

**«6D072000 – Бейорганикалық заттардың химиялық технологиясы»
мамандығы бойынша философия докторы (PhD) дәрежесін алуға
арналған диссертацияның
АННОТАЦИЯСЫ**

**Хан Наталья Владимировна
«Күкірт пен күміс галогенидтерінен негізделген микро-/нано
анқұрылымдарды алу және қолдану»**

Жұмыстың жалпы сипаттамасы

Диссертация күкірт пен күміс галогенидтеріне негізделген микро-/нано-құрылымдарды алуға және оларды фотокатализаторлар мен микробқа қарсы агенттер ретінде зерттеуге арналған. Микро-/нано-құрылымдар компоненттердің келесі пайыздық коэффициенттері арқылы алынды: 90:10 мас. % (S90:AgX (X=Cl, Br, I)10) және 70:30 мас. % ((S70:AgX30). Материалдар күкіртті тұндырудың екі әдісін қолдана отырып, сольвотермиялық синтез арқылы алынды. Алынған микро-/нано-құрылымдардың физика-химиялық қасиеттері зерттелді, фотокаталитикалық белсенділікті сақтауға және микробқа қарсы қасиеттерді көрсетуге қабілетті ең тиімді құрам анықталды.

Жұмыстың өзектілігі

Қазіргі уақытта экологиялық және энергетикалық мәселелер жаһандық ауқымға ие болуда. Оларды шешу үшін қазіргі ғылым әмбебаптық пен тиімділікке ие жаңа материалдарды табуға тырысады. Зерттеулердің көп бөлігі функционалдық қасиеттерін жақсарту үшін жартылай өткізгіштерге негізделген әртүрлі материалдарды алудың жаңа әдістерін табуға және оларды легирлеуге немесе басқа материалдармен біріктіруге бағытталған. Атап айтқанда, күшті оптикалық адсорбцияға, фотоэлектрлік қасиеттерге және қасиеттерін күшейту үшін күмістің пайда болу көздеріне ие болғандықтан, күміс галогенидтері фотокатализ және электрохимия үшін кеңінен қолданылатын жартылай өткізгіштер болып табылады. Алайда, көрінетін жарықтың шектеулі (жоғары болса да) сіңуіне, тотығу немесе тотықсыздану қабілетінің төмендігіне және жоғары шығындарға байланысты күміс галогенидтерін қолдану қиынға соғады. Металл емес материалдарды қолдану бұл мәселелерді шеше алады. α -күкіртті пайдалану фотокаталитикалық процестер үшін қолайлы фототұрақтылыққа және жолақ енінің қолайлы мәндеріне қол жеткізуге мүмкіндік береді. Сонымен қатар, күкірт – бірнеше аллотропты модификациялары бар (көміртектен кейінгі екінші орын) және гидрофобты, бактерияға қарсы және т.б. бірқатар ерекше қасиеттері бар ең көп таралған арзан элементтердің бірі.

Әлемдік экожүйеге қауіп төндіретін тағы бір маңызды экологиялық мәселе болып патогендік микроорганизмдер табылады. Антибиотиктер мен саңырауқұлақтарға қарсы препараттардың болуына қарамастан, зиянды микроорганизмдердің саны олардың препараттардың әсеріне бейімделу қабілетімен бірге өсуде. Сондықтан, штаммдардың әртүрлі түрлеріне төзімді болатын жаңа материалдарды жасау өте өзекті. Күкірт пен күміс

галогенидтері патогендердің көбеюіне жол бермейтіні белгілі және олардың бір көпкомпонентті материалда бірігуі синергетикалық әсер етуі мүмкін. Жоғарыда айтылғандардың барлығы фотокаталитикалық процестер үшін де, биомедициналық қосымшалар үшін де тиімді және қоршаған ортаға қауіпсіз және үнемді болатын материалды алу қажеттілігін көрсетеді.

Зерттеудің мақсаты: күкірт пен күміс галогенидтеріне негізделген микро-/нано- құрылымдарды алу және олардың физика-химиялық қасиеттерін, фотокаталитикалық белсенділігін, микробқа қарсы және саңырауқұлаққа қарсы қасиеттерін зерттеу болып табылады.

Зерттеу міндеттері:

- күкірт пен күміс галогенидтеріне негізделген микро-/нано- құрылымдарды алу;

- физика-химиялық талдау әдістері арқылы алынған микро-/нано- құрылымдарды зерттеу;

- күкірт пен күміс галогенидтері негізінде алынған микро-/нано- құрылымдардың фотокаталитикалық белсенділігін, бактерияға қарсы және саңырауқұлаққа қарсы қасиеттерін зерттеу;

- фотокаталитикалық және/немесе бактерияға қарсы және саңырауқұлаққа қарсы белсенділігі жоғары микро-/нано-құрылымдарды анықтау;

- күкірт пен күміс галогенидтері негізінде микро-/нано- құрылымдарды алудың принципіалдық сызбасын жасау және процестің материалдық балансын есептеу.

Зерттеу әдістері

Зерттеуде келесі талдау әдістері қолданылды: рентгендік фазалық талдау, Раман спектроскопиясы, рентгендік фотоэлектрондық спектроскопия, сканерлеуші электронды микроскопия, трансмиссиялық электронды микроскопия (элементтердің рентгендік энергия дисперсиялық картаға түсірумен), БЭТ (Брунауэр-Эммет-Теллер) әдісімен меншікті беттік талдау, дифференциалды сканерлеу калориметриясы және термогравиметриялық талдау, ультракүлгін және көрінетін аймақтағы спектрофотометрия.

Зерттеу нысаны күкірт пен күміс галогенидтеріне негізделген микро-/нано- құрылымдар болып табылады.

Зерттеу пәні күкірт пен күміс галогенидтеріне негізінде алынған микро-/нано- құрылымдардың физика-химиялық, фотокаталитикалық, бактерияға қарсы және саңырауқұлаққа қарсы қасиеттері болып табылады.

Қорғауға шығарылған негізгі қағидаттар

1. Күкірт пен күміс галогенидтеріне негізделген микро-/нано- құрылымдардың синтезі ДМСО ортасында 120°C температурада тиімді өтеді және ДМСО-тегі күкірт ерігіштігінің температураға жоғары оң тәуелділігінің арқасында реакциялық қоспаны бөлме температурасына дейін салқындату кезінде артық күкірт тұнбаға түседі, ал тұнбаның үстінде күкіртпен қатты қаныққан ерітінді пайда болады, сұйылту нәтижесінде кішірек күміс

галогенидтерінің дәндерімен жабылған күкірт микробөлшектерінен тұратын гетерогенді жүйе пайда болады.

2. Микро-/нано-құрылымдарды синтездеу кезінде реакциялық қоспаны бөлме температурасына дейін 12 сағат бойы салқындату арқылы күкіртті тұндыру әдісін қолдану 20-дан 50 мкм-ге дейінгі дұрыс емес пішінді күкірт бөлшектерінің пайда болуына алып келеді, ал реакциялық қоспаны сумен сұйылту арқылы қаныққан ерітіндіден күкіртті тұндыру әдісін қолдану 10-нан 25 мкм-ге дейінгі дұрыс емес пішінді күкірт бөлшектерін береді.

3. 70 мас.% күкірт және 30 мас.% күміс бромиді құрамды микро-/нано-құрылымдар 3 сағат ішінде көрінетін жарықтың ($\lambda \approx 380-760$ нм, $I = 15$ мВт/см²) әсерінен бояғыш молекулаларының шамамен 90 % – ыдырататын, органикалық апельсин қышқылы бояғышының $7(C_{16}H_{11}N_2NaO_4S)$ фотодеградациясының ең жоғарғы қабілетіне ие.

4. 70 мас.% күкірт және 30 мас.% күміс хлориді/бромиді құрамды микро-/нано-құрылымдар *S.aureus* ATCC 6538-P, *C.albicans* ATCC 10231, *E.coli* ATCC 8739, *P.aeruginosa* ATCC 9027, *E.amylovora*, *S.aureus* ATCC ВАА-39, *E.coli* ATCC ВАА-196 сияқты патогенді микроорганизмдерді тежеу қабілетіне ие.

Зерттеудің негізгі нәтижелері

1. Күкірт пен күміс галогенидтері негізіндегі микро-/нано- құрылымдар 120°C температурада ДМСО ортасында синтезделді. Күкіртті тұндырудың екі әдісі жасалды: 1) реакциялық қоспаны бөлме температурасына дейін 12 сағат бойы салқындату арқылы күкіртті тұндыру; 2) көлемдік қатынас кезінде – ДМСО:су 1:1 реакциялық қоспаның ерітіндісін сумен сұйылту арқылы күкіртті тұндыру.

2. Физика-химиялық талдау әдістері арқылы күкірт пен күміс галогенидтері негізінде синтезделген микро-/нано- құрылымдарды зерттеу жүргізілді. Талдау нәтижелері микро-/нано- құрылымдардың құрамында күкірт пен күміс галогенидтері бар екенін көрсетті, үлгілер күкірт дәндері күміс галогенидтерінің бөлшектерімен жабылған гетерогенді жүйемен ұсынылған. Реакция қоспасын бөлме температурасына дейін салқындату арқылы күкірт тұндырылған кезде күкірт бөлшектері 20-дан 50 мкм-ге дейін түзіледі, ал реакция қоспасының ерітіндісін сумен сұйылту мөлшері 10 нан 25 мкм ге дейінгі күкірт бөлшектерінің пайда болуына алып келеді. Күміс галогенидтері күкіртті тұндыру әдісіне қарамастан, бөлшектердің мөлшері бойынша үлкен дисперсияға ие – микродан наноға дейін және олардың мөлшері орташа есеппен 1-ден 4 мкм-ге дейін.

3. СЭМ, ПЭМ және ПЭМ-элементтік картаға түсіру ДМСО ортасында микро-/нано- құрылымдар жүйесін сумен сұйылту күкірт бөлшектерінің агломерациясын болдырмайтынын көрсетті. «ДМСО–су» жүйесі, ДМСО-ның беттік белсенді зат ретіндегі қасиетіне байланысты осы компоненттердің тұрақты кешендерінен тұратын мицеллалар түзеді, ал күкірт бөлшектерінің гидрофобтылығы агрегациядан қорғауды қамтамасыз етеді.

4. Синтезделген микро-/нано- құрылымдардың фотокаталитикалық, бактерияға қарсы және саңырауқұлаққа қарсы қасиеттері бойынша

зерттеулер жүргізілді. Синтезделген күкірт және күкірт пен күміс йодиді негізіндегі микро-/нано- құрылымдардың маңызды фотокаталитикалық белсенділігі жоқ екені анықталды. Сонымен қатар, 90:10 мас. % құрамды күмістің хлорид/бромиді мен күкірт негізіндегі микро-/нано- құрылымдар органикалық бояғыштың фотодеградация қабілетінің төмендігін көрсетті. 70:30 мас. % құрамды микро-/нано- құрылымдар белсендірек болды, ал күміс бромиді негізіндегі үлгілер фотокаталитикалық белсенділіктің шамамен 90% ғана қамтамасыз етті. 70:30 мас.% қатынастағы күкірт негізіндегі және күміс хлорид/бромиді үлгілерінің тұрақтылығын зерттеу, бұл үлгілердің фотокаталитикалық процестің бес циклінде жұмыс істейтінін көрсетті.

Микробқа қарсы белсенділікті зерттеу синтезделген күкірт және күкірт пен күміс йодиді негізіндегі үлгілердің белсенді емес екенін көрсетті. Қалған үлгілер зерттелген сынақ штаммдарының барлығын дерлік басуға қабілетті болды, ал 70:30 мас. % құрамды күкірт пен хлорид/күміс бромидіне негізделген микро-/нано құрылымдар минималды бактерицидтік/фунгицидтік концентрацияның ең төменгі мәндерінде патогендерді басуға қабілетті. Құрамы 70:30 мас. % болатын күкірт және күміс бромиді негізіндегі үлгілер функционалды материалдар ретінде, фотокатализ және биомедицина аясында қолданудың жақсы перспективаларына ие.

5. Күкірт пен күміс галогенидтері негізінде микро-/нано- құрылымдарды өндірудің принципіалдық сызбасы жасалды. Процестің материалдық балансы есептелді.

Алынған нәтижелердің жаңалығы мен маңыздылығын негіздеу

Бұл жұмыста ДМСО ортасында күкірт пен күміс галогенидтеріне негізделген микро-/нано- құрылымдар алғаш рет сольвотермиялық синтез арқылы алынды. Алғаш рет ДМСО ортасынан күкіртті тұндырудың екі әдісі ұсынылды: бөлме температурасында өздігінен тұндыру және ДМСО ерітіндісін сумен сұйылту арқылы тұндыру. Зерттелетін микро-/нано- құрылым жүйелерін сумен сұйылту күкірт дәндерінің морфологиясы мен мөлшеріне әсер етеді деген болжам жасалды. ДМСО-су жүйесі, ДМСО -ның беттік белсенді зат ретіндегі қасиетіне байланысты, күкірт бөлшектерін қаптайтын және күкірттің гидрофобты қасиеттеріне байланысты оның агрегациясын белгілі бір дәрежеде болдырмайтын мицеллалармен ұсынылған.

Алынған күкірт және күміс галогенидтері негізіндегі микро-/нано- құрылымдарға фотокатализаторлар, бактерияға қарсы және саңырауқұлаққа қарсы агенттер ретінде алғаш рет сынақтар жүргізілді. Зерттелетін 70 мас.% күкірт және 30 мас.% күміс галогенидтерінің пайыздық қатынасы екі компонент арасындағы микро-/нано құрылымдар оңтайлы құрам ретінде анықталды. Бұл пайыздық қатынас микробқа қарсы қасиеттерді көрсетуге және микро-/нано- құрылымдардың жоғары фотокаталитикалық белсенділігін сақтауға мүмкіндік береді. 70 мас. % күкірт және 30 мас.% күміс бромиді құрам фотокаталитикалық және биологиялық белсенділіктің ең жоғары дәрежесін көрсете алатын микро-/нано- құрылым үшін ең тиімді деп анықталды.

Теориялық маңыздылығы

Зерттеу нәтижелері материалтану, күкірт немесе күміс галогенидтері негізіндегі материалдардың сольвотермиялық синтезі және олардың фотокатализ бен микробиологияда қолданылуы туралы белгілі білімді кеңейтті.

Практикалық маңыздылығы

Жасалған микро-/нано- құрылымдардың фотокаталитикалық процестерде де, зиянды микроорганизмдермен күресу үшін де әлеуетті үміткерлер ретінде перспективалары бар.

Ғылымды дамыту бағыттарына немесе мемлекеттік бағдарламаларға (жобаларға) сәйкестігі

Диссертация Қазақстан Республикасы Білім және ғылым министрлігінің бағдарламалық-нысаналы қаржыландыруы (BR05234566), Қазақстан Республикасы Білім және ғылым министрлігінің ғылыми жобасы (AP08855868) аясында орындалды. Сондай-ақ, зерттеудің белгілі бір нәтижелері СҒА (Словакия Ғылым академиясы) Геотехника институтының (Кошице, Словакия) және «В. С. Соболев атындағы Геология және минералогия» РҒА (Новосибирск, Ресей) арқасында алынды.

Зерттеу авторының жеке үлесі диссертация тақырыбы бойынша әдеби деректерді дайындау және талдау, күкірт пен күміс галогенидтеріне негізделген микро-/нано- құрылымдарды синтездеу бойынша тәжірибелер жүргізу, алынған микро-/нано- құрылымдардың фотокаталитикалық, бактерияға қарсы және саңырауқұлаққа қарсы қасиеттерін зерттеу болып табылады.

Докторанттың әрбір жарияланымды дайындауға қосқан үлесінің сипаттамасы

1. Khan N. V., Burkitbayev M. M., Urakaev F. K. Development of the synthesis technology of S@ AgCl-Ag₂S nanocomposite in aqua medium // Bulletin of the Karaganda university. – 2019. – №. 4. – P. 72-76 - зерттеу, валидация, деректерді жинау, әдістеме, жазу – түпнұсқалы мәтін, шолу, редакциялау.

2. Khan N. V., Burkitbayev M. M., Urakaev F. K. Preparation and properties of nanocomposites in the systems S-AgI and S-Ag₂S-AgI in dimethyl sulfoxide //IOP Conference Series: Materials Science and Engineering. – IOP Publishing, 2019. – Vol. 704. – №. 1. – С. 012007 - зерттеу, валидация, деректерді жинау, әдістеме, жазу – түпнұсқалы мәтін, шолу, редакциялау.

3. Буркитбаев М.М., Уракаев Ф.Х., Хан Н.В. Мадикасимова М.С., Өскенбай А.Қ. Способ получения серосодержащих нанокмполитов / ҚР Пайдалы модель патенті №5241, 2020 - зерттеу, валидация, деректерді жинау, әдістеме, жазу – түпнұсқалы мәтін, редакциялау.

4. Khan N. V. Synthesis of the S/AgBr nano/micropowder in DMSO-water system //Chemical Bulletin of Kazakh National University. – 2022. – Т. 104. – №. 1. – P. 4-10 - зерттеу, валидация, деректерді жинау, әдістеме, жазу – түпнұсқалы мәтін, шолу, редакциялау.

5. Khan N. et al. DMSO-mediated solvothermal synthesis of S/AgX (X= Cl, Br) microstructures and study of their photocatalytic and biological activity

//Applied Surface Science. – 2022. – Vol. 601. – P. 154122 - көрнекілік, мәтін жазу, шолу және редакциялау, ресурстар, әдістеме, зерттеу, тұжырымдамалау, шолу.

6. Khan N. V. et al. Solvothermal DMSO-mediated synthesis of the S/AgI micro-/nano-structures and its application as photocatalytic and biological agents //International Journal of Biology and Chemistry. – 2022. – Vol. 15. – №. 1. – . 79-89 - зерттеу, валидация, деректерді жинау, әдістеме, жазу – түпнұсқалы мәтін, шолу, редакциялау.

7. Конференция тезистері – зерттеу, валидация, мәліметтер жинау, әдістеме, жазу – түпнұсқалы мәтін.

Диссертацияның көлемі мен құрылымы

Диссертация кіріспеден, төрт бөлімнен, қорытындылардан және пайдаланылған әдебиеттер тізімінен тұрады. Жұмыс 110 беттен тұрады, 43 сурет, 15 кесте және 304 библиографиялық сілтемелерді қамтиды.