

**ТОШКЕНТ КИМЁ-ТЕХНОЛОГИЯ ИЛМИЙ ТАДҚИҚОТ
ИНСТИТУТИ ҲУЗУРИДАГИ ИЛМИЙ ДАРАЖАЛАР БЕРУВЧИ
DSc.16/30.12.2019.Т.87.01 РАҚАМЛИ ИЛМИЙ КЕНГАШ**

ТОШКЕНТ КИМЁ-ТЕХНОЛОГИЯ ИНСТИТУТИ

ИСЛОМОВА ЮЛДУЗ ЎРОЛОВНА

**КАРБАЗОЛ ВА ФТАЛИМИД ҲОСИЛАЛАРИНИ ОЛИШ
ТЕХНОЛОГИЯСИ**

02.00.14 – Органик моддалар ва улар асосидаги материаллар технологияси

**ТЕХНИКА ФАНЛАРИ БЎЙИЧА ФАЛСАФА ДОКТОРИ (PhD)
ДИССЕРТАЦИЯСИ АВТОРЕФЕРАТИ**

Тошкент – 2020

Фалсафа (PhD) доктори диссертацияси автореферати мундарижаси

Оглавление автореферата диссертации доктора философии (PhD)

Contents of the dissertation abstract of doctor of philosophy (PhD)

Исломова Юлдуз Ўроловна

Карбазол ва фталимид ҳосилаларини олиш технологияси3

Исломова Юлдуз Ураловна

Технология получения производных фталимида и карбазола.....21

Islomova Yulduz Urolovna

The technology of derivatives of phthalimide and carbazole.....39

Эълон қилинган ишлар рўйхати

Список опубликованных работ

List of published works.....42

**ТОШКЕНТ КИМЁ-ТЕХНОЛОГИЯ ИЛМИЙ ТАДҚИҚОТ
ИНСТИТУТИ ҲУЗУРИДАГИ ИЛМИЙ ДАРАЖАЛАР БЕРУВЧИ
DSc.16/30.12.2019.Т.87.01 РАҚАМЛИ ИЛМИЙ КЕНГАШ**

ТОШКЕНТ КИМЁ-ТЕХНОЛОГИЯ ИНСТИТУТИ

ИСЛОМОВА ЮЛДУЗ ЎРОЛОВНА

**КАРБАЗОЛ ВА ФТАЛИМИД ҲОСИЛАЛАРИНИ ОЛИШ
ТЕХНОЛОГИЯСИ**

02.00.14 – Органик моддалар ва улар асосидаги материаллар технологияси

**ТЕХНИКА ФАНЛАРИ БЎЙИЧА ФАЛСАФА ДОКТОРИ (PhD)
ДИССЕРТАЦИЯСИ АВТОРЕФЕРАТИ**

Техника фанлари бўйича фалсафа доктори (PhD) диссертацияси мавзуси Ўзбекистон Республикаси Вазирлар Маҳкамаси ҳузуридаги Олий аттестация комиссиясида В2017.3.PhD/T335 рақам билан рўйхатга олинган.

Диссертация Тошкент кимё-технология институтида бажарилган.

Диссертация автореферати учта тилда (ўзбек, рус, инглиз (резюме)) Илмий кенгаш веб-саҳифасида (www.fktiti.uz) ва «ZiyoNET» ахборот-таълим порталида (www.ziyo.net.uz) жойлаштирилган.

Илмий раҳбар:

Максумова Ойтура Ситдиқовна
кимё фанлари доктори, профессор

Расмий оппонентла:

Акбаров Хамдам Икромович
кимё фанлари доктори, профессор

Ёдгоров Нормухаммад
кимё фанлари доктори, профессор

Ётақчи ташкилот:

Ислом Каримов номидаги Тошкент давлат
техника университети

Диссертация ҳимояси Тошкент кимё-технология илмий тадқиқот институти ҳузуридаги илмий даражалар берувчи DSc.16/30.12.2019.T.87.01 рақамли Илмий кенгашнинг «22» 07 2020 йил соат 10 даги мажлисида бўлиб ўтади. (Манзил: 111116, Тошкент тумани Ибрат МФЙ п/б Шуробозор Тел.: (+99871) 199-22-43, факс: (+99870) 965-77-16, e-mail: gup_tniixt@mail.ru).

Диссертация билан Тошкент кимё-технология илмий-тадқиқот институтининг Ахборот ресурс марказида танишиш мумкин (№3 рақами билан рўйхатга олинган). Манзил: 111116, Тошкент тумани Ибрат МФЙ п/б Шуробозор Тел.: (+99871) 199-22-43, факс: (+99870) 965-77-16, e-mail: gup_tniixt@mail.ru).

Диссертация автореферати 2020 йил «7» 07 куни тарқатилди.
(2020 йил «7» 07 даги 3 рақамли реестр баённомаси).



Джалилов А.Т.
Илмий даражалар берувчи илмий кенгаш раиси, к.ф.д., проф., академик

Ширинов Ш.Д.
Илмий даражалар берувчи Илмий кенгаш котиби, т.ф. PhD

Бекназаров Х.С.
Илмий даражалар берувчи илмий Кенгаш қошидаги илмий семинар раиси, т.ф.д., к.и.х.

КИРИШ (фалсафа доктори (PhD) диссертацияси аннотацияси)

Диссертация мавзусининг долзарблиги ва зарурати. Дунёда гетероциклик кимёнинг энг тез ривожланаётган соҳаларидан бири бўлган азотли гетероциклик бирикмалар синтези интенсив тадқиқотлар мавзусига айланмоқда, бу ушбу қатор тузилмаларида ноёб хусусиятларнинг мавжудлиги билан боғлиқдир. Азотли гетероциклик бирикмалар халқ хўжалигининг турли соҳаларида, жумладан металллар коррозияси ингибиторлари, кимёвий қаршиликка эга енгил ва иссиқликка чидамли полимер ярим ўтказгич материаллар, ўсимликларни ўстириш воситалари, лок-буёқлар, биологик фаол моддалар ва ҳ.к. сифатида кенг қўлланилмоқда. Азотли гетероциклик бирикмаларнинг катта синфи орасида фталимид ва карбазол гуруҳи тутган моддалар салмоқли ўринни эгаллайди, чунки улар назарий, ҳамда амалий жиҳатдан турли хил фойдали хусусиятлари билан муҳим аҳамият касб этади.

Бугунги кунда жаҳонда фталимид, ҳамда карбазолнинг янги ҳосилалари олиш технологиясини ва уларнинг илмий асосларини яратишга бағишланган изланишлар олиб борилмоқда. Бу борада, жумладан синтетик полимерларни азотли гетероциклик бирикмалар билан модификациялаш, уларнинг физик-механик хоссаларини тадқиқ этиш орқали талабга жавоб берувчи электр мустаҳкам, юқори ҳароратга чидамли, оловбардош ва ярим ўтказгич материаллар ишлаб чиқариш технологиясини яратиш муҳим вазифалар қаторига киради. Бу эса, таркибида фталимид ва карбазол фрагменти сақлаган янги гетероциклик бирикмалар олишнинг экологик тоза, чиқиндисиз усулларини ишлаб чиқиш, уларнинг хоссалари ва қўллаш соҳаларини аниқлаш каби вазифаларни бажариш зарурлигини кўрсатади.

Мамлакатимизда органик синтез маҳсулотлари ишлаб чиқариш, улар асосида янги ассортиментли материаллар яратиш ва экспортини кенгайтириш бўйича тадқиқотлар олиб борилиб, муайян натижаларга эришилмоқда. Ўзбекистон Республикасини янада ривожлантириш бўйича Ҳаракатлар стратегиясида «Мутлақо янги турдаги маҳсулотлар ва технологияларни ишлаб чиқаришни ўзлаштириш, шу асосда ташқи ва ички бозорларда рақобатбардош маҳаллий маҳсулотларни ишлаб чиқаришни таъминлаш»¹га қаратилган муҳим вазифалар белгиланган. Бу борада, сифат жиҳатидан янги босқичга ўтиш орқали кимё саноатини янада ривожлантириш ва диверсификация қилиш билан янги маҳсулот ишлаб чиқариш технологиясини яратиш йўналишида илмий тадқиқот ишлари олиб бориш муҳим ўрин тутаети.

Ўзбекистон Республикаси Президентининг 2017 йил 7 февралдаги ПФ-4947-сонли «2017-2021 йилларда Ўзбекистон Республикасини ривожлантиришнинг бешта устувор йўналиши бўйича Ҳаракатлар стратегияси тўғрисида» ги Фармони, 2018 йил 17 январдаги ПҚ-3479-сонли

¹ Ўзбекистон Республикаси Президентининг 2017 йил 7 февралдаги ПФ-4947-сон «Ўзбекистон Республикасини янада ривожлантириш бўйича Ҳаракатлар стратегияси тўғрисида» ги Фармони.

«Мамлакатимиз иқтисодиёти тармоқларини зарур маҳсулотлар ва хомашё турлари билан барқарор таъминлаш чора-тадбирлари тўғрисида»ги, 2018 йил 25 октябрдаги «Ўзбекистон Республикасида кимё саноатини жадал ривожлантириш чора-тадбирлари тўғрисида» ПҚ-3983 сон, 2019 йил 3 апрелдаги «Кимё саноатини янада ислоҳ қилиш ва унинг инвестициявий жозибадорлигини ошириш чора-тадбирлари тўғрисида»ги ПҚ-4265-сон қарорлари, ҳамда мазкур фаолиятга тегишли бошқа меъёрий-ҳуқуқий ҳужжатларда белгиланган вазифаларни амалга оширишда ушбу диссертация тадқиқот натижалари муайян даражада хизмат қилади.

Тадқиқотнинг Республика фан ва технологиялар ривожланишининг устувор йўналишларига мослиги. Мазкур тадқиқот Республика фан ва технологиялар ривожланишининг VII «Кимё технологиялари ва нанотехнологиялар» устувор йўналишларига мувофиқ бажарилган.

Муаммонинг ўрганилганлик даражаси. Адабиётларни таҳлил қилинганда гетероциклик бирикмалар, жумладан фталидид, карбазол ва уларнинг ҳосилаларини олиш, тузилиши, морфологияси ва технологиясини ўрганиш бўйича бир қатор олимлар: Г.М. Бутов, В.М. Мохов, Е.Н. Вишневский, В.А. Муллин, А.И. Ефремов, Ю.В. Винокуров, И.Н. Леонтьева, А.В.Петров, С. Я. Попов, Л. А. Дорожкина, В. А. Калинин, О.И.Остроухова, Е.В.Прокин, М.А. Безматерных, В.С. Мокрушин, М.Г.Иванов, А.А.Степанян, Н.В. Бернашевский, З.П. Кулыгина, А.Исак, R. Sonal, V.L. Kumar, А.Ж. Отеш, А.К. Ибраимбек, Ф.М. Садырбаева, В.М. Сутягин, А.А. Ляпков, академик А.Т. Джалилов, академик С.Ш.Рашидова, профессорлар А.Г.Махсумов, Қ.Н.Ахмедов, Ф.А.Магруппов, А.А.Саримсақов, О.С.Максумова, А.К.Абдушукуров, Х.И.Акбаров, Н.Ёдгоров, И.А.Абдуғафуров, Н.Мадиханов, А.А.Музаффаров, А.А.Шигабутдинов ва бошқалар тадқиқотлар олиб боришмоқда

Ушбу йўналишда янги турдаги азотли гетероциклик бирикмалар олишда амидоалкиллаш ва амидоациллаш реакцияларини қўллаш самарали усуллар эканлиги кўрсатиб берилган. Олимлар томонидан ациллаш реакциялари билан ароматик углеводородлар, баъзи алкалоидлар асосида фталидид ҳосилалари олиш бўйича илмий тадқиқотлар олиб борилган ва бу ишларга фақат назарий томондан ёндошилган. Гетероциклик бирикмалар асосида полимер материаллар олиш ва уларни модификациялаш билан полимер металл комплекслари синтез қилинган. Ҳозирги кунда гетероциклик бирикмаларни жумладан карбазолни ациллаш реакциялари билан функционал фаол моддалар олиш ҳақидаги маълумотлар адабиётларда деярли учрамайди. Шу сабабли, улар асосида турли хил муҳим хусусиятли маҳсулотлар олиш жараёнларини ўрганиш ва технологиясини яратиш долзарб муаммолардан бири ҳисобланади.

Тадқиқотнинг диссертация бажарилган олий таълим муассасасининг илмий-тадқиқот ишлари режалари билан боғлиқлиги. Диссертация тадқиқоти Тошкент кимё-технология институтининг илмий тадқиқот ишлари режасининг А-12-75 “Терига ишлов бериш учун биологик фаол моддаларни яратиш” (2015-2017 йй.) мавзусидаги амалий лойиҳаси

доирасида бажарилган.

Тадқиқоднинг мақсади фталимид ва карбазол асосида N-акрилоилоксифталимид, N-метакрилоилоксифталимид ва N-акрилоилоксикарбазол, N-метакрилоилоксикарбазолни синтез қилиш ва олиниш технологиясини ишлаб чиқишдан иборат

Тадқиқотнинг вазифалари:

акрил кислота, метакрил кислота ва унинг хлорангидридлари билан фталимид асосида N-акрилоилоксифталимид, N-метакрилоилоксифталимид олиш жараёнларини ўрганиш;

акрил кислота, метакрил кислота ва унинг хлорангидридлари билан карбазол асосида N-акрилоилоксикарбазол, N-метакрилоилоксикарбазол олиш жараёнларини мақбул шароитини аниқлаш;

фталимид ва карбазол асосида олинган бирикмаларнинг структураси, физик-кимёвий хоссалари ва қўллаш соҳаларини аниқлаш;

полипропилен билан N-акрилоилоксикарбазолни пайванд сополимерланиш жараёнини ўрганиш;

N-акрилоилоксикарбазол олиш ва у билан полипропиленни модификациялаш жараёнини умумлашган технологик схемасини ишлаб чиқиш.

Тадқиқотнинг объекти карбазол, фталимид, акрил кислота, метакрил кислота, акрилоилхлорид, метакрилоилхлорид, N-акрилоилоксикарбазол, N-метакрилоилоксикарбазол, N-акрилоилоксифталимид, N-метакрилоилоксифталимид ҳисобланади.

Тадқиқотнинг предмети фталимид ва карбазолнинг янги ҳосилаларини олиш усуллари ва технологиясини ишлаб чиқиш ҳисобланади.

Тадқиқотнинг усуллари. Диссертация ишида хроматография, ИҚ-, ПМР-спектроскопия, юпқа қатламли хроматография, гравиметрия усулларидан фойдаланилган.

Тадқиқотнинг илмий янгилиги қуйидагилардан иборат:

фталимид билан акрил-, метакрил кислоталар ва уларнинг хлорангидридларини ациллаш реакцияларининг мақбул шароитлари ва схемаси аниқланган;

карбазол билан акрил кислота, метакрил кислоталар ва уларнинг хлорангидридларини ациллаш реакцияларининг мақбул шароитлари ва схемаси аниқланган;

N-акрилоилоксикарбазол, N-метакрилоилоксикарбазол ва N-акрилоилоксифталимид, N-метакрилоилоксифталимид синтези маҳсулот унумига турли омиллар таъсири аниқланган ва уларни олиниш жараёнларининг мақбул шароитлари топилган ҳамда технологияси ишлаб чиқилган;

N-акрилоилоксикарбазолни полипропилен макромолекулаларига пайванд сополимерланиш жараёнларининг мақбул шароитлари ва олинган моддаларнинг физик – кимёвий хоссалари аниқланган.

Тадқиқотнинг амалий натижаси қуйидагилардан иборат:

фталимид ва карбазол фрагментини тўйинмаган карбон кислоталар молекуласига киритиш орқали азотли гетерофункционал биологик фаол

бирикмалар олиш мумкинлиги аниқланган;

карбазол ва акрил кислота асосида олинган N-акрилоилоксикарбазолни полипропиленга модификациялаш билан диэлектрик хусусиятга эга бўлган ярим тайёр маҳсулотлар олиш технологияси ишлаб чиқилган;

фталимид ва акрил кислота асосида олинган N-акрилоилоксифталимидни қишлоқ хўжалигида ўсимликларни ўстирувчи препарат сифатида ижобий натижалар кўрсатиши аниқланган.

Тадқиқот натижаларининг ишончлилиги ишда олинган илмий натижалар ва хулосаларнинг ишончлилиги назарий ва тажриба натижаларининг мутаносиблиги, физик-кимёвий усуллар ёрдамида исботланиши билан изоҳланади.

Тадқиқот натижаларининг илмий ва амалий аҳамияти.

Тадқиқот натижаларининг илмий аҳамияти ациллаш, ацетиллаш реакциялари ёрдамида молекуласида карбазол ва фталимид сақлаган бирикмалар олиш жараёнларининг мақбул шароитларини топиш, маҳсулот унумига асосий технологик омиллар (эритувчи, катализатор табиати ва дастлабки реагентлар нисбати, ҳарорат, реакция давомийлиги) таъсирини аниқланганлиги билан изоҳланади.

Тадқиқот натижаларининг амалий аҳамияти – фталимид ва карбазол асосидаги юқори ҳароратга чидамли органик бирикмалар билан полипропиленни модификациялаш орқали диэлектрик материаллар олинганлиги, ҳамда фталимид ва акрил кислота асосида олинган N-акрилоилоксифталимидни қишлоқ хўжалигида ўсимликларни ўстирувчи ва ҳосилдорликни оширувчи стимулятор сифатида қўлланилганлиги билан изоҳланади.

Тадқиқот натижаларининг жорий қилиниши. Карбазол ва фталимид ҳосилаларини олиш технологиясини ишлаб чиқиш бўйича олинган илмий натижалар асосида:

фталимид ва акрил кислота асосида олинган N-акрилоилоксифталимид стимулятори, Қашқадарё вилояти «Бошжонбуз фаввораси» фермер хўжалигининг 14 гектар майдондаги буғдой даласида амалиётга жорий этилган (ЎзР Қишлоқ хўжалиги вазирлигининг 2019 йил 23 августдаги 02/021-1919-сон маълумотномаси). Натижада ушбу препаратнинг қўлланилиши “Гром” навли кузги буғдойнинг ҳосилдорлигини 10 ц/га ёки 33% га ошириш имконини берган;

N-акрилоилоксифталимид стимулятори, Қашқадарё вилояти, Камаши туманидаги «Бошжонбуз фаввораси» фермер хўжалигининг 1,5 гектар майдонидаги “Орзу” навли эртаки бодрингнинг ҳосилдорлигини оширувчи препарат сифатида амалиётга жорий этилган (ЎзР қишлоқ хўжалиги вазирлигининг 2019 йил 23 августдаги 02/021-1919-сон маълумотномаси). Натижада ушбу препаратнинг 10^{-3} фоизли сувдаги эритмасининг қўлланилиши, оч тусли бўз тупроқ шароитидаги “Орзу” навли эртаки бодринг ҳосилдорлигини 24 ц/га ёки 16% га ошириш имконини берган.

Тадқиқот натижаларининг апробацияси. Мазкур тадқиқот натижалари 5 та халқаро, 4 та республика илмий-амалий анжуманларида

муҳокамадан ўтказилган.

Тадқиқот натижаларининг эълон қилиниши. Диссертация мавзуси бўйича жами 15 та илмий ишлар чоп этилган, шулардан Ўзбекистон Республикаси Олий аттестация комиссиясининг докторлик диссертациялари асосий илмий натижаларини чоп этиш тавсия этилган илмий нашрларда 6 та мақола, жумладан, 2 та республика ва 4 та хорижий журналларда нашр этилган.

Диссертациянинг тузилиши ва ҳажми. Диссертация таркиби кириш, учта боб, хулоса, фойдаланган адабиётлар рўйхати ва иловалардан иборат. Диссертациянинг ҳажми 120 бетни ташкил этади.

ДИССЕРТАЦИЯНИНГ АСОСИЙ МАЗМУНИ

Кириш қисмида мавзунинг долзарблиги ва зарурати асосланган, тадқиқотнинг мақсади ва вазифалари, объект ва предмети, ўрганилганлик даражаси, тадқиқотнинг усуллари тавсифланган, тадқиқотнинг Ўзбекистон Республикаси фан ва технологиялари ривожланишининг устувор йўналишларига мослиги кўрсатилган, тадқиқотнинг илмий янгилиги ва амалий аҳамияти очиқ берилган, тадқиқот натижаларини амалиётга жорий этиш, ўтказилган тадқиқотларнинг ишончилиги, апробация ва натижаларнинг нашр қилиниши, диссертациянинг ҳажми, тузилиши бўйича маълумотлар келтирилган.

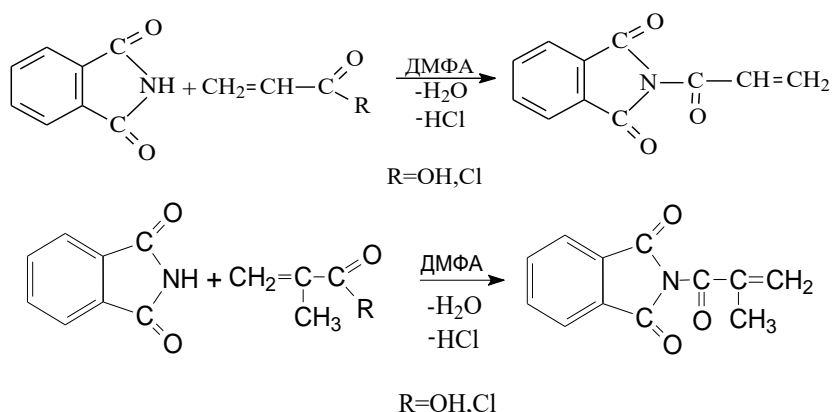
Диссертациянинг «Гетероциклик бирикмалар олиш бўйича илмий тадқиқотлар ҳолатининг таҳлили» номли биринчи бобида диссертация мавзуси биан боғлиқ бўлган нашр этилган илмий ишларнинг шарҳи берилган. I боб иккита параграфдан ташкил топган. Карбазол ва фталимид асосидаги бирикмаларнинг олиниши ва хоссалари (1 параграф) ва полиолифенларни турли усуллар билан модификациялаш (2 параграф) бўйича илмий изланишлар муҳокама этилган.

Диссертациянинг «Карбазол ва фталимид ҳосилалари олиш жараёнларининг тажрибавий тадқиқотлари» номли иккинчи бобида тадқиқот объектларининг тавсифи, синтез қилинган бирикмаларнинг олиниш усуллари ва уларнинг тузилиши ва хоссаларини аниқлашдаги физик-кимёвий усуллар келтирилган.

Диссертациянинг «Фталимид ва карбазол ҳосилалари олиш жараёнларини ўрганиш» деб номланган учинчи бобида фталимид ва карбазолнинг янги ҳосилаларини олиниши, маҳсулот унумига турли омиллар (органик эритувчилар, катализатор табиати, ҳамда концентрацияси, ҳарорат, реакцияга киришадиган реагентларнинг нисбатлари, реакция давомийлиги) таъсирини ўрганиш бўйича олинган тадқиқот натижалари муҳокама этилган.

Ишда фталимид билан акрил ва метакрил кислоталарни атмосфера босимида катализатор иштирокида органик эритувчилар муҳитида ациллаш реакциялари асосида N-акрилоилоксифталимид ва N-метакрилоилокси-фталимидлар синтез қилиш жараёнлари келтирилган. Фталимид молекуласидаги фаол водород атоми ҳисобига реакцияларнинг умумий

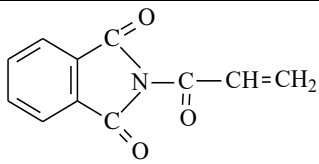
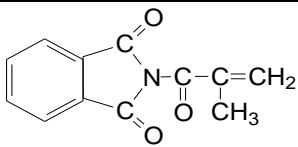
кўринишини куйидагича ифодалаш мумкин.



Реакцияларнинг боришига эритувчилар табиати ва ҳароратнинг таъсирини ўрганиш учун бир қатор тажрибалар бажарилди. Бунда реакция ҳарорати эритувчининг қайнаш ҳароратига қараб танланди. 1-жадвал маълумотларидан кўринишича, эритувчининг табиати ўзгариши ва ҳароратнинг ортиши билан маҳсулот унумининг ортиши кузатилди.

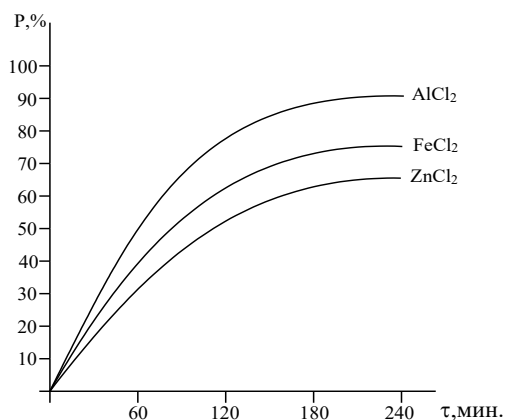
1-жадвал

N-Акрилоил- ва метакрилоилоксифталимид унумига эритувчи табиати ва ҳароратнинг таъсири. [ФИ]:[АК,МАК]=1:3 моль, $\tau=180$ мин.

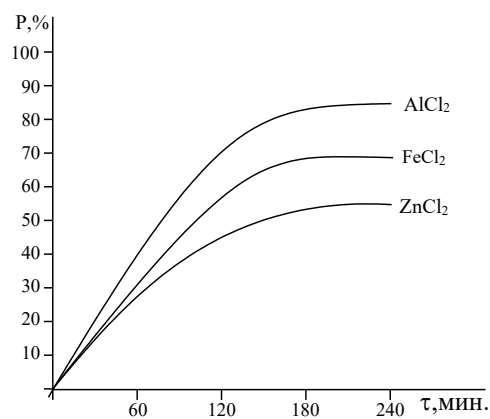
Моддаларнинг формуласи	Эритувчилар	Реакция ҳарорати, °C	R _f	Маҳсулот унуми, %
N-акрилоилоксифталимид				
	Ацетон	56	0,51	42
	Бензол	80	0,58	49
	Хлороформ	85	0,69	62
	Толуол	110	0,62	51
	ДМФА	140	0,80	87
N- метакрилоилоксифталимид				
	Ацетон	56	0,51	34
	Бензол	80	0,56	46
	Хлороформ	85	0,67	61
	Толуол	110	0,64	52
	ДМФА	140	0,80	80

Жадвалда келтирилган маълумотларга кўра кутбилиги юқори бўлган диметилформаидда энг юқори маҳсулот унумига эришилганлигини кўриш мумкин. Олинган маҳсулотлар сувда яхши, этил спиртда қиздирилганда эрийди, бензол, ацетонда эрмайди

N-акрилоил- ва метакрилоилоксифталимид олиш жараёнига катализатор табиати ва концентрациясининг таъсири ҳам ўрганилди. Катализатор сифатида ZnCl₂, FeCl₃, AlCl₃ тузлари танланди.



**T=140 °C; [ФИ] = [АК] =1:3; ДМФА.
1-расм. N-Акрилоилоксифталиимид унумига катализатор табиатининг таъсири.**



**T=140 °C; [ФИ]=[МАК] =1:3; ДМФА.
2-расм. N-Метакрилоилоксифталиимид унумига катализатор табиатининг таъсири.**

1,2 расмларда кўриниб турибдики, ациллаш реакция тезлиги ва маҳсулот унуми $AlCl_3$ иштирокида юқори қийматга эга бўлар экан. Демак, катализаторлар фаоллигини куйидаги қаторга қўйиш мумкин:



Ациллаш реакцияларига дастлабки реагентлар моль нисбатларининг таъсири ҳам ўрганилди (2-жадвал).

2-жадвал

N-акрилоил- ва метакрилоилоксифталиимид унумига дастлабки реагентлар нисбатининг таъсири. $\tau=180$ мин, эритувчи - ДМФА.

Моддаларнинг формуласи	Реагентлар нисбати, [ФИ]:[АК, МАК]	R_f	$T_{суюк}, ^\circ C$	Маҳсулот унуми %
N- акрилоилоксифталиимид				
	1:1	0,51	192	31
	1:2	0,58		62
	1:3	0,69		87
N- метакрилоилоксифталиимид				
	1:1	0,61	185-187	25
	1:2	0,65		58
	1:3	0,80		80

Демак, реакция маҳсулоти унумига реагентлар миқдорининг таъсири ҳам муҳим аҳамиятга эга экан. Акрил ва метакрил кислоталар миқдорини фталиимидга нисбатан кўпроқ олинганда юқори маҳсулот унумига эришилар экан. Бунга сабаб, тўйинган карбон кислоталарга нисбатан тўйинмаган карбон кислоталарда ациллаш реакциясининг қийинроқ боришидир.

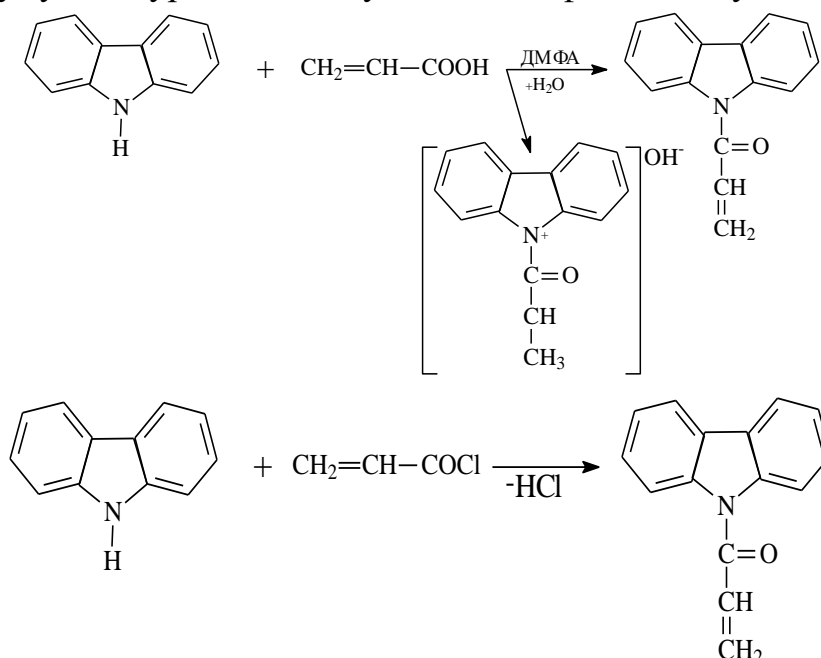
Олинган моддаларнинг структурасини аниқлаш учун, уларнинг ИҚ-, ПМР-спектрлари олинди ва таҳлил қилинди (3-жадвал).

N-акрилоил- ва метакрилоилоксифталиимидлар ИҚ-спектрлари таҳлили

Модданинг номи	ν_{CO}	$\nu_{\text{C}=\text{C}}$	$\nu_{\text{C}-\text{H}}$	ν_{CH_2}	ν_{CH_3}	$\nu_{\text{N}-\text{C}}$
N-акрилоилоксифталиимид	1725	1467	1306- 1281	1773	-	1584- 3197
N-метакрилоилоксифталиимид	1687- 1725	1402	1306- 1282	1725	2885- 2806	1585- 3187

Кейинги босқичда карбазолни акрил ва метакрил кислоталар ва уларнинг хлорангидридлари билан ациллаш жараёнлари тадқиқ қилинди. Жараёнга реакцияга киришаётган реагентларнинг моль нисбатлари катта таъсир кўрсатиши аниқланди. Жумладан карбазол билан акрил ва метакрил кислоталар ва уларнинг хлорангидридларининг ациллаш реакциялари 1:2 моль нисбатда гидрохинон ва катализаторсиз олиб борилганда тўртламчи аммонийли тузлар ҳосил бўлиши кузатилди. Худди шу реакцияда реагент нисбатлари 1:3 га ўзгартирилганда катализаторсиз ва катализатор иштирок этганда N-акрилоилоксикарбазол ҳосил бўлди. Ушбу реакцияда эритувчи сифатида ДМФА фойдаланилди. Адабиёт манбалари ва олиб борилган тажрибалар натижалари асосида реакцияни $S_{\text{N}}2$ механизм бўйича бориши тахмин қилинди. Олинган катализатор апротон катализатор бўлгани учун, у реакцияни $S_{\text{N}}1$ механизмда боришига, кутбли эритувчи эса реакцияни $S_{\text{N}}2$ механизм бўйича боришига имкон яратиши мумкин эди. Жараён натижасида сув ажралиб чиқишини ҳисобга оладиган бўлсак, унда реакцияни электрофил $S_{\text{N}}2$ механизм бўйича боради, дейиш мумкин.

Катализатор иштирок этмаганда карбазол билан акрил кислота реакциясининг умумий кўринишини қуйидагича ифодалаш мумкин:

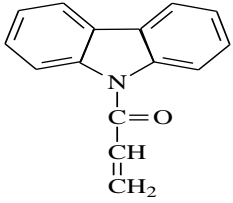
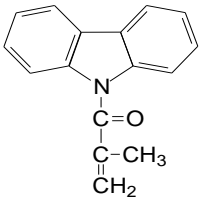


Карбазолни акрил, метакрил кислоталар ва уларнинг хлорангидридлари билан ўзаро реакцияларини эритувчиларнинг дипол моментлари ва кутбилик даражасига боғлиқлиги кузатилди. Реакцияни диметил-формаимидда олиб борилган, маҳсулот унуми энг юқори бўлиши кузатилди

(4-жадвал).

4-жадвал

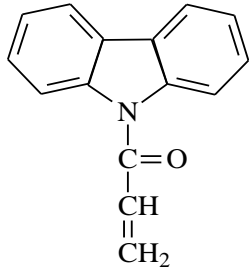
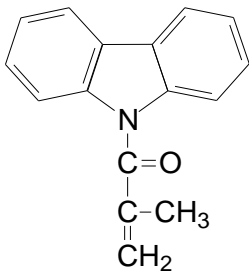
N-акрилоил-, метакрилоилоксикарбазол унумига эритувчилар ва хароратнинг таъсири. $\tau=180$ мин.

Моддаларнинг формуласи	Эритувчилар	T, °C	R _f	Маҳсулот унуми %
N-акрилоилоксикарбазол				
	Ацетон	56	0,51	40
	Бензол	80	0,58	51
	Хлороформ	85	0,69	65
	Толуол	110	0,62	64
	ДМФА	140	0,80	89
N- метакрилоилоксикарбазол				
	Ацетон	56	0,51	37
	Бензол	80	0,56	48
	Хлороформ	85	0,67	63
	Толуол	110	0,64	57
	ДМФА	140	0,80	82

N-Акрилоил- ва метакрилоилоксикарбазол унумига катализатор табиати ва концентрациясининг таъсир этиши аниқланди (5-жадвал).

5-жадвал

N-Акрилоил- ва метакрилоилоксикарбазол унумига катализатор табиати ва концентрациясининг таъсири. Эритувчи ДМФА

Моддаларнинг формуласи	Катализатор	C _{кат} · 10 ⁻⁴ моль/л	Маҳсулот унуми %
N-акрилоилоксифталимид			
	ZnCl ₂	1	32
		2	41
		3	48
	FeCl ₃	1	33
		2	45
		3	51
	AlCl ₃	1	38
		2	60
		3	92
N метакрилоилоксифталимид			
	ZnCl ₂	1	27
		2	35
		3	47
	FeCl ₃	1	31
		2	39
		3	50
	AlCl ₃	1	37
		2	50
		3	85

5-жадвалдан турли катализаторлар иштирокида маҳсулот унумининг

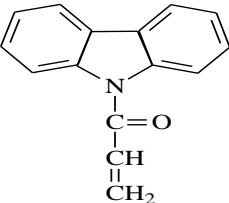
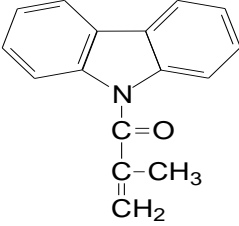
қуйидаги кетма-кетликда камайишини кузатиш мумкин:



N-Акрилоилоксикарбазол унумига дастлабки реагентларнинг моль нисбатлари, турли эритувчилар табиати ва ҳарорат таъсири ўрганилди (6-жадвал).

6-жадвал

N-акрилоил-метакрилоилоксикарбазол унумига бошланғич реагентлар нисбати ва ҳароратнинг таъсири. $\tau = 180$ мин; эритувчи – ДМФА.

Моддаларнинг формуласи	Бошланғич реагентлар нисбати	$T_{\text{суюк.}}, ^\circ\text{C}$	R_f	Маҳсулот унуми, %
	1:1	200	0,57	22
	1:2	200	0,68	58
	1:3	200	0,80	89
	1:1	168	0,53	26
	1:2	168	0,71	32
	1:3	168	0,80	82
Эрувчанлиги	Ацетон, ДМФА яхши эрийди; бензол, метанолда эрмайди; этил спиртида қиздирилганда эрийди.			

Олинган моддаларнинг структурасини аниқлаш учун, уларнинг ИҚ-, ПМР-спектрлари олинди ва таҳлил қилинди (7-жадвал).

7-жадвал

N-акрилоил- ва метакрилоилоксикарбазол ИҚ- спектрлари таҳлили

Модданинг номи	ν_{CO}	$\nu_{\text{C=C}}$	ν_{CH_2}	ν_{CH_3}	$\nu_{\text{N-C}}$
N-акрилоилоксифталимид	1722	1450	1409- 1472	-	3418 1294
N-метакрилоилоксифталимид	1717	1490	1450- 1598	2343	3417- 1235

N-Акрилоилоксикарбазолнинг ЯМР ^1H -спектрида ароматик ядрогаги биринчи ва саккизинчи углерод атомларидаги протонларнинг 8,22 м.у. соҳада дублет-дублет, иккинчи ва еттинчи углерод атомларида протонларнинг 7,43 м.у. соҳада дублет-триплет-триплет, учинчи ва олтинчи углерод атомларидаги протонларнинг дублет-дублет-дублет, тўртинчи ва бешинчи углерод атомларидаги протонларнинг 8,05 да дублет-дублет-дублет, СН гуруҳнинг 3,52 м.у. соҳада синглет, CH_2 гуруҳнинг 4,3 м.у. соҳада дублет сигналлари аниқланди. ПМР-спектрлар Varian UNITY – 400 жихозида олинган.

Диссертациянинг “Полипропиленни N-акрилоилоксикарбазол билан модификациялаш” деб номланган бўлимида полипропиленни

юқорида синтез қилинган N-акрилоилоксикарбазол билан пайванд сополимерлари органик эритувчилар муҳитида азоизомой кислотасининг динитрил эфири (ДАК) иштирокида 60-80°C ҳароратда олинди. Модификациялашда Устюрт газ-кимё мажмуасида ишлаб чиқариладиган гомополипропилендан фойдаланилди (J-150, молекуляр массаси 9700).

Мономер ва инициатор концентрациясини пайванд сополимерланиш жараёнига таъсири ўрганилди (8,9-жадваллар).

8-жадвал

Полипропиленга N-акрилоилоксикарбазолни пайвандланиш даражаси, полимерланиш унумининг мономер (М) концентрациясига боғлиқлиги. [ДАК]=5·10⁻³ моль/л, Т=60 °С.

[М], моль/л	Эритувчи	Реакция унуми, %	Пайвандланиш даражаси α, %
1	ДМФА	45,8	10,2
2	ДМФА	52,5	17,5
5	ДМФА	67,9	20,5
1	Декалин	63,8	12,5
2	Декалин	72,4	19,3
5	Декалин	85,6	25,4

9-жадвал

Полипропиленга N-акрилоилоксикарбазолни пайвандланиш даражаси, полимерланиш унумининг инициатор (ДАК) концентрациясига боғлиқлиги. [М]=5 моль/л, Т=60 °С.

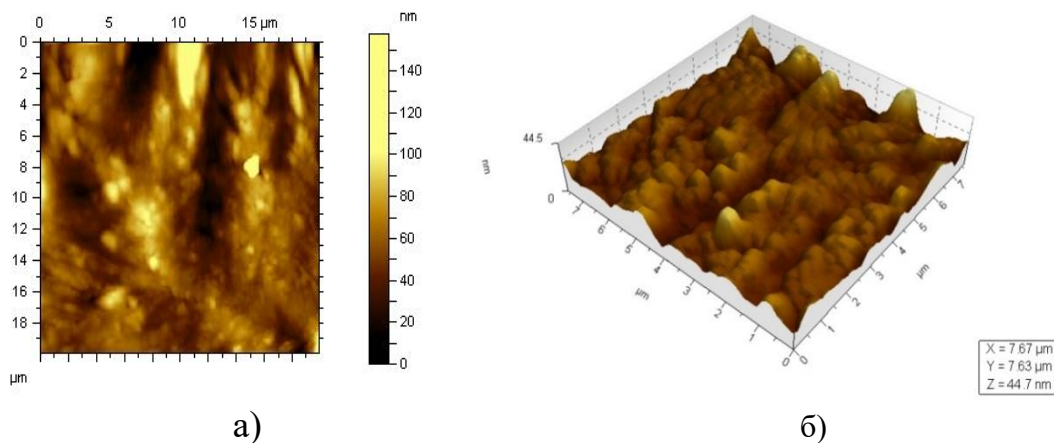
[ДАК] · 10 ⁻³ , моль/л	Эритувчи	Реакция унуми, %	Пайвандланиш даражаси α, %
1	ДМФА	45,8	9,5
2	ДМФА	52,5	14,8
5	ДМФА	67,9	20,5
1	Декалин	63,8	11,1
2	Декалин	72,4	16,9
5	Декалин	85,6	25,4

Полипропилен ва унинг асосида олинган пайванд сополимерларнинг структурасини аниқлаш учун уларнинг ИҚ-спектрлари олинди. Полипропилен спектрида куйидаги ютилиш чизиқлари: 2917 см⁻¹ соҳада СН гуруҳнинг валент тебранишлари, 2949-2837 см⁻¹да СН₃ гуруҳига хос валент тебранишлар ва 1456-1018 см⁻¹ соҳада эса деформацион тебранишлар кузатилди. 1717-1507 см⁻¹ соҳада валент 1166 см⁻¹ да деформацион, 1375 см⁻¹ да СН₃, СН₂ гуруҳларнинг симметрик тебранишларига хос ютилиш чизиқлари кузатилди. СН₂-СН боғи 1273 см⁻¹ соҳада, СН₃, С-С боғлар 997-973 см⁻¹, СН-С эса 1105 см⁻¹ соҳаларда кузатилди.

Пайвандланган полипропиленнинг ИҚ-спектрини акрилоилокси-карбазол спектри билан таққослаш натижасида акрилоилоксикарбазол спектридаги N-С боғининг 3419 см⁻¹ соҳадаги валент тебранишлари ва 1509 см⁻¹ соҳадаги деформацион тебранишлари йўқолиб, С-С боғга хос бўлган янги валент тебраниш 1602 см⁻¹ соҳада пайдо бўлганлигини ва деформацион

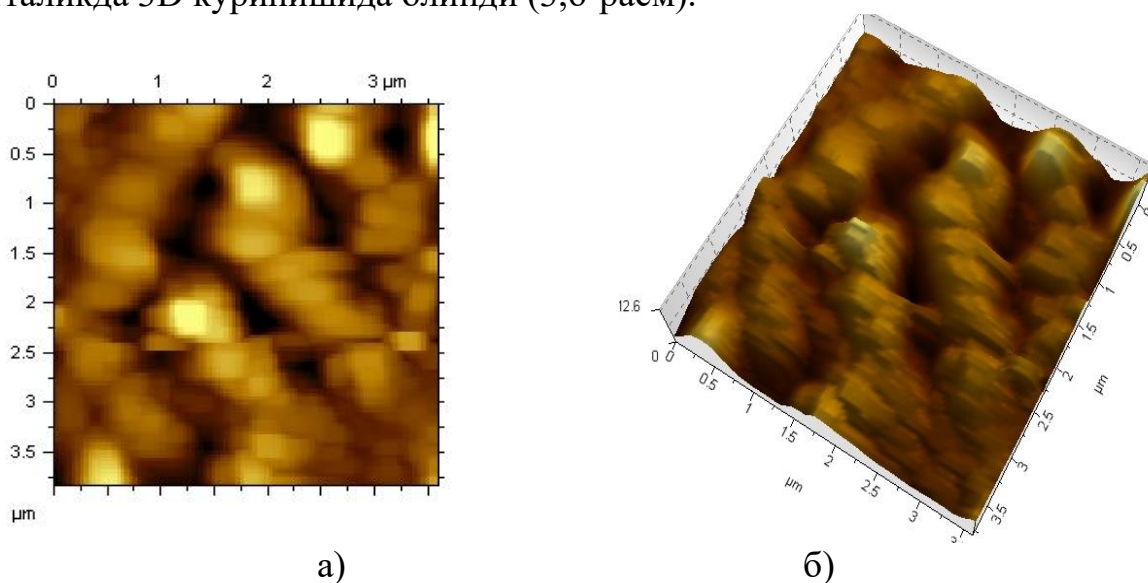
тебранишларни 1166 см^{-1} да кўриш мумкин. CO боғининг ютилиш соҳаси 1717 см^{-1} , $\text{CH}_3\text{-C-C}$ боғининг ҳам кам миқдорда бўлса ҳам тебраниш частотасининг ўзгарганлигини $972\text{-}997\text{ см}^{-1}$ соҳада кузатиш мумкин. CH_2 боғининг деформацион тебранишлари $808\text{-}840\text{ см}^{-1}$ да кузатилди.

Полипропилен ва унга N-акрилоилоксикарбазол пайвандланган сополимерларни атом кучланиш микроскоп ёрдамида ўрганилди (3,4-расм)



3-расм. Полипропиленни сирт текислиги (а) ва 3D кўриниши (б) тасвири ифодаланган.

Полипропилен заррачаларининг юзаси (3,а-расм) ва заррачалар ўлчамини аниқроқ кўриш мақсадида унинг топография тасвири $7,5\text{ мкм}$ катталиқда 3D кўринишида олинди (3,б-расм).



4-расм. N-акрилоилоксикарбазол билан модификацияланган полипропиленнинг сирт текислигидаги сигменти (а) ва 3D кўриниши (б) ифодаланган.

Полипропиленнинг 3D топографик тасвирида полипропилен заррачалари чўққилари сони камайиб, баландлиги пасайиб, пастки қисми кенгайганлигини кўриш мумкин. 4-расмда модификацияланган полипропилен заррачалари йириклашиб ортганлигини кўриш мумкин.

ЎзМУ физика факультети лабораториясида N-акрилоилоксикарбазол билан модификацияланган полипропиленни диэлектрик хусусиятларини

ўрганиш бўйича тадқиқотлар олиб борилди (10-жадвал).

10-жадвал

N-акрилоилоксикарбазол билан модификацияланган полипропиленнинг физик-механик хусусиятлари

Полимер намуналари	Зичлик, кг/м ³ 10 ^{3*}	Оғирлик таъсирига мустаҳкамлиги, Н/м ² 10 ^{3*}	Солиш-тирма қаршилиқ, Ом.см	Суюқланиш харорати, °С	Электр мустаҳкамлик, В/м
Полипропилен	0,946	3-4	10 ¹⁴ -10 ¹⁵	100-110	1·10 ⁶
Полиметилмет-акрилат *	1,3	120-700	10 ¹³ -10 ¹⁴	105-110	(20-30) 10 ⁶
Полиформал-дегид *	1,4	700	6·10 ¹³	110-115	(20-15)10 ³
Поликарбонат *	1,2	600-780	5·10 ¹⁴ -10 ¹⁷	55-120	(15-20)10 ³
Поливинил-хлорид *	1,7	280-490	10 ¹⁴ -10 ¹⁵	110-115	(15-18)10 ³
Полиамид *	1	500·10 ⁵	10 ¹¹ -10 ¹²	115	(12-14)10 ³
Модификация-ланган ПП *	1,1-1,24	2·10 ⁷ -1·10 ⁸	10 ¹⁰ 10 ¹¹	120-130	(10-12)10 ⁶

N-акрилоилоксикарбазол билан модификацияланган полипропиленни полипропилен ва техник полимерларга нисбатан иссиқликга чидамлилиги, электр ва оғирлик таъсирига мустаҳкамлиги юқори эканлигини кўриш мумкин.

N-акрилоилоксикарбазол билан модификацияланган полипропилен юқори электр токига чидамлилиги 6·10⁴ В/м, оғирлик таъсирига мустаҳкамлик чегараси эса 2·10⁷-2·10⁸ эканлиги маълум бўлди. Олинган сополимерни кислота ва ишқорларга чидамлилиқ даражаси ҳам юқорилиги аниқланди ва уни саноатда ноёб металларни аниқловчи тутқич сифатида ҳам ишлатиш мумкинлиги аниқланди.

Акрилоил-, метакрилоилоксифталиимидларни биостимуляторлик хоссаларини ўрганиш. Модданинг ўткир захарлилик даражасини аниқлаш бўйича тажрибалар “Ўсимлик моддалар кимёси” институтининг фармакология бўлимидаги илмий-экспериментал лабораторияда олиб борилди. Тажрибалар вазни 20-22 г бўлган оқ эркак сичқонларда синовдан ўтказилди ва препаратлар 1000-5000 мг/кг дозаларда *in vivo* йўли билан синалганда бир сутка ичида сичқонларнинг нобуд бўлиши кузатилмаган. Тажриба натижалари асосида Литчфилд-Уилкоксон усули ёрдамида ЛД₅₀ кўрсаткичи 3300 тенг эканлиги аниқланди.

Шундан сўнг, “Ўсимлик моддалар кимёси” институтида N-акрилоилоксифталиимидлар ва N-метакрилоил-оксифталиимид препаратларини дала ва полиз ўсимликларини ўстириш воситаси сифатида қўллаш бўйича синов ишлари олиб борилди (11-жадвал). Шунингдек, синов ишлари “Бошжонбуз фаввораси” фермер хўжалигида дала ўсимлиги “Таня” буғдой нави ва полиз экини “Орзу” бодрингида ҳам олиб борилди. Синтез қилинган препаратларни

Ўсимликнинг илдизи ва поя қисмига таъсири бир ой давомида ўрганилиб, эталон “Флороксан” билан солиштирилганда унга нисбатан ижобий натижа олинди, яъни илдизнинг ривожланиш ва поясининг мустақкамлиги анча юқори эканлиги аниқланди.

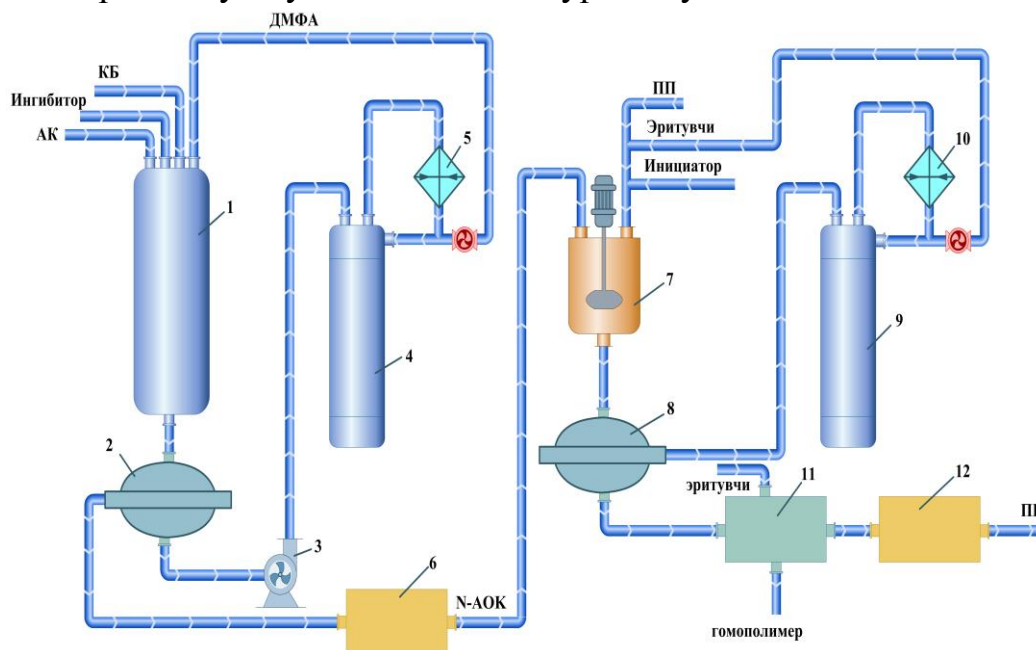
11-жадвал

Акрилоил- ва метакрилоилоксифталиимидни буғдой ва бодрингни ўсиш фаолиятига таъсири

Тажрибалар	С, %	Ўсиш даврида аниқланган катталиклар			
		Илдиз узунлиги,		Поя узунлиги,	
		см	%	см	%
Буғдой					
Сув	б/о	5,99	100	3,99	100
Эталон Флороксан	0,0001	7,12	118,8	4,42	110,7
N-акрилоилокси-фталиимид	0,00001	6,6	110,1	4,51	113,0
	0,0001	6,59	110	4,91	123,0
	0,001	7,04	117,5	5,31	133,0
	0,01	6,45	107,6	4,60	115,3
N-метакрилоилокси-фталиимид	0,00001	6,4	108	4,31	108,0
	0,0001	6,32	105,5	4,61	115,5
	0,001	7,04	117,5	5,31	133,0
	0,01	6,21	103,6	4,28	107,3
Бодринг					
Сув	б/о	7,39	100	2,11	100
Эталон Флороксан	0,001	8,97	121,3	2,99	141,7
N-акрилоилокси-фталиимид	0,00001	7,97	107,8	2,42	115,0
	0,0001	8,37	113,2	3,20	151,6
	0,001	7,56	102,3	2,72	129,0
	0,01	7,40	100,1	2,55	120,8
N-метакрилоилокси-фталиимид	0,00001	7,77	105,1	2,30	109,0
	0,0001	8,20	111,0	3,01	142,6
	0,001	7,50	101,4	2,51	119,0
	0,01	7,40	100,1	2,40	117,7

Олиб борилган тадқиқотлар натижалари асосида N-акрилоил-оксикарбазол ва у билан полипропиленни модификациялаш жараёнларини умумлаштирилган технологик тизими ва регламенти ишлаб чиқилди. Ушбу технологик тизимга асосан N-акрилоилоксикарбазол олиш жараёни беш босқичда олиб борилади. Биринчи босқичда ациллаш реакцияси содир бўлади. Реакция ички совутгичли колонна туридаги реакторга олиб борилади. Реакция диметилформаимиднинг қайнаш хароратида 3-соат давомида олиб борилади. Реакторга бошланғич реагентлар карбазол ёки фталиимид, акрил кислота, ингибитор ва эритувчи сифатида ДМФА солинади. Иккинчи босқичда реакция махсулоти филтрланади. 3-босқичда ажратилган оқ кристалл модда эритувчи билан ювилгандан сўнг қурилади. 4-босқич ажратилган кристалл кўринишидаги мономер полипропилен билан модификациялаш учун полимеризаторга юборилади. 5-босқичда модификацияланган полипропилен ажратилади, ювилади ва қурилади.

Қуйидаги 5-расмда ушбу технологияни кўриш мумкин.



1-реактор, 2,8 филтрлар, 3-насос, 4,9-хайдаш колонналари, 5-10-совутгич-конденсаторлар, 6,12-қуритгич, 7-полимеризатор, 11-ювгич.

5-расм. N-Акрилоилоксикарбазол олиш ва у билан полипропиленни модификациялаш принципиал технологик схемаси.

N-Акрилоилоксикарбазол олиш учун ички совутгичлар билан таъмирланган колонна туридаги 1-реакторга керакли миқдордаги карбазол, акрил кислота, ингибитор ва ДМФА солинади. Ациллаш реакцияси 135-140°C ҳароратда уч соат давомида содир бўлади. Реакция маҳсулоти N-акрилоилоксикарбазол игнасимон кристалл ҳолида чўкмага тушади, уни 2-филтрга ажратиш учун юборилади. Эритувчи ва реакцияга киришмай қолган акрил кислотадан иборат аралашма 3-насос орқали 4-хайдаш колоннасига юборилади. Буғ ҳолида ажралган акрил кислота ва эритувчи ДМФА 5-совутгич конденсаторда конденсацияланади ва конденсатлар 1-реакторга қайтарилади. Филтрланган N-акрилоилоксикарбазол 6-қуритгичга узатилади. Кейинги босқичда қуритилган мономер N-акрилоилоксикарбазол, полипропилен, инициатор ДАК ва эритувчи 7-полимеризаторга юкланади. Сополимерланиш реакцияси 80 °C ҳароратда 6 соат давомида содир бўлади. Реакция маҳсулоти хона хароратигача совутилгандан сўнг ажратиш учун 8-филтрга юборилади, аралашманинг иккинчи қисми ДМФА ва N-акрилоилоксикарбазолдан иборат эритма 9-хайдаш кубига ўтказилади. Модификацияланган полипропилен ва гомополимер аралашмаси 11-ювгичга гомополимерни ажратиш учун юборилади. Модификацияланган полипропилен маҳсулоти 12-қуритгичда қуритилади, қадоқланади ва омборхонага юборилади. 11-ювгичнинг пастки қисмидаги N-акрилоилоксикарбазол гомополимери йиғишга юборилади.

ХУЛОСА

1. Фталимид, карбазол билан акрил, метакрил кислота ва уларнинг хлорангидридларини ациллаш реакциялари натижасида N-акрилоил-оксифталимид ва метакрилоилоксифталимид, N-акрилоилоксикарбазол ва метакрилоилокси-карбазоллар ҳосил бўлишига турли омиллар: эритувчи, катализатор, ҳарорат, реакцияга киришаётган реагентлар нисбати ва катализаторсиз муҳит таъсирини ўрганиш натижасида жараёнинг мақбул шароити аниқланган, бунда реакция давомийлиги 3 соат, реагентлар нисбати 1:3 эканлиги топилган.

2. Фталимид ва карбазол асосида олинган моддаларнинг тузилиши, физик-кимёвий ва механик хоссалари замонавий физик-кимёвий ИҚ-, ПМР-спектрал ва электрон микроскоп ёрдамида кўрсатиб берилган.

3. Полипропиленнинг синтез қилинган N-акрилоил- ва метакрилоилоксикарбазол билан модификациялаш жараёни 80°C ҳароратда эритувчи декалин муҳитида олиб борилган. Маҳсулот унумига турли омиллар таъсири ўрганилган ва уларнинг мақбул региоселектив бориш шароити тавсия қилинган.

4. Модификацияланган полипропиленнинг физик-механик хусусиятлари, юқори электр токига чидамлилиги $6 \cdot 10^4$ В/м, юк кўтариш мустаҳкамлиги $2 \cdot 10^7$ - $2 \cdot 10^8$ гача эканлиги, ҳамда уни кислота, ишқорлар таъсирига чидамлилик даражаси юқори эканлиги аниқланган ва уни металлургия саноатида климма сифатида ишлатишга тавсия этилган.

5. Акрил кислота ва карбазолнинг ўзаро таъсири натижасида N-акрилоилоксикарбазол олиш ва уни полипропилен билан эритувчи муҳитида инициатор ёрдамида модификациялаш жараёнининг мақбул шароитлари аниқланган ва унинг ишлаб чиқариш технологик тизими тавсия этилган.

6. Поли-N-акрилоил- ва метакрилоилоксифталимидни ўсимликларни ўстирувчи восита сифатида қўллаш натижасида эталон флороксанга нисбатан буғдойнинг ҳосилдорлиги 33%, бодрингни ҳосилдорлиги эса 16% ошганлиги кузатилган. Ҳисобланган иқтисодий самарадорлик гектарига 9200000 сўм ни ташкил қилган.

**НАУЧНЫЙ СОВЕТ DSc.16/30.12.2019.Т.87.01 ПО ПРИСУЖДЕНИЮ
УЧЕНЫХ СТЕПЕНЕЙ ПРИ ТАШКЕНТСКОМ НАУЧНО-
ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОМ ИНСТИТУТЕ ХИМИЧЕСКОЙ
ТЕХНОЛОГИИ**

ТАШКЕНТСКИЙ ХИМИКО - ТЕХНОЛОГИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ

ИСЛОМОВА ЮЛДУЗ УРАЛОВНА

**ТЕХНОЛОГИЯ ПОЛУЧЕНИЯ ПРОИЗВОДНЫХ ФТАЛИМИДА И
КАРБАЗОЛА**

02.00.14. – Технология органических веществ и материалы на их основе

**АВТОРЕФЕРАТ ДИССЕРТАЦИИ ДОКТОРА ФИЛОСОФИИ (PhD)
ПО ТЕХНИЧЕСКИМ НАУКАМ**

Ташкент –2020

Тема диссертации доктора философии (PhD) по техническим наукам зарегистрирована в Высшей аттестационной комиссии при Кабинете Министров Республики Узбекистан за номером В2017.3.PhD/Т335.

Диссертация выполнена в Ташкентском химико-технологическом институте.

Автореферат диссертации на трех языках (узбекский, русский, английский (резюме)) размещен на веб-странице Научного совета по адресу www.tktiti.uz и информационно-образовательном портале «ZiyoNET» по адресу www.ziynet.uz.

Научный руководитель:	Максумова Айтура Ситдиқовна доктор химических наук, профессор
Официальные оппоненты:	Акбаров Хамдам Иқромович доктор химических наук, профессор
	Ядгаров Нормухаммад доктор химических наук, профессор
Ведущая организация:	Ташкентский государственный технический университет имени И. Каримова

Защита диссертации состоится «__» _____ 2020 г. в «__» часов на заседании Ученого совета DSc.16/30.12.2019.T.87.01 при Ташкентском научно-исследовательском институте химической технологии по адресу: 111116, Ташкентская область, Ташкентский р-н, ул. Шурабазар, (+99871) 199-22-43, факс: (+99870) 965-77-16, e-mail: tktiti.uz

Диссертация зарегистрирована в Информационно-ресурсном центре Ташкентского научно-исследовательского института химической технологии за №_____, с которой можно ознакомиться в ИРЦ (111116, Ташкентская область, Ташкентский р-н, Шурабазар, (+99871) 199-22-43, факс: (+99870) 965-77-16, e-mail: gup_tniixt@mail.ru).

Автореферат диссертации разослан «__» _____ 2020 года.

(протокол рассылки № _____ от «__» _____ 2020 г.).

Джалилов А.Т.
Председатель научного совета
по присуждению учёных степеней,
д.х.н., проф., академик

Ширинов Ш.Д.
Учёный секретарь научного совета по
присуждению учёных степеней, PhD тех.

Бекназаров Х.С.
Председатель научного семинара
при научном совете по присуждению
учёных степеней, д.т.н., стар.науч.сотр

ВВЕДЕНИЕ (аннотация диссертации доктора философии (PhD))

Актуальность и востребованность темы диссертации. В мире синтез азотсодержащих гетероциклических соединений превращается в одно из интенсивно развивающихся направлений химии гетероциклических соединений, которому способствуют уникальные биологически активные свойства, присущие соединениям в данном ряду. Азотсодержащие гетероциклические соединения широко применяются в различных отраслях экономики: это ингибиторы коррозии металлов, легкие хемостойкие и термостойкие полимерные полупроводниковые материалы, стимуляторы роста растений, лакокрасочные, биологически активные вещества и др. Благодаря наличию в структуре комплекса полезных свойств фталимид- и карбазолсодержащие соединения занимают весомое место среди большого класса гетероциклических соединений и представляют огромный интерес.

В мире проводятся исследования, посвященные разработке технологий получения и научным основам новых производных фталимида и карбазола. В этом направлении разработка технологий электро- и термостойких, жаропрочных материалов, отвечающих требованиям, путем исследования физико-механических свойств синтетических полимеров, в частности, модифицированием их азотсодержащими гетероциклическими соединениями, является важной задачей. Это показывает необходимость выполнения задач по разработке экологически чистых и безотходных технологий получения новых гетероциклических соединений, содержащих в составе фталимидных и карбазольных фрагментов.

В нашей стране проводятся исследования по выпуску продукции органического синтеза, созданию и расширению экспорта материалов с новым ассортиментом на их основе и достигнуты некоторые результаты. В Стратегии действия по дальнейшему развитию Республики Узбекистан намечены важные задачи, направленные на «освоение выпуска принципиально новых видов продукции и технологий, обеспечение на этой основе конкурентоспособности отечественных товаров на внешних и внутренних рынках»¹. В этой связи приобретает важное значение проведение научно-исследовательских работ в направлении создания технологий новой продукции путем дальнейшего развития и диверсификации химической промышленности с переходом на качественно новый уровень.

Данное диссертационное исследование в определенной степени служит выполнению задач, предусмотренные, в Указе Президента Республики Узбекистан УП-4947 от 7 февраля 2017 года «О стратегии действий по пяти приоритетным направлениям развития Республики Узбекистан на 2017-2021 годы», в Постановлениях Президента Республики Узбекистан от 25 октября 2018 года № ПП-3983 «О мерах по ускоренному развитию химической промышленности Республики Узбекистан» и от 3 апреля 2019 года № ПП-4265 «О мерах по дальнейшему реформированию и повышению

¹ Указ Президента Республики Узбекистан УП №4947 от 7 февраля 2017 года «О Стратегии Действий по дальнейшему развитию Республики Узбекистан».

инвестиционной привлекательности химической промышленности», а также в других нормативно-правовых документах, принятых в данной сфере.

Соответствие исследования приоритетным направлениям развития науки и технологии республики. Данное исследование выполнено в соответствии с приоритетными направлениями развития науки и технологии VII – «Химическая технология и нанотехнология».

Степень изученности проблемы. Как показывает анализ научной литературы, по изучению строения, морфологии и технологий получения гетероциклических соединений, в частности, фталимида и карбазола и их производных ведут исследования такие ведущие ученые как Г.М. Бутов, В.М. Мохов, Е.Н. Вишневский, В.А. Муллин, А.И. Ефремов, Ю.В.Винокуров, И.Н. Леонтьева, А.В.Петров, С.Я. Попов, Л.А.Дорожкина, В.А. Калинин, О.И.Остроухова, Е.В.Прокин, М.А.Безматерных, В.С. Мокрушин, М.Г.Иванов, А.А.Степанян, Н.В. Бернашевский, З.П. Кулыгина, А.Исак, R. Sonal, V.L. Kumar, А.Ж. Отеш, А.К. Ибраимбек, Ф.М. Садырбаева, В.М. Сутягин, А.А. Ляпков, академик А.Т.Джалилов, академик С.Ш.Рашидова, профессора А.Г.Махсумов, К.Н.Ахмедов, Ф.А.Магруппов, А.А.Сарымсаков, О.С.Максумова, А.К.Абдушукуров, А.И.Акбаров, Н.Ёдгоров, И.А.Абдугафуров и др.

Показано, что в этом направлении реакции амидоалкилирования и амидоацилирования являются эффективными методами получения новых азотсодержащих гетероциклических соединений.

Учеными проведены изыскания по ацилированию ароматических углеводородов, синтезу производных фталимида на основе некоторых алкалоидов, в которых преобладает теоретический подход. Проводились работы по синтезу металлополимерных комплексов путем получения и модифицирования полимерных материалов на основе гетероциклических соединений. В настоящее время в научной литературе практически не встречается информация о реакциях ацилирования гетероциклических соединений. В этой связи, проблема изучения процессов получения и создания технологий производства продуктов с ценными свойствами на их основе является одной из актуальных.

Связь диссертационного исследования с планами научно-исследовательских работ высшего образовательного учреждения, где выполнена диссертация. Диссертационное исследование проводилось в рамках плана научно-исследовательских работ Ташкентского химико-технологического института по научному проекту А-12-75 «Создание биологических активных веществ для обработки кожи» (2015-2017 гг.).

Целью диссертации является синтез и разработка технологии получения N-акрилоил-, метакрилоилоксифталимида и N-акрилоил-, метакрилоилоксикарбазола на основе фталимида и карбазола.

Задачи исследования:

изучение процессов получения N-акрилоилоксифталимида, N-метакрилоилоксифталимида на основе фталимида и акриловой и метакриловой кислот и их хлорангидридов;

определение оптимальных условий процессов получения N-акрилоилоксикарбазола, N-метакрилоилоксикарбазола на основе карбазола и акриловой и метакриловой кислот и их хлорангидридов;

определение физико-химических свойств и областей применения соединений, полученных на основе фталимида и карбазола;

изучение процесса привитой сополимеризации полипропилена с N-акрилоилоксикарбазолом;

разработка обобщенной технологической схемы процессов получения N-акрилоилоксикарбазола и модифицирования полипропилена N-акрилоилоксикарбазолом.

Объектом исследования являются карбазол, фталимид, акриловая кислота, метакриловая кислота, акрилоилхлорид, метакрилоилхлорид, N-акрилоилоксикарбазол, N-метакрилоилоксикарбазол, N-метакрилоилокси-фталимид, N-метакрилоилоксифталимид.

Предметом исследования являются способы получения и разработка технологии производства новых производных фталимида и карбазола.

Методы исследования. В диссертации использованы ИК- и ПМР-спектроскопия, атомносиловая микроскопия, тонкопленочная хроматография, гравиметрические методы.

Научная новизна исследования заключается в следующем:

определены оптимальные условия и схемы реакций ацилирования фталимида акриловой и метакриловой кислотами и их хлорангидридами;

определены оптимальные условия и схемы реакций ацилирования карбазола акриловой и метакриловой кислотами и их хлорангидридами;

определено влияние различных факторов на выход продуктов при синтезе N-акрилоилоксикарбазола, N-метакрилоилоксикарбазола, N-акрилоилоксифталимида и N-метакрилоилоксифталимида, а также найдены оптимальные условия процессов их получения;

определены оптимальные условия процессов привитой сополимеризации N-акрилоилоксикарбазола к макромолекулам полипропилена и физико-химические свойства полученных веществ.

Практические результаты исследования заключаются в следующем:

выявлена возможность получения азотсодержащих гетерофункциональных биологически активных веществ путем введения фрагментов фталимида и карбазола в молекулы ненасыщенных карбоновых кислот;

разработана общая технологическая схема получения полупродуктов с диэлектрическими свойствами путем прививки к полипропилену N-акрилоилоксикарбазола, полученного на основе карбазола и акриловой кислоты;

выявлена высокая эффективность N-акрилоилоксифталимида, полученного на основе фталимида и акриловой кислоты, в качестве препарата–стимулятора роста растений в сельском хозяйстве.

Достоверность полученных результатов обосновывается тем, что совокупность полученных научных результатов и выводов подтверждаются применением комплекса современных физико-химических методов анализа.

Научная и практическая значимость результатов исследования.

Научная значимость результатов исследования состоит в определении оптимальных условий получения карбазол- и фталимидсодержащих соединений реакциями ацетилирования, влияния на выход продукции основных технологических факторов (природы растворителя и катализатора, соотношения исходных реагентов, температуры, продолжительности реакции).

Практическая значимость результатов исследования объясняется тем, что диэлектрические материалы были получены путем модификации полипропилена высокотемпературными стойкими органическими соединениями на основе фталимида и карбазола, а N-акрилоилоксифталимид на основе фталимида и акриловой кислоты использовался в сельском хозяйстве в качестве стимулятора роста.

Внедрение результатов исследования. На основе полученных научных результатов по разработке технологии производных карбазола и фталимида:

полученный стимулятор N-акрилоилоксифталимид на основе фталимида и акриловой кислоты внедрен на пшеничном поле в 14 гектар в фермерском хозяйстве "Бошжонбуз фаввораси" Кашкадарьинской области. (справка Министерства сельского хозяйства Республики Узбекистан от 23 августа 2019 года № 02/021-1919). В результате появилась возможность увеличить урожайность осенней пшеницы "Гром" на 10 ц/га или на 33%;

стимулятор N-акрилоилоксифталимид внедрен на поле в 1,5 гектар в фермерском хозяйстве «Бошжонбуз фаввораси» Камашинского района, Кашкадарьинской области в качестве препарата, увеличивающего урожайность для огурцов сорта "Орзу". (справка Министерства сельского хозяйства Республики Узбекистан от 23 августа 2019 года № 02/021-1919). В результате применения водного раствора этого препарата в количестве 10^{-3} % дало возможность повысить урожайность огурцов "Орзу" на песчанной почве на 24 ц/га или на 16%.

Апробация результатов исследования. Результаты исследования обсуждены на 4 международных и 4 республиканских научно-практических конференциях.

Опубликованность результатов исследования. По теме диссертации опубликовано всего 14 научных работ, из них 6 научных статей, в том числе 2 в республиканских и 4 в зарубежных журналах, рекомендованных Высшей аттестационной комиссией Республики Узбекистан для публикации основных научных результатов.

Структура и объем диссертации. Структура диссертации состоит из введения, трех глав, заключения, списка использованной литературы и приложений. Объем диссертации состоит из 120 страниц.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ ДИССЕРТАЦИИ

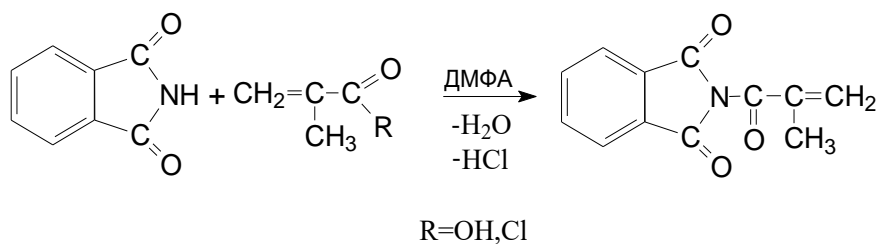
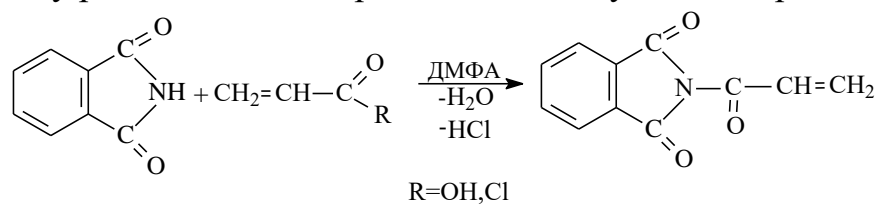
Во введении обосновывается актуальность и востребованность темы диссертации, формулируются цель и задачи, а также объект и предмет исследования, приводится соответствие исследования приоритетным направлениям развития науки и технологии Республики Узбекистан, излагаются научная новизна и практические результаты исследования, обосновывается достоверность полученных результатов, раскрывается теоретическая и практическая значимость полученных результатов, приводится список внедрений в производство результатов исследования, сведения по опубликованным работам и структуре диссертации.

В первой главе диссертации под названием «Анализ состояния научных исследований по получению гетероциклических соединений» приводится обзор научных работ, опубликованных по тематике диссертации. Первая глава состоит из двух параграфов, в которых обсуждены результаты научных исследований по синтезу соединений на основе карбазола и фталимида и их свойств (параграф 1) и модифицирования полиолефинов различными методами (параграф 2).

Во второй главе диссертации под названием «Экспериментальные исследования процессов получения производных карбазола и фталимида» приведены характеристики объектов исследования, методы получения новых соединений и физико-химические методы анализа, использованные для установления их структур и свойств.

В третьей главе диссертации под названием «Исследование процессов получения производных фталимида и карбазола» изложены результаты теоретических и экспериментальных исследований по получению новых производных фталимида и карбазола, изучению влияния различных факторов (природы органических растворителей и катализаторов, температуры, концентрации, соотношения исходных реагентов, продолжительности реакции) на процессы синтеза.

Общую схему реакции можно представить следующим образом:



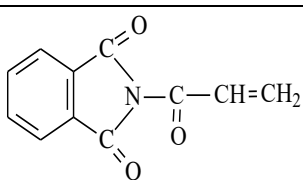
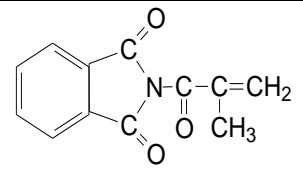
В работе представлены результаты процессов синтеза N-акрилоилоксифталимида при атмосферном давлении. Исследованы реакции ацилирования фталимида акриловой кислотой при атмосферном

давлении. Реакция протекает за счет атома водорода в молекуле фталимида.

Изучено влияние различных факторов на реакцию. Основываясь на этом изучено влияние исходных реагентов на выход продукта. При этом температура реакции выбрана исходя из температуры кипения растворителя. Как видно из представленных в табл.1 данных, с изменением природы растворителя и повышением температуры наблюдается рост выхода продукта.

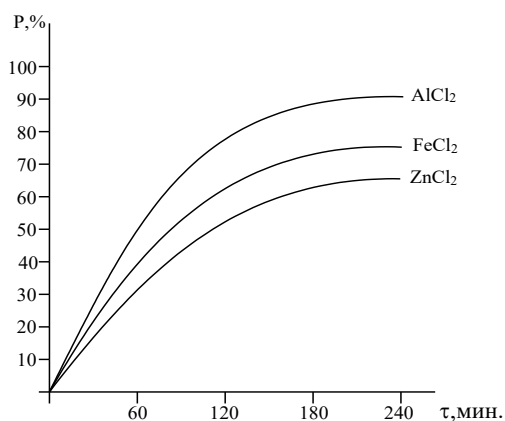
Таблица 1

Влияние природы растворителя и температуры на синтез N-акрилоил- и метакрилоилоксифталимида. [ФИ]:[АК,МАК]=1:3 моль, $\tau=180$ мин.

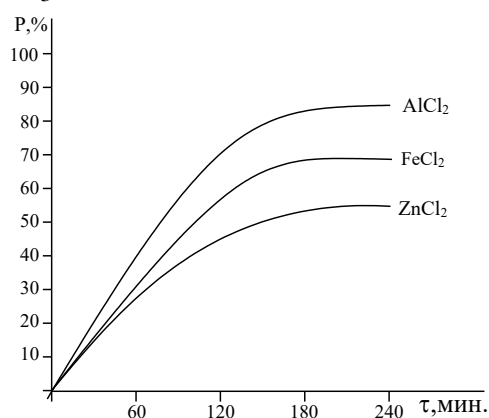
Формула вещества	Растворитель	Температура реакции	R _f	Выход продукта, %
N-акрилоилоксифталимид				
	Ацетон	56	0,51	42
	Бензол	80	0,58	49
	Хлороформ	85	0,69	62
	Толуол	110	0,62	51
	ДМФА	140	0,80	87
N- метакрилоилоксифталимид				
	Ацетон	56	0,51	34
	Бензол	80	0,56	46
	Хлороформ	85	0,67	61
	Толуол	110	0,64	52
	ДМФА	140	0,80	80

В соответствии с данными табл.1, наиболее высокий выход продукта достигается в присутствии высокополяризованного диметилформаида.

Полученные продукты хорошо растворяются в воде, растворяются в этиловом спирте при нагревании, не растворяются в бензоле, ацетоне. Также изучены влияния природы и концентрации катализатора на процессы получения N-акрилоил- и метакрилоилоксифталимида. В качестве катализаторов выбраны соли ZnCl₂, FeCl₃, AlCl₃.



T=140°C; [ФИ] = [АК] =1:3; раст. ДМФА
Рис.1. Влияние природы катализатора на выход N-акрилоилоксифталимида



T=140°C; [ФИ]=[МАК] =1:3; раст. ДМФА
Рис.2. Влияние природы катализатора на выход N-метакрилоилоксифталимида

Как видно из данных рис.1 и 2 скорость реакции ацилирования и выход

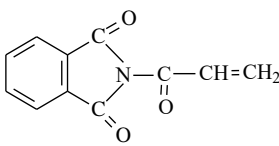
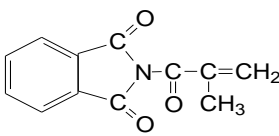
продукта имеют высокие значения при $AlCl_3$. Следовательно, можно составлять порядок активности катализаторов:



Также изучено влияние мольных соотношений исходных реагентов на реакцию ацилирования (табл.2).

Таблица 2

Влияние природы исходных реагентов на выход N-акрилоил- и метакрилоилоксифталимида. $\tau=180$ мин, растворитель – ДМФА.

Формула вещества	Исходные реагенты	R_f	Температура плавления	Выход продукта, %
N- акрилоилоксифталимид				
	1:1	0,51	196	31
	1:2	0,58		62
	1:3	0,69		87
N- метакрилоилоксифталимид				
	1:1	0,61	185-187	25
	1:2	0,65		58
	1:3	0,80		80

Соответственно, имеет важное значение влияние реагентов на выход продукта реакции. Из таблицы можно увидеть, что при превалировании количества акриловой и метакриловой кислоты над фталимидом получается продукт с наибольшим выходом. Причиной тому является осложнение протекания реакции в присутствии насыщенных углеводородов по сравнению с ненасыщенными.

Реакция получения N-акрилоилоксикарбазола осуществлена путем взаимодействия карбазола с акриловой и метакриловой кислотами, а также их хлорангидридами. При этом реакция с участием хлорангидридов акриловой и метакриловой кислот проведена при мольном соотношении 1:2. В реакции при 0,1 моля карбазола и 0,2 моля акриловой кислоты в присутствии гидрохинона и отсутствие катализатора образуются четвертичные аммониевые (основные) соли.

Таблица 3

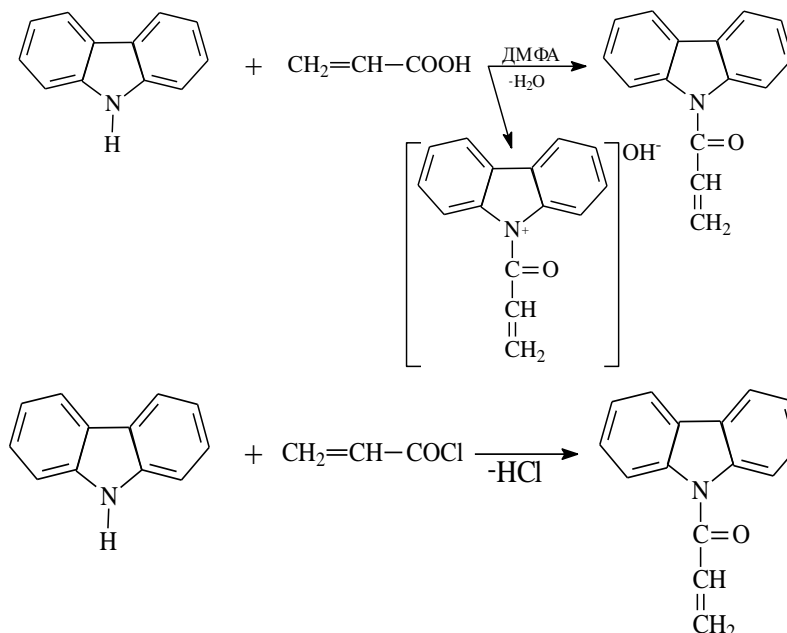
Анализ ИК-спектров N-акрилоил- и метакрилоилоксифталимида

Название соединения	ν_{CO}	$\nu_{C=C}$	ν_{C-H}	ν_{CH_2}	ν_{CH_3}	ν_{N-C}
N-акрилоилоксифталимид	1725	1467	1306-1281	1773	-	1584-3197
N-метакрилоилоксифталимид	1687-1725	1402	1306-1282	1725	2885-2806	1585-3187

При изменении в данной реакции мольного состава на 1:3 получен продукт – N-акрилоилоксикарбазол. В данной реакции в качестве растворителя использован ДМФА. Поскольку реакцию можно проводить без применения катализатора, то она протекает по S_N2 механизму. При проведении реакции в присутствии апротонного катализатора она протекает по S_N1 механизму. Растворители облегчают протекание реакции по S_N2

механизму. Учитывая выделение воды во время реакции, можно сказать, что реакция протекает по электрофильному S_N2 механизму.

Общую схему реакции при взаимодействии карбазола с акриловой кислотой в отсутствие катализатора можно представить следующим образом:



Наблюдено влияние дипольного момента и поляризуемости использованного растворителя на ход реакции карбазола с акриловой и метакриловой кислотами и их хлорангидридами (табл.4).

Таблица 4

Влияние растворителей и температуры на выход N-акрилоил- и метакрилоилоксикарбазола при $\tau=180$ мин.

Формула вещества	Растворитель	Температура реакции	R_f	Выход продукта, %
N- акрилоилоксифталимид				
	Ацетон	56	0,51	40
	Бензол	80	0,58	51
	Хлороформ	85	0,69	65
	Толуол	110	0,62	64
	ДМФА	140	0,80	89
N- метакрилоилоксифталимид				
	Ацетон	56	0,51	37
	Бензол	80	0,56	48
	Хлороформ	85	0,67	63
	Толуол	110	0,64	57
	ДМФА	140	0,80	82

Можно убедиться, что наибольший выход продукта достигается при проведении реакции в присутствии ДМФА (табл.4).

Выявлено влияние природы и концентрации катализатора на выход N-

акрилоил- и метакрилоилоксикарбазола (табл.5).

Таблица 5

Влияние природы и концентрации катализатора на выход N-акрилоил- и метакрилоилоксикарбазола. Растворитель – ДМФА.

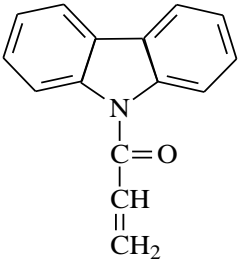
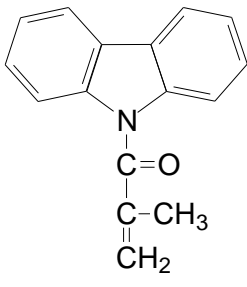
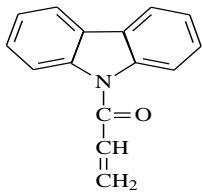
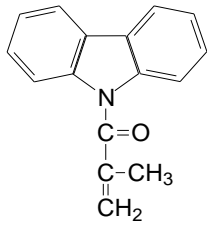
Формула вещества	Катализатор	$C_{\text{кат}} \cdot 10^{-4}$ моль/л	Выход продукта, %
	ZnCl ₂	1·10 ⁻⁴	32
		2·10 ⁻⁴	41
		3·10 ⁻⁴	48
	FeCl ₃	1·10 ⁻⁴	33
		2·10 ⁻⁴	45
		3·10 ⁻⁴	51
	AlCl ₃	1·10 ⁻⁴	38
		2·10 ⁻⁴	60
		3·10 ⁻⁴	92
N- метакрилоилоксифталимид			
	ZnCl ₂	1·10 ⁻⁴	27
		2·10 ⁻⁴	35
		3·10 ⁻⁴	47
	FeCl ₃	1·10 ⁻⁴	31
		2·10 ⁻⁴	39
		3·10 ⁻⁴	50
	AlCl ₃	1·10 ⁻⁴	37
		2·10 ⁻⁴	50
		3·10 ⁻⁴	85

Таблица 6

Влияние природы и концентрации катализатора на выход N-акрилоил- и метакрилоилоксикарбазола. Растворитель – ДМФА.

Формула	Соотношение реагентов	T _{плав.} , °C	R _f	Выход, %
	1:1	200	0,57	22
	1:2	200	0,68	58
	1:3	200	0,80	89
	1:1	168	0,53	26
	1:2	168	0,71	32
	1:3	168	0.80	82
Растворимость	Хорошо растворяется в ацетоне, ДМФА; не растворяется в бензоле, метаноле; растворяется в этиловом спирте при нагревании.			

Из табл.5 наблюдается уменьшение выхода продукции с изменением

природы катализатора:



Изучены влияния на выход N-акрилоилоксикарбазола мольных соотношений исходных реагентов, природы различных растворителей и температуры (табл.6). Для определения структуры полученных соединений сняты ИК- и ПМР-спектры (табл.7).

Таблица 7

Анализ ИК-спектров N-акрилоил- и метакрилоилоксикарбазола

Название соединения	νCO	$\nu\text{C}=\text{C}$	νCH_2	νCH_3	$\nu\text{N}-\text{C}$
N-акрилоилоксифталимид	1722	1450	1409- 1472	-	3418 1294
N-метакрилоилоксифталимид	1717	1490	1450- 1598	2343	3417- 1235

На ^1H ЯМР –спектре N-акрилоилоксикарбазола обнаружены дублет-дублетные сигналы протоны первого и восьмого углерода ароматического кольца в области 8,22 м.е., дублет-триплет-триплетные сигналы второго и седьмого углерода ароматического ядра в области 7,43 м.е., дублет-дублет-дублетные сигналы третьего и шестого углерода, дублет-дублет-дублетные сигналы четвертого и пятого углерода ароматического ядра при 8,05 м.е., синглетный сигнал СН группы при 3,52 м.е., дублетный сигнал CH_2 группы при 4,3 м.е. ПМР-спектры сняты на приборе Varian UNITY – 400.

В разделе диссертации под названием «**Модифицирование полипропилена N-акрилоилоксикарбазолом**» привитые сополимеры полипропилена с синтезированным N-акрилоилоксикарбазолом получены в среде органических растворителей в присутствии динитрила азобисизомасляной кислоты (ДАК) при температуре 70-80°C.

Для модифицирования использовали гомополипропилен Устюртского газо-химического комбината (марки J-150 с молекулярной массой 9700).

Изучено влияние концентрации мономера и инициатора на процесс привитой сополимеризации (табл.8,9).

Таблица 8

Влияние степени прививки акрилоилоксикарбазола к полипропилену и выхода реакции от концентрации мономера (M).

$[\text{ДАК}] = 5 \cdot 10^{-3}$ моль/л, $T = 60$ °C.

[M], моль/л	Растворитель	Выход реакции, %	Степень прививки, α , %
1	ДМФА	45,8	10,2
2	ДМФА	52,5	17,5
5	ДМФА	67,9	20,5
1	Декалин	63,8	12,5
2	Декалин	72,4	19,3
5	Декалин	85,6	25,4

Таблица 9

Влияние степени прививки акрилоилоксикарбазола к полипропилену и выхода реакции от концентрации инициатора (ДАК). $[M]=5$ моль/л, $T=60$ °С.

[ДАК] 10^{-3} , моль/л	Растворитель	Выход реакции, %	Степень прививки α , %
1	ДМФА	45,8	9,5
2	ДМФА	52,5	14,8
5	ДМФА	67,9	20,5
1	Декалин	63,8	11,1
2	Декалин	72,4	16,9
5	Декалин	85,6	25,4

Для идентификации исходного ПП и продуктов привитой сополимеризации сняты их ИК-спектры. В ИК-спектре ПП наблюдается валентные колебания СН группы при 2917 см^{-1} , валентные колебания СН_3 групп при $2949\text{-}2837\text{ см}^{-1}$, а деформационные колебания СН групп в интервале $1456\text{-}1018\text{ см}^{-1}$. Обнаружены полосы поглощения СН_3 , СН_2 групп, т.е валентные колебания в интервале $1717\text{-}1507\text{ см}^{-1}$, а деформационные колебания при 1166 см^{-1} , симметричные колебания при 1375 см^{-1} . Наблюдаются также следующие полосы поглощения: 1273 см^{-1} ($\text{СН}_2\text{-СН}$ связь), $997\text{-}973\text{ см}^{-1}$ (СН_3 , С-С), 1105 см^{-1} (СН-С).

В ИК-спектре привитого ПП с N-акрилоилоксикарбазолом наблюдается исчезновение полос поглощения при 3419 и 1509 см^{-1} , отнесенные соответственно к валентным и деформационным колебаниям N-C связи, появление новых полос поглощения валентных колебаний при 1602 см^{-1} и деформационных колебаний при 1166 см^{-1} . Происходят незначительные изменения в полосах поглощений при 1717 см^{-1} и в интервале частот $972\text{-}997\text{ см}^{-1}$ для СО и $\text{СН}_3\text{-С-С}$ связей соответственно. Наблюдаются также деформационные колебания СН_2 группы в интервале $808\text{-}840\text{ см}^{-1}$.

Полипропилен и его привитой сополимер с N-акрилоилоксикарбазолом исследованы с помощью атомно-силового микроскопа. На рис. 3,4 представлены поверхность частиц полипропилена (рис.3а) и их топография в виде 3D изображения (рис.3б) с размером $7,5\text{ мкм}$ для более отчетливого наблюдения.

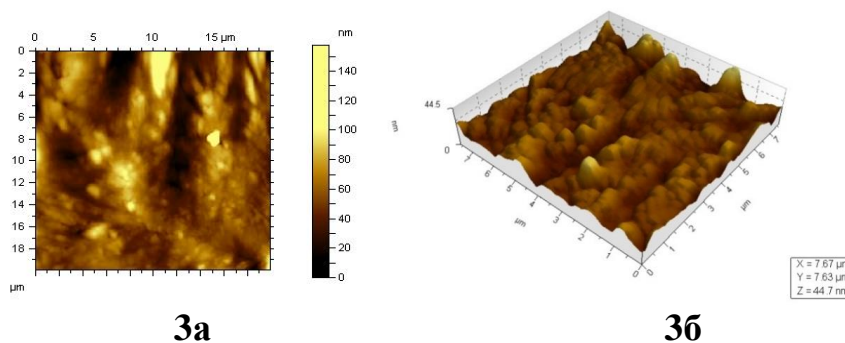


Рис. 3. Поверхность (а) и 3D изображение (б) полипропилена.

При снятии 3D-изображения топографии модифицированного полипропилена в декалине наблюдается уменьшение количества пиков наночастиц ПП и расширение нижней области. На рис.4 можно увидеть увеличением количества укрепленных частиц модифицированного полипропилена.

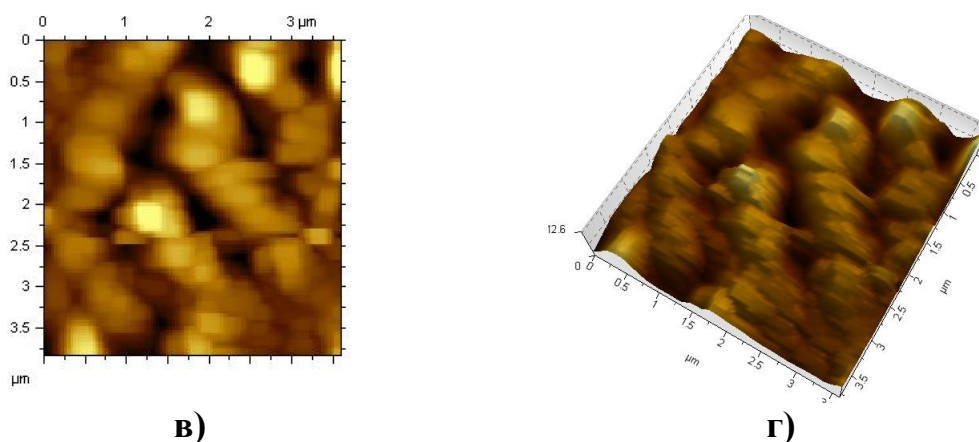


Рис.4. Изображение сегмента поверхности полипропилена (в), модифицированного N-акрилоилоксикарбазолом (г).

Проведены опыты по исследованию диэлектрических свойств модифицированного N-акрилоилоксикарбазолом ПП в физическом факультете Национального университета Узбекистана (таблица 10).

Таблица 10

Физико-механические свойства исследованных образцов

Образцы полимера	Плотность, кг/м ³	Прочность под действием груза, Н/м ² 10 ^{3*}	Удельное сопротивление, Ом.см	Термоустойчивость, С ⁰	Электроустойчивость, В/м
Полипропилен	946	3-4 10 ³	10 ¹⁴ -10 ¹⁵	100-110	1·101 ⁶
Полиметил-метакрилат	1,3·10 ³	(120-700) 10 ³	10 ¹³ -10 ¹⁴	105-110	(20-30) 10 ⁶
Полиформальдегид	1,4·10 ³	700·10 ³	6-10 ¹³	110-115	(20-15)10 ³
Поликарбонат	1,2 10 ³	(600-780) 10 ³	5·10 ¹⁴ -10 ¹⁷	55-120	(15-20)10 ³
Поливинилхлорид	1,7·10 ³	(280-490) · 10 ³	10 ¹⁴ -10 ¹⁵	110-115	(15-18)10 ³
Полиамид	1·10 ³	500·10 ⁵	10 ¹¹ -10 ¹²	115	(12-14)10 ³
Модифицированный ПП	1,1-1,24 10 ³	2·10 ⁷ -1·10 ⁸	10 ¹⁰ 10 ¹¹	120-130	(10-12)10 ⁶

Можно увидеть, что модифицированный N-акрилоилоксикарбазолом полипропилен обладает повышенной термо- и электроустойчивостью, прочностью под действием груза по сравнению с исходным полипропиленом и техническими полимерами.

Выявлено, что модифицированный N-акрилоилоксикарбазолом ПП обладает высокой электрической устойчивостью (6·10⁴ В/м), предел

прочности которого находится в интервале $2 \cdot 10^7$ - $1 \cdot 10^8$. Благодаря высокой устойчивости к действиям кислот и щелочей полученный сополимер можно применять как исходный материал для получения держателей, предназначенных для редких металлов в промышленности.

Изучение биостимулирующих свойств акрилоил-, метакрилоил-оксифталиимидов.

Опыты по острой токсичности веществ проводились в научно-экспериментальной лаборатории отдела фармакологии при Институте химии растительных веществ. Опыты по определению острой токсичности препарата проводились на белых мышах-самцах массой 20-22 г путем перорального введения различных доз водных растворов через полости рта с помощью металлических зондов. Эксперимент был протестирован в дозах 1000–5000 мг/кг *in vivo* и когда лекарства тестировались на животных гибели животных в течение дня не наблюдалось. Значение ЛД₅₀ было определено графическим методом Литчфилда-Уилкоксона и составило 3300. Исследования токсичности показали, что по химической классификации N-акрилоилоксифталиимид и N-метакрилоилоксифталиимид относятся 4-группе и являются безвредными препаратами.

Далее в Институте химии растительных веществ N-акрилоилоксифталиимид и N-метакрилоилоксифталиимид были испытаны в качестве стимулятора роста для полевых и бахчевых растений (таблица 10). Испытательные работы были проведены на фермерском хозяйстве «Бошжонбуз фаввораси» на пшенице сорта «Таня» и бахчевой культуре огурцов сорта «Орзу». В течение месяца было изучено влияние синтезированных препаратов на корневую часть и стебли растения, в результате которого достигнут положительный результат по сравнению с эталоном «Флороксан, т.е. выявлено ускорение роста корней и повышение прочности стеблей растений.

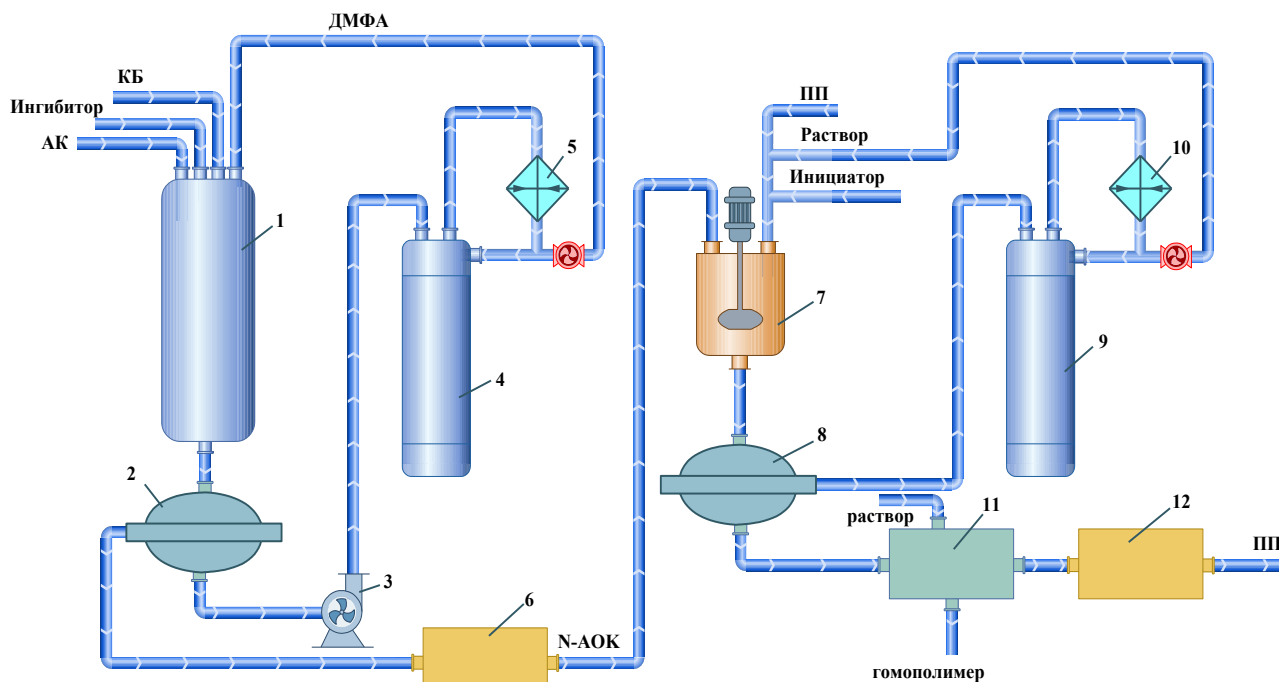
На основе полученных данных разработана обобщающая технологическая схема для процессов получения N-акрилоилоксикарбазола и модифицирования им полипропилена. Основанный на этой технологии процесс синтеза N-акрилоилоксикарбазола и N-акрилоилоксифталиимида осуществляется в 5 стадиях. На первой стадии происходит реакция ацилирования. Реакция проводится в колонном реакторе с внутренним охлаждением при температуре кипения ДМФА в течение 3 часов. В реактор загружаются исходные реагенты: карбазол или фталиимид, акриловая кислота, ингибитор и ДМФА в качестве растворителя. На второй стадии реакционный продукт фильтруется. На третьей стадии выделенное вещество в виде белых кристаллов высушивается после промывания растворителем. На четвертой стадии выделенный мономер в виде кристаллов отправляется в полимеризатор для модифицирования с полипропиленом. На пятой стадии модифицированный полипропилен разделяется, промывается и высушивается (рис.5).

Таблица 10

**Влияние акрилоил-и метакрилоилоксифталимида на рост пшеницы и
огурцов**

Опыты	Концентрация препаратов, %	Параметры периода роста			
		Длина корня		Длина стебля	
		см	%	см	%
Пшеница					
Вода	б/о	5,99	100,0	3,99	100,0
Эталон Флороксан	0,0001	7,12	118,8	4,42	110,7
N-акрилоилокси-фталимид	0,00001	6,60	110,1	4,51	113,0
	0,0001	6,59	110,0	4,91	123,0
	0,001	7,04	117,5	5,31	133,0
	0,01	6,45	107,6	4,60	115,3
N-метакрилоилоксифталимид	0,00001	6,40	108,0	4,31	108,0
	0,0001	6,32	105,5	4,61	115,5
	0,001	7,04	117,5	5,31	133,0
	0,01	6,21	103,6	4,28	107,3
Огурец					
Вода	б/о	7,39	100	2,11	100
Эталон Флороксан	0,001	8,97	121,3	2,99	141,7
N-акрилоилоксифталимид	0,00001	7,97	107,8	2,42	115,0
	0,0001	8,37	113,2	3,20	151,6
	0,001	7,56	102,3	2,72	129,0
	0,01	7,40	100,1	2,55	120,8
N-метакрилоилоксифталимид	0,00001	7,77	105,1	2,30	109,0
	0,0001	8,20	111,0	3,01	142,6
	0,001	7,50	101,4	2,51	119,0
	0,01	7,40	100,1	2,40	117,7

На основе вышеполученных данных разработана обобщающая технологическая схема для процессов получения N-акрилоилоксикарбазола и модифицирования им полипропилена. Основанный на этой технологии процесс синтеза N-акрилоилоксикарбазола и N-акрилоилоксифталимида осуществляется в 5 стадий. На первой стадии происходит реакция ацилирования. Реакция проводится в колонном реакторе с внутренним охлаждением при температуре кипения ДМФА в течение 3 часов. В реактор загружаются исходные реагенты: карбазол или фталимид, акриловая кислота, ингибитор и ДМФА в качестве растворителя. На второй стадии реакционный продукт фильтруется. На третьей стадии выделенное вещество в виде белых кристаллов высушивается после промывания растворителем. На четвертой стадии выделенный мономер в виде кристаллов отправляется в полимеризатор для модифицирования с полипропиленом. На пятой стадии модифицированный полипропилен разделяется, промывается и высушивается (рис.5).



1-реактор, 2,8-фильтры, 3-насос, 4,9-перегонные колонны, 5,10-конденсаторы, 6,12-сушилки, 7-полимеризатор, 11-промывка

Рис.4. Технологическая схема производства N-акрилоилокси-карбазолполипропилена.

Для получения N-акрилоилоксикарбазола в реактор 1 колонного типа, снабженный внутренними холодильниками, загружается необходимое количество карбазола, акриловой кислоты, ингибитора и ДМФА. Реакция ацилирования протекает в течение трех часов при температуре 135-140°C. Реакционный продукт N-акрилоилоксикарбазол осаждается в виде иглистых кристаллов, который отправляется для разделения в фильтр 2. Оставшаяся часть смеси, состоящая из растворителя и непрореагировавшего карбазола, отправляется насосом 3 в перегонную колонну 4. Выделенные парообразные акриловая кислота и растворитель ДМФА конденсируются в холодильнике-конденсаторе 5 и конденсаты возвращаются в реактор 1. Отфильтрованный N-акрилоилоксикарбазол отправляется в сушилку 6. На следующей стадии высушенный мономер N-акрилоилоксикарбазол, полипропилен, инициатор ДАК и растворитель загружают в реактор полимеризатора 7. Реакция сополимеризации протекает при 80°C в течение 6 часов. Реакционный продукт после охлаждения до комнатной температуре отправляется для разделения на фильтр 8, другая часть смеси, состоящая из ДМФА и N-акрилоилоксикарбазола, отправляется в перегонный колонну 9. Смесь модифицированного полипропилена и гомополимера отправляется для разделения гомополимера в промывочный аппарат 11. Продукт модифицирования полипропилена высушивается на сушилке 12, расфасуется и отправляется в склад. Оставшийся в нижней части промывалки 11 гомополимер N-акрилоилоксикарбазола отправляется в собиратель.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. Определены оптимальные условия получения N-акрилоил- и метакрилоилоксифталимида, N-акрилоил- и метакрилоилоксикарбазола в результате изучения влияния различных факторов: природы растворителя и катализатора, температуры, соотношения реагентов и безкатализаторной среды на реакцию ацилирования фталимида и карбазола акриловой и метакриловой кислотами и их хлорангидридами, при котором продолжительность реакции составляет 3 часа, а соотношение реагентов–1:3.

2. Установлены строение, физико-химические и механические свойства полученных на основе фталимида и карбазола соединений с помощью современных физико-химических методов анализа, таких как ИК- и ПМР-спектроскопия, атомно-силовая микроскопия.

3. Процесс модифицирования полипропилена синтезированными N-акрилоил- и метакрилоилоксикарбазолом проведен в среде растворителя декалина при 80°C. Изучено влияние различных факторов на выход продукта, рекомендованы условия региоселективности и предложена технология производства.

4. Определены физико-механические свойства модифицированного полипропилена, обладающего высокой электрической устойчивостью ($6 \cdot 10^4$ В/м) с пределом прочности $2 \cdot 10^7$ - $1 \cdot 10^8$, высокой устойчивостью к действиям кислот и щелочей, и рекомендовано для получения клемм в металлургической промышленности.

5. Предложена принципиальная технологическая схема для процессов получения N-акрилоилоксикарбазола путем взаимодействия акриловой кислоты и карбазола и модифицирования полипропилена N-акрилоилоксикарбазолом в среде растворителя в присутствии инициатора.

6. В результате применения поли-N-акрилоил- и метакрилоилоксифталимида в качестве стимулятора роста растений наблюдается рост урожайности пшеницы на 33 %, огурцов – на 16 % по сравнению с эталоном флороксаном. Расчетная экономическая эффективность составила 9200000 на гектар.

**SCIENTIFIC COUNCIL DSc.16 / 30.12.2019.T.87.01 AT THE TASHKENT
SCIENTIFIC RESEARCH INSTITUTE OF CHEMICAL TECHNOLOGY
FOR AWARDING ACADEMIC DEGREES**

TASHKENT CHEMICAL AND TECHNOLOGICAL INSTITUTE

ISLOMOVA YULDUZ URALOVNA

**TECHNOLOGY FOR PRODUCING PHTHALIMIDE AND CARBAZOLE
DERIVATIVES**

02.00.14. – Technology of organic substances and materials based on them

**ABSTRACT OF THE DISSERTATION OF THE DOCTOR OF
PHILOSOPHY (PhD) IN TECHNICAL SCIENCES**

Tashkent –2020

The topic of the dissertation of the Doctor of Philosophy (PhD) in technical sciences is registered in the Higher Attestation Commission under the Cabinet of Ministers of the Republic of Uzbekistan under the number B2017.3.PhD / T335.

The dissertation was completed at the Tashkent Institute of Chemical Technology. An abstract of the dissertation in three languages (Uzbek, Russian, English (summary)) is available on the website of the Scientific Council at www.tktiti.uz and the information and educational portal "ZiyoNET" at www.ziynet.uz.

Scientific adviser: **Maksumova Aytura Sitdikovna**
Doctor of Chemical Sciences, Professor

Official opponents: **Akbarov Hamdam Ikromovich**
Doctor of Chemical Sciences, Professor

Yadgarov Normuhammad
Doctor of Chemical Sciences, Professor

Leading organization: **Tashkent state Technical University named after I. Karimova**

The dissertation will be defended on "___" _____ 2020 at "___" hours at a meeting of the Scientific Council DSc.16/30.12.2019.T.87.01 at the Tashkent Scientific Research Institute of Chemical Technology at 111116, Tashkent region, Tashkent district, st. Surabazar, (+99871) 199-22-43, fax: (+99870) 965-77-16, e-mail: tktiti.uz

The dissertation is registered in the Information Resource Center of the Tashkent Scientific Research Institute of Chemical Technology under No. _____, which can be found in the IRC (111116, Tashkent region, Tashkent district, Shurabazar, (+99871) 199-22-43, fax: (+99870) 965-77-16, e-mail: gup_tniixt@mail.ru).

Abstract of the dissertation was sent "___" _____ 2020.
(distribution protocol No. _____ of "___" _____ 2020).

Djalilov A.T.
Chairman of the Scientific Council
by awarding degrees Doctor of
Chemical Sciences, Academician

Shirinov Sh.D.
Scientific Secretary of the Scientific
Council for Awarding of scientific
degrees, Phd tech.

Beknazarov H.S.
Chair of the Scientific Seminar
at the scientific advice on awarding
Degrees, Doctor of Technical
Sciences, Senior Scientific Scientist

INTRODUCTION (abstract of the dissertation of the doctor of philosophy (PhD))

The purpose of the dissertation is the study of synthesis processes and the development of technology for producing N-acryloyl-, methacryloyloxyphthalimide and N-acryloyl-, methacryloyloxycarbazole based on phthalimide and carbazole.

Object of study: carbazole, phthalimide, acrylic acid, methacrylic acid, acryloylchloride, methacryloylchloride, N-acryloyloxycarbazole, N-methacryloyloxycarbazole, N-methacryloyloxyphthalimide, N-methacryloyloxyphthalimide.

Scientific novelty of research is as follows:

optimal conditions and patterns of acylation of phthalimide with acrylic and methacrylic acids and their acid chlorides were determined;

optimal conditions and patterns of carbazole acylation by acrylic and methacrylic acids and their acid chlorides were determined;

the influence of various factors on the yield of products during the synthesis of N-acryloyloxycarbazole, N-methacryloyloxycarbazole, N-acryloyloxyphthalimide and N-methacryloyloxyphthalimide, as well as optimal conditions for the processes of their preparation are determined;

The optimal conditions for the grafted copolymerization of N-acryloyloxycarbazole to polypropylene macromolecules and the physicochemical properties of the obtained substances were determined.

Implementation of research results. Based on the scientific results obtained on the development of technology for carbazole and phthalimide derivatives:

the obtained stimulant N-acryloyloxyphthalimide based on phthalimide and acrylic acid was introduced on a 14 hectare wheat field in the farm "Bosjonbuz favvorasi" of Kashkadarya region. (certificate of the Ministry of Agriculture of the Republic of Uzbekistan dated August 23, 2019 No. 02 / 021-1919). As a result, it became possible to increase the yield of autumn Thunder wheat by 10 kg / ha or by 33%

The stimulator N-acryloyloxyphthalimide was introduced on a 1.5 hectare field in the farm "Bosjonbuz favvorasi" of Kamashinsky district, Kashkadarya region as a drug that increases the yield for cucumbers of the Orzu variety. (certificate of the Ministry of Agriculture of the Republic of Uzbekistan dated August 23, 2019 No. 02 / 021-1919). As a result of the use of an aqueous solution of this preparation in an amount of 10-3%, it made it possible to increase the yield of Orzu cucumbers on sandy soil by 24 kg / ha or 16%.

The structure and scope of the dissertation. The structure of the dissertation consists of introduction, three chapters, conclusion, list of used literature and applications. The dissertation volume consists of 120 pages.

ЭЪЛОН ҚИЛИНГАН ИШЛАР РЎЙХАТИ
СПИСОК ОПУБЛИКОВАННЫХ РАБОТ
LIST OF PUBLISHED WORKS

I бўлим (I часть; I part)

1. Ю.Ў.Исломова, О.С.Максумова N-Ацетилкарбазол синтези //Кимё ва кимёвий технологияси 2016. № 4. –Б.28-32. (02.00.00., № 3).
2. Ю.Ў.Исломова, О.С. Максумова Исследование реакции ацилирования карбазола //Austrian Journal of Technical and Natural Sciences.2016. № 1–2 –Р. 114-118. (02.00.00., № 2).
3. Ю.Ў.Исломова, О.С. Максумова Бензоилхлорид синтези //Композицион материаллар. Тошкент-2016. №4. –Б. 16-17. (02.00.00., № 4).
4. Ю.Ў. Исломова, О.С.Максумова, Ш.А. Таджиева Synthesis of N-Acryloilo- carbazole and its modification to polypropylene // Austrian Journal of Technical and Natural Sciences. Vienna 2018. № 9-10. –С.74-78. (02.00.00.,№ 2)
5. Ю.Ў. Исломова, О.С.Максумова Synthesis of N-methacryloyloxypthalimide //Chemical Senses «Oxford University Pres» 2016. №2. Vol.41 –С.1061-1066. Impact factor: 3.157. (SCOPUS).
6. Ю.Ў. Исломова, О.С.Максумова, Изучение реакции взаимодействия N-фталимида с акриловой кислотой. Austrian Journal of Technical and Natural Sciences. 2015. -№ 5–6 –Р. 134-138. (02.00.00., № 2).

II бўлим (II часть; II part)

7. Ю.Ў. Исломова, О.С.Максумова, Синтез акрилоилиметакрилоилхлоридов. European Conference on Innovation in Technical and Natural Sciences .Austria, Venna, 2016, 2-oktober –С.111-113.
8. Ю.Ў. Исломова, О.С. Максумова Синтез N-фталимидоуксусной кислоты// The Second Intertional Conference On scientific devilmnt EuropeAustria, Venna, 2016, 23-december –С.69-71.
9. Ю.Ў.Исломова, О.С.Максумова Синтез на основе N-фталимидоуксусной кислоты // Фундаментальные и прикладные исследования в современной науке. Самара, ЦИНК, 2017, –С. 80-81.
10. Ю.Ў.Исломова, О.С.Максумова Фталангидрид ҳосиласинтези // Актуальные проблемы инновационных технологий химической, нефтегазовой и пищевой промышленности. Тошкент 2017. –Б. 102-103.
11. Ю.Ў. Исломова, О.С.Максумова Карбазол асосида реакциялар // Техник ва ижтимоий фанлар соҳаларининг муҳим масалалари. Тошкент-2018. –Б.41-42.
12. Ю.Ў. Исломова, Максумова О.С.,Тура Акбархужа А. Винилкарбазол-кетон синтези. Ёш олимлар, магистрантлар ва бакалавриат талабаларини XXVII - илмий-техникавий анжуманининг мақолалар тўплами. Умидли кимёгар. Тошкент 2018.–Б. 76-78.
13. Ю.Ў. Исломова, О.С. Максумова, N-акрилоилоксихарбазол синтези ва уни полипропилен билан модификацияси. Техник ва ижтимоий-иқтисодий фанлар соҳаларининг муҳим масалалари. Тошкент-2019. –Б.47-48.

14. Ю.Ў. Исломова, О.С. Максумова, N-Полиакрилоил-оксифталимидни ўсимликларга таъсири. “Нефт-газ саноатида инновациялар замонавий энергитика ва унинг муаммолари” Халқаро конференция материаллари. Ташкент-2020. –Б. 581-582

15. Ю.Ў. Исломова, О.С. Максумова, N-Полиакрилоилоксикарбазол билан полипропилен модификациялаш жараёнини ўрганиш. “Нефт-газ саноатида инновациялар замонавий энергитика ва унинг муаммолари” Халқаро конференция материаллари. Ташкент-2020. –Б. 581-582

Автореферат «Ўзбекистон кимё журнали» таҳририятида таҳрир қилинди

Бичими 60x84¹/₁₆. Рақамли босма усули. Times гарнитураси.
Шартли босма табағи 2,75. Адади 100 нусха. Буюртма № 159.

Гувоҳнома реестр №10-3719.
“Тошкент кимё-технология институти” босмаҳонасида чоп этилди.
100011, Тошкент, Навоий кўчаси, 32-уй.