Облікова картка дисертації

I. Загальні відомості

Державний обліковий номер: 0420U102160

Особливі позначки: відкрита

Дата реєстрації: 04-12-2020

Статус: Захищена

Реквізити наказу МОН / наказу закладу:

II. Відомості про здобувача

Власне Прізвище Ім'я По-батькові:

1. Костенко Людмила Степанівна
2. Kostenko Ludmyla S.

Кваліфікація:

Ідентифікатор ORCID ID: Не застосовується

Вид дисертації: кандидат наук

Аспірантура/Докторантура: так

Шифр наукової спеціальності: 02.00.01

Назва наукової спеціальності: Неорганічна хімія

Галузь / галузі знань: Не застосовується

Освітньо-наукова програма зі спеціальності: Не застосовується

Дата захисту: 23-11-2020

Спеціальність за освітою: Неорганічна 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: 31.17.15

Тема дисертації:

1. Кремнеземвмісні оксидні матеріали, функціоналізовані алкіламінофосфоновими групами: синтез, будова закріпленого шару та властивості

2. Silica-containing oxide materials functionalized by alkylaminophosphonic groups: synthesis, structure of the grafted layer and properties

Реферат/анотація:

1. Дисертація присвячена синтезу нових матеріалів на основі кремнеземів (SiO2), бентонітної глини (Bnt) та наночастинок Fe3O4/SiO2, функціоналізованих комплексоутворюючими амінофосфоновими групами (АФК) та з'ясуванню впливу складу поверхневого шару на їх хімічні й сорбційні властивості. Показано, що фосфорилювання алкіламінокремнеземів по реакції Кабачника-Філдса залежить не тільки від природи закріплених аміногруп, але і від поверхневої концентрації та розподілу на поверхні. Фізико-хімічними методами встановлено склад та будову поверхевого шару, показано неоднорідність локального оточення груп на поверхні. Охарактеризовано протолітичні властивості SiO2-АФК за моделями неперервного розподілу констант рівноваг та хімічних реакцій. Закріплені АФК є переважно О-донорними лігандами та

проявляють найвищу спорідненість до іонів РЗЕ. Ефективність використання матеріалів з закріпленими групами АФК в якості сорбентів підтверджена їх високою СОЄ до катіонів d- та f-металів, швидким встановленням рівноваги та здатністю до регенерування. Продемонстровано можливість практичного використання одержаних комплексоутворюючих Р-вмісних матеріалів як сорбентів для вилучення іонів важких металів та РЗЕ.

2. The dissertation is devoted to the synthesis of materials based on silica (SiO2), bentonite (Bnt), and magnetite (Fe3O4/ SiO2), functionalized with complexing groups of alkylaminophosphonic acids (APA) and to determine the effect of the surface layer composition of materials on their chemical and sorption properties. Conditions for obtaining silicas with fixed alkylaminophosphonic groups using the method of "assembly on the surface" via Kabachnik-Fields reaction have been optimized. It was found that the degree of conversion of amino groups to aminophosphonic groups depended on the basicity of the immobilized amino groups and increased with their surface concentration due to the weaker binding to silanol groups. The highest yields of aminomethylenephosphonic acids are achieved by phosphonomethylation in the presence of formaldehyde and phosphorous acid in n a polar medium of diglyme. The XPS method established the zwitterionic form of grafted aminophosphonic groups and the presence of residual amino groups in the immobilized layer of SiO2-APA. According to solid-state 31P NMR spectroscopy, only samples with high concentrations of fixed aminophosphonic groups (C > 1 μmol m-2) have a locally homogeneous environment due to weakening of the interaction between groups of the surface layer. Immobilized alkylaminophosphonic acids are thermally stable at 300 ° C, and the destruction of SiO2-APA is limited by substituents in the □N□C□P(O) fragment of the ligand. The protolytic properties of SiO2-APA were characterized using the continuous distribution of equilibrium constants model and chemical reactions model. It was shown that hydrophobization of the SiO2-MAPA surface significantly reduces the heterogeneity of the methylaminophosphonic acid nearest environment. The decrease in immobilized aminodiphosphonic acids acidity after the second stage is a result of their interaction with residual amino groups in the absence of surface silanol groups. Neutralization of SiO2-ADPA in the presence of metal ions (pH 3-9) accounts for more than two equivalents of alkali, which leads to the formation of protonated complexes of equimolar composition on the surface according to: , where x = 1, 2. As expected, the most stable complexes formed highly charged lanthanide ions. Obtained stability series of the surface metal complexes correspond to the order of decreasing stability constants of complexes in solution. For the first time, the functionalization of magnetite and bentonite nanoparticles with ADPA groups was carried out. It has been shown that Fe3O4 nanoparticles coated with a dense silica shell have a higher chemical resistance compared to Fe3O4 coated with a dopamine monolayer. The developed surface of Fe3O4/SiO2-ADPA in combination with magnetic properties and hydrolytic stability is a prerequisite for using it as a sorbent with magnetic separation from the solution. In the process of the two-stage production of Bnt-APA, the structure of the mineral framework of bentonite does not change. According to X-ray phase studies, the interlayer distance of silanized bentonites depends on the nature of the intercalated aminosilane. Compared to the initial Bnt, the largest increase (by 42%) in the interlayer spacing was observed for Bnt-NH2. A high concentration of fixed amino groups was a proof of silanes oligomerization after hydrolysis. Washing a part of the condensed aminosilane layer out in acidic conditions during phosphorylation caused low concentrations of fixed aminophosphonic groups. Nevertheless, the obtained phosphorus-containing bentonites had high hydrolytic stability. Obtained sorbents have a high affinity for ions of heavy metals and REE, are characterized by the rapid establishment of sorption equilibrium, and are capable of regeneration without loss of sorption capacity. Ions are better removed on silicas with aminodiphosphonic groups, and interaction with monophosphonic groups occurs in less acidic solutions. SiO2-ADPA removes REE at pH <3, and its sorption capacity remains constant for at least five regeneration cycles. The introduction of SiO2-ADPA into hydrophobic polyvinylidenefluoride membranes gives them hydrophilic properties, and an increase in the water throughput of such a proton-conducting membrane is due to the high volume migration of protons of aminodiphosphonic groups. Fe3O4/SiO2-ADPA is shown to be promising for multiple uptaking of Eu(III) ions and concentration from dilute solutions, which, in combination with magnetic properties, can be utilized for fast magnetic separation of the sorbent. It is shown that an increase in the interlayer spacing in Bnt-APA compared to unmodified bentonite

significantly improves its filtration characteristics. This makes it possible to use Bnt-APA for the purification of river water under dynamic conditions and achieves complete removal (>97%) of Pb(II) and significant decrease (59-65%) of Cu(II) and Zn(II) ions was achieved upon simple filtration.

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. Тьортих Валентин Анатолійович
2. Tertykh Valentin Anatoliyovych

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

Власне Прізвище Ім'я По-батькові:

1. Швець Олексій Васильович

2. Shvets Oleksii V.

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

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.