

Облікова картка дисертації

I. Загальні відомості

Державний обліковий номер: 0421U101701

Особливі позначки: відкрита

Дата реєстрації: 17-05-2021

Статус: Захищена

Реквізити наказу МОН / наказу закладу:



II. Відомості про здобувача

Власне Прізвище Ім'я По-батькові:

1. Сотнік Світлана Олександрівна

2. Sotnik Svitlana O

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: 27-04-2021

Спеціальність за освітою: хімія

Місце роботи здобувача: Інститут фізичної хімії ім. Л. В. Писаржевського Національної Академії Наук України

Код за ЄДРПОУ: 05417213

Місцезнаходження: проспект Науки, буд. 31, м. Київ, 03028, Україна

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): Д 26.190.01

Повне найменування юридичної особи: Інститут фізичної хімії ім. Л. В. Писаржевського
Національної Академії Наук України

Код за ЄДРПОУ: 05417213

Місцезнаходження: проспект Науки, буд. 31, м. Київ, 03028, Україна

Форма власності:

Сфера управління: Національна академія наук України

Ідентифікатор ROR: Не застосовується

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

Повне найменування юридичної особи: Інститут фізичної хімії ім. Л. В. Писаржевського
Національної Академії Наук України

Код за ЄДРПОУ: 05417213

Місцезнаходження: проспект Науки, буд. 31, м. Київ, 03028, Україна

Форма власності:

Сфера управління: Національна академія наук України

Ідентифікатор ROR: Не застосовується

V. Відомості про дисертацію

Мова дисертації:

Коди тематичних рубрик: 31.15

Тема дисертації:

1. Вплив будови координаційних полімерів Fe(III), Co(II), Cu(II) з карбоксилатними і піридинвмісними лігандами на їх сорбційні властивості та каталітичну активність в реакціях Кневенагеля і Анрі
2. Influence of the structure of coordination polymers Fe(III), Co(II), Cu(II) with carboxylate and pyridine-containing ligands on their sorption properties and catalytic activity in the Knoevenagel and Henry reactions

Реферат:

1. Дисертація присвячена дослідженню будови координаційних полімерів Fe(III), Co(II), Cu(II) з карбоксилатними та піридинвмісними лігандами, сорбційних властивостей таких сполук по відношенню до нітрометану, саліцилового альдегіду та 9-антраценкарбальдегіду, а також каталітичної активності одержаних координаційних полімерів в реакціях конденсації саліцилового альдегіду і 9-антраценкарбальдегіду, що суттєво відрізняються розміром молекул, зі сполуками, які містять активні метиленові групи – нітрометаном і малондинітрилом. В роботі розроблено методи одержання нових координаційних полімерів $[\text{Fe}_2(\text{OH})_0,3(\text{btc})_4/3]_n\text{Cl}_{1,7n}$, $[\text{CoCl}_2(\text{L}_1)_2]_n$, $[\text{CoCl}_2(\text{L}_2)_2]_n$, $[\text{Co}_2(\text{Piv})_4(\text{dpe})_2]_n$, $[\text{Cu}_2(\text{Piv})_4(\text{dpe})_2]_n$, досліджено каталітичну активність таких сполук та двох описаних раніше ПКП $[\text{Fe}_2\text{NiO}(\text{Piv})_6(4\text{-ptz})_n]$ та $[\text{Cu}_3(\text{btc})_2]_n$ → в

реакціях Кневенагеля і Анрі (btc³⁻ = 1,3,5-бензолтрикарбоксилат, Piv⁻ = півалат, 4-ptz – 4-піридилтриазин, dpe – транс-1,2-ди(4-піридил)етилен), L1 = 2,6-біс(4-піридил)-4-(4-N,N-диетиламінофеніл)піридин, L2 = 2,6-біс(4-піридил)-4-(4-N,N-диметиламінофеніл)-піридин). Методом рентгеноструктурного аналізу монокристалів встановлено кристалічну будову 5 нових координаційних полімерів. Показано, що майже весь об'єм пор сполук [Fe₂(OH)_{0,3}(btc)_{4/3}]_nCl_{1,7n}, [Fe₂NiO(Piv)₆(4-ptz)]_n та [Cu₃(btc)₂]_n доступний для саліцилового альдегіду. Досліджено кінетику адсорбції саліцилового альдегіду такими пористими координаційними полімерами з розчинів та проаналізовано внесок різних можливих механізмів адсорбції. Показано, що кінетика процесів конденсації ароматичних альдегідів з нітрометаном та малондинітрилом описується рівняннями першого порядку за саліциловим альдегідом в умовах надлишку нітрометану. Пористі координаційні полімери, які містять як координаційно ненасичені іони металів (кислотні центри Льюїса), так і некоординовані донорні атоми лігандів (основні центри Льюїса) є ефективними каталізаторами процесів конденсації ароматичних альдегідів та сполук з активними метиленовими групами. Використання КП [Fe₂(OH)_{0,3}(btc)_{4/3}]_nCl_{1,7n} як каталізатора в реакціях конденсації саліцилового альдегіду з малондинітрилом та нітрометаном в проточному реакторі дозволяє досягти конверсії альдегіду на рівні 100 % та 85 % за кімнатної температури, відповідно.

2. The thesis is devoted to investigation of the structure of coordination polymers of Fe(III), Co(II), Cu(II) with carboxylate and pyridine-containing ligands, sorption properties of such compounds in relation to nitromethane, salicylaldehyde and 9-anthracenecarbaldehyde, and catalytic activities of the obtained coordination polymers in the reaction of these aldehydes with active methylene compounds - nitromethane and malononitrile. Synthesis methods of the new coordination polymers [Fe₂(OH)_{0,3}(btc)_{4/3}]_nCl_{1,7n}, [CoCl₂(L1)₂]_n, [CoCl₂(L2)₂]_n, [Co₂(Piv)₄(dpe)₂]_n, [Cu₂(Piv)₄(dpe)]_n have been developed (btc³⁻ = 1,3,5-benzenetricarboxylate, Piv⁻ = pivalate, dpe = trans-1,2-di(4-pyridyl)ethylene), L1 = 2,6-bis(4-pyridyl)-4-(4-N,N-diethylaminophenyl)pyridine, L2 = 2,6-bis(4-pyridyl)-4-(4-N,N-dimethylaminophenyl)-pyridine. The catalytic activity of five new and two previously described coordination polymers have been studied. The crystal structure of five new coordination polymers was determined by the X-ray crystallography analysis. It has been shown that the pores of the coordination polymers [Fe₂(OH)_{0,3}(btc)_{4/3}]_nCl_{1,7n}, [Fe₂Ni(Piv)₆(4-ptz)]_n and [Cu₃(btc)₂]_n were accessible for salicylaldehyde molecules (4-ptz – tris-(4-pyridyl)triazine). Kinetics of salicylaldehyde adsorption from solutions by such PCPs has been investigated and contribution of different possible sorption mechanisms has been analyzed. It was shown that kinetics of aromatic aldehydes condensation with nitromethane could be described by pseudo-first order equations in excess on nitromethane. This finding agrees with the mechanism, involving interaction of one nitromethane molecule with one molecules of salicylaldehyde, activated due to coordination to metal ion in porous coordination polymer. It was found that Fe³⁺ ions in the coordination environment of oxygen donor atoms of 1,3,5-benzenetricarboxylate possessed higher catalytic activity compare to Cu²⁺ ions in similar environment; this fact could be explained by higher electronegativity of the former ions. It was found on the grounds of analysis of kinetics of salicylaldehyde sorption by porous coordination polymers [Fe₂(OH)_{0,3}(btc)_{4/3}]_nCl_{1,7n}, [Cu₃(btc)₂]_n and [Fe₂NiO(Piv)₆(4-ptz)]_n that such process was controlled by chemisorption of the aldehyde and did not depend on the pores size and the rate of external diffusion of its molecules to sorbent particles. Coordination of the aldehyde to Cu²⁺ and Fe³⁺ ions in [Cu₃(btc)₂]_n and [Fe₂(OH)_{0,3}(btc)_{4/3}]_nCl_{1,7n}, respectively, or formation of H-bonds of the aldehyde and ligands in [Fe₂NiO(Piv)₆(4-ptz)]_n could be the driving force of such chemisorption. The use of the porous coordination polymer [Fe₂(OH)_{0,3}(btc)_{4/3}]_nCl_{1,7n} as a catalyst for the condensation reaction of salicylaldehyde and malononitrile and nitromethane in a flow reactor leads to 100 % and 85 % conversion of salicylaldehyde at room temperature, respectively.

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. Колотілов Сергій Володимирович

2. Kolotilov Sergey V

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

VII. Відомості про офіційних опонентів та рецензентів

Офіційні опоненти

Власне Прізвище Ім'я По-батькові:

1. Діюк Віталій Євгенович

2. Diyuk Vitaliy E.

Кваліфікація: к. 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

Власне Прізвище Ім'я По-батькові:

1. Власова Наталія Миколаївна

2. Vlasova Nataliia M.

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**

Кошечко В'ячеслав Григорович

**Власне Прізвище Ім'я По-батькові
головуючого на засіданні**

Кошечко В'ячеслав Григорович

**Відповідальний за підготовку
облікових документів**

Реєстратор

**Керівник відділу УкрІНТЕІ, що є
відповідальним за реєстрацію наукової
діяльності**



Юрченко Т.А.