'я По-батькові:

1. Носач Людмила Вікторівна

2. Nosach Liudmyla Viktorivna

Кваліфікація: к. х. н., 01.04.18

Ідентифікатор ORCID ID: Не застосовується

Додаткова інформація:

Повне найменування юридичної особи:

Код за ЄДРПОУ:

Місцезнаходження:

Форма власності:

Сфера управління:

Ідентифікатор ROR: Не застосовується

Власне Прізвище Ім'я По-батькові:

1. Колотілов Сергій Володимирович

2. Kolotilov Sergii Volodymyrovych

Кваліфікація: д. х. н., 02.00.01, 02.00.04

Ідентифікатор ORCID ID: Не застосовується

Додаткова інформація:

Повне найменування юридичної особи:

Код за ЄДРПОУ:

Місцезнаходження:

Форма власності:

Сфера управління:

Ідентифікатор ROR: Не застосовується

Рецензенти

VIII. Заключні відомості

Власне Прізвище Ім'я По-батькові голови ради Слободяник Микола Семенович

Власне Прізвище Ім'я По-батькові головуючого на засіданні Слободяник Микола Семенович

Відповідальний за підготовку облікових документів

Реєстратор

Керівник відділу УкрІНТЕІ, що є відповідальним за реєстрацію наукової діяльності Юрченко Т.А.