

**ТОШКЕНТ КИМЁ-ТЕХНОЛОГИЯ ИНСТИТУТИ  
ХУЗУРИДАГИ ИЛМИЙ ДАРАЖАЛАР БЕРУВЧИ  
DSc.03/30.12.2019.Т.04.01 РАҚАМЛИ ИЛМИЙ КЕНГАШ**

---

**ТОШКЕНТ КИМЁ-ТЕХНОЛОГИЯ ИНСТИТУТИ**

**ТАДЖИЕВА ШАХНОЗА АБДУВАЛИЕВНА**

**АЗОТСАҚЛОВЧИ ГЕТЕРОЦИКЛИК БИРИКМАЛАР  
ҲОСИЛАЛАРИНИНГ СИНТЕЗИ ВА ТЕХНОЛОГИЯСИ**

**02.00.14 - Органик моддалар ва улар асосидаги материаллар технологияси**

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

**Тошкент - 2022**

**Фалсафа доктори(PhD) диссертацияси автореферати мундарижаси**  
**Оглавление автореферата диссертации доктора философии (PhD)**  
**Contents of dissertation abstract of doctor of philosophy (PhD)**

<b>Таджиева Шахноза Абдувалиевна</b> Азотсақловчи гетероциклик бирикмалар ҳосилаларининг синтези ва технологияси.....	3
<b>Таджиева Шахноза Абдувалиевна</b> Синтез и технология производных азотсодержащих гетероциклических соединений .....	21
<b>Shakhnoza Tadjieva</b> Synthesis and technology of derivatives of nitrogen-containing heterocyclic compounds.....	39
<b>Эълон қилинган ишлар рўйхати</b> <b>Список опубликованных работ</b> <b>List of published works .....</b>	42

**ТОШКЕНТ КИМЁ-ТЕХНОЛОГИЯ ИНСТИТУТИ  
ҲУЗУРИДАГИ ИЛМИЙ ДАРАЖАЛАР БЕРУВЧИ  
DSc.03/30.12.2019.Т.04.01 РАҚАМЛИ ИЛМИЙ КЕНГАШ**

---

**ТОШКЕНТ КИМЁ-ТЕХНОЛОГИЯ ИНСТИТУТИ**

**ТАДЖИЕВА ШАХНОЗА АБДУВАЛИЕВНА**

**АЗОТСАҚЛОВЧИ ГЕТЕРОЦИКЛИК БИРИКМАЛАР  
ҲОСИЛАЛАРИНИНГ СИНТЕЗИ ВА ТЕХНОЛОГИЯСИ**

**02.00.14 - Органик моддалар ва улар асосидаги материаллар технологияси**

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

**Тошкент - 2022**

Техника фанлари бўйича фалсафа доктори (PhD) диссертацияси мавзуси Ўзбекистон Республикаси Вазирлар Маҳкамаси ҳузуридаги Олий аттестация комиссиясида В2019.3.PhD/Т1282 рақам билан рўйхатга олинган.

Диссертация Тошкент кимё-технология институтида бажарилган.

Диссертация автореферати уч тилда (узбек, рус, инглиз (резюме)) Илмий кенгаш веб-саҳифасида (tkti.uz) ва «ZiyoNet» ахборот таълим порталига (www.ziynet.uz) жойлаштирилган.

**Илмий раҳбар:**

**Максумова Ойтура Ситдиковна**  
кимё фанлари доктори, профессор

**Расмий оппонентлар:**

**Тешабаева Илмира Убайдуллаевна**  
техника фанлари доктори, доцент

**Худойбердиева Дилфуза Бахрамовна**  
техника фанлари доктори, профессор

**Етакчи ташкилот:**

**Ислом Каримов номидаги Тошкент давлат техника университети**

Диссертация химояси Тошкент кимё-технология институти ҳузуридаги DSc.03/30.12.2019.Т.04.01 рақамли Илмий кенгашнинг 2022 йил «03» 03 соат 9<sup>00</sup> даги мажлисида бўлиб ўтади. (Манзил: 100011, Тошкент шаҳар Шайхонтоҳур тумани, А.Навоий кўч. 32. Тел.: (99871) 244-79-20, факс: (99871)244-79-17, e-mail: tkti\_info@edu.uz.)

Диссертация билан Тошкент кимё-технология институти Ахборот ресурс марказида танишиш мумкин (287 рақами билан рўйхатга олинган). (Манзил: 100011, Тошкент шаҳар Шайхонтоҳур тумани, А.Навоий кўч. 32. Тел.: (99871)244-79-20).

Диссертация автореферати 2022 йил «18» 02 куни тарқатилган.  
(2022 йил «18» 02 даги № 96 рақамли реестр баённомаси).



**С.М.Туробжонов**  
Илмий даражалар берувчи илмий кенгаш раиси, т.ф.д., профессор

**Х.И. Кадиров**  
Илмий даражалар берувчи илмий кенгаш котиби, т.ф.д., профессор

**Т.Рахмонбердиев**  
Илмий даражалар берувчи илмий кенгаш қошидаги илмий семинар раиси, к.ф.д., профессор

## **КИРИШ ( фалсафа доктори (PhD) диссертацияси аннотацияси)**

**Диссертация мавзусининг долзарблиги ва зарурати.** Бугунги кунда дунёда бензол халқаси билан конденсирланган полиазот сақловчи гетероциклик бирикмалар, ултрабинафша нур таъсирига чидамли полимер материаллар, бўёқлар, коррозия ингибиторлари, ёқилғи ва мойлар учун қўндирмалар, каучуклар вулканланиш жараёнини тезлаштиргичлари, полимер композиция стабилизаторлари сифатида кенг қўлланилади. Шу билан бирга фаол функционал гуруҳлар сақловчи гетероциклик бирикмалар ҳосилаларини қайта ишлаш билан амалий жиҳатдан фойдали хоссали моддалар олиш бўйича илмий тадқиқотлар олиб бориш муҳим аҳамиятга эга.

Жаҳонда икки ва уч азотгетроатомли гетерофункционал мономерлар асосида УБ-стабилизаторлар яратиш бўйича қатор илмий изланишлар олиб борилмоқда. Бу борада бензол ва азол халқали фаол реакция марказларга эга бензимидазол, бензотриазолларни N-аллиллаш билан имидазолий асосли мономер тузлар синтез қилиш, уларни юқори ҳарорат ва қуёш нури таъсирига чидамли, полимер матрица деструкциясини камайтирувчи ва механик хусусиятларини оширувчи қўшимчалар сифатида қўллаш, УБ-стабилизаторлар олиш технологияларини ишлаб чиқиш ва синовдан ўтказишга алоҳида эътибор берилмоқда.

Республикамизда охириги йилларда амалга оширилаётган кенг чора-тадбирлар натижасида кимё ва фармацевтика саноати корхоналарини модернизация қилиш, рақобатбардош маҳсулотлар турларини кенгайтириш, хомашёларнинг янги захираларини яратиш, улар асосида импорт ўрнини босувчи маҳсулотлар ишлаб чиқариш технологияларини ривожлантириш, жумладан азотсақловчи гетероциклик бирикмалар асосида янги тўйинмаган гетероароматик бирикмаларни синтез қилиш ва улардан ултрабинафша нур таъсирига чидамли полимер материаллари ишлаб чиқариш борасида бир қанча ишлар амалга оширилмоқда. Ўзбекистон Республикасининг 2017-2021 йилларга мўлжалланган Ҳаракатлар стратегиясида «юқори қўшимча қийматли тайёр маҳсулот ишлаб чиқаришни жадал ривожлантиришга қаратилган сифат жиҳатидан янги босқичга ўтказиш орқали саноатни янада модернизация ва диверсификация қилиш»<sup>1</sup> бўйича муҳим вазифалар белгилаб берилган. Бу борада бензимидазол ва бензотриазолларни аллиллаш реакциялари асосида 1,3-диаллил-бензимидазолий ва 1,3-диаллилбензотриазолийбромид мономер тузларини олиш, улар асосида радикал полимерланиш ва сополимерланиш технологияларини мақбуллаштириш муҳим аҳамият касб этади.

Ўзбекистон Республикаси Президентининг 2018 йил 25 октябрдаги ПҚ-3983-сон «Ўзбекистон Республикасида кимё саноатини жадал ривожлантириш чора-тадбирлари тўғрисида»ги, 2019 йил 3 апрелдаги ПҚ-4265-сон «Кимё саноатини янада ислоҳ қилиш ва унинг инвестициявий жозибадорлигини ошириш чора-тадбирлари тўғрисида»ги, 2017 йил 6 апрелдаги ПФ-4891-сон

---

<sup>1</sup>Ўзбекистон Республикаси Президентининг ПҚ-4947 «2017-2021 йилларда Ўзбекистон Республикасини ривожлантиришнинг бешта устувор йўналишлари бўйича Ҳаракатлар стратегияси» тўғрисидаги қарори

«Товарлар (ишлар, хизматлар) ҳажми ва таркибини танқидий таҳлил қилиш, импорт ўрнини босадиган ишлаб чиқаришни маҳаллийлаштиришни чуқурлаштириш тўғрисида»ги фармон ва қарорлари ҳамда мазкур фаолиятга тегишли бошқа меъёрий-ҳуқуқий ҳужжатларда белгиланган вазифаларни амалга оширишга ушбу диссертация тадқиқоти муайян даражада хизмат қилади.

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

**Муаммонинг ўрганилганлик даражаси.** Азотсақловчи гетероциклик бирикмаларни синтез қилиш, гетероциклик мономер ва полимерлар кимёси ва технологияларини ривожлантириш бўйича Т.В. Maram, М.Н. Moustafa, В. Sundararaju, V. Gangavaram, В.А. Кабанов, Д.А. Топчиев, И.В. Малкандуев, Ю.А. Ведерников, Т.А. Подковырина, М.Р. Байрамов, Ш.З. Гасимова, В.С. Васин, Т.Ю. Колдаева, М.Г. Воронков, О.М. Трофимова, А.В. Гордеева, В.А. Анисимова, А.Т. Джалилов, С.Р. Рашидова, М.А. Асқаров, Д. Юсупов, А.Г. Махсумов, С.М. Туробжонов, О.М. Яриев, Т.Б. Бобоев, О.С. Максумова, А.С. Рафиков ва бошқалар илмий-тадқиқот ишлари олиб боришган.

Улар томонидан хусусиятлари аввалдан белгиланган азотсақловчи гетероциклик бирикмаларни кватернизациялаш, гетероатом бўйича аллиллаш ва алкиллаш жараёнларининг илмий асослари яратилган, структураси тадқиқ қилинган ва ишлаб чиқариш технологиялари тавсия этилган.

Шу билан бирга икки ва уч азотгетероатомли бензозоллар тутган гетерофункционал мономерлар олишнинг самарали усуллари яратиш, уларнинг радикал полимерланиш шароитлари ва кинетик қонуниятларини аниқлаш, кимёвий реагентлар ва ултрабинафша нур таъсирига чидамли полимер материаллари олиш технологиялари бўйича илмий ишлар олиб борилмоқда.

**Диссертация мавзусининг диссертация бажарилган олий таълим муассасасининг илмий-тадқиқот режалари билан боғлиқлиги.** Диссертация тадқиқоти Тошкент кимё-технология институти илмий-тадқиқот ишлари режасининг А-12-75 «Терига ишлов бериш учун биологик фаол моддаларни яратиш» (2015-2017 йй.) ва Ф7-04 «Шўртан-газ кимё мажмуаси оралик маҳсулотлари (суюқ олефинлар) асосида олинадиган фаол функционал бирикмаларнинг структураси ва хоссалари боғлиқлигини илмий асосларини яратиш» (2017-2020 йй.) мавзусидаги амалий ва фундаментал лойиҳалар доирасида бажарилган.

**Тадқиқотнинг мақсади** азотсақловчи гетероциклик бирикмалар - бензимидазол ва бензотриазол ҳосилаларини олиш технологиясини яратишдан иборат.

**Тадқиқотнинг вазифалари:**

бензимидазол ва бензотриазолни аллиллаш билан 1,3-диаллил-бензимидазолий ва 1,3-диаллилбензотриазолийбромид мономер тузларини олиш;

1,3-диаллилбензимидазолий ва 1,3-диаллилбензотриазолийбромид мономер тузларининг радикал полимерланиши ва акрил кислотаси билан сополимерланиш жараёнларини тадқиқ қилиш;

бензимидазол ва бензотриазол асосида синтез қилинган маҳсулотларнинг структурасини ва физик-кимёвий хоссаларини аниқлаш;

олинган диаллил мономерлар билан полиэтиленни модификациялаш ва физик-механик хоссаларини аниқлаш;

синтез қилинган бирикмаларни полиэтилен плёнкалари учун УБ-стабилизаторлар сифатида қўллаш;

бензимидазол ва бензотриазол ҳосилаларини олиш технологиясини яратиш.

**Тадқиқотнинг объекти** сифатида бензотриазол, бензимидазол, аллил бромид, акрил кислота ва бензотриазол, бензимидазол фрагментли диаллил тузлари, полимер ва сополимер бирикмалар, модификацияланган полиэтилен пленкалар олинган.

**Тадқиқотнинг предмети** бензотриазол, бензимидазол асосида диаллил мономерларининг полимерларни олиниш, уларни акрил кислотаси билан сополимерланиши, мономерлар олиш жараёнлари технологиясини ишлаб чиқишдан иборат.

**Тадқиқотнинг усуллари.** Диссертация ишида ИҚ-, ЯМР-, ПМР-спектроскопия, хромато-масс-спектрометрия, термоаналитик таҳлил АКМ-микроскопия, шунингдек олинган тажрибавий маълумотларни статистик қайта ишлашнинг аналитик усулларида фойдаланилган.

**Тадқиқотнинг илмий янгилиги** куйидагилардан иборат:

этанол муҳитида, 60 °С ҳароратда бензимидазол ва бензотриазолни аллилбромид билан аллиллаш реакцияси натижасида юқори унум билан 1,3-диаллилбензимидазолийбромид (80%) ва 1,3-диаллилбензотриазолийбромид (84%) тўртламчи тузларини ҳосил бўлиш усули ишлаб чиқилган;

1,3-диаллилбензимидазолий ва 1,3-диаллилбензотриазолийбромид тўртламчи аммоний тузларини радикал инициаторлар иштирокида полимерланиш жараёнининг мақбул шароитлари аниқланган ва қўлланилган инициаторлар орасида калий персулфат энг самарали эканлиги исботланган;

1,3-диаллилбензотриазолийбромид билан акрил кислотанинг бинар сополимерланиш реакциялари олиб борилган ва реакциянинг боришига таъсир этувчи асосий омиллар (реакция ҳарорати ва давомийлиги, сомономерлар нисбати, инициатор табиати) аниқланган, шунингдек аналитик, Файнман-Росс усуллари ёрдамида жараённинг сополимерланиш константалари ҳисобланган;

бензимидазол ва бензотриазол ҳосилалари асосида олинган бирикмалар 3% қўшилганда полиэтилен плёнкаларини УБ-нурлардан сақлаш хусусиятларини намоён этиши аниқланиб, эталон намунага нисбатан узилишдаги мустаҳкамлиги 13,7% ва нисбий чўзилувчанлиги 15,2% юқори эканлиги асосланган;

бензотриазол ва бензимидазол фрагментли азотли гетероциклик бирикмалари олиш технологияси ишлаб чиқилган.

**Тадқиқотнинг амалий натижалари** қуйидагиларда ўз аксини топган:

бензимидазол ва бензотриазолни аллилбромид билан аллиллаш реакциялари орқали диаллил мономерлари олиш жараёнларининг мақбул шaroитлари аниқланган;

бензотриазол асосида полиэтилен плёнкалар учун полимер матрица деструкциясини камайтирувчи ва материалнинг механик хусусиятларини оширувчи УФ-стабилизаторлар ишлаб чиқариш технологияси ишлаб чиқилган.

**Тадқиқот натижаларининг ишончлилиги.** Диссертация тадқиқоти замонавий физик кимёвий тадқиқот усуллари (ИК-, ЯМР-, ПМР-спектроскопия, хромато-масс спектрометрия, термоаналитик таҳлил, оптик ва АКМ микроскопия) билан исботланган. Шунингдек, технологик, физик-механик, техник усуллари қўлланилганлиги ва тажриба-саноат синовлари билан тасдиқланган.

**Тадқиқот натижаларининг илмий ва амалий аҳамияти.**

Тадқиқот натижаларининг илмий аҳамияти аллил бромид билан бензимидазол, бензотриазол асосида илк бор диаллил мономерлари синтези ва уларни радикал полимерланиши, ҳамда акрил кислота билан сополимерланиш реакциялари натижасида чизиқли полимер маҳсулотлари олиш жараёнларининг оптимал шaroитларини аниқланганлиги билан изоҳланади.

Тадқиқот натижаларининг амалий аҳамияти азотсақловчи гетероциклик бирикмалар - бензимидазол ва бензотриазол асосида мономерлар ва юқори ҳароратга чидамли полимер бирикмалар олиш, полиэтилен плёнкаларини УБ-нурлардан ҳимоя қилувчи самарали УБ-стабилизаторлар сифатида фойдаланишга тавсия этишдан иборат.

**Тадқиқот натижаларининг жорий қилиниши.** Азотсақловчи гетероциклик бирикмалар - бензимидазол ва бензотриазол ҳосилаларини ишлаб чиқариш технологиясини яратиш бўйича олинган илмий-тадқиқот натижалар асосида:

бензотриазол ва аллил бромид асосида мономер ишлаб чиқаришга ташкилот стандарти «O'ZSTANDARD» агентлиги томонидан тасдиқланган (Ts 201912314-001:2021). Натижада, полиэтилен пленкаларининг деструкциясини олдини олиш хусусиятига эга бўлган УБ-стабилизатор олиш имконини берган;

бензотриазолни аллил бромид иштирокида аллилаш билан диаллилбензотриазол бромид тўртламчи аммоний тузларини олиш технологияси «Жиззах пластмасса» АЖнинг «амалиётга жорий этиш буйича истиқболли ишланмалар рўйхати»га киритилган («Ўзкимёсаноат» АЖ 2021 йил 6 майдаги 14-1698-сон маълумотномаси). Натижада юқори ҳарорат ва қуёш нури таъсирига чидамли полиэтилен плёнкалар ишлаб чиқариш имконини берган.

**Тадқиқот натижаларининг апробацияси.** Мазкур тадқиқот натижалари маъруза кўринишида 3 та халқаро ва 5 та республика илмий-амалий анжуманларида муҳокамадан ўтказилган.

**Тадқиқот натижаларнинг эълон қилиниши.** Диссертация мавзуси бўйича жами 13 та илмий ишлар чоп этилган, шулардан Ўзбекистон Республикаси Олий Аттестация комиссиясининг докторлик диссертациялари



асосий илмий натижаларини чоп этиш тавсия этилган илмий нашрларда 5 та мақола, улардан 3 та республика ва 2 та хорижий журналларда нашр этилган.

**Диссертациянинг тузилиши ва ҳажми.** Диссертация кириш, учта боб, хулоса, фойдаланилган адабиётлар рўйхати ва иловадан ташкил топган бўлиб, 111 бетдан иборат.

## ДИССЕРТАЦИЯНИНГ АСОСИЙ МАЗМУНИ

**Кириш** қисмида тадқиқот мавзусининг долзарблиги ва зарурияти асосланган, тадқиқотнинг мақсади ва вазифалари, объекти ва предмети тавсифланган, Ўзбекистон Республикасида фан ва технологияларни ривожлантиришнинг устувор йўналишларига мослиги кўрсатилган, илмий янгилиги, олинган натижаларнинг илмий ва амалий аҳамияти очиқ берилган, ўтказилган тадқиқотларнинг ишончлилиги, апробация ва натижаларнинг нашр қилиниши, диссертациянинг ҳажми ва тузилиши бўйича маълумотлар баён этилган.

Диссертациянинг **«Азотсақловчи гетероциклик бирикмаларни олиниши, хоссалари ва қўлланиш соҳаларининг замонавий ҳолати»** номли биринчи боби учта параграфдан иборат бўлиб, унда бензимидазол ва бензотриазол асосидаги гетероциклик бирикмаларнинг синтези, хоссалари ва қўллаш соҳалари, диаллил мономерларини полимерланиш, сополимерланиш ва бензимидазол, бензотриазол асосида УБ-стабилизаторлар олиш, хоссаларини ўрганишга бағишланган. Кўрилган адабий шарҳлар асосида тадқиқотнинг мақсад ва вазифалари белгиланган.

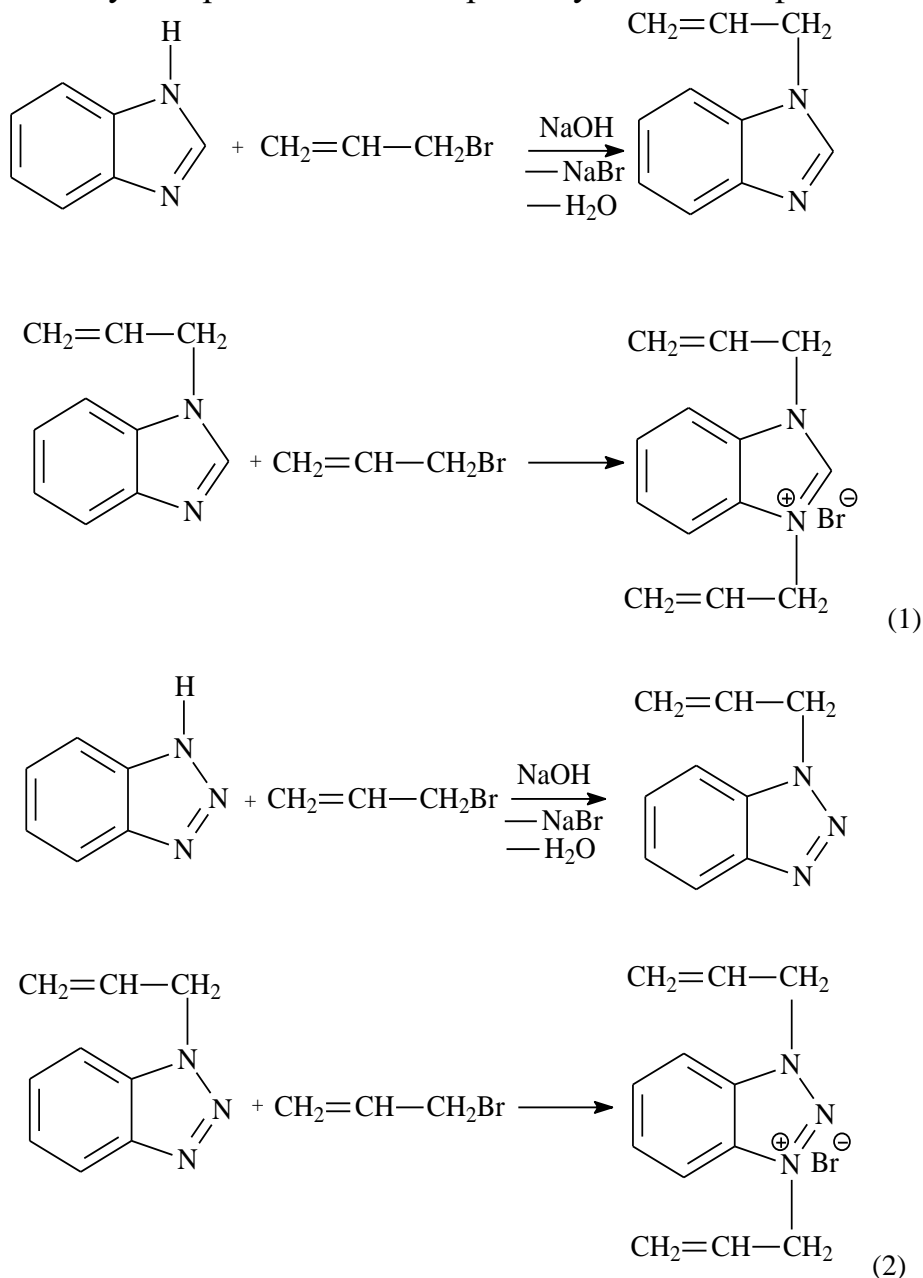
Диссертациянинг **«Дастлабки реагентларнинг физик-кимёвий хоссалари, маҳсулот олиш ва уларни тадқиқ қилиш усуллари»** деб номланган иккинчи бобида тадқиқот учун танланган объектлар, моддаларнинг олиниш ва физик-кимёвий хоссаларини ўрганиш усуллари келтирилган. Бензимидазол ва бензотриазолни аллиллаш реакциялари асосида 1,3-диаллилбензимидазолий ва 1,3-диаллилбензотриазолийбромид тўртламчи аммоний тузларини олиш усулини яратиш, радикал полимерланиш ва акрил кислота билан сополимерланиш жараёнлари келтирилган. Синтез қилинган моддаларнинг таркиби ва тузилишини аниқлашнинг физик-кимёвий усуллари баён этилган.

Диссертациянинг **«Бензимидазол, бензотриазол ҳосилалари синтези, хоссалари ва технологияси»** деб номланган учинчи бобида бензимидазол, бензотриазол асосида 1,3-диаллилбензимидазолий ва 1,3-диаллилбензотриазолийбромид тузларини олиш усулини, радикал полимерланиши, акрил кислотаси билан сополимерланиш жараёнларини ўрганиш бўйича олиб борилган илмий тадқиқотлар тўғрисидаги маълумотлар келтирилган.

Мономер ва полимер маҳсулотларининг ҳосил бўлиш унумига турли омиллар: (эритувчининг табиати, реагентларнинг нисбати, ҳарорат, реакция давомийлиги ва бошқалар) таъсирини аниқлаш натижалари, радикал полимерланиш ва сополимерланиш жараёнлари, ҳамда синтез қилинган

мономерлар ёрдамида модификация қилинган полимернинг (ПЭ) физик-механик хоссалари ўрганилган.

Дастлаб, бензотриазол ва бензимидазол асосида 1,3-диаллилбензимидазолий ва 1,3-диаллилбензотриазолийбромид мономер тузлари синтез қилинган. Бензимидазол, бензотриазол ва аллил бромид асосида 1,3-диаллилбензимидазолийбромид (1) ва 1,3-диаллилбензотриазолийбромид (2) мономер тузларининг ҳосил бўлиш реакция схемаларини қуйидагича ифодалаш мумкин:

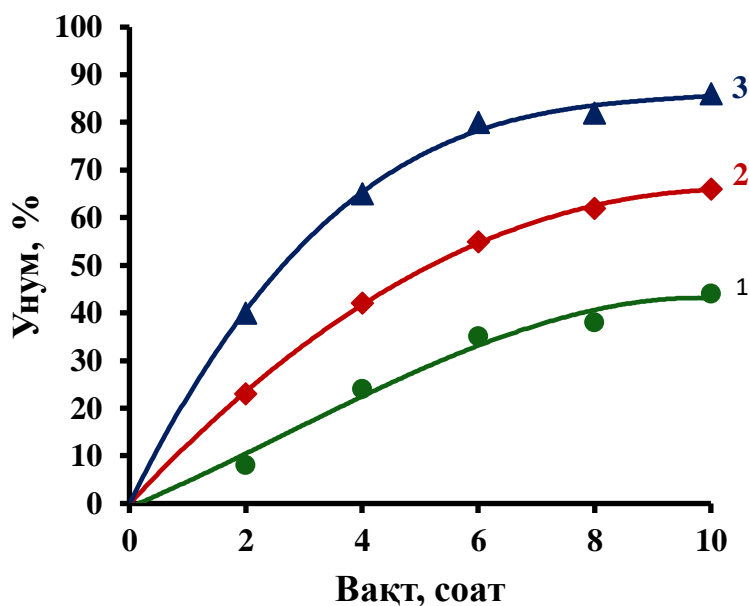


Экспериментал тадқиқотларга кўра, синтез қилинган 1,3-диаллилбензимидазолий ва 1,3-диаллилбензотриазолийбромид тузлари сувда ва органик эритувчиларда (диметилформамид, этанол) яхши эриши аниқланган.

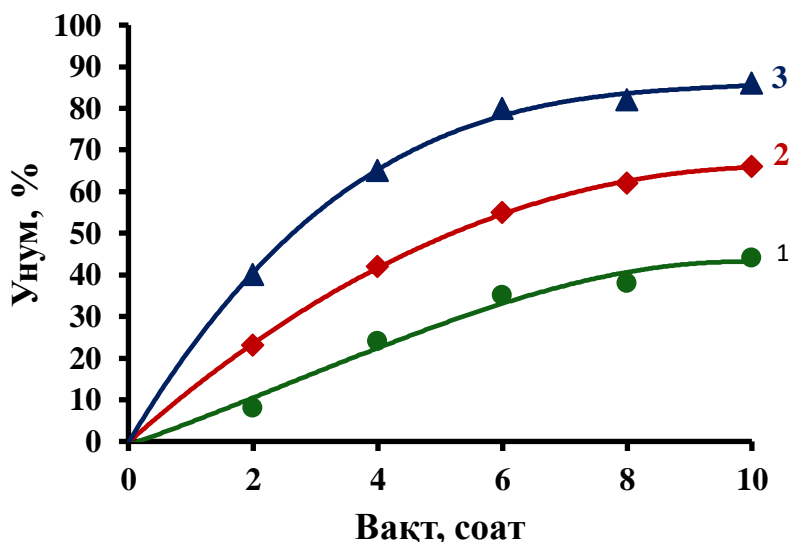
Жараённинг оптимал шароитларини аниқлаш мақсадида, эритувчининг табиати, ҳароратнинг реакция маҳсулоти унумига таъсири аниқланган.

Тадқиқот натижаларига асосан, бензимидазол, бензотриазолларни аллилбромид билан аллиллаш реакциясида энг яхши эритувчи сифатида этанол

танланган. 1,3-диаллилбензимидазолий ва 1,3-диаллилбензотриазолийбромид тўртламчи аммоний тузларини ҳосил бўлиш унумига ҳароратнинг таъсири аниқланган (1,2-расмлар).



**1-расм. 1,3-диаллилбензимидазолийбромиднинг ҳосил бўлиш унумига реакция давомийлигини турли ҳароратларда таъсири, °C: 1-20; 2-40; 3-60**



**2-расм. 1,3-диаллилбензотриазолийбромиднинг ҳосил бўлиш унумига реакция давомийлигини турли ҳароратларда таъсири, °C: 1-30; 2-50; 3-70**

Олинган натижаларга кўра, ҳарорат кўтарилиши билан тузларнинг унуми ортар экан. 60°C да 1,3-диаллилбензимидазолийбромид унуми 80%, 1,3-диаллилбензотриазолийбромидники эса 84% етиши кузатилди. Синтез қилинган мономерларнинг физик-кимёвий хоссалари ўрганилди (1-жадвал).

1-жадвал

Синтез қилинган бирикмаларнинг физик-кимёвий хоссалари

№	Модданинг номи	Брутто формуласи	Агрегат ҳолати	Мол. масса	R <sub>f</sub>	d <sup>20</sup> <sub>4</sub> , г/см <sup>3</sup>	T <sub>суюқ</sub> , °C	Эрувчанлиги
1	1,3-диаллилбензимидазолйбромид (ДАБИБ)	C <sub>13</sub> H <sub>15</sub> N <sub>2</sub> Br	Оқ кристалл	279	0,24	0,9577	140-145	Сув, этанол, ДМФ
2	1,3-диаллилбензотриазолйбромид (ДАБТБ)	C <sub>12</sub> H <sub>14</sub> N <sub>3</sub> Br	Оқ кристалл	280	0,18	1,0012	135-140	Сув, этанол, ДМФ

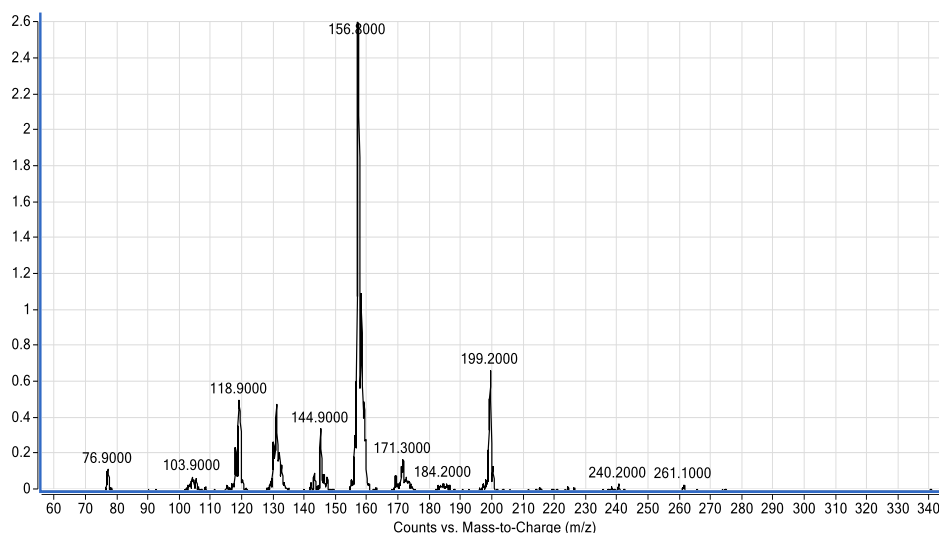
Олинган мономерларнинг структураси ИҚ-, <sup>1</sup>H ПМР-, <sup>13</sup>C ЯМР-спектрлари орқали тасдиқланди (2-жадвал, 3,4-расмлар).

2-жадвал

Синтез қилинган мономернинг ИҚ-спектр таҳлили

№	Модданинг белгиси	ν, см <sup>-1</sup>				
		ν <sub>NH<sub>4</sub><sup>+</sup></sub>	ν <sub>C=N, N=N</sub>	ν <sub>C=C</sub>	ν <sub>C-H</sub>	ν <sub>бензол халқа</sub>
1	ДАБИБ	3406	1630	1610	2956	1485
2	ДАБТБ	3066	1496	1612	2906	1450

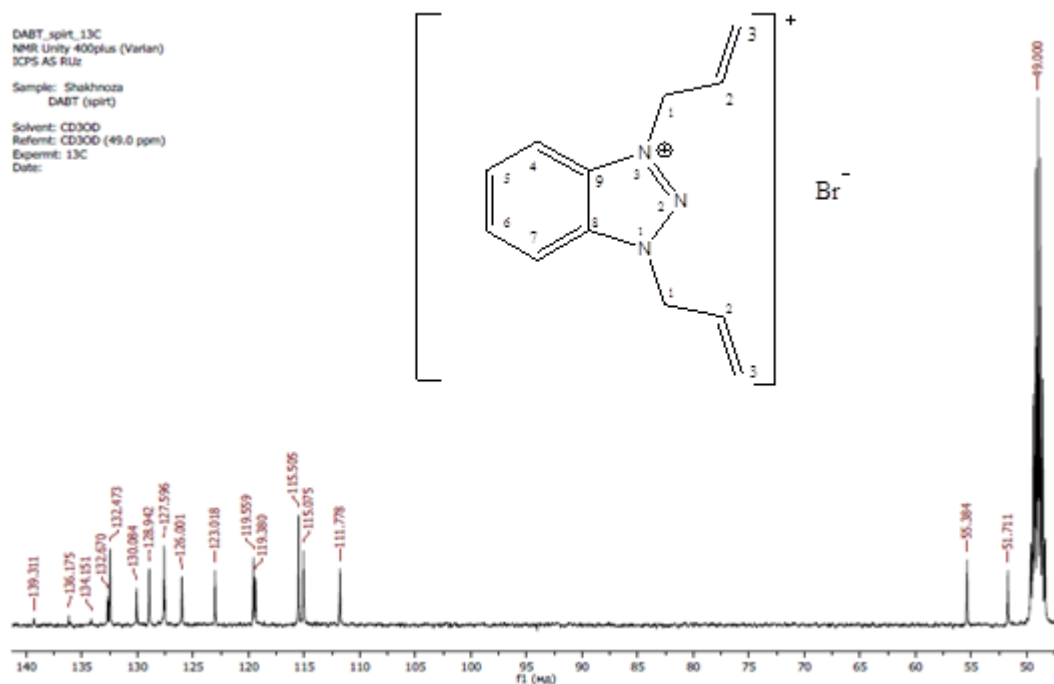
1,3-диаллилбензимидазолйбромиднинг молекуласи хромато-масс спектрда ионлаштирилганда, 3-расмдаги молекуляр массага эга бўлган ионларга хос сигналлар аниқланди. Ҳосил бўлган ионларнинг молекуляр массалари орқали синтез қилинган тўртламчи аммонийли тузнинг умумий молекуляр массаси топилди.



3-расм. 1,3-диаллилбензимидазолйбромиднинг хромато-масс-спектри.

Расмдан кўриниб турибдики, молекуляр ионнинг молекуляр чизиғи - спектрда энг юқори ютилиш соҳасини намоён қилган. Бу ҳолат ҳосил бўлган радикал катионининг юқори барқарорлигини кўрсатади. Молекуляр ионнинг парчаланиш тенденцияси ортиши билан унинг фрагмент ионларига нисбатан масса спектридаги интенсивлиги пасаяди. ДАБИБ тузининг спектрларида аллил радикалига хос бўлган  $m/z=240$  ютилиш чизиқлари аниқланди.  $\text{Br}^-$  анионнинг азот катионидан ажралиши натижасида эса,  $m/z=199$  бўлган ютилиш соҳаси кузатилган. Спектрдаги  $m/z=156,8$  соҳасидаги ютилиш чизиғининг юзага келишини,  $\text{NH}_3^+$  радикал катионидан аллил бромид молекуласининг ажралиш жараёнида ҳосил бўладиган 1-аллилбензимидазол ҳосил бўлиши билан изоҳлаш мумкин,  $m/z=118$  ва  $77$  соҳаларидаги ютилиш чизиқлари мос равишда бошланғич бензимидазол ва бензолнинг радикал катионларига хосдир.

1,3-диаллилбензотриазолийбромиднинг  $^1\text{H}$  ПМР-спектрида бензол ҳалқасининг 4-углеродида жойлашган водород атомининг кватрет сигнали 8.32 м.у. соҳада, 5 ва 6-углерод протонларининг дублет-дублет ва квадродублет сигналлари 7.93-7.83 м.у. соҳаларда, 7-углерод атоми протонининг мултиплет сигнали 7. м.у. соҳаларда кузатилди. 1,3-Диаллил-1Н-бензотриазол-1,2,3 бромид таркибидаги 1 ва 3-N атомида жойлашган аллил гуруҳлари С(1) даги ( $\text{CH}_2$ ) протонларининг дублет сигналлари 4.6 ва 3.5 м.у. соҳаларда, С(2) даги протонларнинг ( $\text{CH}=\text{}$ ) мултиплет сигналлари 6.2 ва 6.0 м.у. соҳаларда кузатилган.



4-расм. 1,3-диаллилбензотриазолийбромиднинг  $^{13}\text{C}$  ЯМР-спектри.

1,3-диаллилбензотриазолийбромид  $^{13}\text{C}$  ЯМР-спектрида 8,9 С атомининг сигналлари кучсиз майдоннинг 134 ва 136 м.у соҳаларда, 5,6 углерод атомларининг сигналлари эса 132 ва 130 м.у. соҳаларда, 4,7 углерод атомларининг сигналлари 115 ва 113 м.у. соҳаларда кузатилган. 1,3-диаллилбензотриазолийбромид таркибидаги 3-N атомида жойлашган аллил

гуруҳининг C(1) даги углерод атомининг сигнали 55 м.у. соҳада, 2 ва 3 углерод атомининг сигнали эса 128 ва 123 м.у. соҳаларда кузатилган (4-расм).

Кейинги тадқиқотларда синтез қилинган диаллил мономерларнинг радикал полимерланиш ўрганилди. 1,3-диаллилбензимидазолий ва 1,3-диаллилбензотриазолийбромид мономерларнинг радикал полимерланиш реакциялари сувли муҳитда 40-50°C ҳароратда амалга оширилди. Дастлабки тажрибалар ёрдамида мономерларнинг ўрганилган концентрацияларда радикал инициаторсиз полимерланмаслиги аниқланди. Полимерланиш реакциясининг асосий қонуниятларини аниқлаш учун турли хил омилларнинг: эритувчи ва инициаторнинг табиати, мономер ва инициатор концентрацияси, ҳарорат таъсири ўрганилди. Инициатор сифатида азобисизобутиронитрил (ДАК) ва бензоил пероксид, калий персульфатлардан фойдаланилди (3-жадвал).

### 3-жадвал

**ДАБТБ ва ДАБИБларни полимерланиш реакция шароитлари ва маҳсулот унуми.  $[I]=2 \cdot 10^{-2}$  моль/л;  $[M]=0,1$  моль/л;  $T=40$  °C; реакция давомийлиги 60 мин**

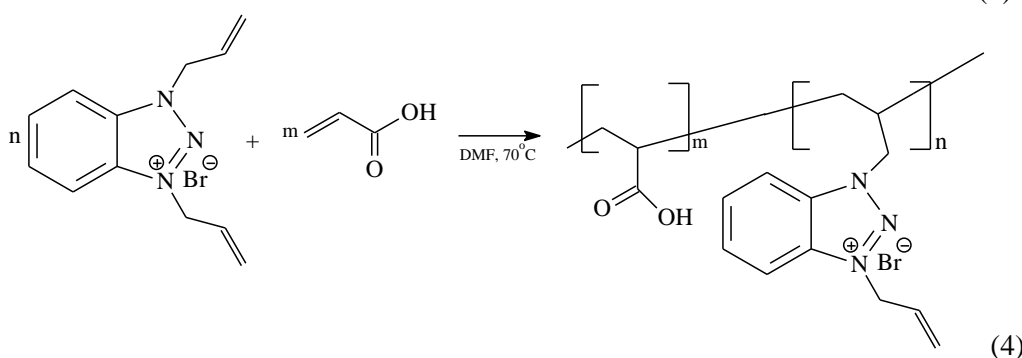
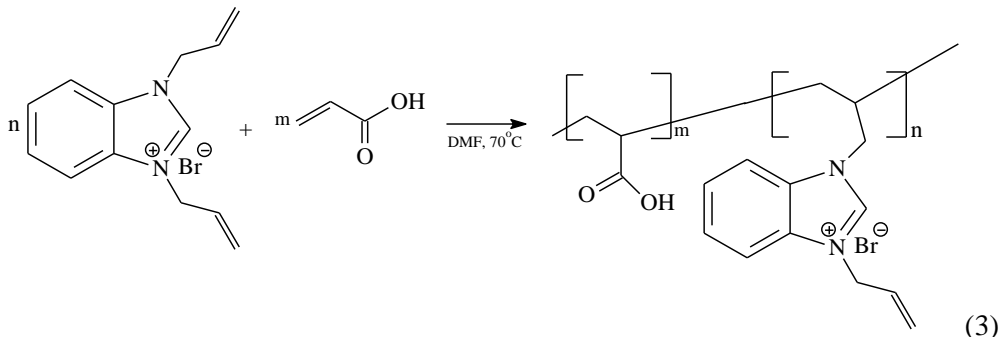
Мономер	Инициатор	Эритувчи	Маҳсулот унуми, %
1,3-диаллилбенз-имидазолийбромид	Калий персульфат	Сув	35,6
		Этанол	20,4
		ДМФА	21,2
	Азобисизобутиронитрил	Этанол	10,2
		ДМФА	15,1
	Бензоил пероксиди	Этанол	16,7
ДМФ		18,5	
1,3-диаллилбензотриазолийбромид	Калий персульфат	Сув	40,2
		Этанол	20,9
		ДМФА	21,8
	Азобисизобутиронитрил	Этанол	10,6
		ДМФА	15,3
	Бензоил пероксиди	Этанол	16,9
ДМФА		18,9	

Олинган натижаларга кўра, мономерларнинг полимерланиши сувли муҳитда калий персульфат иштирокида ўтказилганда, полимер ҳосил бўлишининг энг юқори унуми кузатилди. 1,3-диаллилбензимидазолий ва 1,3-диаллил-бензотриазолийбромид асосида олинган полимерларнинг структураси ИҚ-спектроскопия усули орқали тасдиқланди.

Винил мономерлари билан алифатик диаллил мономерларни сополимерланиш жараёнлари ҳақидаги кўплаб маълумотлар маълум. Бироқ, синтез қилинган ДАБТБ, ДАБИБ мономерлари билан акрил кислотанинг сополимерланиш жараёнлари ҳақида маълумотлар адабиётларда мавжуд эмас. Макромолекулага азотли гетероциклик тўртламчи аммонийли гуруҳ киритилганда сополимерлар иссиқликка чидамли, антисептик каби ўзига хос

хусусиятларга эга бўлади. Шу муносабат билан ДАБТБ, ДАБИБ ва акрил кислота асосида сополимерлар олиш бўйича тадқиқотлар олиб борилди.

Сополимерланиш реакцияси радикал инициаторлар иштирокида органик эритувчиларда, гомоген муҳитда амалга оширилди. ДАБТБ, ДАБИБ ва акрил кислотанинг сополимерланишини қуйидаги реакциялар орқали ифодалаш мумкин:



Сополимерланиш жараёнига турли омилларнинг таъсири: эритувчи, инициаторнинг табиати, реакция вақти ва маҳсулот унуми ўрганилди (4-жадвал).

**4-жадвал**

**Сополимерланиш жараёнига эритувчилар, инициатор табиатини таъсири:  
ДАБТБ:АК, ДАБИБ:АК=1:1; [I]=2·10<sup>-2</sup> моль/л; t=70 °С**

Сомономерлар		Инициатор	Эритувчи	Реакция давомийлиги, мин ва маҳсулот унуми, %		
				20	50	80
ДАБИБ	АК	Азобисизо-бутиронитрил (ДАК)	Метанол	15,5	30,4	30,6
			Этанол	21,4	42,1	42,2
			ДМФА	35,8	72,3	72,6
		Бензоил пероксид	Метанол	6,3	10,3	10,4
			Этанол	13,1	25,4	25,5
			ДМФА	7,1	15,5	15,6
ДАБТБ	АК	Азобисизо-бутиронитрил	Метанол	16,4	32,3	32,4
			Этанол	23,2	44,5	44,8
			ДМФА	35,8	78,2	78,3
		Бензоил пероксид	Метанол	6,1	12,1	12,2
			Этанол	13,4	25,6	25,7
			ДМФА	8,5	16,2	16,3

Юқоридаги натижалардан, ДАК инициатори иштирокида ДМФА муҳитида энг юқори унуми билан сополимер ҳосил бўлганлигини кўриш мумкин. Ҳосил бўлган сополимерлар таркибига мономерлар аралашмалари таркибининг таъсири аниқланди (5-жадвал).

**5-жадвал**

**Сополимерлар таркибини мономерлар аралашмасига боғлиқлиги:  
эритувчи ДМФА, T=70 °C, [ДАК]=2·10<sup>-2</sup> моль/л**

Дастлабки мономер аралашманинг таркиби, мол.%		Сополимерлар унуми, %	Vr микдори, %	Сополимерлар таркиби, мол.%		[η], дЛ/г
M <sub>1</sub>	M <sub>2</sub>			m <sub>1</sub>	m <sub>2</sub>	
<b>ДАБИБ (M<sub>1</sub>) ва АК (M<sub>2</sub>)</b>						
10	90	15,2	2,0	8,1	91,3	0,241
30	70	14,2	4,6	20,1	74,2	0,232
50	50	12,0	9,3	40,8	54,4	0,224
70	30	10,1	13	60,0	35,1	0,130
90	10	7,9	19,3	84,6	15,4	0,120
<b>ДАБТБ (M<sub>1</sub>) ва АК (M<sub>2</sub>)</b>						
10	90	16,00	1,88	8,27	91,73	0,286
30	70	14,5	5,21	22,90	77,10	0,264
50	50	12,4	8,13	35,77	64,23	0,252
70	30	10,3	12,20	53,68	46,32	0,131
90	10	8,2	16,30	71,72	28,28	0,122

Жадвалдан, барча ҳолларда сополимерлар таркиби АК звенолари билан бойиганлигини ва уларнинг характеристик қовушқоқлиги эса дастлабки мономерлар аралашмасида ДАБИБ ва ДАБТБ микдорини ортиши билан камайишини кўриш мумкин.

Сополимерланиш константаларини аниқлаш учун Файнман-Росс ва аналитик усуллардан фойдаланилди (6-жадвал).

**6-жадвал**

**Сополимерланиш константалари қийматлари**

Усул номи	r <sub>1</sub>	r <sub>2</sub>	1/ r <sub>1</sub>	1/ r <sub>2</sub>	r <sub>1</sub> ·r <sub>2</sub>
<b>ДАБИБ – АК</b>					
Файнман- Росс	0,33±0,32	1,38±0,48	3,03	0,72	0,45
Аналитик	0,29±0,27	1,35±0,40	3,4	0,74	0,39
<b>ДАБТБ – АК</b>					
Файнман- Росс	0,40±0,39	1,5±0,50	2,5	0,66	0,60
Аналитик	0,32±0,30	1,47±0,46	3,1	0,68	0,47

Келтирилган маълумотлардан кўриниб турибдики, икки усул билан ҳисобланган сополимерланиш константаларининг қийматлари бир-бирига



сезиларли даражада яқин ва қийматлари  $r_1 < 1$ ,  $r_2 > 1$ . Демак, дастлабки мономер аралашмаларининг барча таркибида фаолроқ компонент бўлган АК билан бойган сополимер ҳосил бўлар экан. Кўриниб турибдики, бу ҳолат АК мономерини "ўзини" ва "бегона" фаол марказларга бирикиш реакцияларининг устунлиги туфайли юзага келиши ва  $r_1 < 1$ ,  $r_2 > 1$  бўлганда сополимер макромолекулаларида  $m_2$ - $m_2$  диадли звеноларнинг ҳосил бўлиш эҳтимоли кўпроқ бўлиши мумкин.

Синтез қилинган мономерларни полиолефин плёнкалари учун УБ стабилизаторлик хусусиятини ўрганиш бўйича тадқиқотлар ЎзРФА «Полимерлар кимёси ва физикаси» институтида олиб борилди. Ишда Шўртангаз кимё мажмуасининг F-0320 маркали полиэтилендан фойдаланилди.

УБ-нурланишнинг манбаи сифатида 280-350 нм тўлқин узунлик режимида ишлайдиган 60 Вт қувватига эга УБ-камеранинг TUV15W/G15T8 лампаларидан фойдаланилди. УБ-нурланиш манбаидан (TUV15W/G15T8 лампалардан) камеранинг ичидаги энг чекка нуқталаригача нурланиш камида 1 Вт/м<sup>2</sup> ни ташкил этди. Диаметри тахминан 0,1 мм қалинликдаги пленкаларни синаш 35 °С ҳароратда 480 соат давомида УБ-нурлар таъсирида амалга оширилди. Пленкаларнинг асосий кўрсаткичларини ўлчаш илмий-техник нормативларга мувофиқ амалга оширилди (ГОСТ Р 58061-2018, ГОСТ 29104.11-91).

## 7-Жадвал

### Полиэтилен пленка намуналарининг технологик хусусиятлари

Пленка номи	Узилиш мустаҳкамлиги, МПа		Узилишдаги нисбий чўзилиш даражаси, %	
	УБ нурланишдан олдинги	УБ нурланишдан кейинги (480 соат)	УБ нурланишдан олдинги	УБ нурланишдан кейинги (480 соат)
<b>ПЭ контрол</b>	17,4	15,9	667	630
<b>ПЭ ва ДАБТЬ 1%</b> Бўйига	17,9	16,5	876	710
Энига	18,2	17,8	900	780
<b>ПЭ ва ДАБТЬ 2%</b> Бўйига	19,6	18,0	958	856
Энига	20,1	19,5	980	878
<b>ПЭ ва ДАБТЬ 3%</b> Бўйига;	21,2	20,6	990	899
Энига	22,4	21,8	1000	960
<b>ПЭ ва UV-234 3%</b> (эталон) Бўйига	21,0	19,4	988	870
Энига	22,0	20,4	900	930

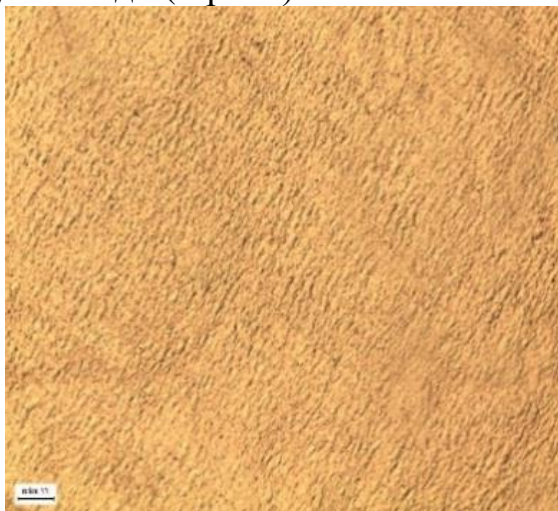
1,3-диаллилбензотриазолийбромид ва 1,3-диаллилбензимидазолийбромидларни полиэтилен плёнкаларининг технологик хоссаларига таъсирини ўрганиш учун уларни оптимал концентрацияси танланди. Модификация

қилинган полиэтилен пленкаларни УБ нурланишдан олдинги, УБ нурланишдан кейинги физик-механик хусусиятлари аниқланди (пленка қалинлиги 0,1 мм; 7-жадвал).

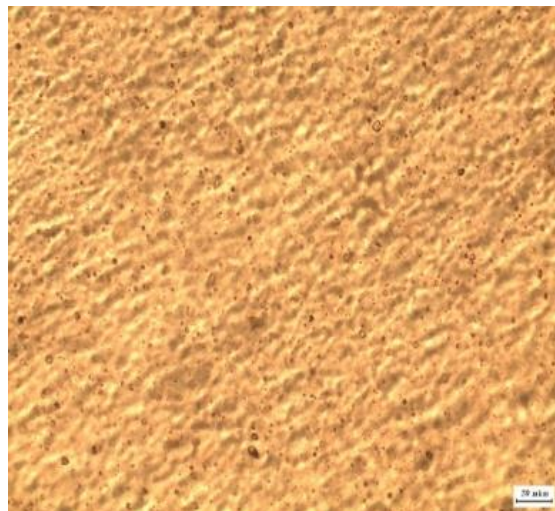
7-жадвалда келтирилган натижаларга кўра, 3% стабилизатор қўшилган намунанинг УБ-нурига бардошлилиги юқори эканлигини кўриш мумкин.

Модификацияланган намуналарнинг УБ-нурлар таъсирида 480 соат давомида нурланиши натижасида чўзилишдаги мустаҳкамлигининг ортиши, нурланишнинг давом эттириш натижасида чўзилишдаги мустаҳкамликнинг камайиши кузатилган. Буни дастлабки эскириш даврида ултрабинафша нурлар таъсирида полиэтиленни фотооксидлаш муҳитида қайта кристалланиши, сўнгра нурланиш вақтини узайиши натижасида полиэтилен молекуляр занжирининг деструкцияланиши билан тушунтириш мумкин. Бунда полиэтиленнинг бирламчи кристалл структураси парчалангани ва узилиш мустаҳкамлиги камаяди (7-жадвал).

Шунингдек, дастлабки полиэтилен ва модификацияланган полиэтилен намуналарининг атом кучланиш микроскопида (АКМ) ҳам тадқиқотлар ўтказилди (5-расм).



А)



Б)

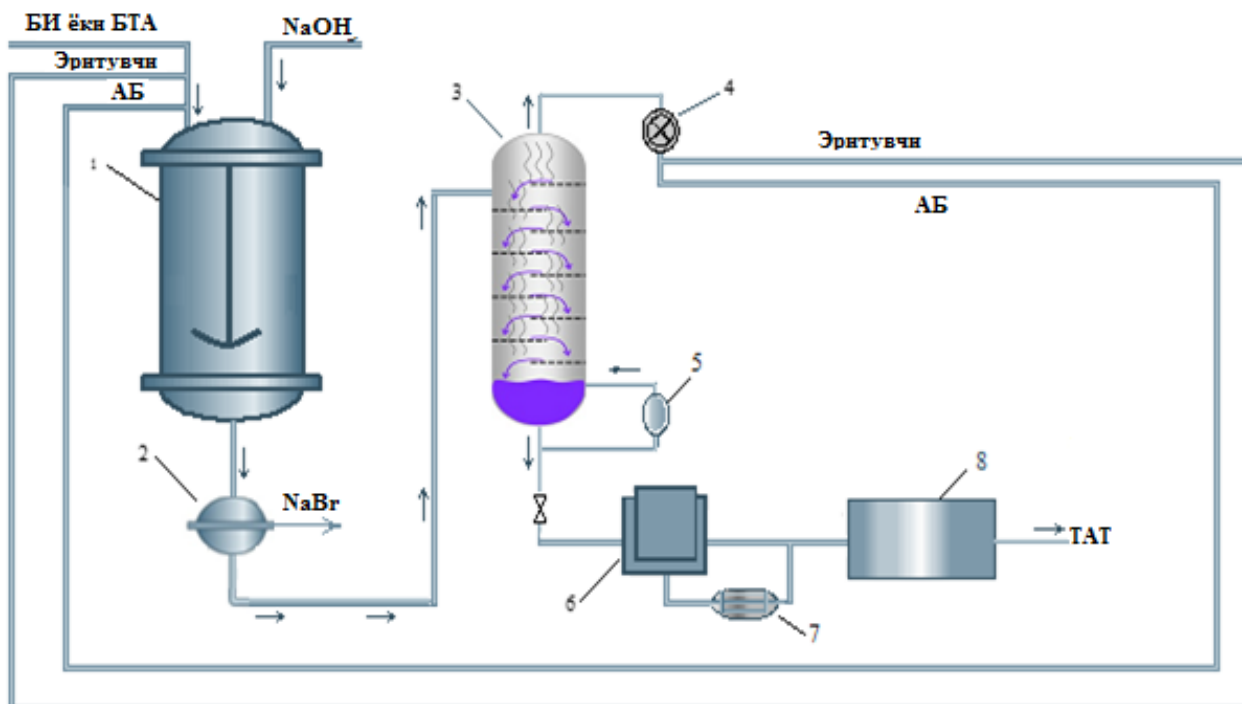
**5-расм. ПЭ пленкасининг атом кучланиш микроскопдаги тасвири:  
А - ПЭ; Б – модификацияланган полиэтилен (3% ДАБТБ).**

Расмда модификацияланмаган ПЭ пленкаси сферик шаклдаги структуралардан иборат бўлиб плёнка юзасининг релефи деярли бир хил эканлигини, модификацияланган ПЭ юзасида эса майда қатламланган дисперсли структуралар ҳосил бўлганлигини, яъни модификатор заррачаларини пленка юзасида тақсимланганлигини кўриш мумкин. Уларнинг ўртача диаметри 184 нм ташкил этади.

Синтез қилинган мономер (ДАБТБ) «ОАК Джизак пластмасса» ва «ООО Qayum Xojı Servız» корхоналарда синовдан ўтказилди ва полиэтилен пленкалари учун УБ-стабилизатор сифатида тавсия этилди.

Юқорида баён қилинган тадқиқотлар натижасида бензимидазол ёки бензотриазол асосида диаллил мономерлар олишнинг принципиал технологик

схемаси таклиф этилди (6-расм). Бензотриазол (ёки бензимидазол) билан аллил бромид асосида диаллил мономер тузларини ишлаб чиқаришни даврий ва узлуксиз усуллар билан амалга ошириш мумкин.



**6-расм. Бензимидазол ёки бензотриазол асосида диаллил мономерлар олишнинг принципиал технологик схемаси:**

1-реактор; 2- фильтр 3-хайдаш колоннаси; 4-конденсатор; 5- қайнатгич; 6- йиғгич; 7- совитгич; 8-қуритгич шкаф.

Керакли миқдорда бензотриазол ёки бензотриазол, эритувчи (этанол), аллилбромид, NaOH 1-аралаштиргичли реакторга солинади ва аралаштирилади. Реакция атмосфера босимида 70°C ҳароратда 10 соат давомида доимий аралаштириш билан олиб борилади. Реакция тугагандан кейин реакция массаси 2-фильтр орқали ўтказилади ва NaBr дан ажратиб олинади.

Реакция массасини эритувчи ва реакцияга киришмаган аллил бромиддан тозалаш учун 3-хайдаш колоннасига ўтказилади ва атмосфера босимида 71 ва 78 °C ҳароратда аллил бромид ва этанол ҳайдалади. Уларнинг буғлари 4-конденсаторда совигандан сўнг яна қайта ишлатиш учун 1-реакторга юборилади. Эритувчи ва аллил бромиддан тозаланган реакция массаси 20-25°C ҳароратда 7 совитгич орқали совутилади ва 8-қуритиш шкафига йўналтирилади. Маҳсулот ҳосил бўлиш унуми 86% тенг.

## ХУЛОСА

1. Бензимидазол, бензотриазол ва аллил бромид асосида янги диаллил аммонийли мономерлар синтез қилишнинг юқори самарали усули тавсия этилди.

2. Олинган диаллил тўртламчи аммонийли мономерларнинг тузилиши ИҚ-, ЯМР-, ПМР- спектроскопия ва хромато масс спектрометрия усуллари ёрдамида аниқланди.

3. Синтез қилинган 1,3-диаллилбензимидазолий ва 1,3-диаллил-бензотриазолийбромид мономерларининг радикал полимерланиш реакцияси ўрганилди. Олинган мономерларнинг полимерланиш шароитлари ва унга таъсир этувчи омиллар: эритувчи, инициатор табиати, мономер ва инициатор концентрацияси, ҳароратлар таъсири аниқланди.

4. 1,3-диаллилбензимидазолий ва 1,3-диаллилбензотриазолийбромид мономер тузларининг акрил кислота билан радикал сополимерланиш жараёни тадқиқ қилинди ва синтез қилинган сополимерларнинг таркиби, тузилиши аниқланди. Сополимерлар таркибини мономерларнинг бошланғич таркибига боғлиқлик диаграммаси, диад АК звенолари ҳосил бўлиш эҳтимоллари кўрсатилган. Файнман-Росс ва аналитик усуллар билан сополимерланиш константалари  $r_1 < 1$ ,  $r_2 > 1$  эканлиги ва уларнинг қийматлари бир-бирига яқин эканлиги аниқланди.

5. Синтез қилинган 1,3-диаллилбензотриазолийбромид «Jizzak plastmassa» АЖ ва «Qayum Xoji Serviz» MChJ корхоналарида синовдан ўтказилиб, полиэтилен пленкалари учун УБ-стабилизатор сифатида тавсия этилди ва самарали препарат эканлиги аниқланди.

6. Полиэтилен пленкаларини УБ-нурлари таъсиридан сақловчи юқори самарали диаллил тўртламчи аммонийли мономерлар синтезининг техник шarti ишлаб чиқилди ва технологияси тавсия этилди.

**НАУЧНЫЙ СОВЕТ DSc.03/30.12.2019.Т.04.01.  
ПО ПРИСУЖДЕНИЮ УЧЕНЫХ СТЕПЕНЕЙ ПРИ  
ТАШКЕНТСКОМ ХИМИКО–ТЕХНОЛОГИЧЕСКОМ ИНСТИТУТЕ**  

---

**ТАШКЕНТСКИЙ ХИМИКО-ТЕХНОЛОГИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ**

**ТАДЖИЕВА ШАХНОЗА АБДУВАЛИЕВНА**

**СИНТЕЗ И ТЕХНОЛОГИЯ ПРОИЗВОДНЫХ АЗОТСОДЕРЖАЩИХ  
ГЕТЕРОЦИКЛИЧЕСКИХ СОЕДИНЕНИЙ**

**02.00.14. - Технология органических веществ и материалы на их основе**

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

**Ташкент - 2022**

Тема диссертации доктора философии (PhD) по техническим наукам зарегистрирована в Высшей аттестационной комиссии при Кабинете Министров Республики Узбекистан за номером B2019.3.PhD/T1282.

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](http://www.tktiti.uz) и информационно-образовательном портале «ZiyoNET» по адресу [www.ziyo.net.uz](http://www.ziyo.net.uz).

**Научный руководитель:**

**Максумова Ойгура Ситдиковна**  
доктор химических наук, профессор

**Официальные оппоненты:**

**Тешабаева Илмира Убайдуллаевна**  
доктор технических наук, доцент

**Худойбердиева Дилфуза Бахрамовна**  
доктор технических наук, профессор

**Ведущая организация:**

**Ташкентский Государственный технический университет имени И.А.Каримова**

Защита диссертации состоится « 03 » 03 2022 г. в « 9<sup>00</sup> » часов на заседании Ученого совета № DSc.03/30.12.2019.T.04.01. при Ташкентском химико-технологическом институте по адресу: 100011, г. Ташкент, Шайхонтохурский р-н, ул. А.Навои, 32. Тел.: (99871) 244-79-20), факс: (99871) 2447917, e-mail: [tkti\\_info@edu.uz](mailto:tkti_info@edu.uz). Административное здание Ташкентского химико-технологического института, 2-этаж, конференц-зал.

С диссертацией можно ознакомиться в Информационно-ресурсном центре Ташкентского химико-технологического институт (зарегистрирована за № 287). Адрес: 100011, г. Ташкент Шайхонтохурский р-н, ул. А.Навои, 32. Тел.: (99871) 244-79-20).

Автореферат диссертации разослан « 18 » 02 2022 года.

(протокол реестра рассылки № 96 от « 18 » 02 2022 г.).



**Туробжонов С.М.**  
Председатель научного совета  
по присуждению учёных степеней,  
д.т.н., профессор

**Кадиров Х.И.**  
Учёный секретарь научного совета по  
присуждению учёных степеней, д.т.н., профессор

**Рахмонбердиев Г.**  
Председатель научного семинара  
при научном совете по присуждению  
учёных степеней, д.х.н., профессор

## **ВВЕДЕНИЕ (аннотация диссертации доктора философии (PhD))**

**Актуальность и востребованность темы диссертации.** На сегодняшний день в мире полиазотсодержащие гетероциклические соединения, конденсированные с бензольным кольцом используются в качестве, полимерных материалов, устойчивых к воздействию ультрафиолетовому излучению, красителей, ингибиторов коррозии, присадок к топливу и маслам, каучуков, ускорителей процессов вулканизации, стабилизаторов полимерных композиций. При этом важно проводить научные исследования по получению веществ с практически полезными свойствами путем переработки производных гетероциклических соединений, содержащих активные функциональные группы.

В мире ведутся ряд научных исследований по разработке УБ стабилизаторов на основе двух и трех азотгетероатомных мономеров. В этом направлении уделяется особое внимание разработке технологии получения УБ стабилизаторов и проведению их испытаний, синтезу бензимидазола с активно реакционным центром бензольного и азольного кольца, мономерных солей на основе имидазолия путем N - аллилирования бензотриазолов и их применению в качестве добавок повышающих механических свойств, уменьшающих деструкцию полимерных матриц, устойчивых к высокой температуре и влиянию солнечных лучей.

В результате масштабных мер, принятых в последние годы в республике, достигаются определенные научные и практические результаты в модернизации химической и фармацевтической промышленности, расширении ассортимента конкурентоспособной продукции, создании новых запасов сырья, разработке технологий импортозамещающей продукции, в том числе синтезу новых ненасыщенных гетероароматических соединений на основе азотсодержащих гетероциклических соединений и из них полимерных материалов, устойчивых к ультрафиолетовому воздействию. В Стратегии действий Республики Узбекистан на 2017-2021 годы поставлена задача по «Дальнейшей модернизации и диверсификации промышленности за счет перехода на качественно новый уровень высокотехнологичных обрабатывающих производств, особенно разработке готовой продукции с высокой добавленной стоимостью на основе глубокой переработки местного сырья»<sup>1</sup>. При этом важное значение имеют научные исследования, направленные на получение 1,3-диаллилбензимидазолийбромидных, 1,3-диаллилбензотриазолийбромидных мономерных солей на основе бензимидазола и бензотриазола, оптимизации технологий радикальной полимеризации и сополимеризации.

Данное диссертационное исследование в определенной степени служит выполнению задач, предусмотренных в Указе Президента Республики Узбекистан от 7 февраля 2017 года № УП-4947 «О стратегии действий по пяти

---

<sup>1</sup> Указ Президента Республики Узбекистан от 7 февраля 2017 года № УП-4947 «О стратегии действий по пяти приоритетным направлениям развития Республики Узбекистан в 2017-2021 годах»

приоритетным направлениям развития Республики Узбекистан в 2017-2021 годах», Постановлениях Президента Республики Узбекистан от 25 октября 2018 года № ПП-3983 «О мерах по ускоренному развитию химической промышленности Республики Узбекистан», от 3 апреля 2019 года № ПП-4265 «О мерах по дальнейшему реформированию и повышению инвестиционной привлекательности химической промышленности» и Распоряжению Президента Республики Узбекистан от 6 апреля 2017 года № Р-4891 «О критическом анализе объема и структуры импорта товаров (работ, услуг), углублению локализации производства импортозамещающей продукции», 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 VII «Химическая технология и нанотехнология» приоритетным направлением развития науки и технологии республики.

**Степень изученности проблемы.** Научно-исследовательские работы по синтезу азосодержащих гетероциклических соединений, развитие химии и технологии гетероциклических мономеров и полимеров в мире велись с такими учёными как Т.В. Maram, M.N. Moustafa, B. Sundararaju, V. Gangavaram, B.A. Кабанов, Д.А. Топчиев, Ю.А. Малкандуев, И.В.Ведерников, Т.А. Подковырина, М.Р. Байрамов, Ш.З. Гасимова, В.С. Васин, Т. Ю. Колдаева, М.Г. Воронков, О.М. Трофимова, А.В. Гордеева, В.А. Анисимова, академик А.Т.Джалилов, академик С.Р. Рашидова, академик М. А. Асқаров, Д. Юсупов, А.Г. Махсумов, С.М. Туробжонов, О.М. Яриев, Т.Б. Бобоев, О.С. Максимова, А.С. Рафиков и др.

Ими были созданы научные основы, исследованы структуры и рекомендованы технологии производства процессов квартернизации, аллилирования по гетероатому и алкилирования гетероциклических соединений с заданными свойствами.

При этом приоритетной задачей является разработка эффективных методов получения гетерофункциональных мономеров гетероатомных бензозолов, содержащих в гетероцикле два и три атома азота, определение условий и кинетических закономерностей процесса их радикальной полимеризации, оптимизация технологий получения полимерных материалов, устойчивых к химическим реагентам и ультрафиолетовому воздействию.

**Связь диссертационного исследования с планами научно-исследовательских работ высшего образовательного учреждения, где выполнена диссертация.** Диссертационная работа выполнена в соответствии с планом научно-исследовательских работ Ташкентского химико-технологического института и в рамках научно-прикладных и фундаментальных проектов по темам «А12-75 Создание биологически активных препаратов для обработки кож» (2015-2017 гг.) и Ф7-04 «Разработка научных основ, установление закономерностей взаимосвязи структуры и свойств функционально-активных соединений на основе промежуточных продуктов (жидких олефинов) Шуртанского газо-химического комплекса



(2017-2020 гг.).

**Целью исследования** является разработка технологии получения азотсодержащих гетероциклических соединений – производных бензимидазола и бензотриазола.

**Задачи исследования:**

получение 1,3-диаллилбензимидазолий и 1,3-диаллилбензотриазолий-бромидных мономерных солей на основе реакции аллилирования бензимидазола и бензотриазола;

исследование процесса реакции радикальной полимеризации синтезированных 1,3-диаллилбензимидазолий, 1,3-диаллилбензотриазолийбромидных мономерных солей и процессов их сополимеризации с акриловой кислотой;

определение структуру и физико-химических свойств продуктов, синтезированных на основе бензимидазола и бензотриазола;

модификация полиэтилена полученным диаллильным мономером и определение его физико-механических свойств;

изучение практического применения синтезированных соединений и их использование в качестве УФ-стабилизаторов полиэтиленовых пленок;

разработка технологии получения производных бензотриазола и бензимидазола.

**Объектом исследования** являются бензотриазол, бензимидазол, бромистый аллил, акриловая кислота, а также диаллильные соли, полимерные, сополимерные соединения с фрагментами бензотриазола и бензимидазола, модифицированные полиэтиленовые пленки.

**Предметом исследования** является получение диаллильных мономеров на основе бензотриазола и бензимидазола их полимеризации, сополимеризации с акриловой кислотой и разработка технологии процесса получения мономеров.

**Методы исследования.** В диссертационной работе использовались ИК-, ЯМР-, ПМР-спектроскопия, хромато-масс спектрометрия, термоаналитический анализ, АСМ микроскопия, также использованы математические методы статистической обработки полученных опытных данных.

**Научная новизна исследования** заключается в следующем:

Разработана способ получения четвертичных солей 1,3-диаллилбензоимидазолийбромида (80%) и 1,3-диаллилбензотриазолийбромида(84%) высоким выходом в результате реакции аллилирование бензимидазоле и бензоттриазола аллилбромидом в среде этанола при температуре 60<sup>0</sup> определены оптимальные условия процесса полимеризации четвертичных солей 1,3-диаллилбензимидазолий и 1,3-диаллилбензотриазолийбромида с участием радикальных инициаторов и доказано, что среди применяемых инициаторов персульфат калия оказался наиболее эффективным;

проведена реакция бинарной сополимеризации 1,3-диаллилбензотриазолийбромида с акриловой кислотой и установлены влияющие на

протекание процесса основные факторы, (скорость и продолжительность реакции, соотношение сомонеров, природа инициатора), а также методами Файнамана-Росса аналитическим, и вычислены константы сополимеризации процесса.

подтверждено, что соединения, полученные на основе производных бензимидазола и бензотриазола в количестве 3% проявляют защитные свойства от ультрафиолетовых лучей полиэтиленовых пленок и при этом прочность на разрыв на 13,7% и относительное удлинение при разрыве на 15,2% выше по сравнению с эталонным образцом.

разработана технология получения азотсодержащих гетероциклических соединений с фрагментами бензотриазола и бензимидазола.

**Практические результаты исследования** заключаются в следующем:

определены оптимальные условия реакции аллилирования бензимидазола и бензотриазола с бромистым аллилом с получением диаллильных мономеров;

разработана технология производства УФ-стабилизаторов для полиэтиленовых пленок на основе бензотриазола, снижающих деструкцию полимерной матрицы и повышающих механические свойства материала.

**Достоверность полученных результатов** в диссертации подтверждено современными физико-химическими методами исследований: ИК-, ЯМР-, ПМР- спектроскопия, хромато-масс-спектрометрия, термоаналитический анализ, оптическая и АСМ микроскопия. Также применены технологические, физико-механические, технические методы, подтверждены опытно-промышленными испытаниями.

**Научная и практическая значимость результатов исследования.**

Научная значимость результатов исследования объясняется тем, что впервые осуществлен синтез диаллильных мономеров на основе бензимидазола, бензотриазола с бромистым аллилом и их радикальная полимеризация, а также определены оптимальные условия процессов получения линейных полимерных продуктов в результате реакций сополимеризации с акриловой кислотой.

Практическая значимость исследований заключается в получении мономеров на основе азотистых гетероциклических соединений – бензимидазола, бензотриазола и полимерных соединений, устойчивых к высоким температурам, и их рекомендация для использования в качестве эффективных УФ-стабилизаторов полиэтиленовой пленки, защищающих от ультрафиолетовых лучей.

**Внедрение результатов исследования.** На основе полученных научно-исследовательских результатов по синтезу и технологии производства азотсодержащих гетероциклических соединений производных бензимидазола и бензотриазола:

стандарт организации производства мономера на основе бензотриазола и бромистого аллила утвержден Агентством «O'ZSTANDART» (Ts 201912314-001:2021). В результате дало возможность получение УФ-стабилизаторов предотвращающие деструкцию полиэтиленовых пленок;

производство четвертичных аммониевых солей бромистого 1,3-диаллилбензотриазола путем аллилирования бензотриазола бромистым аллилом, включено в перспективный план проекта производство АО «Джиззак пластмасса» (справка АО «Узкимёсаноат» от 6 мая 2021 года №14). -1698). В результате появилась возможность производить полиэтиленовые пленки, устойчивые к высоким температурам и солнечным лучам.

**Апробация результатов исследования.** Результаты исследования обсуждены на 3 международных и 5 республиканских научно-технических конференциях.

**Опубликованность результатов исследования.** По теме диссертации опубликовано всего 13 научных работ, из них 5 научных статей, в том числе 3 в республиканских и 2 в зарубежных журналах, рекомендованных Высшей аттестационной комиссией республики Узбекистан для публикации основных научных результатов диссертации (PhD).

**Структура и объем диссертации.** Структура диссертации состоит из введения, трех глав, заключения, списка использованной литературы и приложения. Объем диссертации состоит из 111 страниц.

### **ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ ДИССЕРТАЦИИ**

**Во введении** обосновывается актуальность и востребованность темы диссертации, формулируются цель и задачи, объект и предмет исследования, приводится соответствие исследования приоритетным направлениям развития науки и технологий в Республике Узбекистан, раскрыта научная новизна, научная и практическая значимость полученных результатов и их внедрение в практику, приведены сведения по достоверности апробации и публикации сведения о структуре диссертации.

**В первой главе** диссертации «**Современное состояние получения, свойств и областей применения азотсодержащих гетероциклических соединений**» состоит из трех параграфов, включающие в себя синтез, свойства и применение гетероциклических соединений на основе бензимидазола и бензотриазола, полимеризация и сополимеризация диаллиловых мономеров, синтез и исследование получение УФ-стабилизаторов на основе бензимидазола и бензотриазола. На основе проанализированных обзоров литературы были определены цели и задачи исследования.

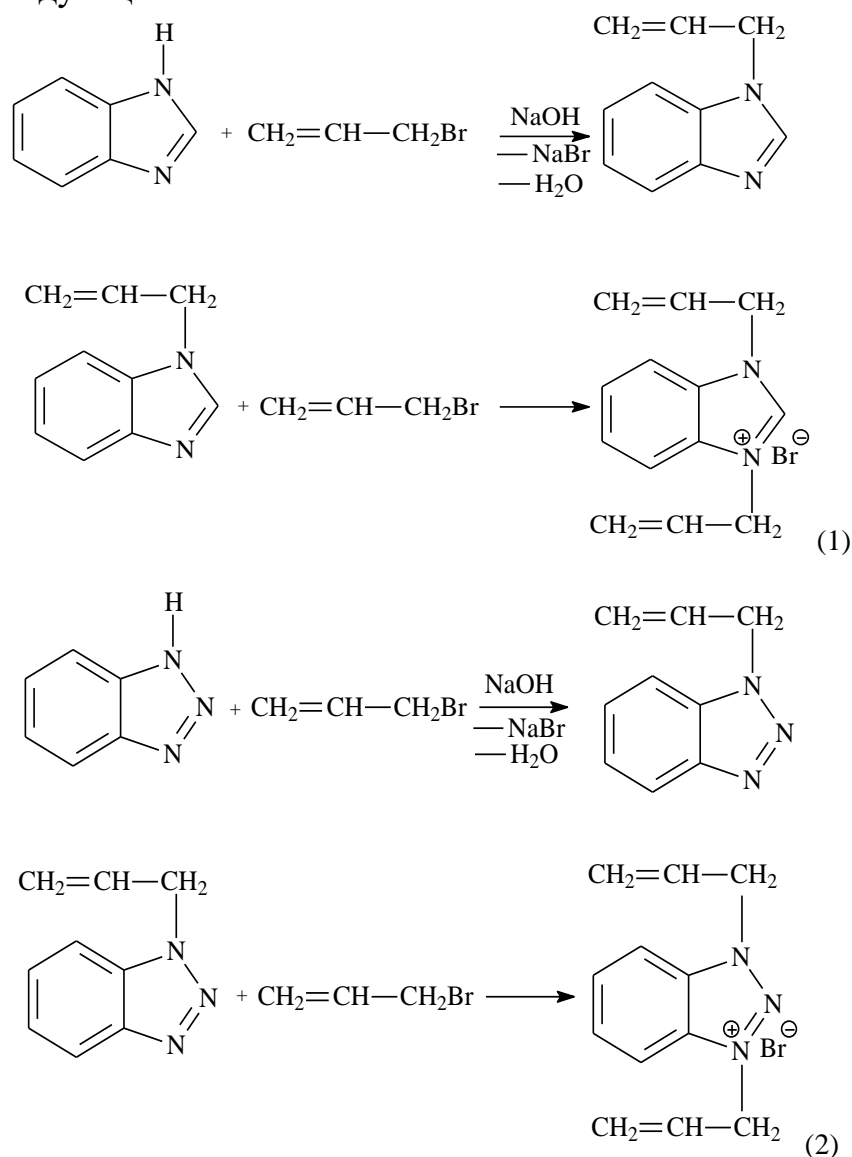
**Во второй главе** диссертации «**Физико-химические свойства исходных реагентов, методы получения продукции и их исследования**» представлены выбранные для исследования объекты, методы получения и изучения физико-химических свойств. Описаны способы получения 1,3-диаллилбензимидазолий и 1,3-диаллилбензотриазолийбромидных четвертичных аммониевых солей на основе реакций аллилирования бензимидазола и бензотриазола, радикальная полимеризация и их сополимеризация с акриловой кислотой. Физико-химические методы определения состава и структуры синтезированных веществ.

**Третья глава** диссертации «**Синтез, свойства и технология производных бензимидазола, бензотриазола**» посвящена процессам

получения 1,3-диаллилбензимидазолий и 1,3-диаллилбензотриазолийбромидных солей на основе бензимидазола, бензотриазола, радикальной полимеризации и их сополимеризации с акриловой кислотой.

Изучено влияния различных факторов (природу растворителей, соотношение реагентов, температуры, продолжительности реакции и др.) на выход мономерных и полимерных продуктов, процессы радикальной полимеризации и сополимеризации, а также физико-механические свойства полимера (ПЭ), модифицированные с помощью синтезированных мономеров.

Сначала были синтезированы 1,3-диаллилбензимидазолий и 1,3-диаллилбензотриазолийбромидные мономерные соли на основе бензотриазола и бензимидазола. Реакции взаимодействия бензимидазола и бензотриазола с бромистым аллилом с образованием мономерных солей 1,3-диаллилбензимидазолийбромида (1) и 1,3-диаллилбензотриазолийбромида (2) можно представить следующими схемами:

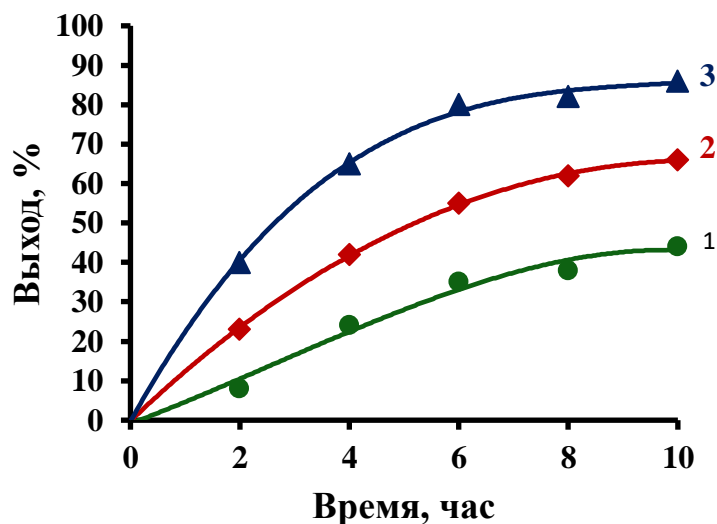


Экспериментальными исследованиями показано, что синтезированные соли 1,3-диаллилбензимидазолий и 1,3-диаллилбензотриазолийбромид хорошо растворяются в воде и органических растворителях (диметилформамид и

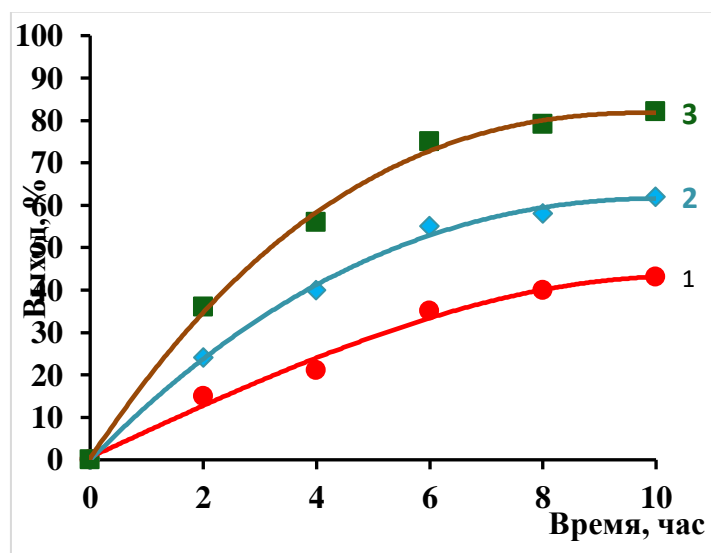
этанол). Для определения оптимальных условий процесса изучено влияние природы, температуры на выход реакционных продуктов.

Проведенные исследования показывают, что наилучшим растворителем для реакции аллилирования бензимидазола и бензотриазола с бромистым аллилом является этанол.

Установлено влияние температуры на выход образующихся четвертичных аммониевых солей 1,3-диаллилбензимидазолий и 1,3-диаллилбензотриазолийбромид (рис.1,2).



**Рис. 1. Зависимость выхода 1,3-диаллилбензимидазолийбромида от продолжительности реакции при различных температурах, °С: 1-20; 2-40; 3-60.**



**Рис.2. Зависимость выхода 1,3-диаллилбензотриазолийбромида на продолжительности реакции при различных температурах, °С: 1-30; 2-50; 3-70.**

Согласно полученным результатам, с повышением температуры выход солей увеличивался. При 60°C наблюдалось, что выход 1,3-диаллил-

бензимидазолийбромида достигает 80%, 1,3-диаллилбензотриазолийбромида 84%.

Изучены физико-химические свойства синтезированных мономеров (таблица 1).

Таблица 1

**Физико-химические свойства синтезированных соединений**

№	Формула	Брутто формула	Агрегатное состояние	Мол. масса	R <sub>f</sub>	d <sup>20</sup> <sub>4</sub> , г/см <sup>3</sup>	T <sub>пл.</sub> , °C	Растворяется в
1	1,3-диаллил-бензимидазолийбромид	C <sub>13</sub> H <sub>15</sub> N <sub>2</sub> Br	Белые кристаллы	279	0,24	0,9577	140-145	воде, этаноле, ДМФ
2	1,3-диаллил-бензотриазолийбромид	C <sub>12</sub> H <sub>14</sub> N <sub>3</sub> Br	Белые кристаллы	280	0,18	1,0012	135-140	воде, этаноле, ДМФ

Структура синтезированных мономеров подтверждена ИК-, <sup>13</sup>C-ЯМР, <sup>1</sup>H ПМР спектроскопическими методами.

Таблица 2

**ИК-спектральный анализ синтезированного мономера**

№	Название вещества	ν, см <sup>-1</sup>				
		ν <sub>NH4+</sub>	ν <sub>C=N, N=N*</sub>	ν <sub>C=C</sub>	ν <sub>C-H</sub>	ν <sub>бенз.кольцо</sub>
1	ДАБИБ	3406	1630	1610	2956	1485
2	ДАБТБ	3066	1496	1612	2906	1450

Молекула синтезированного 1,3-диаллилбензимидазолийбромида разлагается на ионы с нижеуказанной молекулярной массой, которые приведены на рис.3. Определена общая молекулярная масса синтезированной четвертичной аммониевой соли по молекулярным массам полученных ионов.

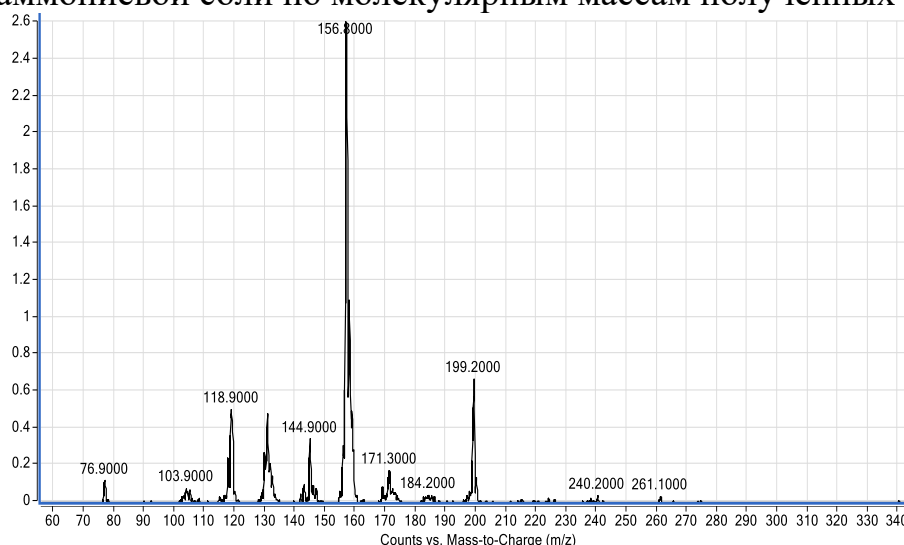


Рис. 3. Хромато-масс-спектры 1,3-диаллилбензимидазолийбромида.

Как видно из рисунка пик молекулярного иона – молекулярный пик – является в спектре самым интенсивным, что свидетельствует о высокой устойчивости образующегося катион-радикала. По мере увеличения склонности молекулярного иона к фрагментации, его интенсивность в масс-спектре относительно осколочных ионов будет падать. Найдено, что в спектрах ДАБИБ соли присутствуют пики с  $m/z=240$ , соответствующие отрыву аллильного радикала; при отрыве аниона  $\text{Br}^-$  от катиона азота происходит образование пика с  $m/z=199$ . Появление в спектре пика с  $m/z=156,8$  можно объяснить образованием 1-аллилбензимидазолом, которое протекает при отщеплении молекулы аллилбромида от катион радикала  $\text{N}_3^+$ . Пики с  $m/z=118$  и  $77$  обусловлены образованием катион радикалов исходного бензимидазола и бензола соответственно.

В  $^1\text{H}$  спектре ПМР- 1,3-диаллилбензотриазолийбромида наблюдается квартетный сигнал атома водорода у 4-углерода бензольного кольца в области 8,32 м.у. Дублет-дублет и квадродублет сигналов 5 и 6 углеродных протонов в областях 7,93-7,83 м.у., мультиплетные сигналы протонов в 7 углеродом атоме наблюдаются в областях 7 м.у. Дублетные сигналы протонов ( $\text{CH}_2$ ), характерные С(1) аллильным группам, расположенные у 1 и 3-Н в 1,3-диаллил-1-Н-бензотриазол-1,2,3 бромиде находятся областях 4,6 и 3,5 м.у. Мультиплетные сигналы ( $\text{CH}=\text{}$ ) протонов у С(2) наблюдаются при 6,2 и 6,0 м.у. В областях 5,6 и 5,3 видны дублетные сигналы за счет цис и транс изомеров двух протонов С(3) атомов аллильной группы.

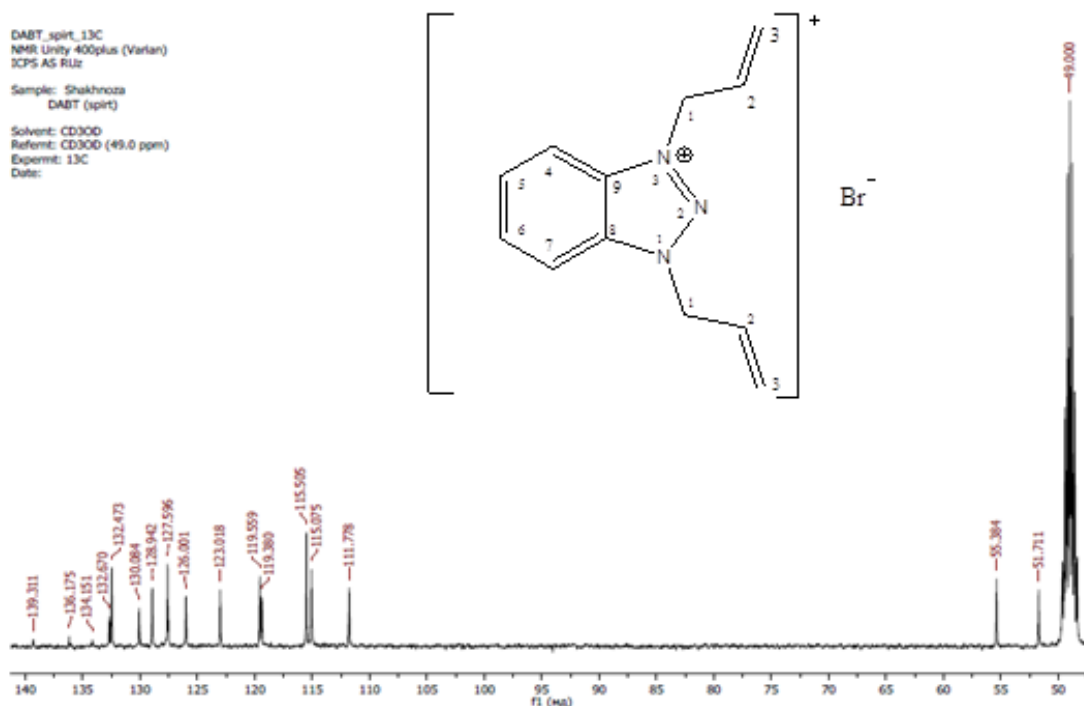


Рис. 4.  $^{13}\text{C}$  -спектр 1,3-диаллилбензотриазолийбромида.

В  $^{13}\text{C}$ -спектре 1,3-диаллилбензотриазолийбромида наблюдаются слабые сигналы 8,9 углеродных атомов в областях 134 и 136 м.у., сигналы 5,6 углеродных атомов в областях 132 и 130 м.у., сигналы 4,7 углеродных атомов в

областях 115 и 113 м.у. Дублетные сигналы (CH<sub>2</sub>) протонов, углеродного атома в С(1) аллиловой группы, расположенный в 3-N атоме находятся в области 55 м.у., а сигналы 2 и 3 углеродных атомов в областях 128 и 123 м.у. (рис. 4).

В последующих исследованиях изучена радикальная полимеризация синтезированных диаллильных мономеров. Реакции радикальной полимеризации 1,3-диаллилбензимидазолий и 1,3-диаллилбензотриазолий-бромиды осуществляли в водных растворах при температуре 40-50 °С. Проведение реакции полимеризации без инициаторов радикального характера показало, что реакция практически не протекает.

Определены условия реакции полимеризации изучено влияние различных факторов: природы растворителя, инициатора, температура, концентрации инициатора и мономера. В качестве инициаторов использовались персульфат калия, азобис-изобутиронитрил (ДАК), пероксид бензоила (табл.3).

**Таблица 3**

**Условия реакции полимеризации ДАБТБ и ДАБИБ и выход продукции:  
[I]=2·10<sup>-2</sup> моль/л; [M]=0,1 моль/л; T=40 °С; продолжительность  
реакции 60 мин**

Мономер	Инициатор	Растворитель	Выход продукта, %
1,3-диаллилбензимидазолийбромид	Калий персульфат	Вода	35,6
		Этанол	20,2
		ДМФА	21,2
	Азобисизобутиронитрил	Этанол	10,2
		ДМФА	15,1
	Бензоил пероксиды	Этанол	16,5
ДМФА		18,5	
1,3-диаллилбензотриазолийбромид	Калий персульфат	Вода	40,2
		Этанол	20,9
		ДМФА	21,8
	Азобисизобутиронитрил	Этанол	10,6
		ДМФА	15,3
	Бензоил пероксиды	Этанол	16,9
ДМФА		18,9	

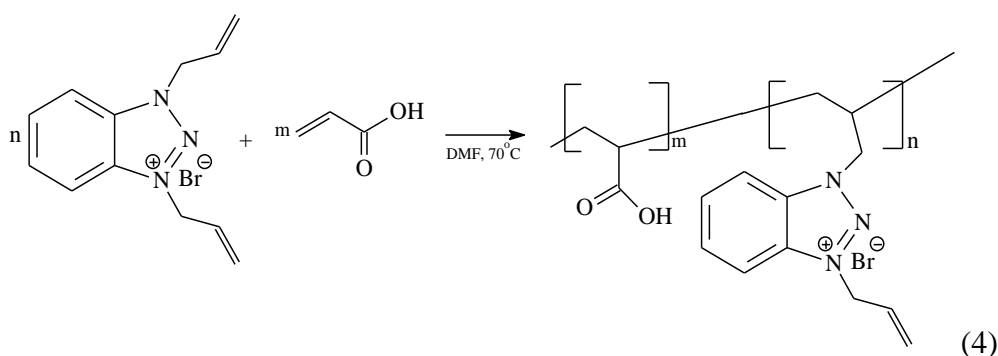
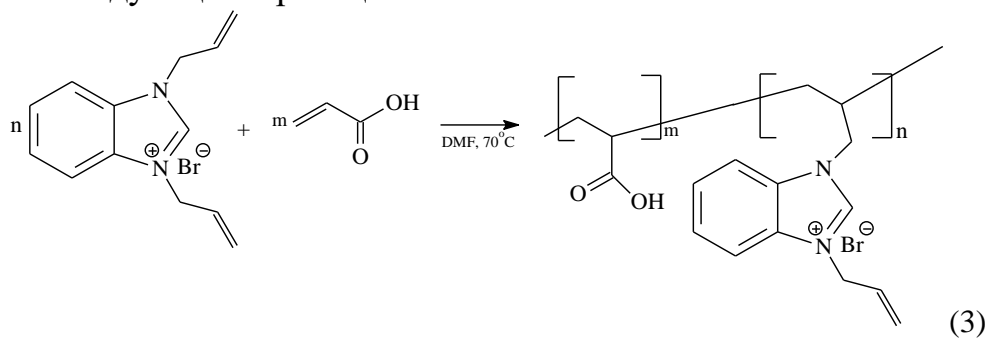
По полученному результату видно, что наибольшая скорость реакции полимеризации и наибольший выход наблюдается в присутствии персульфата калия. Это явление можно объяснить тем, что в водном растворе константа скорости роста цепи увеличивается. Структуру полученных 1,3-диаллилбензимидазолий и 1,3-диаллилбензотриазолийбромиды подтверждена методом ИК-спектроскопии.

Известны многочисленные информации о алифатических сополимеризации алифатических диаллильных мономеров с виниловыми мономерами. Однако сведения о сополимеризации ДАБТБ, ДАБИБ с акриловой кислотой в литературе практически отсутствует. При введении в макромолекулу аллильных групп и атома брома сополимеры приобретают



такие специфические свойства, как термостойкость, антисептичность. В связи с этим в данном разделе проведены исследования по получению сополимеров на основе ДАБТБ, ДАБИБ и акриловой кислоты.

Реакцию сополимеризации осуществляли в гомогенной среде в органических растворителях в присутствии радикальных инициаторов. Сополимеризацию ДАБТБ, ДАБИБ и акриловой кислоты в общем виде можно представить следующими реакциями:



Изучено различных факторов на процесс сополимеризации: природы растворителя и инициатора, продолжительности реакции и выхода продукта (таблица 4).

**Таблица 4**

**Влияние природы растворителей, инициатора на процесс сополимеризации ДАБТБ, ДАБИБ с АК при их соотношении 1:1**  
 $[I]=2 \cdot 10^{-2}$  моль/л;  $t=70$  °С;

Название сомомера		Инициатор,	Растворитель	Продолжительность реакции мин, выход продукта, %		
				20	50	80
ДАБИБ	АК	Азобисизо-бутиронитрил (ДАК)	Этанол	21,4	42,1	42,2
			Метанол	15,5	30,4	30,6
			ДМФА	35,8	72,3	72,6
		Пероксид бензоила	Этанол	13,1	25,4	25,5
			Метанол	6,3	10,3	10,4
			ДМФА	7,1	15,5	15,6
ДАБТБ	АК	Азобисизо-бутиронитрил (ДАК)	Этанол	23,2	44,5	44,8
			Метанол	16,4	32,3	32,4
			ДМФА	35,8	78,2	78,3
		Пероксид бензоила	Этанол	13,4	25,6	25,7
			Метанол	6,1	12,1	12,2
			ДМФА	8,5	16,2	16,3

Из приведенных результатов видно, что в присутствии инициатора ДАК в среде ДМФА наблюдается наибольший выход сополимера.

Определено влияние смесей мономеров на состав образующихся сополимеров (таблица 5).

**Таблица 5**

**Зависимость состава сополимеров от состава исходной мономерной смеси: растворитель ДМФА; T=70 °С, [ДАК]=2·10<sup>-2</sup> моль/л)**

Состав исходной мономерной смеси, моль. %		Выход сополимера, %	Количество Вг, %	Состав сополимера, моль. %		[η], дл/г
M <sub>1</sub>	M <sub>2</sub>			m <sub>1</sub>	m <sub>2</sub>	
<b>ДАБИБ (M<sub>1</sub>) с АК (M<sub>2</sub>)</b>						
10	90	15,2	2,0	8,1	91,3	0,241
30	70	14,2	4,6	20,1	74,2	0,232
50	50	12,0	9,3	40,8	54,4	0,224
70	30	10,1	13,0	60,0	35,1	0,130
90	10	7,9	19,3	84,6	15,4	0,120
<b>ДАБТЬ (M<sub>1</sub>) с АК (M<sub>2</sub>)</b>						
10	90	16,00	1,88	8,27	91,73	0,286
30	70	14,5	5,21	22,90	77,10	0,264
50	50	12,4	8,13	35,77	64,23	0,252
70	30	10,3	12,20	53,68	46,32	0,131
90	10	8,2	16,30	71,72	28,28	0,122

Как видно из таблицы, во всех случаях сополимеры обогащены звеньями АК и их характеристической вязкости понижается с увеличением в исходной смеси ДАБТЬ, ДАБИБ.

Для определения констант сополимеризации для изученных систем применяли метод Файнман-Росса и аналитический метод (табл. 6).

**Таблица 6**

**Значения констант сополимеризации**

Метод расчета	r <sub>1</sub>	r <sub>2</sub>	1/ r <sub>1</sub>	1/ r <sub>2</sub>	r <sub>1</sub> · r <sub>2</sub>
<b>ДАБИБ – АК</b>					
Файнман- Росса	0,33±0,32	1,38±0,48	3,03	0,72	0,45
Аналитический	0,29±0,27	1,35±0,40	3,4	0,74	0,39
<b>ДАБТЬ – АК</b>					
Файнман- Росса	0,40±0,39	1,5±0,50	2,5	0,66	0,60
Аналитический	0,32±0,30	1,47±0,46	3,1	0,68	0,47

Как видно из приведенных данных таблицы 6, значения констант сополимеризации, рассчитанные двумя методами значительно близки между собой и значения r<sub>1</sub><1, r<sub>2</sub>>1. Значит, во всем диапазоне составов исходной смеси образуется сополимер, обогащенный более активным компонентом АК.

По-видимому, это происходит за счет преобладания реакций присоединения этого мономера – АК и к «своему», и к «чужому» активным центрам. При  $r_1 < 1$ ,  $r_2 > 1$  вероятностей образования диад звеньев  $m_2-m_2$  в макромолекулах сополимера велика.

Исследования по изучению УФ-стабилизационных свойств образцов полиолефиновых пленок проводились в Институте «Химии и физики полимеров» АН РУз. В данной работе в качестве полимера использован Шуртанский полиэтилен марки F-0320.

В качестве источников УФ-излучения использовались лампы TUV15W/G15T8 УФ-шкафа мощностью 60 Вт, работающие в режиме длин волн 280-350 нм. Облученность от источника УФ-излучений (лампы TUV15W/G15T8) до наиболее удаленной точки внутри камеры составлял не менее 1 Вт/м<sup>2</sup>. Продолжительность воздействия УФ излучения проводили при 35 °С в течение 480 часов, диаметр испытуемых пленок около 0,1 мм. Измерение основных показателей пленок осуществлялось в соответствии с научно-техническими нормативами (ГОСТ Р 58061-2018, ГОСТ 29104.11-91).

Мы выбрали оптимальную концентрацию 1,3-диаллилбензотриазолий и 1,3-диаллилбензимидазолийбромидов для изучения их влияния на технологические свойства полиэтиленовых пленок.

Определены физико-механические свойства модифицированных полиэтиленовых пленок до и после воздействия УФ-излучения (толщина пленок 0,1 мм).

**Таблица 7**

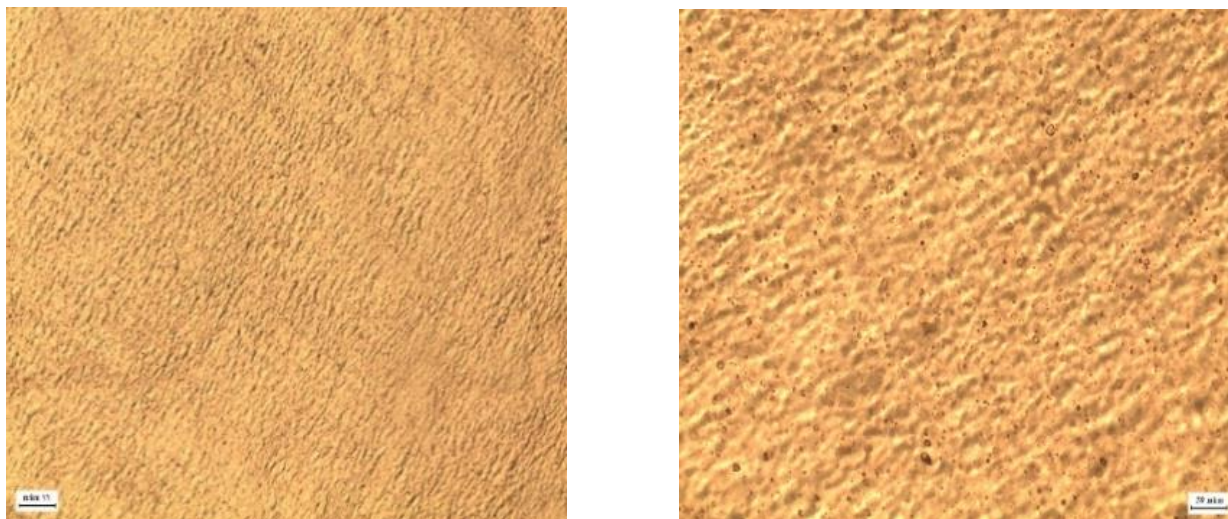
**Технологические свойства образцов полиэтиленовой пленки**

Наименование пленки	Прочность при разрыве, МПа		Относительное удлинение при разрыве, %	
	До УФ-излучения	После УФ-излучения (480 ч.)	До УФ-излучения	После УФ-излучения (480 ч.)
Контрольный ПЭ	17,4	15,9	667	630
ПЭ с ДАБТБ 1%, не менее продольном направлении;	17,9	16,5	876	710
поперечном направлении;	18,2	17,8	900	780
ПЭ с ДАБТБ 2%, не менее продольном направлении;	19,6	18,0	958	856
поперечном направлении;	20,1	19,5	980	878
ПЭ с ДАБТБ 3%, не менее продольном направлении;	21,2	20,6	990	899
поперечном направлении	22,4	21,8	1000	960
ПЭ с UV-234 3% (эталон) не менее продольном направлении;	21,0	19,4	988	870
поперечном направлении	22,0	20,4	900	930

Согласно результатам, представленным в таблице 7, наилучшую стойкость к УФ-излучениям проявляет образец, стабилизированный добавкой «ДАБТБ» в количестве 3%.

Для контрольного образца ПЭ после выдержки в УФ излучении наблюдалось резкое увеличение предела прочности при растяжении в период облучения 480 ч, а при дальнейшем облучении прочность на растяжение снижалась. Это можно объяснить тем, что ПЭ перекристаллизовывался под ультрафиолетовым облучением и термоокислительной средой на ранних стадиях старения, а затем молекулярные цепи ПЭ начали разлагаться по мере увеличения времени облучения. При этом первоначальная кристаллическая структура ПЭ постепенно разрушалась, и прочность на растяжение значительно уменьшалась (таблица 7).

Также нами проведены АСМ-исследования ЛПЭНП и модифицированного полиэтилена (рис. 5).



**Рис. 5. Изображения ПЭ пленки в атомно-силовом микроскопе:  
А - ПЭ; Б - модифицированный ПЭ (3% ДАБТБ).**

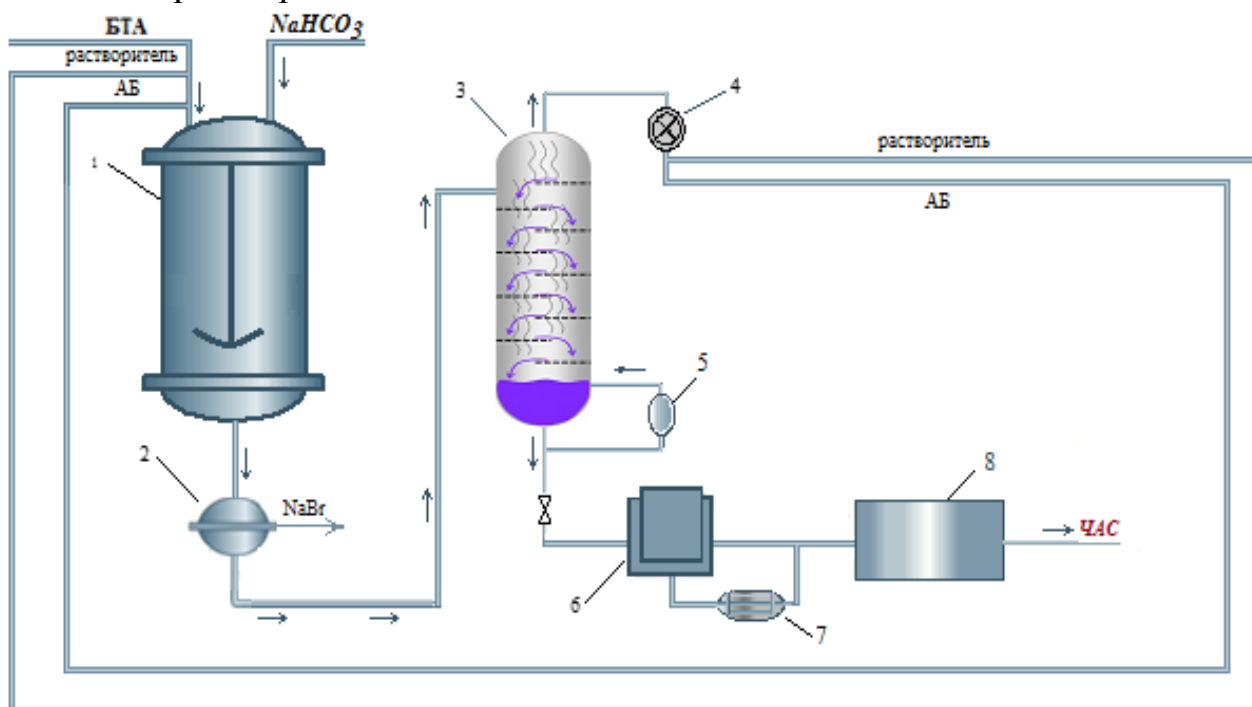
На рисунке можно увидеть, что не модифицированная пленка ПЭ состоит из сферических форм структур, рельеф поверхности плёнки практически идентичен, а на поверхности модифицированных ПЭ образованы мелкоплановые дисперсные структуры, то есть частицы модификатора распределены на поверхности пленки. Их средний диаметр составляет 184 нм.

Синтезированный мономер (ДАБТБ) был протестирован на предприятиях АК «Джизак пластмасса» и ООО «Qayum Xojı Servız» и рекомендован в качестве УФ-стабилизатора для полиэтиленовых пленок.

В результате выше описанных исследований предложена принципиальная технологическая схема получения диаллильной соли на основе бензотриазола с бромистым аллилом.

Производство диаллильной соли на основе бензотриазола с бромистым

аллилом может быть осуществлено как периодическим, так и непрерывным методами. Исходные реагенты - бензотриазол, этанол, бромистый аллил, NaOH подаётся в реактор 1.



**Рис 6. Принципиальная технологическая схема получения диаллильной соли на основе бензотриазола с бромистым аллилом:**

1-реактор; 2- фильтр; 3-перегонный колонна; 4-конденсатор; 5- кипятильник; 6- приемник; 7- холодильник; 8-сушильной шкаф.

Реакция идет при атмосферном давлении при постоянном перемешивании в течение 10 часов при 70 °С. После завершения реакции массу пропускают через фильтр 2 и отделяют NaBr. Реакционную смесь поступает в перегонный аппарат 3 для отгонки растворителя и непрореагировавшего бромистого аллила. Перегонка проводится при атмосферном давлении при 78 и 71 °С соответственно. Пары этанола и бромистого аллила конденсируются 4 и рециркулируются в ёмкость 1. Реакционную массу, очищенную от растворителя и бромистого аллила охлаждали с помощью холодильника 7 при 10-15 °С и направляют в сушильный шкаф 8. Выход продукта составляет 86 %.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. Рекомендован высокоэффективный метод синтеза новых диаллиламмониевых мономеров на основе бензимидазола, бензотриазола и бромистого аллила.

2. Определена структура полученных диаллильных четвертичных аммониевых солей методами ИК-, ЯМР, ПМР- спектроскопии и хромато-масс спектрометрии.

3. Изучена реакция радикальной полимеризации синтезированных 1,3-диаллилбензимидазолий и 1,3-диаллилбензотриазолийбромидных мономеров. Определены условия полимеризации указанных мономеров, изучено влияние

различных факторов: природы растворителя, инициатора, концентрации инициатора, мономера и температуры.

4. Исследован процесс радикальной сополимеризации 1,3-диаллилбензотриазолий и 1,3-диаллилбензимидазолийбромида с акриловой кислотой и установлен состав, строение синтезированных сополимеров. Выведены зависимости состава сополимеров, вероятности образования диадных звеньев АК от начального мономерного состава. Вычислены константы сополимеризации  $r_1 < 1$ ,  $r_2 > 1$  методами Файнмана-Росса и аналитическим методом, величины которых значительно близки между собой.

5. Синтезированные 1,3-диаллилбензотриазолийбромиды прошли испытания на предприятиях АО «Jizzak plastmassa» и ООО «Qayum Xoji Serviz» и рекомендованы в качестве УФ-стабилизаторов полиэтиленовых пленок и определены эффективным препаратом.

6. Разработано техническое условие и рекомендована технология синтеза высокоэффективных диаллильных четвертичных аммониевых соединений, защищающих полиэтиленовые пленки от воздействия УФ-лучей.

**ONE SCIENTIFIC COUNCIL ON THE BASIS OF THE SCIENTIFIC  
COUNCIL DSc.03/30.12.2019.T.04.01.AT ON AWARDING SCIENTIFIC  
DEGREES AT THE TASHKENT CHEMICAL-TECHNOLOGICAL  
INSTITUTE**

---

**TASHKENT CHEMICAL-TECHNOLOGICAL INSTITUTE**

**TADJIEVA SHAKHNOZA ABDUVALIEVNA**

**SYNTHESIS AND TECHNOLOGY OF DERIVATIVES OF NITROGEN-  
CONTAINING HETEROCYCLIC COMPOUNDS**

**02.00.14 - Technology of organical compounds and materials on their base**

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

**Tashkent - 2022**

The theme of dissertation Doctor of Philosophy (PhD) was registered by Supreme Attestation Commission at the Cabinet of Ministers of the Republic of Uzbekistan under number of B2019.3.PhD/T1282

The dissertation has been carried out at the Tashkent Chemical Technological Institute.

The abstract of dissertation in three languages (Uzbek, Russian and English (resume)) is available on line [www.tkti.uz](http://www.tkti.uz) and on the website of information-educational portal «ZiyoNet» [www.ziynet.uz](http://www.ziynet.uz)

**Scientific supervisor:**

**Maksumova Oytura Sitdikovna**  
doctor of chemical sciences, professor

**Official opponents:**

**Teshabaeva Ilmira Ubaydullaevna**  
doctor of technical sciences, docent

**KHudoyberdieva Dilfuza Bakhromovna**  
doctor of technical sciences, professor

**Leading organization**


**Tashkent State Technical University named after I.A. Karimov**

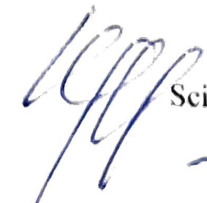
Defence of the dissertation will take place on « 3 » 03\_2022 at the meeting of Scientific council DSc.03/30.12.2019.T.04.01. at Tashkent Chemical Technological Institute. (Address: Navoi str., 32. Tashkent, 100011, Tel.: +998-71-244-79-20; Fax: +998-71-244-79-17; e-mail: [info\\_tkti@edu.uz](mailto:info_tkti@edu.uz). Conference hall of the Tashkent Chemical Technological Institute).

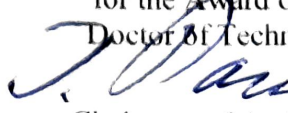
The dissertation has been registered at the Information Resource Centre of the Tashkent Chemical Technological Institute under №\_287\_ (Address: Navoi str., 32 Tashkent, 100011, Administrative Building of the Tashkent Chemical Technological Institute, Tel.: +998-71-244-79-20)

The abstract of the dissertation has been distributed on “18” 02\_2022 Protocol at the register №\_96\_dated “18\_”02\_2022



  
**S.M. Turobjonov**  
Chairman of scientific Council for the  
Award of the scientific Degrees,  
Doctor of Technical Sciences, Professor

  
**H.E. Qodirov**  
Scientific Secretary of the Scientific Council  
for the Award of the scientific Degrees,  
Doctor of Technical Sciences, Professor

  
**G. Rakhmonberdiev**  
Chairman of the Scientific Seminar at the  
Scientific Council for the Award of the scientific Degrees,  
doctor of chemical sciences, professor



## INTRODUCTION (abstract of PhD thesis)

**The aim of research work.** The development of technology of the production of nitrogen-containing heterocyclic compounds - derivatives of benzimidazole and benzotriazole.

**The objects of research work.** Benzotriazole, benzimidazole, allyl bromide, acrylic acid, as well as diallyl salts with fragments of benzotriazole and benzimidazole, polymer, copolymer compounds, modified polyethylene were obtained as objects of research work.

**The scientific novelty of the research** is as follows:

here has been proven that allylation of benzimidazole and benzotriazole with allyl bromide in ethanol at 60 °C gives high yields of quaternary salts, 80 % of 1,3-diallylbenzimidazolium bromide and 84 % of 1,3-diallylbenzotriazolium bromide;

optimal conditions of the polymerization process of 1,3-diallylbenzimidazolium and 1,3-diallylbenzotriazolium bromide quaternary ammonium salts in the presence of radical initiators were determined, and proved potassium persulfate to be the most effective among the initiators used;

performed binary copolymerization reactions of acrylic acid with 1,3-diallylbenzotriazole bromide and the main factors influencing the course of the reaction (reaction temperature and duration, ratio of comonomers, initiator nature) were determined, as well as calculated the copolymerization constants of the process using analytical, Faynaman-Ross methods;

here was found that the compounds based on benzimidazole and benzotriazole derivatives exhibit UV protection properties of polyethylene films with the addition of 3%, based on the fact that the tensile strength was 13.7 % and the relative elongation was 15.2% higher than the reference sample;

developed the technology for obtaining heterocyclic nitrogenous compounds with benzotriazole and benzimidazole fragmentation.

**Implementation of the research results.** Based on the obtained research results on synthesis and technology of production of nitrogen-containing heterocyclic compounds - derivatives of benzimidazole and benzotriazole:

here has been approved the organizational standard for the production of monomers based on benzotriazole and allyl bromide by the agency «UZSTANDART» (Ts 201912314-001: 2021). As a result, it became possible to obtain a UV-stabilizer with the property of preventing the destruction of polyethylene films.

production of quaternary ammonium salts of 1,3-diallylbenzotriazole bromide by allylation of benzotriazole with allyl bromide is included in the long-term project plan for the production of «Jizzakh Plastics» JSC (certificate of «Uzkimyosanoat» JSC dated May 6, 2021 No. 14. -1698). As a result, it became possible to produce polyethylene films that are resistant to high temperatures and sunlight.

**The structure and the volume of the thesis.** The dissertation consists of the introduction, three chapters, the conclusion, the bibliography and appendices. The volume of the dissertation is 111 pages.

**ЭЪЛОН ҚИЛИНГАН ИШЛАР РЎЙХАТИ**  
**СПИСОК ОПУБЛИКОВАННЫХ РАБОТ**  
**LIST OF PUBLISHED WORKS**

**I бўлим (I часть; part I)**

1. Таджиева Ш.А., Максумова О.С. Синтез мономерных четвертичных аммониевых солей //U55 Universum: химия и биология: научный журнал. – № 7(73). М., Изд. «МЦНО», 2020. С– 95-99. (02.00.00, №1).

2. Таджиева Ш.А., Максумова О.С. Радикальная сополимеризация диаллилморфолинбромида с акрилонитрилом //Ўзбекистон композицион материаллар илмий техникавий ва амалий журнали, 2019. –№2. –Б. 95-97. (02.00.00, №4).

3. Таджиева Ш.А., Максумова О.С. Исследование реакции аллилирования бензимидазола //Ўзбекистон композицион материаллар илмий техникавий ва амалий журнали, №1 /2020 й. 92-93 бет. (02.00.00, №4).

4. Sh.A. Tadjieva, O.S. Maksumova, B.Sh. Kedelbaev. Synthesis of copolymers with benzotriazole fragments //Technical science and innovation, 2021. –№1. – PP.62-69. (02.00.00, №11).

5. Tadjieva Sh., Maksumova O.S., Tadjieva G.A. Synthesis of, n-diallilbenzotriazolbromida //Scopus Journal of Critical Reviews. ISSN- 2394-5125 Vol 7, Issue 6, 2020. –PP. 725-728. (Scopus: IF-1.27).

**II бўлим (II часть; part II)**

6. Таджиева Ш.А., Максумова О.С. Синтез аминспиртов на основе бензимидазола // Техник ва ижтимоий-иқтисодий фанлар соҳаларининг муҳим масалалари республика илмий-амалий конференция. Ташкент, 2019. –С.144-145.

7. Таджиева Ш.А., Максумова О.С. Синтез мономера на основе бензимидазола //3-й Международной конференции “Внедрение достижений науки в практику и устранение в ней деятельность коррупции”, Тошкент 2019,– С. 305-307.

8. Таджиева Ш.А., Максумова О.С., Таджиева Г.А. Синтез и свойства диаллильных солей //Технология органических веществ. Материалы докладов 84-й научно-технической конференции, посвященной 90-летию юбилею БГТУ и Дню Белорусской науки (с международным участием) 3-14 февраля. Минск- 2020. –С. 250-252.

9. Таджиева Ш.А., Максумова О.С., Акбаров Ш.Ш. Синтез полимеризация диаллиловых мономеры //Инновационное развитие нефтегазовой отрасли, современная энергетика и их актуальные проблемы материалы международной конференции 26 май, Ташкент 2020. –С. 402-403.

10. Таджиева Ш.А., Акбаров Ш.Ш., Таджиева Г.А. Синтез мономера на основе бензотриазола //Техника ижтимоий иқтисодий фанлар соҳаларининг муҳим масалалари. Республика Олий ўқув юртлараро илмий ишлар тўплами, Тошкент, 2020. –Б.162.

11. Адилбекова М.К, Таджиева Ш.А, Максумова О.С. Синтез полимеров с фрагментами бензотриазола. Труды молодых ученых, магистрантов и студентов бакалавриата Ташкентского химико-технологического института. Ташкент, 2020. –С. 12-13.

12. Адилбекова М.К., Козимжонова А.И., Таджиева Ш.А., Максумова О.С. Изучение комплексных соединений бензотриазола с солями двухвалентных меди цинка. Абу Али Ибн Сино и инновации в современной. Сборник IV международной научно-практической конференции фармацевтике. Ташкент, 2021. –С. 125.

13. Tadjieva Sh., Maksumova O.S. About benzotriazole monomers and copolymers. Euro asia 8<sup>th</sup>-International congress on applied sciences. March 15-16, 2021. –С.256-257.



Автореферат «Кимё ва кимё технологияси» журнали таҳририятида таҳрирдан ўтказилиб, ўзбек, рус ва инглиз тилларидаги матнлар ўзаро мувофиқлаштирилди.

Бичими: 84x60 <sup>1</sup>/<sub>16</sub>. «Times New Roman» гарнитураси.  
Рақамли босма усулда босилди.  
Шартли босма табағи: 3. Адади 100. Буюртма № 240.

Гувоҳнома № 10-3719

Тошкент кимё технология институти босмахонасида чоп этилган.  
Босмахона манзили: 100011, Тошкент ш., Навоий кўчаси, 32-уй.





