



UDK:544.723.21+541.145

Gozzal SIDRASULIYEVA,
O'zMU tayanch doktoranti
E-mail: sidrasulieva@bk.ru
Altinay AYTAMURATOVA,
O'zMU tayanch doktoranti
Shaxnoza O'RINOVA,
TKTI Shahrisabz filiali stajyor-o'qituvchisi
Nuriddin KATTAYEV,
O'zMU professori, k.f.d
Hamdam AKBAROV,
O'zMU Fizikaviy kimyo kafedrasini mudiri, k.f.d., professor

O'zR FA Umumiy va noorganik kimyo instituti professori, k.f.d. I.Eshmetov taqrizi asosida

SYNTHESIS AND PHOTOCATALYTIC PROPERTIES OF O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ COMPOSITE

Annotation

A new O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ composite was synthesized by modifying oxygen-doped graphite-like carbon nitride (O-g-C₃N₄) obtained on the basis of melamine with Fe₂O₃. The physicochemical properties of the O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ composite and the process of photocatalytic decomposition of methylene blue dye under the influence of visible light were investigated.

Key words: melamine, O-g-C₃N₄, Fe₂O₃, thermal polycondensation, methylene blue, photocatalytic destruction.

СИНТЕЗ И ФОТОКАТАЛИТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА КОМПОЗИТА O-g-C₃N₄/Fe₂O₃

Аннотация

Полученный на основе меламин графитоподобный нитрид углерода (O-g-C₃N₄), допированный кислородом, модифицирован Fe₂O₃ и синтезирован новый композит O-g-C₃N₄/Fe₂O₃. Исследованы физико-химические свойства композита O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ и процесс фотокаталитического разложения метиленового синего красителя под воздействием видимого света.

Ключевые слова: меламин, O-g-C₃N₄, Fe₂O₃, термическая поликонденсация, метиленовый синий, фотокаталитическая деструкция.

O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ KOMPOZITI SINTEZI VA FOTOKATALITIK XOSSALARI

Annotatsiya

Melamin asosida olingan kislorod bilan dopirlangan grafitimon uglerod nitridi (O-g-C₃N₄) ni Fe₂O₃ bilan modifikatsiyalab, yangi O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ kompoziti sintez qilindi. O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ kompozitining fizik-kimyoviy xossalari va ko'rinadigan nur ta'sirida metilen ko'k bo'yog'ini fотокаталитик parchalash jarayoni tadqiq qilindi.

Kalit so'zlar: melamin, O-g-C₃N₄, Fe₂O₃, termik polikondensatsiya, metilen ko'ki, fотокаталитик destruksiya

Kirish. Dunyoda ultrabinafsha va ko'rinadigan nur sohasida faol bo'lgan grafitimon uglerod nitridining turli xil allotropik shakllari organik ifloslantiruvchi moddalarning parchalash, vodorod ajratib olish, elektronika, CO₂ ni organik birikmalargacha fотокаталитик qaytarish va boshqa sohalarda istiqbolli "metallsiz" fотокаталитик sifatida keng qo'llanila boshladi.

Dunyoda uglerod nitridi g-C₃N₄ yarim o'tkazgichli grafitimon fотокаталитикlarining sintez sharoitlarini optimallashtirish, ta'qiqqlangan soha kengligini kamaytirish, termik barqarorlik va fотокаталитик xossalarini yaxshilash hamda ular asosida yangi kompozitlarni yaratish bo'yicha ilmiy-tadqiqot ishlari olib borilmoqda. Ko'rinadigan nur ta'sirida yuzaga keladigan reaksiyalar nano o'lchamli grafitimon uglerod nitridi va ularning kompozitlari asosidagi fотокаталитикlarining fizik-kimyoviy xossalarini strukturaviy loyihalash va o'rganish hozirgi kunda katta qiziqish uyg'otmoqda. Bu o'rinda mahalliy mahsulotlarning mamlakatimizda raqobatbardoshligini ta'minlovchi mahsulot va texnologiyalar zarur. Shuning uchun, ko'rinadigan nur sohasida yaxshilangan xususiyatlarga va fотокаталитик faollikka ega bo'lgan grafitimon uglerod nitridining temir oksidi bilan kompozitini sintez qilib olish va ularning fizik-kimyoviy, fотокаталитик xususiyatlarini o'rganish dolzarb hisoblanadi.

Adabiyotlar sharhi. Bugungi kunda fотокаталитик faollikka ega bo'lgan g-C₃N₄ asosida modifikatsiyalangan fотокаталитикlarini olish muhim vazifalardan biri hisoblanadi [1]. g-C₃N₄ asosidagi fотокаталитикlarining katalitik samaradorligini oshirish hamda g'ovaklar va fotogeneratsiyalangan elektronlarni ajratishni osonlashtirish uchun bir qancha usullar qo'llanilmoqda. Bular sirasiga turli elementlarni dopirlash [2], metall oksidlari bilan kompozitlarini olish va konyugirlangan polimerlar bilan modifikatsiyalash kabi usullar kiradi [3]. Shu bilan birgalikda, adabiyotlar tahlilining ko'rsatishicha, grafitimon uglerod nitridining metall oksidlari bilan kompozitining ko'rinuvchan nur sohasida ancha yuqoriroq fотокаталитик faollikka egaligini ko'rsatdi [4].

Materiallar va usullar. O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ kompoziti sintezi uchun dastlab oldindan tayyorlangan O-g-C₃N₄ kukun holatiga keltirildi [5]. So'ngra 0,006 mol/l konsratsiyali FeCl₃ suvli eritmasi ning zaruriy miqdori 0,1 g O-g-C₃N₄ kukuni bilan aralashtirildi. Aralashmaga 10 daqiqa davomida ultratovush ta'sir ettirildi, so'ngra mufl pechida 323 K haroratda 10 soat davomida quritildi. Quritilgan aralashma kukun holatiga keltirildi va 30 minut davomida 500° haroratda maxsus avtoklavda kalsinatsiya qilindi.

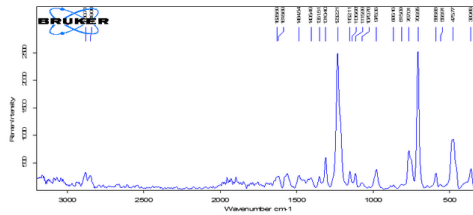
Olingan namunani identifikatsiyalash uchun zamonaviy fizik-kimyoviy tadqiqot usullaridan foydalanildi. Kompozitning Raman-spektri Bravo spektrofotometri (Bruker, Germaniya) OPUS 8.1 dasturidan foydalangan holda tahlil qilindi.

Namunaning strukturaviy morfologiyasi Zeiss EVO MA skanerlovchi elektron mikroskopi (Carl Zeiss, Germaniya) va elementlar tarkibi INCA Energy 300 (Oxford Instruments, Buyuk Britaniya) energiya dispersion spektrometri (EDX) yordamida amalga oshirildi.

Termogravimetrik (DTG) va differensial skanerlovchi kalorimetrik (DSC) tahlillar "Labsys evo SETARAM TG DTA DSK+1600" (Setaram Instruments, Germaniya) sinxron termik tahlil qurilmasi yordamida amalga oshirildi.

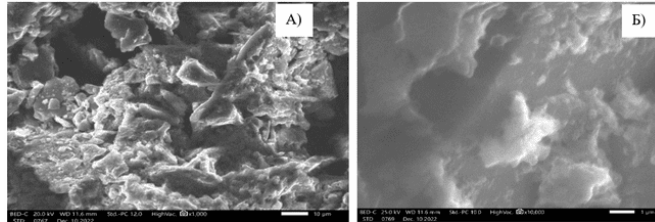
Metilen ko'kning miqdor tahlilida METASH UV-5100 UV-VIS spektrofotometridan (Shanghai Metash Instruments, Xitoy) foydalanildi.

Olingan natijalar muhokamasi. 1-rasmda keltirilgan O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ kompozit fотокаталитикlarining Raman-spektrida bir qator sohalardagi signallarni ko'rish mumkin. 3000-3100 sm⁻¹ oraligida ancha keng polosa mavjud bo'lib, u NH₂-NH, OH guruhlarining kollektiv simmetrik va antisimmetrik tebranishlari tufayli yuzaga keladi. 1628,69, 1484,54, 1310,40 va 1232,21 sm⁻¹ hududlardagi cho'qqilar geterotsiklik birikmalarning CN guruhiga tegishli tebranishlariga xosdir. 978,36 va 767,01 sm⁻¹ dagi cho'qqilar triazin halqasining egilish tebranishlariga to'g'ri keladi va 558,91 va 475,77 sm⁻¹ sohalardagi tebranishlarni Fe-O ta'sirlashuvlar bilan izohlanadi.



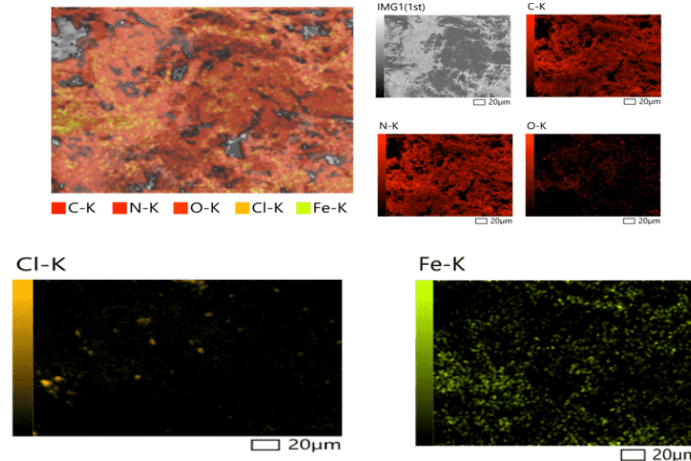
1-rasm. O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ kompozit fotokatalizatori Raman spektri

Tadqiqotlar doirasida sintez qilingan O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ tarkibli kompozitning sirt morfologik va strukturaviy tahlili uchun skanerlovchi elektron mikroskopiya va energiya dispersion spektroskopiya usullari qo'llanildi.



2-rasm. O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ kompozit fotokatalizatorining mikrosuratlari: x1000 (A) x4000(B)

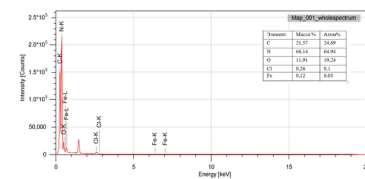
O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ kompozitning 1000 marta kattalashtirilgan mikrosuratida (2a-rasm) yuqori darajada aglomeratsiyalangan zarrachalar aniq ko'rinadi. Bunda O-g-C₃N₄ va O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ zarrachalari bir biriga o'xshash tartibsiz shakl va o'lchamlarga egadir. 2b-rasm esa namunaning 4000 marta kattalashtirilgan mikrosurati bo'lib, unda kompozit zarrachalari notekis, g'adir –budur sirtga egaligi ko'rinib turibdi. Bundan tashqari kompozitning mikrosuratida kristall tuzilishli struktura borligi namoyon bo'ladi, bu esa O-g-C₃N₄ ning Fe₂O₃ bilan kompozit hosil qilganligidan dalolat beradi. Kompozit tarkibiga Fe₂O₃ kiritilishi O-g-C₃N₄ ning sirt morfologiyasini keskin o'zgartirishi tufayli uning fotokatalitik faolligini yanada oshirishga zamin yaratadi.



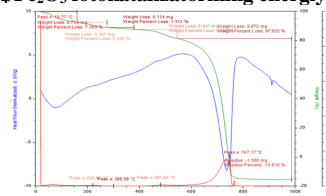
3-rasm. O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ fotokatalizatorida elementlarning tarqalish xaritalari

Barcha elementlar kompozit tarkibida (azot, uglerod, kislorod, temir, xlor) bir tekisda tarqalgan.

Quyida 4-rasmda kompozitning element tahlili keltirildi. Unga ko'ra kompozit tarkibida 21,57% C, 66,14%N, 11,91% O, 0,26% Cl, 0,12% Fe elementlari borligi aniqlandi. Element tahlili natijasidan ma'lum bo'ladiki, kompozit tarkibiga kislorod elementi dopirlangan hamda temir oksidi bilan grafitimon uglerod nitridi kompoziti hosil bo'lgan. Kompozit tarkibida xlor atomiga xos signalning paydo bo'lgani esa dastlabki prekursor FeCl₃ dan kompozit tarkibiga dopirlanganini ko'rsatadi.



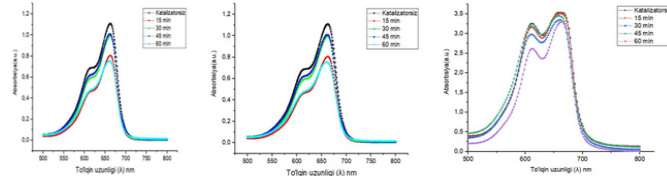
4-rasm. O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ fotokatalizatorining energiya dispersion spektri



5-rasm. Kompozit fotokatalizatorning termogravimetrik va skanerlovchi differensial kalorimetrik tahlili natijalari

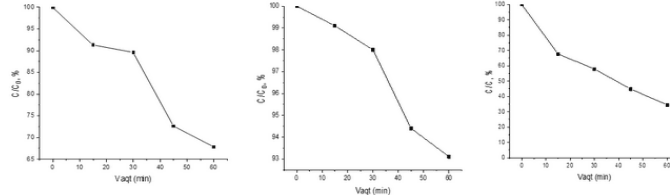
Olingan kompozit birikmaning termik barqarorligini aniqlash maqsadida termogrametriya va skanerlovchi differensial kalorimetriya tadqiqotlari o'tkazildi [6]. Tadqiqotlar 20°C dan 1000°C gacha bo'lgan harorat oraliq'ida amalga oshirildi. Dastlab 100-140°C oraliq'ida 7,4 % massa yo'qotilgan. Ushbu yo'qotish namunaning namligi va kristallizatsion suvlarning chiqib ketishi bilan izohlanib, keng yelkali endoeffekt bilan birgalikda sodir bo'ladi. Navbatdagi kichik massa yo'qotilishi (1,313%) 450-500°C oraliq'ida kuzatilib, u sezgarsiz termik destruksiya bilan tushuntiriladi. 580-700°C oraliq'idagi o'zgarishlar metall oksidlarining hosil bo'lishi bilan bog'liq. Bu oraliqda parchalanishning miqdori 6,296%

ni tashkil etadi. 700°C haroratda namunaning organik qismining deyarli batamom termik parchalanishi hamda metall oksidining suyuqlanishi kuzatiladi. Termogrammada 700°C dan keyin deyarli o'zgarish kuzatilmaydi.



6-rasm. O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ ishtirokida MK ning quyosh nuri ta'sirida fotodegradatsiyasining vaqtga bog'liqligi. C_{MK}=10 mg/l (a), 20 mg/l (b), 30 mg/l (s), m_{komp}=10 mg.

Kompozitning quyosh nuri ta'siridagi fotokatalitik faolligi turli konsentratsiyali metilen ko'kiga (MK) nisbatan aniqlandi (5-rasm). MK konsentratsiyaning o'zgarishi spektrofotometrik usulda aniqlandi [5].



7-rasm. O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ ishtirokida MK ning quyosh nuri ta'sirida fotodegradatsiyasi kinetikasi. C_{MK}=10 mg/l (a), 20 mg/l (b), 30 mg/l (s), m_{komp}=10 mg.

Tadqiqotlarning ko'rsatishicha, O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ ishtirokida 60 daqiq davomida quyosh nuri ta'sirida 10, 20 va 30 mg/l konsentratsiyali MK ning destruksiyanish darajasi mos ravishda 65, 35% va 10% ni tashkil etadi.

Xulosa. Shunda qilib, melamin asosida olingan kislorod bilan dopirlangan grafitimon nitridi (O-g-C₃N₄) ni Fe₂O₃ bilan modifikatsiyalanib, yangi tarkibli O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ kompoziti sintez qilindi. O-g-C₃N₄/Fe₂O₃ kompozitining tarkibi va tuzilish xususiyatlari zamonaviy fizik-kimyoviy tadqiqot usullari yordamida tadqiq etildi. Yangi sintez qilingan kompozit fotokatalizator ko'rinadigan yorug'lik nurida fotokatalitik faollikka ega ekanligi ko'rsatib berildi.

ADABIYOTLAR

1. B.Dianna, H. Uresti, A.Juan, A.Martinez. Photocatalytic degradation of RhB with microwave-prepared PbMoO₄. J. Microw. Power Electromagn. Energy, 46(2012). p.163
2. Hong J., Xia X., Wang Y., Xu, R. Mesoporous carbon nitride with in situ sulfur doping for enhanced photocatalytic hydrogen evolution from water under visible light// J.Mater. Chem 2012, 22,15006-15012.
3. Ding Z.,Chen, X., Antonietti V., Wang X. Synthesis of Transition Metal Modified Carbon Nitride Polymers for Selective Hydrocarbon Oxidation// ChemSusChem 2011, 274-281.
4. А.Б. Богомолов, С.А.Кулаков, П.В. Зинин, В. А. Кутвицкий, М.Ф.Булатов. Получение флуоресцентных композитных материалов на основе графитоподобного нитрида углерода// Оптика и спектроскопия, 2020, том 128, вып. –С.910-913.
5. Sidrasuliyeva Г.Б., Kattayev Н.Т., Akbarov Х.И. Синтез наноразмерного графитоподобного нитрида углерода g-O-C₃N_x//Universum: химия и биология. –Москва, 2021.-№12 (90).-С.84-88.
6. Bakhromova I.A, Kattaev N.T., Akbarov Kh.I., Sidrasulieva G.B. Oxygen doped graphitic carbon nitride photocatalysts: physical-chemical and photocatalytic properties//Eur. Chem. Bull. 2023,12(3), p.1794-1804.