АННОТАЦИЯ

«8D05301 – Химия» білім беру бағдарламасы бойынша философия докторы (PhD) ғылыми дәрежесін алу үшін ұсынылған Түгелбай Сапарбектің «Күміс фосфаты нанокомпозиттерінің механохимиялық синтезі және олардың фотокаталитикалық және антибактериалдық қасиеттері» тақырыбындағы диссертациялық жұмысына

Диссертациялық жұмыс Қазақстан Республикасы Ғылым және жоғары білім министрінің 09.01.2023 жылғы № 7 бұйрығымен бекітілген ғылыми дәрежелерді беру қағидаларының 5-1-тармағының талаптарына сәйкес докторант жариялаған мақалалар топтамасы түрінде ұсынылған.

Жұмыстың жалпы сипаттамасы

Зерттеу органикалық және микробиологиялық ластаушы заттардан суды тазалауға арналған жоғары фотокаталитикалық және жарыққа сезімтал антибактериалдық белсенділікке ие күміс фосфаты мен күміс галогенидтерінің нанобөлшектерін, сондай-ақ Ag_3PO_4/AgCl нанокомпозиттерін механохимиялық синтездеуге бағытталған.

Зерттеудің өзектілігі

Су нысандарының тұрақты органикалық қосылыстармен және патогенді микроағзалармен ластануы маңызды экологиялық және әлеуметтік мәселе болып табылады, өйткені мұндай ластағыштар, оның ішінде нитрофуран тобының антибиотиктері (фурацилин и фурагин), су ортасында ұзақ уақыт сақталып, микроағзалардың антибиотиктерге төзімділігін қалыптастырып, адам денсаулығына тікелей қауіп төндіреді. Суды тазалаудың дәстүрлі әдістері бұл заттарды толық ыдыратуды қамтамасыз ете алмайды, сондықтан оларды тиімді жоюға арналған функционалды материалдарды әзірлеу қажеттілігі туындайды. Соңғы жылдары фотокаталитикалық наноматериалдарды зерттеу қарқынды дамып келеді, алайда көпшілік фотокатализаторлар (TiO_2, ZnO және т.б.) көрінетін жарықта төмен белсенділік көрсетеді, заряд тасымалдаушылардың жылдам рекомбинациясына және ұзақ мерзімді тұрақтылықтың шектеулі болуына ұшырайды. Осы тұрғыдан алғанда, күміс фосфаты (Ag_3PO_4) көрінетін жарықта белсенді, реактивті оттек түрлерін генерациялау арқылы тұрақты органикалық ластағыштарды тиімді ыдыратын перспективалы фотокатализатор ретінде ерекше назар аударады.

Тақырыптың зерттелу деңгейі

Перспективті қосылыстарға күміс фосфаттары мен күміс галогенидтеріне негізделген фотокаталитикалық материалдар жатады. Күміс фосфаты (Ag_3PO_4) тар тыйым салынған аймақ еніне (2,41 эВ) және көрінетін жарық әсерінен белсенді оттек формаларын түзу қабілетіне ие, бұл оны тиімді фотокатализатор және антибактериалдық агент етеді. Сонымен қатар, Ag_3PO_4 пен күміс галогенидтері негізіндегі нанокомпозиттерді құру тұрақтылықты және функционалдық сипаттамаларды жақсартудың перспективалы тәсілі болып табылады. Нанокомпозиттерді алудың қолданыстағы әдістері (гидротермиялық әдіс, қоса-тұндыру әдісі және т.б.) айтарлықтай уақыт пен энергия шығындарын талап етеді және әрқашан үлкен көлемде нанокомпозиттер алуға қолайлы бола бермейді. Реагенттердің қарқынды ұнтақтау жағдайындағы қатты фазалық өзара әрекеттесуіне негізделген механохимиялық синтез экологиялық таза, энергия үнемдейтін және үлкен көлемде наноқұрылымды ұнтақтарды алудың оңтайлы әдісі болып табылады. Алайда Ag_3PO_4 нанобөлшектері мен күміс галогенидтерін механохимиялық синтездеу туралы мәліметтер шектеулі (Nobuya Machida et al.). Сонымен қатар, қазіргі зерттеулерде күміс фосфаты мен күміс галогенидтеріне негізделген, атап айтқанда фотокаталитикалық тұрақтылықты, заряд тасымалдаудың жоғары тиімділігін және айқын антибактериалдық белсенділікті үйлестіре алатын Ag_3PO_4/AgCl гибридті нанокомпозиттерін әзірлеуге жеткілікті көңіл бөлінбеген. Әсіресе көрінетін жарық әсерінен Ag_3PO_4/AgCl нанокомпозиттерінің жарықпен ынталандырылған антибактериалдық белсенділігіне арналған жұмыстар өте аз.

Зерттеудің мақсаты

Зерттеудің мақсаты – механохимиялық әдіс арқылы күміс фосфатына негізделген нанобөлшектер мен нанокомпозиттер алу және олардың фотокаталитикалық және антибактериалдық белсенділігін зерттеу.

Қойылған мақсатқа жету үшін келесі міндеттер айқындалды:

1. Планетарлық шарлы диірменде күміс фосфатының (Ag_3PO_4) және күміс галогенидтерінің (AgCl, AgBr, AgI) нанобөлшектерін механохимиялық синтездеу.
2. Алынған Ag_3PO_4, AgCl, AgBr және AgI нанобөлшектерінің тұрақты органикалық ластаушы заттардың (фурацилин және фурагин) ыдырауындағы фотокаталитикалық қасиеттерін бағалау.
3. Ag_3PO_4 негізіндегі нанокомпозиттердің жарыққа сезімтал антибактериалдық белсенділігі бойынша зерттеулерді жүйелеу және сыни талдау жүргізу.
4. Ag_3PO_4/AgCl гетероқұрылымды нанокомпозиттерін механохимиялық синтездеу.
5. Ag_3PO_4/AgCl нанокомпозиттеріндегі компоненттер арақатынасының фотокаталитикалық белсенділікке әсерін зерттеу және органикалық қосылыстардың ыдырауының ең жоғары тиімділігін қамтамасыз ететін оңтайлы құрамды анықтау.
6. Ag_3PO_4 негізіндегі алынған нанобөлшектер мен нанокомпозиттердің тест-бактериялық штамдарға қатысты антибактериалдық белсенділігін бағалау.
7. Ag_3PO_4/AgCl нанокомпозиттерінің жарықпен ынталандырылған антибактериалдық белсенділігін анықтау.

Зерттеу объектісі

Күміс фосфатының (Ag_3PO_4) нанобөлшектері, күміс галогенидтері (AgCl, AgBr, AgI) және Ag_3PO_4/AgCl гибридті нанокомпозиттері.

Зерттеу пәні – күміс фосфаты мен күміс галогенидтері негізіндегі алынған наноматериалдардың физика-химиялық, фотокаталитикалық және антибактериалдық қасиеттері.

Зерттеу әдістері

Механохимиялық синтез планетарлық шарлы диірменде жүргізілді. Алынған материалдардың құрылымдық және морфологиялық сипаттамалары рентгендік дифракция (XRD), рентгендік фотоэлектрондық спектроскопия (XPS), раман спектроскопиясы, сканерлеуші электрондық микроскопия (SEM), просвечиваушы электрондық микроскопия (TEM), энергодисперсиялық спектроскопия (EDS), ультракүлгін–көрінетін спектроскопия (UV–Vis) және фотолюминесценция (PL) әдістерін қолдану арқылы зерттелді. Антибактериалдық белсенділік E. coli, S. aureus, P. aeruginosa және Candida albicans модельдік микроорганизмдеріне қатысты анықталды. Фотокаталитикалық белсенділік көрінетін жарық әсерінде тұрақты органикалық ластаушы заттардың, атап айтқанда нитрофуран қатарының антибиотиктерінің (фурагин және фурацилин) және органикалық бояғыштың (метилен көгі) ыдырау процестері бойынша бағаланды.

Диссертациялық зерттеудің ғылыми жаңалығы

Диссертацияда Ag_3PO_4 және AgCl нанобөлшектерінің көрінетін жарық әсерінен жоғары фотокаталитикалық белсенділік көрсететінін дәлелдейтін эксперименттік деректер алынған, бұл су ерітінділерінде фурацилин және фурагин антибиотиктерінің тиімді ыдырауымен сипатталады. Алғаш рет Ag_3PO_4/AgCl нанокомпозиттері механохимиялық әдіспен синтезделіп, сондай-ақ Pseudomonas aeruginosa ATCC 9027 және Escherichia coli ATCC 8739 штамдарына қатысты олардың жарыққа сезімтал антибактериалдық белсенділігі алғаш рет анықталды.

Диссертациялық зерттеудің ғылыми жаңалығы қорғауға ұсынылатын келесі негізгі қағидалармен айқындалады:

1. Зерттелген күміс галогенидтері мен күміс фосфатының нанобөлшектері арасында көрінетін жарық аймағында фурагинге қатысты ең жоғары фотокаталитикалық белсенділікті AgCl, ал фурацилинге қатысты ең жоғары белсенділікті Ag_3PO_4 көрсетеді.

2. Планетарлық шарлы диірменде 400 айн/мин жылдамдықта 30 минут бойы қатты сұйылтқыштың (натрий нитраты) қатысуымен прекурсорларды (күміс нитраты, натрий фосфаты және натрий хлориді) механохимиялық активтендіру Ag_3PO_4/AgCl құрамды нанокомпозиттердің түзілуіне әкеледі.

3. Құрамы Ag_3PO_4/AgCl (75:25) болатын нанокомпозиттер Pseudomonas aeruginosa ATCC 9027 және Escherichia coli ATCC 8739 штамдарына қатысты жарықпен ынталандырылған антибактериалдық белсенділік көрсетеді.

Ғылыми нәтижелер:

«Scalable synthesis of AgX (Cl, Br, I, PO_4) nanophotocatalysts for efficient visible-light degradation of persistent antibiotics from aqueous environments» атты **бірінші мақалада** күміс фосфатының (Ag_3PO_4) және күміс галогенидтерінің (AgCl, AgBr, AgI) нанобөлшектері планетарлық шарлы диірменді пайдалана отырып механохимиялық әдіспен алынды. Алынған нанобөлшектер негізінен сфералық морфологияға ие, бұл ретте күміс фосфатының бөлшек өлшемі 300 нм-ден төмен, ал күміс галогенидтерінің (AgCl, AgBr, AgI) өлшемі шамамен 1 мкм құрайды.Көрінетін жарық әсеріндегі фотокаталитикалық зерттеулер синтезделген Ag_3PO_4 және AgCl нанобөлшектерінің тұрақты антибиотиктер - фурацилин мен фурагинді тиімді ыдыратынын көрсетті; бастапқы концентрациясы 10 мг/л болған жағдайда 90 минут ішінде ластаушы заттардың елеулі деградациясына қол жеткізілді. AgCl фурацилинді ~90% ($k = 0{,}020$ мин$^{-1} \pm 0{,}005$), ал фурагинді ~99% ($k = 0{,}060$ мин$^{-1} \pm 0{,}005$) ыдыратады. Ag_3PO_4 фурацилинді ~97% ($k = 0{,}037$ мин$^{-1} \pm 0{,}005$), ал фурагинді ~95% ($k = 0{,}035$ мин$^{-1} \pm 0{,}005$) ыдыратады.

«Ag_3PO_4-based composites as next-generation antibacterial nanomaterials: A review of light-induced synergistic effects» атты **екінші мақалада** күміс фосфатына (Ag_3PO_4) негізделген нанокомпозиттердің жарыққа сезімтал антибактериалдық белсенділігі туралы деректер алғаш рет шолу-зерттеу форматында жүйеленді. Жұмыста реактивті оттек формаларының (ROS) түзілуі мен Ag^+ иондарының рөлін қамтитын антибактериалдық әсер ету механизмдері жан-жақты талданды, бұл ғылыми зерттеулердегі бар олқылықтарды толықтыруға мүмкіндік берді. Алынған нәтижелер медицина, биоматериалдарды әзірлеу және экологиялық қауіпсіз технологияларды жасау үшін маңызды қолданбалы мәнге ие.

«Enhanced photocatalytic antibacterial Ag_3PO_4/AgCl nanocomposites for water purification from organic and microbial contaminants» атты **үшінші мақалада** гибридті Ag_3PO_4/AgCl нанокомпозиттері механохимиялық әдіспен алғаш рет синтезделді. Ag_3PO_4/AgCl нанокомпозиттерінде тұрақты фазаралық контакттың түзілуі анықталып, ол просвечиваушы электрондық микроскопия әдістерімен дәлелденді. Фазааралық өзара әрекеттесу термиялық қасиеттердің өзгеруіне әкеледі: зерттелген барлық нанокомпозит құрамдары үшін балқу және кристалдану температурасы шамамен 376 °C құрайды. Алынған нанокомпозиттердің органикалық ластаушы заттарды бір мезгілде ыдырату және бактериялардың өсуін тежеу қабілеті бағаланды. Зерттелген Ag_3PO_4, AgCl нанобөлшектері мен Ag_3PO_4/AgCl нанокомпозиттерінің ішінде Ag_3PO_4/AgCl (75:25) нанокомпозиті көрінетін жарықта ең жоғары фотокаталитикалық белсенділік көрсетті. Органикалық бояғыштың деградация жылдамдығының константасы Ag_3PO_4-пен салыстырғанда екі есе, ал AgCl-мен салыстырғанда төрт есе жоғары болды. Ag_3PO_4/AgCl (75:25) үшін метилен көгінің ыдырау дәрежесі 3 сағатта 98%-ға жетті ($k = 0{,}021$ мин$^{-1} \pm 0{,}005$). Зерттелген барлық Ag_3PO_4 және AgCl нанобөлшектері мен Ag_3PO_4/AgCl нанокомпозиттері арасында ең айқын және тұрақты антибактериалдық әрі фунгицидтік белсенділікті Ag_3PO_4/AgCl (75:25) нанокомпозиті көрсетті. Ag_3PO_4/AgCl (75:25) нанокомпозиті Pseudomonas aeruginosa ATCC 9027 және Escherichia coli ATCC 8739 штамдарына қатысты айқын жарықпен ынталандырылған антибактериалдық белсенділік танытады.

Төртінші мақалада «Visible-light-responsive Ag_3PO_4-based photocatalysts for water treatment and wastewater remediation: Advances, challenges, and future directions» көрінетін жарық әсерінде суды тазалауға арналған Ag_3PO_4 негізіндегі заманауи фотокаталитикалық материалдарға жүйелі талдау жүргізілді. Алғаш рет Ag_3PO_4-тың әртүрлі ластағыштар

класына (бояғыштар, антибиотиктер, фармацевтикалық препараттар, пестицидтер және микропластиктер) қатысты фотокаталитикалық тиімділігі нақты су жүйелерінің жағдайларын ескере отырып кешенді түрде салыстырылды. Заряд тасымалы, реактивті оттек түрлерінің түзілуі және Ag^+ фотокоррозиясы сияқты негізгі фотокаталитикалық механизмдер талданып, гетероқұрылымдардың (Ag_3PO_4/g-C_3N_4, Ag_3PO_4/TiO_2 және т.б.) материалдың белсенділігі мен тұрақтылығын арттырудағы тиімділігі көрсетілді. Алынған нәтижелер тұрақты және масштабталатын су тазалау технологияларын әзірлеудің ғылыми негізін қалыптастырады.

Жұмыстың теориялық және практикалық маңыздылығы

Зерттеудің теориялық маңыздылығы күміс фосфатына негізделген нанобөлшектер мен нанокомпозиттердің фотокаталитикалық және антибактериалдық белсенділігі туралы ғылыми түсініктерді дамытуда көрініс табады. Ag_3PO_4 нанобөлшектері мен күміс галогенидтері (AgCl, AgBr, AgI) арқылы нитрофурандардың ыдырау механизмінің сызбасы ұсынылып, валенттік аймақтағы тесіктер мен супероксид радикалдарының шешуші рөлі айқындалды. Алғаш рет Ag_3PO_4 нанобөлшектері мен Ag_3PO_4/AgCl нанокомпозиттері жүйеленіп, эксперименттік тұрғыда зерттелді, сондай-ақ көрінетін жарық әсерінде органикалық ластаушы заттардың ыдырау тиімділігіне фазааралық өзара әрекеттесудің әсері және реактивті оттек формаларының (ROS) мен Ag^+ иондарының түзілуі арқылы жүзеге асатын жарықпен ынталандырылған антибактериалдық әсер механизмдері жөнінде жаңа деректер алынды.

Практикалық маңыздылығы күміс фосфаты мен күміс галогенидтері негізіндегі, сондай-ақ олардың композиттері түріндегі жоғары фотокаталитикалық және антибактериалдық белсенділікке ие наноматериалдарды синтездеудің экологиялық таза және масштабталатын механохимиялық әдісін әзірлеумен айқындалады. Алынған материалдар ағынды және табиғи суларды тазалауда, антимикробтық жабындар, сүзгілеу жүйелері және биомедициналық технологияларды әзірлеуде перспективалы болып табылады.

Зерттеудің практикалық нәтижелерін апробациялау

Зерттеудің негізгі нәтижелері келесі конференцияларда баяндалды:

1. студенттер мен жас ғалымдардың халықаралық ғылыми конференциясында «INESS, 13th Int. Conf. on Nanomaterials & Advanced Energy Storage Systems», Астана, Қазақстан, 2025 ж. 06–08 тамыз;
2. «245th The Electrochemical Society (ECS Meeting)» халықаралық ғылыми конференциясында, Сан-Франциско, АҚШ, 2024 ж. 24 мамыр – 2 маусым;
3. «11th International Congress on Energy Efficiency and Energy Related Materials (ENEFM)» халықаралық ғылыми конференциясында, Өлюдениз, Муғла, Түркия, 2025 ж. 21–27 қазан;
4. «48th World Conference on Applied Science, Engineering & Technology (WCASET)» халықаралық ғылыми конференциясында, Куала-Лумпур, Малайзия, 2025 ж. 17–18 қараша.

Зерттеудегі жарияланымдар және автордың жеке үлесі

Зерттеу нәтижелері бойынша төрт ғылыми мақала жарияланды.

***Tugelbay, S.,** Volobuyeva, V., Abilkhan, A., Tatykayev, B. Scalable synthesis of AgX (Cl, Br, I, PO_4) nanophotocatalysts for efficient visible-light degradation of persistent antibiotics from aqueous environments. J. Photochem. Photobiol. A: Chem. 472 (2026) 116748. https://doi.org/10.1016/j.jphotochem.2025.116748 . Journal of Photochemistry & Photobiology A: Chemistry, журналдың импакт-факторы - 4,7, WoS квартилі - Q2, Scopus перцентилі - 85%. Бұл жұмыста докторант бірінші автор ретінде қатысып, зерттеуге негізгі үлес қосты: зерттеу тұжырымдамасы мен идеясын қалыптастырды, күміс галогенидтері мен күміс фосфатын механохимиялық синтездеді, құрылымдық зерттеулер жүргізді (XRD, Raman, SEM, TEM, UV–Vis), антибиотиктердің деградациясын эксперименттік тұрғыда зерттеді, алынған нәтижелерді талдады және қолжазбаны жариялауға дайындады.

***Tugelbay, S.,** Yergaliuly, G., Abilkhan, A., Khan, N., Tatykayev, B. Ag_3PO_4-based composites as next-generation antibacterial nanomaterials: A review of light-induced synergistic effects. Chem. Eng. J. 522 (2025) 167818. https://doi.org/10.1016/j.cej.2025.167818 . Chemical Engineering Journal; журналдың импакт-факторы - 13,2, WoS квартилі - Q1, Scopus перцентилі - 97%. Аталған жұмыста докторант бірінші автор ретінде ғылыми идеяны ұсынды, қолжазбаның құрылымын әзірледі, әдеби деректерді жинап, талдады, фотокаталитикалық және антибактериалдық механизмдерге салыстырмалы талдау жүргізді, мақала мәтінін жазды және оны редакциялау үдерісін жүзеге асырды.

Tugelbay, S., Shalabayev, Z., Khan, N., Mukhanbetzhanov, N., Jumagaziyeva, A., Sultanov, F., Kozhakhmetov, S., Kushugulova, A., Shevelkov, A.V., Mucsi, G., Tatykayeva, U., Daniyeva, N., Burkitbayev, M., *Tatykayev, B. Enhanced photocatalytic antibacterial Ag_3PO_4/AgCl nanocomposites for water purification from organic and microbial contaminants. J. Environ. Chem. Eng. 13 (2025) 118753. https://doi.org/10.1016/j.jece.2025.118753 . Journal of Environmental Chemical Engineering; журналдың импакт-факторы - 7,2, WoS квартилі - Q1, Scopus перцентилі - 95%. Докторант планетарлық шарлы диірменді қолдана отырып Ag_3PO_4/AgCl нанокомпозиттерін синтездеу хаттамасын әзірлеуге белсенді қатысты және олардың фотокаталитикалық белсенділігін кешенді түрде зерттеді.

***Tugelbay, S.,** Bakbolat, B. Visible-light-responsive Ag_3PO_4-based photocatalysts for water treatment and wastewater remediation: Advances, challenges, and future directions. J. Environ. Chem. Eng. 13 (2025) 120339. https://doi.org/10.1016/j.jece.2025.120339. Journal of Environmental Chemical Engineering; Импакт-фактор - 7.2, WoS квартилі - Q1, Scopus перцентилі - 95%.Бұл жұмыста докторант бірінші автор ретінде ғылыми шолудың тұжырымдамасы мен құрылымын ұсынды, заманауи әдебиеттерді жүйелі жинақтап, сындарлы талдау жүргізді, Ag_3PO_4 негізіндегі материалдардың фотокаталитикалық механизмдері мен қасиеттеріне кешенді салыстырмалы талдау жасады, негізгі ғылыми иллюстрациялар мен кестелерді әзірледі, қолжазбаның негізгі мәтінін жазды және мақаланы ғылыми редакциялау мен жариялауға толық дайындау үдерісін жүзеге асырды.

Түгелбай Сапарбек барлық төрт жарияланған мақаланың бірінші авторы және олардың үшеуінің корреспонденттік авторы болып табылады. Оның ғылыми үлесіне зерттеу тұжырымдамасын қалыптастыру, наноқұрылымдардың синтезін әзірлеу және іске асыру, эксперименттерді жоспарлау және орындау, алынған деректерді терең талдау және ғылыми жарияланымдарды дайындау кіреді.

Жұмыстың мемлекеттік ғылыми бағдарламалармен байланысы

– Қазақстан Республикасы Ғылым және жоғары білім министрлігінің 2025–2027 жылдарға арналған ғылыми және (немесе) ғылыми-техникалық жобалар бойынша гранттық қаржыландыруы: «Усовершенствованные нанокомпозиты на основе Ag_3PO_4 с фотокаталитической и фотоусиленной антибактериальной активностью» ИРН AP26198675;

– Қазақстан Республикасы Ғылым және жоғары білім министрлігінің 2022–2024 жылдарға арналған ғылыми және (немесе) ғылыми-техникалық жобалар бойынша гранттық қаржыландыруы: «Фотокатализаторы на основе g-C_3N_4 и сульфидов металлов: твердофазный синтез и производительность генерации водорода» ИРН AP13068426;

– Қазақстан Республикасы Ғылым және жоғары білім министрлігінің 2018–2020 жылдарға арналған ғылыми және (немесе) ғылыми-техникалық жобалар бойынша бағдарламалық-нысаналы қаржыландыруы: «Күкірт құрамдас жаңа нанокомпозиттер мен препараттарды өндіру технологияларын әзірлеу және сынау», ИРН BR05234566