Облікова картка дисертації

I. Загальні відомості

Державний обліковий номер: 0413U000264

Особливі позначки: відкрита

Дата реєстрації: 25-01-2013

Статус: Захищена

Реквізити наказу МОН / наказу закладу:

II. Відомості про здобувача

Власне Прізвище Ім'я По-батькові:

1. Теребінська Марія Іванівна

2. Terebinska Mariya Ivanivna

Кваліфікація:

Ідентифікатор ORCID ID: Не застосовується

Вид дисертації: кандидат наук

Аспірантура/Докторантура: так

Шифр наукової спеціальності: 01.04.18

Назва наукової спеціальності: Фізика і хімія поверхні

Галузь / галузі знань: Не застосовується

Освітньо-наукова програма зі спеціальності: Не застосовується

Дата захисту: 17-01-2013

Спеціальність за освітою: 7.080101

Місце роботи здобувача: Інститут хімії поверхні ім. О.О. Чуйка НАН України

Код за ЄДРПОУ: 03291669

Місцезнаходження: 03164, Київ, вул. Генерала Наумова, 17

Форма власності:

Сфера управління: Національна академія наук України

Ідентифікатор ROR: Не застосовується

III. Відомості про організацію, де відбувся захист

Шифр спеціалізованої вченої ради (разової спеціалізованої вченої ради): 26.210.01

Повне найменування юридичної особи:

Код за ЄДРПОУ:

Місцезнаходження:

Форма власності:

Сфера управління:

Ідентифікатор ROR: Не застосовується

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

Повне найменування юридичної особи: Інститут хімії поверхні ім. О.О. Чуйка НАН України

Код за ЄДРПОУ: 03291669

Місцезнаходження: 03164, Київ, вул. Генерала Наумова, 17

Форма власності:

Сфера управління: Національна академія наук України

Ідентифікатор ROR: Не застосовується

V. Відомості про дисертацію

Мова дисертації:

Коди тематичних рубрик: 31.15.37.05

Тема дисертації:

1. Квантовохімічне моделювання адсорбції кисню, води та піридоксину на поверхні силіцію

2. Quantum chemical simulation of adsorption of oxygen, water and pyridoxine on the surface of silicon

Реферат/анотація:

1. Виконані квантовохімічні розрахунки (метод ТФГ, B3LYP, 6-31G**) рівноважної просторової будови АК молекул O2 і H2O на кластерах, які моделюють грані 111 і 100, дозволили визначити енергії утворення сформованих при цьому проміжних сполук і активаційних бар'єрів переходів між ними. Встановлена екзотермічність утворення (з урахуванням енергій активаційних бар'єрів) всіх проміжних структур, що відображає лавиноподібне окиснення поверхні кристалічного силіцію під дією молекулярного кисню або води. Атоми кисню, які виникають після розпаду адсорбованої молекули O2, утворюють на поверхні розглянутих кластерів Si-O-Si містки, що примикають до одного атома силіцію, і які є центром атаки наступної молекули кисню, що може бути доказом острівкового характеру окиснення граней Si(111) та Si(100). Розраховані в гармонічному наближенні частоти й форми нормальних коливань атомів адсорбційних комплексів і поверхневих сполук, до складу яких входить атомарний або молекулярний кисень, а також співставлення в тих випадках, коли це можливо, з експериментальними даними, дозволили встановити їхню істотну відмінність від частот коливань атомів кисню, які захоплюються в міжвузлях кристалічної ґратки в

процесі одержання зразків силіцію. Показано, що положення смуг у розрахованих спектрах, насамперед, залежить від хімічного оточення атомів кисню, а в другу чергу, визначається структурою кристалічної грані. Доведено, що врахування триплетного основного стану молекули O2, яка атакує грань Si (111), має важливе значення для правильного опису її взаємодії не тільки з поверхнею кристалічного силіцію, але й з будь-якою твердофазною поверхнею. Встановлено, що молекула O2, знаходячись на відстанях більше 0,35 нм від кластера 111, перебуває в триплетному стані й орієнтована перпендикулярно його поверхні. При досягненні відстані 0,35 нм в молекулі O2 під впливом поверхні відбувається триплет-синглетний перехід, вісь молекули розташовується паралельно поверхні й подальша еволюція системи "кластер 111+O2" відбувається уздовж кривої, що описує синглетний стан молекулярного АК 111oO2. Розрахунки рівноважної просторової будови моделі ПУ на поверхні пористого силіцію, розподілів молекулярного електростатичного потенціалу й модуля напруженості електростатичного поля дозволили зробити висновок, що в околі ПУ напруженість полів досягає таких значень, які разом із зовнішнім лазерним випромінюванням значно полегшують іонізацію попередньо адсорбованих молекул органічних речовин. На прикладі молекули піридоксину з'ясований механізм утворення в умовах лазерної іонізації/десорбції на поверхні пористого силіцію протонованих молекулярних іонів і дана теоретична інтерпретація мас-спектра фрагментних іонів.

2. Quantum chemical calculations related to the equilibrium spatial structures of the complexes of O2 and H2O molecules adsorbed on the (111) and (100) faces of crystalline silicon were performed. Calculations were based on density functional theory and made use of the B3LYP method and the 6-31G** basis set. The energy of formation of the intermediate compounds and the values of the activation barriers for transitions between them were thus calculated. The heat released during the formation of all intermediate structures was calculated with the energy of activation barriers being taken into account. The exothermicity reflected the spontaneity of oxidation of the surface of crystalline silicon under the influence of molecular oxygen or water. The oxygen atoms that appear after dissociation of the adsorbed O2 molecule were found to form Si-O-Si bridges on the surface of crystalline silicon, that are adjacent to one silicon atom (the center of the subsequent attack of the oxygen molecule). This might confirm the insular nature of the oxidation process on the Si (111) and Si (100) faces. Frequencies and modes of normal vibration of the atoms in the adsorption complexes and surface compounds were calculated with the harmonic approximation. An essential difference was found between the vibrational frequencies of oxygen atoms in interstitial positions of the crystal lattice and the frequencies of adsorbed atomic and molecular oxygen. These results were confirmed by comparison with experimental available data. It was also found that the position of the bands in the calculated spectra is primarily dependent on the chemical surroundings of oxygen atoms, while the structure of the involved crystal faces plays only a secondary role. It was proved that the inclusion of the triplet ground state O2 molecule attacking the face of the Si (111) is essential for a correct description of its interaction, not only with the surface of crystalline silicon but also to any solid surface. The calculations revealed that the O2 molecules at distances greater than 0.35 nm from the Si (111) cluster are in the triplet state and perpendicularly oriented to the Si (111) plane. At 0.35 nm the surface influence would trigger the triplet-singlet transition. Thereafter the axis of the molecule would become parallel to the surface and the subsequent evolution of the (111)-O2 complex would follow a curve typical of a molecular adsorption complex. Calculations of the equilibrium spatial structure of the model of pyramidal formations on the surface of porous silicon were also performed. The distribution of the molecular electrostatic potential and the intensity module of the electrostatic field indicate that the electrostatic field near pyramidal formations has enough strength to enable the ionization of adsorbed organic molecules upon radiation with an external laser. The thus described approach was used to rationalize the mechanism of formation of protonated molecular ions of pyridoxine adsorbed on silica, during an experiment of laser ionization / desorption. The theoretical interpretation of the mass spectra of fragment ions was thus clarified.

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. Лобанов Віктор Васильович

2. Lobanov Victor Vasilovach

Кваліфікація: д.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

VII. Відомості про офіційних опонентів та рецензентів

Офіційні опоненти

Власне Прізвище Ім'я По-батькові:

1. Стрижак Петро Євгенович

2. Стрижак Петро Євгенович

Кваліфікація: д.х.н., 02.00.15

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. Соловйов Веніамін Васильович

2. Соловйов Веніамін Васильович

Кваліфікація: д.х.н., 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 Тьортих Валентин Анатолійович

Власне Прізвище Ім'я По-батькові головуючого на засіданні Тьортих Валентин Анатолійович

Відповідальний за підготовку облікових документів

Реєстратор

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