Облікова картка дисертації

I. Загальні відомості

Державний обліковий номер: 0418U003557

Особливі позначки: відкрита

Дата реєстрації: 05-11-2018

Статус: Захищена

Реквізити наказу МОН / наказу закладу:

II. Відомості про здобувача

Власне Прізвище Ім'я По-батькові:

1. Бараков Роман Юрійович
2. Barakov Roman Yuryevich

Кваліфікація: к. х. н., 02.00.04

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: 30-10-2018

Спеціальність за освітою: Хімічна технологія неорганічних речовин

Місце роботи здобувача: Інститут фізичної хімії ім. Л.В.Писаржевського НАН України

Код за ЄДРПОУ: 05417213

Місцезнаходження: проспект Науки, 31, м. Київ, 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 НАН України

Код за ЄДРПОУ: 05417213

Місцезнаходження: проспект Науки, 31, м. Київ, 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 НАН України

Код за ЄДРПОУ: 05417213

Місцезнаходження: проспект Науки, 31, м. Київ, 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 умов темплатного синтезу на будову і кислотність мікро-мезопористих копозитів алюмосилікатів з нанокристалічним цеолітом ZSM-5

2. Influence of template synthesis conditions on structure and acidity of micro-mesoporous composites of aluminosilicates with nanocrystalline ZSM-5 zeolite

Реферат/анотація:

1. Дисертаційну роботу присвячено розвитку наукових підходів до створення мікро мезопористих алюмосилікатів (ММАС), що поєднують в собі властивості цеолітів і мезопористих молекулярних сит (ММС), з'ясуванню впливу складу реакційних сумішей і умов темплатного синтезу на будову, кислотність і каталітичні властивості одержаних алюмосилікатів. Для одержання мікро-мезопористих композитів алюмосилікатів з нанокристалічним цеолітом ZSM-5 було використано найбільш перспективні підходи – бітемплатний синтез в присутності молекулярного і міцелярного темплатів, що сприяють утворенню цеоліту і ММС відповідно, кристалізація висушеного гелю ММС в присутності молекулярного темплату, а також використання біфункціональних темплатів, здатних утворювати одночасно цеолітну і мезоструктуру.

Встановлено, що використання молекулярного і міцелярного темплатів, сумішей, що не містять катіонів лужних металів, та зниження температури синтезу до 100 °С дозволяє збільшити питому поверхню мезопор ММАС і концентрацію їх кислотних центрів. Збільшення питомої поверхні мезопор можна пояснити утворенням прекурсорів ZSM-5 невеликого розміру (~2 нм), з яких формуються високопористі алюмосилікати. Підвищена кількість рентгеноаморфних субнанорозмірних алюмосилікатних частинок, з високим вмістом тетраедрично координованих атомів алюмінію, зумовлює високу концентрацію кислотних центрів в синтезованих алюмосилікатах. Застосування темплатвмісного ММС SBA-15, розбавлених розчинів молекулярного темплату, зниження температури термопарової обробки до 100 – 120 °С дозволяє провести часткову цеолітизацію SBA-15 в напрямку утворення ZSM-5, зберегти гексагональну мезоструктуру вихідного матеріалу та істотно збільшити концентрацію і силу кислотних центрів за рахунок утворення прекурсорів і зародків ZSM-5. Специфічна дія цетилтриметиламоній броміду, за його концентрації в реакційній суміші менше першої критичної концентрації міцелоутворення, яка полягає у взаємодії його гідрофобної частини з «хвостами» біфункціонального темплату [C8H17–N+(CH3)2–C6H12–N+(CH3)2–C8H17](Br–)2, сприяє збільшенню питомої поверхні мезопор ММАС і концентрації кислотних центрів, доступних для об'ємних молекул. Показано, що в реакції крекінгу кумолу більша селективність за пропіленом і бензолом у присутності мікро-мезопористих композитів алюмосилікатів з нанокристалічним цеолітом, у порівнянні з ZSM-5, пов'язана з наявністю в ММАС переважно кислотних центрів середньої сили, на яких кумол селективно перетворюється в пропілен і бензол. Рентгеноаморфний алюмосилікат з найбільшою серед досліджених зразків концентрацією доступних кислотних центрів, проявляє підвищену каталітичну активність в реакції ізомеризації епоксиду α-пінену (повна конверсія за 2 год) і характеризується високою селективністю за транс карвеолом.

2. The thesis is devoted to the development of scientific approaches to obtaining of micro mesoporous aluminosilicates (MMAS), which combine the properties of zeolites and mesoporous molecular sieves (MMS), clarifying the influence of the composition of reaction mixtures and template synthesis conditions on structure, acidity and catalytic properties of the obtained aluminosilicates. The most promising approaches – dual template synthesis in the presence of molecular and micellar templates promoting the formation of zeolite and MMS, respectively; crystallization of a pre-dried gel of MMS in the presence of a molecular template; as well as the use of dual-functional templates that are able to form zeolite and mesostructure simultaneously – were used to obtain the micro-mesoporous composites of aluminosilicates with nanocrystalline ZSM-5 zeolite. It was established that the use of molecular and micellar templates, alkali metal-free cations mixtures and a decrease the synthesis temperature up to 100 °C allow to increase the mesopore specific surface area of MMAS and concentration of their acid sites. An increase in the mesopore specific surface area can be explained by the formation of ZSM-5 precursors of small size (ca. 2 nm), from which high-porous aluminosilicates are formed. An increased number of X-ray amorphous sub-nanosized aluminosilicate particles with a high content of tetrahedrally coordinated aluminum atoms determines a high concentration of acid sites in synthesized aluminosilicates. The use of the template-containing MMS SBA-15, dilute solutions of a molecular template, a decrease of the temperature of the steam-assisted thermal treatment up to 100 – 120 °C allow to carry out the partial zeolitization of SBA-15 in the direction of ZSM-5 formation, retain the hexagonal mesostructure of the initial material and significantly increase concentration and strength of the acid sites due to formation of ZSM-5 precursors and nucleus. The specific action of cetyltrimethylammonium bromide, with lower concentration in the reaction mixture than the first critical micelle concentration of micelle formation, is based on the interaction of its hydrophobic part with “tails” of dual-functional template [C8H17–N+(CH3)2–C6H12–N+(CH3)2–C8H17](Br–)2. This action promotes an increase in the mesopore specific surface area of MMAS and concentration of acid sites accessible for bulk molecules. It was shown that in the cumene cracking reaction the higher selectivity toward propylene and benzene in presence of micro-mesoporous composites of aluminosilicates with nanocrystalline zeolite, compared to ZSM-5, is associated with the presence of mainly medium strength acid sites in MMAS on which cumene is selectively converted to propylene and benzene. X-ray amorphous aluminosilicate, with the higher concentration of acid sites accessible for bulk molecules among the investigated samples, exhibits an increased catalytic activity in the

reaction of α-pinene oxide isomerization (complete conversion after 2 h) and it is characterized by high selectivity toward trans-carveol.

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. Ільїн Володимир Георгійович
2. Ilyin Volodymyr Georgiyevich

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

VII. Відомості про офіційних опонентів та рецензентів

Офіційні опоненти

Власне Прізвище Ім'я По-батькові:

1. Сидорчук Володимир Васильович
2. Sydorchuk Volodymyr Vasilyevich

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. Воронін Євгеній Пилипович
2. Voronin Evgeniy Filippovich

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

Рецензенти

VIII. Заключні відомості

Власне Прізвище Ім'я По-батькові голови ради	Кошечко Вячеслав Григорович
Власне Прізвище Ім'я По-батькові головуючого на засіданні	Кошечко Вячеслав Григорович
Відповідальний за підготовку облікових документів	
Реєстратор	

Керівник відділу УкрІНТЕІ, що є відповідальним за реєстрацію наукової діяльності



Юрченко Т.А.